

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：

**新規抽出剤・吸着剤によるTRU・FP分離の要素技術開発**

（独立行政法人 日本原子力研究開発機構）

機関名：独立行政法人日本原子力研究開発機構 代表者氏名：木村貴海  
 機関名：公立大学法人北九州市立大学（再委託先） 代表者氏名：吉塚和治  
 機関名：国立大学法人東京大学（再委託先） 代表者氏名：藤田豊久  
 （機関名：財団法人産業創造研究所（再委託先） 代表者氏名：倉岡悦周（平成17, 18年度））

研究期間及び予算額：平成17年度～平成21年度（5年計画） 856,406千円

平成 17 年度	62,033 千円
平成 18 年度	224,731 千円
平成 19 年度	203,981 千円
平成 20 年度	184,480 千円
平成 21 年度	181,181 千円

項目	内容
1. 目的・目標	<p>FBR 燃料に対応できる経済的で、長寿命核種の核変換及び廃棄物処分場の負担軽減も可能な分離プロセス構築を目指した技術開発を行う。具体的には、(1) 超ウラン元素(TRU)分離要素技術開発として、研究代表者らが開発を進めてきた抽出剤テトラオクチルジグリコールアミド(TODGA)をさらに高性能化し、全ての TRU を分離回収する。さらに、マイナーアクチノイド(MA)の処分法の1つである核変換に対応して、独自に開発してきた抽出剤であるピリジンアミド(PDA)などの配位子を含有する新規吸着剤により MA を分離精製する。また、新規抽出剤の開発を支援するために計算化学的手法を改良する。(2)核分裂生成物(FP)分離要素技術開発として、近年開発された Cs・Sr に対し高い選択性を有するカリックスクラウン誘導体やクラウンエーテルを含有する新規シリカ担持型吸着剤、及び新規 Fe・Pb 化合物吸着剤を用いるカラム分離法により、Cs、Sr、及び Mo を効率よく分離回収する。最後に、(3)開発した各要素技術の性能を評価した後、それらで構成した分離システムを提示し、様々な再処理システムへの適合性、有用性等を総合評価する。</p> <p>本事業では、以下の研究開発項目を実施する。</p> <p>(1) TRU 分離要素技術開発</p> <p>① 全 TRU 分離技術開発</p> <p><u>抽出剤開発：</u></p> <p>TODGA よりも抽出容量の大きな新規抽出剤を開発するために、DGA の主骨格を維持して置換基の部分を系統的に変えた DGA 化合物及びその関連化合物を合成する。合成して得られた化合物の融点・沸点、水相・有機相への溶解度など基礎物性データを取得するとともに、その安定性を評価し、抽出剤としての性能を総合的に検討する。</p> <p><u>分離基礎試験及び多段抽出試験：</u></p> <p>上記で得られる多数の DGA 化合物について、TRU 及び FP の分配比を測定するとともに、金属イオンの抽出容量、第三相生成条件など抽出分</p>

離性能を明らかにする。以上により、抽出剤としての性能を総合的に評価し、実用に最も適した DGA 化合物を提案する。併せて、TRU の酸化還元条件、TRU の一括抽出条件、及び原子価別の選択逆抽出条件を探索する。これらの結果を基に多段分離試験を行い、TRU 及び FP の分離挙動を評価して全 TRU 分離の最適条件を確立する。

## ② MA/Ln 分離技術開発

### 吸着剤開発：

全 TRU 分離で検討する DGA 化合物と同様に、窒素-酸素ハイブリッドドナー抽出剤 PDA についても置換基を系統的に導入することで抽出剤の最適化を行う。これらの抽出剤の含浸に際して、担体からの抽出剤溶出を最小限にするためのクロマト担体側の最適化を行う。

### 分離基礎試験及びカラム分離試験：

上記で得られた吸着剤を用いて、バッチ法により MA 及び Ln の分配データを取得し、分離性能を評価するとともに、分離条件の最適化を行う。得られた分離条件を基にカラム分離実験を行い、性能を確認する。各段階での特性評価を考慮し、評価解析のための吸着容量試験データを取得する。これらを総合して、MA/Ln 分離の最適条件を確立する。

