

課題名	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			
参画機関	東京工業大学、東北大学、(独) 日本原子力研究開発機構			
事業規模	期間	平成 22～24 年度	総額	156 百万円
<p>【研究代表者】 佐々木 祐二 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 原子力化学ユニット 湿式分離プロセス化学研究グループ 研究主幹</p>				
<p>【研究概要】 高レベル廃液に含まれる、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)等のマイナーアクチノイド(MA)をランタノイド(Ln)とともに相互分離することができれば、ガラス固化体中の大幅な放射能の削減や効率的な中間貯蔵等に有効です。当機構で積極的に進めている加速器駆動核変換システム(ADS)の開発にも貢献できます。ところが、これら元素は極めて類似する化学的挙動をとるために、相互分離は大変難しいとされています。</p> <p>我々はその困難な分離技術の開発に、溶媒抽出法を選択し、その水相、有機相双方に分離機能を持つ化学試薬を添加し分離性能を向上させる方法を検討しました。幾つかジアミド化合物の中から、抽出剤にニトリロトリアセト(NTA)アミド、水相のマスキング剤にテトラエチルジグリコールアミド(TEDGA)を組み合わせた系が最も優れていることを明らかにしました。この NTA アミドは本公募で初めて開発し利用した化合物です。これにより Am/Cm 分離比(SF)は最大 6.5 と通常報告される抽出系より 3 倍以上高い値を示しました(図 1～4、表 1 参照)。</p> <p>これ以外に新化合物のジオクサオクタンジアミド(DOODA)と呼ばれる抽出剤の特性、金属錯体の構造解析、高 SF 条件を使っての Am/Cm 分離クロマトグラフィー、及び DOODA 抽出系における単サイクルプロセス運転条件の評価を行い、DOODA が Ln や MA に高い選択性を持つことやプロセス分離後製品組成を明らかにすること等、成果を上げることができました。</p>				
<p>【その後の取り組み】 本公募で開発した新しい抽出剤、NTA アミドはアクチノイド(An)以外に幾つかの核分裂生成元素の抽出に有効であることが分かってきました。そこで、その NTA アミドの抽出性能を詳細に明らかにすること、及びこれを用いて溶媒抽出のみで 4 群群分離プロセスを開発することができるかの検討を現在進めています。</p>				



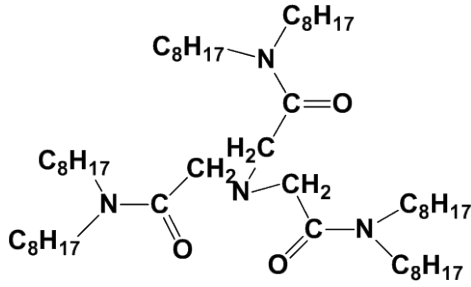


図1 本公募で開発された新しい抽出剤 NTA アミド構造

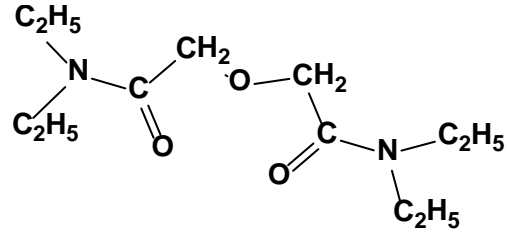


図2 Ln, An と強く反応する水溶性 DGA 化合物 (TEDGA)

