研究論文

1123. アミド系抽出剤を用いた TRU 暫定備蓄を伴う
使用済み核燃料処理プロセス

館盛勝一*, 鈴木伸一*, 佐々木祐二*

*A Process of Spent Nuclear Fuel Treatment with the Interim Storage of
TRU by Use of Amidic Extractants*By Shoichi TACHIMORI,
Shinichi SUZUKI and Yuji SASAKI

A new chemical process, ARTIST process, is proposed for the treatment of spent nuclear fuel. The main concept of the ARTIST process is to recover and stock separately all actinides, uranium and a mixture of transuranics, and to dispose fission products. The process composed of two main steps, a uranium exclusive isolation and a total recovery of transuranium elements (TRU); which copes with the nuclear non-proliferation measures, and additional processes. Both actinide products are solidified by calcination and allowed to the interim storage for future utilization. These separations are achieved by use of amidic extractants in accord with the CHON principle. The technical feasibility of the ARTIST process was explained by the experimental results of both the branched-alkyl monoamides in extracting uranium and suppressing the extraction of tetravalent actinides due to the steric effect and the diglycolic amide in thorough extraction of all TRU by tridentate coordination. When these TRU are requested to put into reactors, LWR or FBR, for power generation or the Accelerator-Driven System (ADS) for transmutation, lanthanides are to be removed from TRU by utilizing a soft nitrogen donor ligand.

KEYWORDS : spent fuels, reprocessing, ARTIST process, monoamide, TODGA, transuranium elements, interim storage, nuclear proliferation risk, CHON principle, partitioning, transmutation, accelerator-driven system

I. 緒 言

近年、各種金属分離用抽出剤の分子設計研究が活発に行われるようになった。我々は、分子構造を意図的に変えた多数のモノアミドについて、再処理プロセスへの適用化研究をすすめて、いくつかの有用なモノアミドを報告してきた^{1,2)}。また、ジアミド系化合物の分子設計により、新規な抽出剤；N, N, N', N'-tetraoctyl-3-oxapentane-1, 5, -diamide (以下 TODGA と略す)を開発した^{3,4)}。TODGA は酸濃度の高い硝酸溶液からすべてのアクチノイドイオンを高収率で抽出する優れた特性を有する。これらアミド系抽出剤は、生体の主要構成元素である炭素(C)、水素(H)、酸素(O)、窒素(N)のみで構成されており、その廃棄処理では気体のみが発生し、環境負荷の小さい化学物質である(CHON原則)⁵⁾。これら環境負荷の小さいアミド系抽出剤の、アクチノイド(An)に対する優れた抽出性能を有効に利用すれば、以下に述べる核燃料サイクルバックエンド、特に使用済み核燃料(SF)処理に関する今日の主要課題を解決する革新的プロセスを構築することができる。

最近、SF 化学処理プロセスについて、様々な技術オプションが提案されている⁶⁾。それらはいずれもプルトニウム(Pu)の回収が前提となっている。歴史的には、シーボルグらがPuを発見(1941年)した数ヶ月後には、重元素ウラン(U)の99%以上を占める²³⁸Uに中性子を吸収させて得られる²³⁹Puも核分裂性であることが明らかにされ、²³⁹Puの回収を行う再処理という化学操作が行われるようになった。しかし、高速増殖炉導入の遅れから、当面はPuの大きな需要はなく、再処理から生じる余剰のPuの対策が核燃料サイクルの大きな課題となっている。

また、バックエンドに関わる最重要課題としては、SFの再処理によって生じる放射性廃棄物の処理処分がある。超ウラン元素(TRU)等の長寿命核種の群分離・核変換技術は、地球環境への超長期にわたる負荷低減を目的に、これらの長寿命核種を地層処分せずに核変換で短寿命化あるいは安定化しようというものである⁷⁾。

最近IAEAでは、Pu, Uのみならず、核兵器への転用可能な²³⁷Npや²⁴¹Amの単独分離の国際管理も論議されている⁸⁾。すなわち、これらの臨界質量は金属-最適反射条件下で30~60 kgであり、²³⁷Npの原子炉照射によって得られる²³⁸Puの臨界質量は4~7 kgと非常に厳しくなる⁹⁾。ちなみにSF中に含まれるこれら核種の量は、PWR; 45,000