## ③ 計算化学的評価

### 抽出剤設計：

MA 分離用抽出剤の改良研究の一環として、DGA 骨格もしくは他のアミド系抽出剤骨格に結合させる置換基を分子力学法により構造最適化し、合成すべき DGA 系抽出剤を選定する。この分子力学計算のためには、Gaussian、ADF 等の非経験的な分子軌道計算法による基礎的な電子状態に関する情報が不可欠であるため、これら非経験的分子軌道法による MA 錯体に関する計算も並行して進める。

### 抽出分離シミュレーション：

MA 錯体の溶媒内での安定性を予測する一つの手法として、液液界面での MA 錯体の動的挙動を計算する分子動力学法の改良研究を進める。この研究の過程で、MA 錯体の抽出挙動に及ぼす溶媒効果などを見積ることが可能となるほか、今後の MA 抽出剤開発の強力な評価手法となる。これら MA 錯体の分子力学計算、分子動力学計算、及び分子軌道計算を組み合わせることにより、合成すべき新規抽出剤の開発を支援する。

## (2) FP 分離要素技術開発

### ① Cs・Sr 分離技術開発

#### 吸着剤開発：

大環状化合物を担持吸着剤として繰り返し使用するには吸着・溶離過程で担体からの抽出剤溶出を最小限に押さえる必要がある。本研究では水相への溶解度を最小化するための抽出剤分子構造の最適化検討・改良を行う。また、実用条件を想定した  $\gamma$  線等の照射による劣化挙動を測定評価するとともに、劣化メカニズムを解明して耐久性向上に資する吸着剤の構造改良を行う。

#### 分離基礎試験及び放射性元素影響評価試験：

使用済燃料(SF)溶解液に共存する種々の FP、U、及び TRU の吸着挙動を測定し、吸着機構を明らかにする。また、U と FP を含む模擬 SF 溶解液を用いる分離基礎試験、TRU などの影響評価試験及び実際の SF 溶解液を用いる実溶液試験をそれぞれ実施し、共存元素の影響を把握するとともに最適な分離条件を確立する。

	<p>② Mo 分離技術開発  <u>吸着剤開発</u>：  これまでの基礎研究では、Fe・Pb 化合物吸着剤は吸着試験時に溶液の酸性度が高くなるとともに、吸着剤成分 Pb の溶出量が増加する傾向を示した。これを抑制するための合成方法や Fe 吸着剤及び関連物質の組成・構造の改善を行う。また、吸着剤の安定性（耐硝酸）の試験評価を行い、耐久性向上に資する吸着剤の改良を進める。なお、平成 20 年度より、炭素質吸着剤の研究開発も追加した。</p> <p><u>分離基礎試験及び放射性元素影響評価試験</u>：  Mo 及び SF 溶解液中の種々共存元素の吸着挙動を測定評価すると共に、U や FP を含有する模擬 SF 溶液を用いる分離性能評価試験を行う。また、TRU などの影響評価試験を実施し、放射性共存元素の影響を定量的に把握し、最適な分離条件を見出す。</p> <p>(3) 総合評価  <u>各要素技術の性能評価及び分離システムの構築</u>：  上記の各要素技術開発において得られた成果を基に性能評価を行うとともに、これらの要素技術によって構成される最適な分離システム構築の検討を進め、実プラント化を目指して物質収支、プロセスフローダイアグラム等の検討を行う。</p> <p><u>プラント概念構築及び導入効果評価</u>：  上記の検討結果を元に、適合する再処理システムとあわせたプラント概念の検討を行う。これによって、必要装置・機器仕様、所要ユーティリティ等の設計概念を明らかにし、導入効果評価に必要な情報を整理する。本概念の導入効果については、適宜比較対象とするレファレンスシナリオを検討、設定し、比較評価を行う。</p> <p>以上のように、一連の要素技術の性能評価、分離システム構築、プラント概念設計研究、導入効果評価を行うことにより、各要素技術の核燃料サイクルへの導入の意義及び関連技術の開発の方向性を得て、今後の実用化や技術的波及効果への寄与を総合評価する。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 成果</li> <li>・ 副次的な成果</li> <li>・ 論文、特許等</li> </ul>	<p><b>【研究開発項目 1】</b> (1) TRU 分離要素技術開発 ①全 TRU 分離技術開発（当初予定していなかったが副次的に（あるいは発展的に）得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。）</p> <p><u>抽出剤開発</u>：  合成法調査に基づき、TODGA よりも高性能な新規抽出剤の開発を目的として、新規ジグリコールアミド(DGA)8 種類及び関連するアミド化合物 6 種類の合成を行った。合成した化合物の融点、沸点及び <i>n</i>-ドデカンへの溶解性を測定評価するとともに、分離基礎試験の結果と併せ、多段抽出試験用の候補抽出剤として、3 種類の抽出溶媒を選定した（TODGA/<i>n</i>-ドデカン、TDdDGA(テトラドデシルジグリコールアミド)/<i>n</i>-ドデカンおよび TODGA+DHOA(ジヘキシルオクタアミド)/<i>n</i>-ドデカン)。さらに、これらの基礎特性試験を行い、誘電率、沸点・融点、密度、粘性、抽出容量、蒸気圧、耐酸性及び耐放射線性の項目から総合的に評価した結果、TDdDGA 抽出剤は混合溶媒も必要とせず、高い抽出容量(TODGA の約 5 倍)を持つことから、優れた抽出溶媒であることを明らかにした。</p> <p><u>分離基礎試験</u>：  新規に合成した上記化合物 14 種類の TRU の抽出特性として 0.1 M 化合物/<i>n</i>-ドデカンの抽出溶媒を用いて、0.1 M 及び 3 M 硝酸の条件で</p>