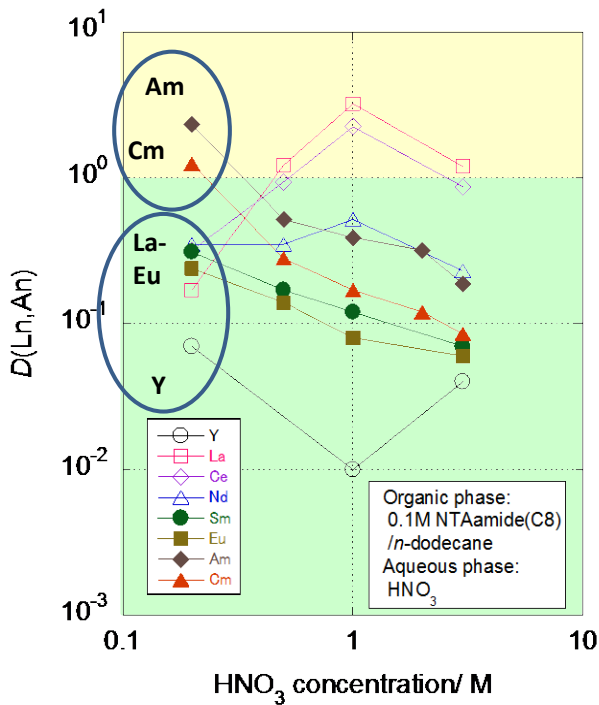


図3 NTA アミドを用いた Ln, An 分配比の硝酸濃度依存

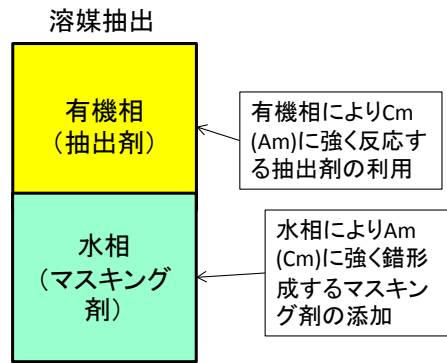


図4 Am/Cm 分離に利用した溶媒抽出法

NTA アミド、TEDGA を用いて、非常に高い Am/Cm 分離比を達成

表1 0.5M NTAアミド/ドデカン-TEDGA/0.2M HNO₃条件によるAm/Cm分離比

TEDGA濃度	D(Am)	D(Cm)	SF
0 mM	102	61.4	1.66
2	15.9	2.77	5.74
5	4.66	0.77	6.05
10	1.56	0.24	6.5
20	0.27	0.08	3.38

代表的な特許、論文受賞など

【出願特許】

- 特願 2012-260582, ニトリロトリアセトアミド及びその合成方法並びにニトリロトリアセトアミドを用いるアクチノイドとランタノイドとの抽出分離方法及び Am/Cm 溶媒抽出方法、出願人 佐々木祐二、津幡靖宏、北辻章浩

【発表論文等】

- Yuji Sasaki, Yasuhiro Tsubata, Yoshihiro Kitatsuji, Yumi Sugo, Noriko Shirasu, Yasuji Morita, Takaumi Kimura, "Extraction behavior of overall metals by TODGA, DOODA, MIDOA and NTAamide extractants from HNO₃ to n-dodecane, " Solvent Extr. Ion Exch., 31, 401-415 (2013).
- Yuji Sasaki, Yasuhiro Tsubata, Yoshihiro Kitatsuji, Yasuji Morita, "Novel Soft-Hard Donor Ligand, NTAamide, for Mutual Separation of Trivalent Actinoids and Lanthanoids", Chemistry Letters, 42, 91-92 (2013)
- Shigekazu Usuda, Kei Yamanishi, Hitoshi Mimura, Yuji Sasaki, Akira Kirishima, Nobuaki Sato, and Yuichi Niibori, "Chromatographic Separation Behaviors of Am, Cm and Eu onto TODGA and DOODA (C8) Adsorbents with Hydrophilic Ligand-Nitric Acid Eluents", Chemistry letters 42, 1220-1222 (2013)
- Yuji Sasaki, Yasuhiro Tsubata, Yoshihiro Kitatsuji, Yumi Sugo, Noriko Shirasu and Yasuji Morita, "Mutual separation of Am/Cm/Ln by the use of novel-triamide, NTAamide and water-soluble diglycolamide", Proceedings of GLOBAL2013