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)
(2001年 5月1日 受理; 2001年 7月12日 査読通過)

MWd/MT, 5年間冷却燃料の場合, 1t当たり ^{237}Np : 630g, ^{241}Am : 410g, ^{238}Pu : 270gである。したがって100tのSFに含まれるNp, Amからは, 物理的には十分な核爆弾の原料が得られることになる。

以上述べたことを要約すると,

- (1) 当面は, Puの分離・回収を急ぐ必要はない。
- (2) 原子力利用に伴い発生するSFの処理には, 「Puの分離・回収」と同時に, 高レベル放射性廃棄物の処理処分の容易さが求められている。
- (3) 核不拡散性を高める観点から, Np, Amの単離は極力避けるべきである。

本報では, 以上の条件を満足しかつ「人工元素であるTRUの資源価値を放棄しない」との命題に基づいて提案する, TRU 備蓄を伴うSF処理プロセス「Amide-based Radio-resources Treatment with Interim Storage of Transuranics: ARTIST process」について述べる。

II. ARTISTプロセスの概要

ARTIST プロセスでは, 抽出剤としてTODGAなどのアミド系抽出剤を用いる。アミドの抽出剤利用は, 1960年代にすでにジアルキルモノアミド: $\text{R}_1\text{C}(\text{O})\text{-NR}_2\text{R}_3$ ¹⁰⁾やジアミド: $\text{R}_1\text{R}_2\text{N-C}(\text{O})\text{-R}_3\text{-C}(\text{O})\text{-NR}_1\text{R}_2$ ¹¹⁾が報告されている。アミドは, 金属イオンに配位する電子供与性のカルボキシル基($\text{C}=\text{O}$)と, それと安定な結合を作る窒素原子を有している。この $\text{C}(\text{O})\text{-N}$ アミド結合は, 生体がアミノ酸からタンパク質を合成する際に多くのアミノ酸の連結に利用している重要なもの(ペプチド結合)としてよく知られている。今後開発する新規抽出剤は, これらの生体物質類似の分子系を基本として設計することを考えている。

Fig. 1 に ARTIST プロセスの全体像を示す。その第1

ステップ(抽出工程)において放射能毒性がそれほど大きくなく, SFの約94wt%を占め, 後のAn分離に大きな負担となるUのみを分離する。そのため, 最も安定なU(VI)のみを選択的に抽出するモノアミド化合物: $\text{R}_1\text{C}(\text{O})\text{-NR}_2\text{R}_3$ を抽出剤として用いる。通常のモノアミド化合物は, An(VI)とAn(IV)の両者を抽出するが¹²⁾, モノアミド分子のアルキル鎖に枝分かれを導入すると, 錯体形成において立体障害が現れ, 6価の金属イオンに比べ4価の金属イオンの抽出分配比が大きく減少する^{13,14)}。この効果を利用すれば, 硝酸溶液系で安定に存在するU(VI)のみを抽出してPu(IV)をはじめ超ウラン元素(TRU)を水溶液に残すことができる。この詳細は次章で述べる。分離したUは酸化物に転換して保管する(An-I製品)。ところでNpは硝酸溶液中では主にNp(V)とNp(VI)そして少量のNp(IV)として存在するので, Np(VI)はU(VI)とともに抽出される。それを避けるために第1ステップでは, 還元剤を添加してすべてのNpを抽出されないNp(V)に揃える。還元剤としてはロシアのKoltunovらによって開発されたヒドラジン系化合物やヒドロキシルアミン系化合物がある¹⁵⁾。

第2ステップは, U以外の残りすべてのTRU(Np, Pu, Am, Cm)の全抽出である。そのため, 三座のジグリコールアミド(TODGA)を主要な抽出剤として用いる。この抽出剤は, 濃度が1M以上の硝酸水溶液からすべてのアクチノイドを効率よく抽出できる⁴⁾。また, TODGAはランタノイド(III): Ln(III)をも抽出するため, 得られる製品中にはTRUとLnが含まれる。これは貯蔵のため, 仮焼処理して酸化物とする(An-II製品)。その後の化学処理を考慮すれば, 仮焼温度を低くして酸化物の再溶解が容易にできるようにする。