Am(III)、Pu(IV)等の TRU 及び U(VI)の抽出分配比の測定評価から、上記の3種類の抽出溶媒により全 TRU の一括抽出が可能であることを明らかにした。併せて、FP 元素等(Sr, Pd, Tc, Zr, Ba, La, Nd, Eu, Rb, Rh, Te, Cs, Fe, Cr, 及び Ni)の抽出分配比を測定評価した。3種類の抽出溶媒を用いた多段抽出試験のコールド試験の結果を受けて、多成分元素共存系における析出物(クラッド)の生成抑制条件及び Np(V)の還元条件を検討し、水相条件：0.1 M HEDTA-0.5 M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/1-3 M 硝酸が最適であることを明らかにした。

#### 多段抽出試験：

候補となる3種類の抽出溶媒による Nd(III)(MA 及び Ln の代表)、Pd(II)、Sr(II)、Zr(IV)(以上、FP の代表)を用いたコールド試験から、TDdDGA/*n*-ドデカンを抽出溶媒とする TRU(Am, Np)と FP 元素(Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Ba, La, Nd, Eu)を用いたホット試験まで計7回の試験を実施するとともに、シミュレーションによる試験条件の決定及び結果の解析を行った。有機相に 0.1M TDdDGA/*n*-ドデカン、供給液及び洗浄液に HEDTA と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を加える抽出系で、元素処理速度の大きい溶媒高負荷条件においても Zr 及び Pd 等の希土類元素以外の抽出を抑制し、抽出器の良好な運転状態のもとで Am 及び希土類元素を定量的に分離回収できることを示した。Np の抽出率は十分高い値ではなかったが、過酸化水素の追加添加で向上させることができると考えられる。さらに、過渡状態解析を含めシミュレーション解析は、試験結果をよく再現し、分離条件の決定、最適条件の決定に非常に有効な手段であることを明らかにした。

(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果)

新規に合成した化合物を用いた TRU と FP の分離基礎試験において、メチルイミノビスジオクチルアセトアミド(MIDOA)は Tc に高い抽出性能を持つことを見出し、この特異な抽出性能について特許を出願した。同様に、テトラオクチルジオキサオクタジアミド(DOODA)は DGA 化合物よりも分配比は低いものの MA に高い選択性を示すことを見出し、これを用いた「疎水性、親水性新規ジアミド化合物による MA 相互分離技術開発」を平成 22 年度原子力システム研究開発事業、基盤研究開発分野、革新技术創出型研究開発(核燃料サイクル技術)に採択された。