以上の操作では, Fig. 2 に示すように, An-I 製品(SF

Fig. 1 Main flow of the actinide elements and fission products in ARTIST process

Fig. 2 Variation of the composition of metals in spent fuel and main product fractions

の94 wt%に相当)と An-II 製品(SFの2.56 wt%に相当)が得られる。An-II 製品は「暫定備蓄用 TRU」として保管されるが複雑な組成を有し、強い放射線源(γ 線, 中性子線)であることから、窃盗や核兵器への転用は非常に困難であって大きな核拡散抵抗性を有する。

また、SF中に含まれていた核分裂生成物(FP)の多くは第2ステップの廃液中に残されており、これは脱硝・固化後、廃棄物として処分される。

暫定備蓄された An-II 製品のその後の利用オプションには2つが考えられる。その第1は、Puのエネルギー利用の必要(プルサーマル利用やFBRでの燃焼)が生じた時であり、An-II 製品から必要量のPuのみを分離回収してそれに当てる。そのための有用な分離法としては、溶媒抽出法(CHON原則-抽出剤ではモノアミド)がある。その際にも還元剤を添加してNpはすべて抽出されないNp(V)に揃える必要がある。その第2は、将来的な廃棄物処分オプションであるTRUの核変換処理(加速器駆動システム; ADSやFBRでの核分裂反応)が採用される時であり、その場合はAn-II 製品中のLnを除去する必要がある。その目的のためには、現在開発中の窒素ドナー等のソフト配位子を用いて、変換方式の要請に応じたレベルでTRUとLnの分離操作を行う。ここで分離されたLnもやはり固化して廃棄処分する。

以上2つの主工程とその後に続く追加工程の総合をARTISTプロセスと呼ぶ。ここで、地層処分の対象としたFPフラクションには、発熱量の大きな ^{90}Sr - ^{90}Y や ^{137}Cs - ^{137}Ba 、および長寿命の ^{99}Tc 、 ^{126}Sn 、 ^{79}Se 、 ^{135}Cs 、 ^{93}Zr が含まれる。これら発熱性核種を分離すれば、残りのFPの廃棄物処分条件が大きく緩和され、処分場の合理化に役立つという主張がある¹⁰⁾。したがって、ARTISTプロセスにおいては、これらの核種(元素)を要請に応じて回収する

「分離モジュール」を、オプションとして第2ステップの廃液フローに設置する提案も含んでいる。もちろんそれは簡単な工程でありCHON原則に合っている必要がある。

III. 技術的考察

1. 第1ステップ(Uの選択抽出)

抽出剤であるモノアミド分子は、C=O基と窒素の隣にアルキル基を持っている。これらアルキル基に枝分かれを導入すると、Anと結合するC=O基の近くにアルキル鎖がくることにより立体障害が生じ、An抽出が抑制される。この枝分かれ効果はアシル基のアルキルと窒素側のアルキル基では異なり、C=Oに近いアシル基の方が障害は大きく現れる。また、抑制はAn(VI)よりもAn(IV)に対して大きく働く。そこで、適切な枝分かれモノアミド分子を選定すれば、最も安定な原子価であるU(VI)のみを抽出し、Pu(IV)をはじめ他の原子価のAnを抽出しないようにできる。我々の実験結果を示す。直鎖アルキル基を有するDi-hexyloctanamide(DHOA)およびDi-octylbutanamide(DOBA)のU(VI)、Pu(IV)、Np(VI)の抽出特性と、枝分かれアルキル鎖を有するDi-hexyl 2-ethylhexamide(DH2EHA:アシル基のアルキル鎖に枝分かれ)とDi(2-ethylhexyl) butyramide(D2EHBA:窒素のアルキル鎖に枝分かれ)のそれをFig. 3, 4に示す。Fig. 3からわかるように、直鎖のアルキル基を有するDHOAとDOBAの抽出系では、Np(IV)を除きそれぞれのAnを分離することは困難である。ところが枝分かれアルキル鎖を有するモノアミドでは、Fig. 4で示されるように、6価のAnに比べPu(IV)、Np(IV)の分配比は1ケタ以上低くなっている。もちろん、4価のAnよりもAn(III)、An(V)はさらに抽出されない。