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

【研究開発項目 2】(1)TRU 分離要素技術開発 ②MA/Ln 分離技術開発  
(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

#### 吸着剤開発：

合成法調査に基づいて、アルキル鎖の異なる新規ピリジンアミド(PDA)化合物6種及び窒素ドナーを含む新規抽出剤3種を合成した。担体として XAD 樹脂6種、シリカゲル、ポリスチレンなどを組み合わせて、抽出クロマトグラフ用吸着剤を調製した。これらの吸着剤の抽出剤溶出試験の結果、炭素鎖が8、10のオクチル基及びデシル基を導入した PDA と XAD4 樹脂で調製した Oct-PDA 吸着剤及び Dec-PDA 吸着剤が含浸量も多く(1 mM/g(XAD4))、抽出剤の溶出も無視できることを明らかにした。さらに、これらの酸及び放射線に対する安定性、及び5M硝酸における繰り返し使用に対する安定性を Am(III)と Eu(III)の分配係数  $K_d$  の測定に

よる吸着性能及び分離性能から評価した結果、Oct-PDA 吸着剤が安定性に優れ最も実用性の高いことを見出した。

分離基礎試験：

吸着剤開発で調製した各種の吸着剤について、Am(III)と Eu(III)の  $K_d$  を測定することにより分離性能を評価した。XAD4 を担体とする吸着剤では、PDA のアルキル鎖の炭素数が 10 より大きいものでは、分離性能の低下が見られたものの、炭素数 8、10 の Oct-PDA 吸着剤及び Dec-PDA 吸着剤では、分離係数として 7 から 8 程度を示し、Am(III)の分離に十分な性能を有することを確認した。さらに Oct-PDA 吸着剤に対する TRU(Np, Pu, Cm)の  $K_d$ は 1-5 M 硝酸で、Np(IV)、Pu(IV) > Am(III)、Cm(III)であり、Am と Cm は軽 Ln(La-Gd)と分離できることを明らかにした。また、FP 元素のうち、Y、Pd、Zr、Mo、Ru などは、前工程で MA 及び Ln から分離することが望ましいことが分かった。

カラム分離試験：

上記で選定した Oct-PDA 吸着剤を用いてコールド試験及びホット試験を行った。コールド試験では、Eu(III)とともに Am(III)の代替元素として Dy(III)を用いて、カラム径、カラム長、溶離液酸濃度、溶離速度などの分離条件の最適化を行った。得られた最適条件(カラム内径 5 mm、カラム長 20 cm、溶離液 5 M 硝酸、溶離速度 0.1 ml/分)のもとで、Am(III)と軽 Ln(La, Nd, Eu)が分離できることを明らかにした。Np(IV)、Pu(IV)が共存した場合は、Am(III)を溶離後、0.1 M シュウ酸により全量回収することができた。さらに、装荷する Eu 濃度が分離に与える影響については、0.1 M の Eu(III)が共存しても Am(III)の分離性能に大きな影響を与えないことを明らかにした。以上により、分離条件の最適化が達成された。

(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果)

吸着剤からの抽出剤の溶出量について、長鎖のアルキル基を用いることにより想定以上の抑制効果があり、ほぼ溶出を抑えることが可能になった。また、耐放射線性、耐酸性についても、類似のジグリコールアミド系抽出剤と同程度の耐久性を想定していたが、それ以上の耐久性を見出し、実用性の高い吸着剤であることを明らかにした。

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

**【研究開発項目 3】(1)TRU 分離要素技術開発 ③計算化学的評価**

(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

抽出剤設計：

抽出剤構造最適化では、各種 DGA 系抽出剤及び新規ジアミド系抽出剤のドナー酸素原子上の電荷密度を半経験的分子軌道法により求め、抽出挙動との相関を調べた。その結果、マロンアミド系抽出剤と比較して DGA 系抽出剤のカルボニル酸素の電荷密度が大きく、配位能力が高くなることを明らかにした。抽出剤として DGA 及び PDA を対象とし、それぞれの量子化学計算を行い、Direct Force Field を用いて結合伸縮、変角、ねじれ角および非結合性相互作用パラメータなどの分子力場パラメータの構築に成功した。さらに、Am 及び Ln の DGA 錯体(以下、MDGA と表記)の分子力学計算を行い、分子構造を作成した。その結果、計算で得られた各種 MDGA 錯体の立体エネルギーとテトラメチル DGA-Ln の