Fig. 4 はまた、U(VI)と同様に Np(VI)も抽出されることを示しており、NpをU(VI)から分離するには、還元剤を用いてNp(VI)を非抽出性のNp(V)としなければならない。Table 1 は、1.5M DH2EHA-ドデカン-3M HNO₃抽出系の各Anの分配比および平衡時の有機相中U(VI)の濃度である。a) ではすべてのAnの水相初期濃度はトレーサ量であり、b) では、初期の水相に0.5M(120gdm⁻³)の

U(VI)とトレーサ量のPu(IV)、Npを含みかつNp(VI)の還元剤として0.02MのAcetohydroxamic acid(AHA)が添加してある。Table 1 から、AHAを添加すればUのみが抽出され、NpとPu(3価に還元されている)は抽出されないことが確認できる。NpはNp(IV)にまで還元されても、TBPとは異なりこの系では抽出されることはない。また、モノアミドはTBPとは違って抽出剤の比重が小さく

Fig. 3 Distribution ratios of main actinides in systems of 1M di-*n*-alkylmonoamide (DHOA or DOBA) in *n*-dodecane and HNO₃ solution

Fig. 4 Distribution ratios of main actinides in systems of 1M di-branchedalkyl-monoamide (DH2EHA or D2EHBA) in *n*-dodecane and HNO₃ solution

Table 1 Distribution ratios of actinides with various valences in 1.5M DH2EHA-*n*-dodecane and 3M HNO₃ systems

a) Without U(IV) in the initial aqueous phase, b) With 0.5M U(VI) and 0.02M acetohydroxamic acid in the initial aqueous phase

Amide		Initial aqueous C_{U6} (mol/dm ³)	D_{U6}	D_{Pu4}	D_{Np6}	D_{Np4}	D_{Np5}	Extracted C_{U6} (g/dm ³)
DH2EHA	a)	0	8.44	1.17	6.24	0.24	<0.01	0
	b)	0.5	3.53	<0.01	—	—	<0.01	92.8

(DH2EHA; $d=0.86$), この系では Pu(IV) が抽出される条件が生じないため, Pu の蓄積現象は起きない。したがって, 抽出剤濃度を増して有機相の U(VI) 負荷量をかなり増大できるという大きな利点を有する。

モノアミドの FP に対する除染能力は TBP のそれとほぼ類似しており, 特に有機相の U(VI) 負荷量を増すことにより, U 製品における大きな FP 除染係数が達成できる。しかしながら, Tc のふるまいは TBP 抽出系でみられると同様に例外的であり, その分離除去については以下の第 III-4 節で述べる。

Various amidic extractants studied

2. 第 2 ステップ (TRU の総合抽出)

すべての TRU を抽出するための CHON 原則-抽出剤として TODGA を用いる。この抽出剤は, 高レベル廃液のような硝酸濃度の高い水溶液から, すべての An を抽出する (Fig. 5)。この図から, TODGA 抽出の特徴として, An(III) と An(IV) については, 硝酸濃度が 0.2~0.5 M 以上になると分配比が急激に増大し, An(V), An(VI) などのアクチニルイオンではこの現象が見られないことがわかる。抽出データから推定される抽出に関与する抽出剤分子の数は, 前者において金属イオン 1 個当たり 3~4 と大きく, 後者では 1~3 の範囲である。このことから, 硝酸濃

Fig. 5 Variation of distribution ratios of actinides in various valency states with 1M TODGA in *n*-dodecane as a function of aqueous nitric acid concentration

度が高い領域における 3, 4 価イオンの抽出では, 金属イオンの内圏のみならず外圏においてもいくつかの TODGA が配位しており, それが硝酸分子により促進され, 生成した大きな抽出種が分配比の増大に寄与していると考えられる。アクチニルイオンでは配位方向が赤道面に限られるために, そのような硝酸分子が組み込まれた化学種は生成しないと考えられよう。