カロリメトリー測定によって求められた結合定数及びエンタルピー変化量の間には良好な直線関係が得られ、計算値と実験値との間に定量的構造物性相関を見出すことに成功し、本研究で開発した分子力場パラメータを用いた計算法が、抽出分離シミュレーションに十分適用可能であることを実証した。

#### 抽出分離シミュレーション：

DGA、PDA 系の MA、Ln 抽出錯体について定量的構造物性相関法による検討を行った。上記抽出錯体の分子力場パラメータを用いて分子力学計算及び分子動力学計算を行った。具体的には、MOMEC 力場により精密な有機相 (*n*-ドデカン) - 水相二相界面ボックスを構築したのち、各種金属錯体 1 分子を有機相あるいは水相に挿入し、298 K での分子動力学計算を行い、内部エネルギー差 ( $\Delta U_{\text{org}}$  あるいは  $\Delta U_{\text{aq}}$ ) 及び各種 TODGA 金属錯体における溶媒分子との安定化エネルギー差 ( $\Delta\Delta U = \Delta U_{\text{org}} - \Delta U_{\text{aq}}$ ) を求めて実験値との相関を調査した。その結果、計算によって得られた金属錯体の安定化エネルギー差と実測された抽出分配比や吸着分配比との良好な直線的相関関係を見出した。この研究成果により、TODGA 金属錯体の分配比の推算に対して分子動力学計算を利用した定量的構造物性相関法が応用可能であることを明らかにし、本計算法により TODGA のみならず様々なジアミド系抽出剤を設計する手法を確立することに成功した。

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果)

特になし

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

#### **【研究開発項目 4】 (2)FP 分離要素技術開発 ①Cs・Sr 分離技術開発**

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

#### 吸着剤開発：

Cs・Sr 分離用大環状有機化合物吸着剤の調製では、Cs 抽出剤に Calix-crown R14 を、Sr 抽出剤に DtBuCH18C6 または DtHxCH18C6 を選定し、多孔性シリカ/ポリマー複合担体 ( $\text{SiO}_2\text{-P}$ ) へ担持するための改質剤の種類と抽出剤/改質剤比を変えて、組成の異なる多数の吸着剤を合成した。これら吸着剤の安定性を抽出剤や改質剤の溶解挙動、耐酸性及び耐放射線性の観点から詳細に検討し、Cs 吸着剤としてヘキサデカノール/Calix-crown R14 比=1.25、Sr 吸着剤としてヘキサデカノール/DtBuCH18C6 比=1.25 が最適な組成であることを明らかにした。いずれの吸着剤についても飽和吸着容量の減少は放射線による劣化よりも硝酸への抽出剤の溶解の寄与が大きいことが示唆された。

#### 分離基礎試験：

Cs、Sr、U 及び FP 元素の吸着挙動を調べた結果、3 M 硝酸中で Cs 吸着剤は、Cs 以外の元素をほとんど吸着せず高い選択性を有することが分かった。同様に Sr 吸着剤においては、Sr 以外では Ba を除き他の元素の吸着は認められなかった。60 回程度の吸着・溶離繰り返し試験を行い、Cs 及び Sr の吸着性能の変化を調べたところ、Cs 吸着剤では、60 回使用後も動的飽和吸着容量はほとんど減少せず、耐久性が高いことが明らかとなった。一方、Sr 吸着剤では、抽出剤の溶出に伴い動的飽和吸着容量が減少した。総合評価に資するデータを得るため、全 TRU

分離技術開発の多段抽出試験を経た模擬高レベル廃液から、Cs 分離及び Sr 分離試験を行った。多段抽出試験で添加した錯化剤は Cs 分離及び Sr 分離に影響しないことを確認した。

放射性元素影響評価試験：

実廃液による Cs 分離試験では、コールド試験と同様に Cs 以外の元素はカラムに吸着されることなく溶離され、実廃液においても Cs と他の元素との相互分離が可能なが判明した。Sr 分離においても、コールド試験とほぼ同じ結果が得られたが、Pd の溶離がやや遅い結果となった。実廃液試験でもコールド試験と同様に、カラム分離に関する不具合や顕著な挙動の相違は見られなかった。以上により、最適な分離条件をほぼ確立した。

(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果)

特になし

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

**研究開発項目 5】(2)FP 分離要素技術開発 ②Mo 分離技術開発**

(当初予定していなかったが副次的に(あるいは発展的に)得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

吸着剤開発：

Mo 吸着剤として、酸化物系吸着剤 (Fe-Pb、Fe、Ni、Co、Zr など) と炭素質吸着剤 (活性炭、グラファイトなど) を対象に、前者では調製時の溶液条件、焼結温度、後者では表面処理、化学修飾などをパラメータとして調製した。酸化物系吸着剤では焼結温度の上昇とともに酸溶液における溶解量が減少し、Fe 吸着剤が最も安定であった。一方、炭素質吸着剤では酸性リン酸エステル含浸グラファイトが後述のように Mo 吸着性能に優れ、安定であった。

分離基礎試験：

Fe 吸着剤は、Mo 以外の主な FP はほとんど吸着せず、Mo と相互分離できることが示唆された。吸着した Mo の一部は吸着剤に残存するものの、シュウ酸で溶離することで、繰り返し使用が可能であることが分かった。総合評価に資するデータを得るため、全 TRU 多段抽出及び Cs・Sr カラム分離試験を経た模擬高レベル廃液から Mo のカラム分離試験を行った結果、前工程で使用した抽出剤や錯化剤は Mo 分離に影響せず、主な FP と Mo の相互分離が可能なが分かった。

炭素質吸着剤では、酸性リン酸エステルを含浸したグラファイト系吸着剤が活性炭よりも効率的に Mo を吸着した。FP 元素のうち Zr が Mo よりも強く吸着されるため、FP 元素溶液では Mo 単独溶液と比較して Mo 吸着量が減少した。吸着した Mo を 3 M 硝酸で単離し、残留する Mo 及び Zr の全量が 0.5 M シュウ酸により溶離されることを確認した。

放射性元素影響評価試験：

Fe 吸着剤についてバッチ法による試験結果は、Mo に対する分配係数が高いものの、Tc、Am、Np が僅かに吸着した。カラム法による結果からは、Am、Np を含め主な TRU は Fe 吸着剤に吸着せずに Mo と分離されており、分離基礎試験の結果と合わせると、3 M 硝酸中で、Mo 以外の主な FP、U 及び TRU と Mo を相互分離できることを確認した。

炭素質吸着剤の放射性元素影響評価では、U 及び Pu の吸着性が Mo よりも高いことを確認し、これら元素を事前に分離するか、適切な溶離条

件の設定が重要であることを明らかにした。

以上、Fe 吸着剤は炭素質吸着剤 (DEHPA 含浸グラファイト吸着剤) に比べ、化学的安定性と Mo 吸着の可逆性で若干劣るものの、多元素共存系における Mo 吸着に高い選択性を有しており、Fe 吸着剤を用いた Mo 分離の最適条件をほぼ確立した。

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果)

特になし

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

### 【研究開発項目 6】 (3) 総合評価

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

総合評価では新規 TRU・FP 分離法を NEXT 法の抽出残液に適用するシナリオを想定した。各要素技術開発で得られた最新のデータをもとに、各工程における物質収支を評価し、適切な機器の基数を設定した。また、プロセスを構成する機器のつながりや主要な物質の流れを表すプロセスフローダイアグラムを作成した。さらに、各工程で発生するプロセス廃棄物である Sr 廃棄体及び Mo 廃棄体の性状を評価し、余裕深度処分の可能性を示した。

プラントの概念設計として、主要機器リスト、主要機器配置図を作成した。また、主要機器配置図より主要機器の設置セル面積及び設置セル容積を、主要機器リストより機器製作費をそれぞれ試算し、プラント規模を明確化した。さらに、物質収支に基づき、プロセス廃棄物として、高レベルガラス固化体、Sr 廃棄体及び Mo 廃棄体の発生量を評価した。