TODGA はまた, CMPO など他の二座配位抽出剤と同様に, FP 中の Ln(III) と Zr(IV) も抽出する^{3,4)}。Zr(IV) はシュウ酸等により洗浄・除去できる。したがって TODGA プロセスは, 高純度で分離された TRU の生産ではなく, すべての TRU と Ln を含んだ混合物製品を生産するプロセスであり, 核拡散への抵抗性に富んだ製品を生み出すという意味で, ARTIST プロセスの中核に位置する。

3. AnとLnの相互分離プロセス

現在, An(III)とLn(III)の有効な分離法を求めて, 我々を含め世界中で熾烈な開発競争が行われている。その動機は, 化学的性質が極めて似ている4f元素と5f元素の分離というアカデミックな関心と, 高レベル廃棄物処分のための必要性といった両側面がある。提案された分離法は, An(III)に選択的に働く配位子の水溶性, 脂溶性等の因子により2つの方法に分類される。すなわち, 1) Anを水相に, Lnを有機相に導いて分離する方法と, その反対に2) Anを有機相に, Lnを水相に導いて分離を達成する方法である。前者には, Diethylenetriaminepentaacetic acid (DTPA)を用いるTalspeak法¹⁷⁾や米国アルゴンヌ国立研究所のNashらが開発したN, N, N', N'-Tetra(methylpyridyl) ethylenediamine(TPEN)を用いる方法¹⁸⁾等があり, Lnを抽出する抽出剤との併用が必要である。また後者には, 窒素ドナー系の2, 4, 6-Tri-(pyridin-2-yl)-1, 3, 5-triazine (TPTZ)系化合物や2, 6-Bis-(5, 6-di-n-propyl-1, 2, 4-triazin-3-yl)-pyridine (nPr-BTP)を用いるフランスのSANEXプロセスがあり¹⁹⁾, 硫黄系ドナー物質のBis(2, 4, 4-trimethylpentyl) dithiophosphinic acid (HBTMPDTP)²⁰⁾やBis(chlorophenyl) dithiophosphinic acid²¹⁾を用いるものがある。これらは十分に大きなAm(III)/Ln(III)分離係数を与えるが, 配位子の安定性に問題があったり, 高レベル廃液のような硝酸濃度の高い水溶液系に適用できるものはまだない。ARTISTプロセスでは, 「窒素ドナープロセス」のフィード液は, An-II製品(酸化物)を溶解した溶液となるので, その硝酸濃度は高くない(<0.5 M)。したがって, そのような条件で直接An(III)を抽出する窒素系配位子の設計が課題である。

4. その他のオプションプロセス

ARTISTプロセスにおいては, 第II章で論じたように発熱性核種(⁹⁰Sr-⁹⁰Y, ¹³⁷Cs-¹³⁷Ba)や長寿命FP(⁹⁹Tc, ¹²⁶Sn, ⁷⁹Se, ¹³⁵Cs, ⁹³Zr)の分離工程も導入可能であり, それは主として第2ステップ(TODGAプロセス)の抽出ラフィネート(廃液)が対象となる。したがって, それら導入工程のフィード液は比較的酸濃度の高いものとなる。Sr, Csの分離法では, 中性あるいはアルカリ性溶液を対象としたものが多く知られているので²²⁾, 酸濃度の高い系で有効な吸着剤や抽出法の開発が重要になる。CHON原則に沿う抽出剤として, 我々は現在ジグリコールアミド系抽出剤(Sr対象)とカリックスクラウン(Cs)²³⁾を調べている。吸着剤では, Csに有効なシリコチタネート(CST; 米国で開発された)²⁴⁾を調べている。

ところで⁹⁹Tcの分離は第III-1節で触れた通り, 他の元素と異なっていて, 第1ステップ(U抽出工程)で取り扱わざるを得ない。それは, TBP抽出系でも共通に見られるTcO₄⁻イオンのU, Pu, Zr等との共抽出機構に起因する。