類似の MA 回収プロセスとの比較において、本分離プロセスは廃液処理すべき水溶液量が比較的少ないという利点を持つことがわかった。プロセス廃棄物発生量の比較において、高速炉及び軽水炉の使用済燃料に対しても本分離プロセスの適用により高レベルガラス固化体の発生量を低減できることが分かった。また、処分場占有面積も高速炉使用済燃料の場合約 20%、軽水炉使用済燃料の場合約 40% 低減できることが分かった。これらの結果より、新規 TRU・FP 分離法を NEXT 法の抽出残液に適用することにより、環境負荷低減効果が得られる可能性があることが分かった。

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果)

特になし

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

### 【事業全体】を通して

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果及び当初想定していたが得られなかった成果を含めて記入。)

平成 17 年度に開始した本研究開発事業の 5 年間で実施した業務内容について、全 TRU 分離技術開発、MA/Ln 分離技術開発、計算化学的評価、Cs・Sr 分離技術開発、Mo 分離技術開発及び総合評価の各事業項目をまとめた。その結果、下記のように当初の目標を達成した。

1) TODGA よりも抽出容量の大きな新規 DGA (TDdDGA) を開発し、TBP 等



により U、Pu を分離した後の廃液から、全 TRU を 99.9%以上回収し選択的に逆抽出する方法を開発した。2) 新規 PDA を合成し、それを含浸させた吸着剤を改良・開発し、硝酸溶液から 3 価の MA (Am, Cm) だけを選択的に分離する技術を開発した。3) 発熱性 FP (Cs, Sr) の選択分離が可能なクラウン化合物を用いた新規吸着剤による分離・精製法を開発するとともに、廃棄物減容効果の大きい Mo の選択分離が可能な吸着剤開発を行った。4) 各要素技術の性能を評価し、最適な分離システムを構成・提示するとともに、その廃棄物低減及び環境負荷低減効果を明らかにした。

(当初予定していなかったが副次的に (あるいは発展的に) 得られた成果)

全 TRU 分離技術開発では最適な抽出剤 TDdDGA の他に、特異な抽出性能を持つ新規抽出剤メチルイミノビスジオクタールアセトアミド (MIDOA) 及びテトラオクタールジオキサオクタンジアミド (DOODA) を創製し、分離プロセス開発に新たな展開の可能性を生み出した。また、MA/Ln 分離技術開発では、Oct-PDA 吸着剤が当初の想定以上の耐久性をもつことを明らかにし、高濃度硝酸における MA/Ln 分離技術の実用化への可能性を拓いた。

(当初想定していたが得られなかった成果)

特になし

#### 論文等

1. Highly Selective Extraction of  $TcO_4^-$ ,  $ReO_4^-$ , and  $MoO_4^-$  by the new ligand, 2,2'-(Methylimino)bis(N,N-Dioctylacetamide) (MIDOA), Y. Sasaki, Y. Kitatsuji, T. Kimura, Chem. Lett., 36, 1394 (2007)
2. COUNTER-CURRENT EXTRACTION AND SEPARATION OF Nd FROM Sr, Zr and Pd BY TDdDGA, N,N,N',N'-TETRADODECYL-DIGLYCOLAMIDE, Y. Sasaki, T. Asakura, Y. Kitatsuji, Y. Morita, T. Kimura, Proc. The Tenth OECD Nuclear Energy Agency Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 2008 年 10 月
3. SEPARATION OF TRIVALENT ACTINIDES FROM LANTHANIDES BY IMPREGNATED RESIN WITH NEW N,N'-DIALKYL-N,N'-DIPHENYLPYRIDINE-2,6-DICARBOXYAMIDES, M. Watanabe, M. Arisaka, T. Kimura, Proc. The Tenth OECD Nuclear Energy Agency Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 2008 年 10 月
4. Extraction of Actinides and Fission Products by the New Ligand, N,N,N',N'-Tetraoctyl-3,6-dioxaoctanediamide, Y. Sasaki, Y. Morita, Y. Kitatsuji, T. Kimura, Chem. Lett., 38, 630 (2009)
5. Development of a new extractant and a new extraction process for minor actinide separation, Y. Morita, Y. Sasaki, T. Asakura, Y. Sugo, Y. Kitatsuji, T. Kimura, IOP conference Series: Mater. Sci. Eng., 9, 012057 (2010)

他 7 件

#### 特許

1. N,N,N',N'-テトラオクタール-3-メチルイミノジグリコールアミド化合物及びその化合物からなる特定金属の錯形成抽出剤、佐々木祐二、北辻章浩、木村貴海、特許出願 2007-289307 号 (出願日 2007 年 11 月 7 日)、特許公開 2009-114129 号 (公開日 2009 年 5 月 28 日)

	<p>2. 硝酸酸性溶液中のモリブデン除去用吸着剤と硝酸酸性溶液からのモリブデンの分離方法、森田泰治、朝倉俊英、菊池孝浩、星 陽崇、藤田豊久、ドドビバ・ジョルジ、特許出願 2008-235397 号 (出願日 2008 年 9 月 12 日)、特許公開 2010-64050 号(公開日 2010 年 3 月 25 日)</p> <p><u>口頭発表等</u></p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Chemical separation of actinides from high level radioactive liquid waste using diglycolamide(DGA) compounds, Y. Sasaki, Y. Kitatsuji, Y. Sugo, T. Asakura, T. Kimura, Global 2007, 2007 年 9 月</li> <li>2. Separation of actinides(III) from lanthanides(III) by extraction chromatography using new N,N'-dialkyl-N,N'-diphenylpyridine-2,6-dicarboxamides, M. Ariska, M. Watanabe, T. Kimura, Global 2007, 2007 年 9 月</li> <li>3. EXTRACTION OF ACTINIDES BY MULTIDENTATE DIAMIDES AND THEIR EVALUATION WITH COMPUTATIONAL MOLECULAR MODELING, Y. Sasaki, Y. Kitatsuji, M. Hirata, T. Kimura, K. Yoshizuka, ISEC2008 (溶媒抽出国際会議), 2008 年 9 月</li> <li>4. ADSORPTION OF MOLYBDENUM IN NITRIC ACID SOLUTION BY USING Pb-Fe BASED ADSORBENTS, G. Dodbiba, I-C. Wu, T. Kikuchi, T. Fujita, Global Symposium on Recycling, Waste Treatment and Clean Technology, 2008 年 10 月</li> <li>5. Development of a New Extractant and a New Extraction process for Minor Actinide Separation, Y. Morita, Y. Sasaki, T. Asakura, Y. Kitatsuji, Y. Sugo, T. Kimura, Actinides 2009, 2009年7月</li> </ol> <p>他 2 7 件</p>
<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 研究開発の進捗</li> <li>・ 研究開発の成果</li> <li>・ ブレイクスルー</li> </ul>	<p><b>【研究開発の進捗】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 既存の知見を基に TRU および FP 等の分離のための要素技術を開発し、さらに改良した技術に基づいて新たな分離システムの構築を目指して、実施した予定の項目は、計画通りに進捗した。</li> </ul> <p><b>【研究開発の成果】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 全 TRU 分離技術開発では、研究者等が開発してきた TODGA をさらに発展させ、複数の候補から TDdDGA に的を絞り、抽出基礎データの取得、ホット多段抽出試験等を行い、フローシートスタディができるレベルにまで発展させており、優れた成果が得られた。</li> <li>・ 計算化学については、分子軌道計算、分子力学計算、分子動力学計算を組み合わせ、抽出剤の開発を補完し、抽出挙動を予測するツールとしての可能性を示唆する成果を上げた。</li> </ul> <p><b>【ブレイクスルー】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 全 TRU 分離用抽出剤、LA/MA 分離用吸着剤及び、Mo 分離用吸着剤等の開発において、実用化の視点から一定の進展があった。</li> <li>・ 既存のカリックスクラウン誘導体やクラウンエーテルを使い、HAW から Sr を分離するシステムを構築して、小規模ながら Sr の分離が可能であることを実証した。</li> <li>・ 廃棄体発生量を低減できる見通しが得られており、環境負荷の低減に寄与する技術開発であった。</li> </ul>

4. その他	
--------	--