そのため, 第1ステップにおいてNO₃⁻か他の陰イオンにより抽出錯体中のTcO₄⁻を置換し, TcO₄⁻の抽出を抑える。その後, 別のアミド系抽出剤によりTcO₄⁻を抽出すればよい²⁵⁾。著者の一人は, 再処理工程におけるTcの挙動制御法に関する詳しい検討結果を報告している²⁶⁾。六ヶ所再処理工場では, Tcの分配工程への移行を抑えるため, 高濃度硝酸水溶液によるTcの除染工程が設置されている。

IV. 結 論

本報では, 著者らが分子設計的に開発した「立体障害機能を有するモノアミド」と「多座配位機能を有するTODGA」を用いて超ウラン元素(TRU)暫定備蓄方式に基づく使用済み核燃料(SF)処理が, 現在技術で十分可能であることを示した。現在は「1日平均数トン発生するSFを合理的に処理すべき要請がある」, それと同時に「Puを始めとするTRUの処分が混迷している時期でもある」との認識の下に, TRUを暫定備蓄してその資源価値を維持するTRU備蓄を伴うSF処理(ARTIST)プロセスを提案した。TRUの暫定備蓄方式は, 将来のプルトニウムを始めとするTRUの利用と核変換に関する自由度と, 廃棄物処分の安全性向上の点で有意義であると考えられる。

本研究の遂行に関しては, 日本原子力研究所の田中俊一博士に様々な側面からご教示と激励を頂いた。ここに深く感謝いたします。

本研究の一部は, 科学技術庁電源開発促進対策特別会計委託事業である「再処理新抽出剤利用技術開発」において実施したものである。

— 参 考 文 献 —

- 1) S. Suzuki, K. Tamura, S. Tachimori, Y. Usui, "Extraction of uranium(VI) and plutonium(IV) from nitric acid solution by substituted cyclic amides", *Solv. Extr. Res. Develop. Jpn.*, **6**, 72 (1999).
- 2) S. Suzuki, K. Tamura, S. Tachimori, Y. Usui, "Solvent extraction of technetium(VII) by cyclic amides", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 377 (1999).
- 3) 館盛勝一, "アクチノイド新抽出剤の開発", 原子力誌, **42**, 1124 (2000).
- 4) Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Suzuki, S. Tachimori, "The novel extractants, diglycolamides, for the extraction of lanthanides and actinides in HNO₃-n-dodecane system", *Solv. Extr. Ion Exch.*, **19**, 91 (2001).
- 5) G. Baudin, "The French Situation on Long Lived Radioisotope Separation Studies (Purex and Actinex Programs)", Int. Info. Exchange Program on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation, OECD/NEA Meeting, ANL, Nov. 11-13, 1992.
- 6) 例えば, 原子力学会「2001春の年会」要旨集, 第3分冊N35~N44, p.741~750 (2001).
- 7) 「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」, 原子力委員会, 原子力バックエンド対策専門部会, 平成12年3月31日.

- 8) IAEA, *The Proliferation Potential of Neptunium and Americium*, Boad Document, GOV/1999/19/Rev.2 (1999).
- 9) *American Nuclear Standard for Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements*, ANSI/ANS-8.15-1981(R87), Am. Nucl. Soc., La Grange Park, IL (1981).
- 10) T.H. Siddall III, "Effects of structure of N, N-disubstituted amides on their extraction of actinide and zirconium nitrate and of nitric acid", *J. Phys. Chem.*, **64**, 1863 (1960).
- 11) T.H. Siddall III, M.L. Good, "Proton magnetic resonance studies and extraction properties of some simple diamides", *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **29**, 149 (1967).
- 12) G.M. Gasparini, G. Grossi, "Application of N, N-dialkyl aliphatic amides in the separation of some actinides", *Sep. Sci. Technol.*, **15**, 825 (1980).
- 13) G.M. Gasparini, G. Grossi, "Long chain disubstituted aliphatic amides as extracting agents in industrial applications of solvent extraction", *Solv. Extr. Ion Exch.*, **4**, 1233 (1986).
- 14) N. Condamines, C. Musikas, "The extraction by N, N-dialkylamides II, Extraction of actinide cations", *Solv. Extr. Ion Exch.*, **10**, 69 (1992).
- 15) V.S. Koltunov, S.M. Baranov, "Organic derivatives of hydrazine and hydroxyl-amine in future technology of spent nuclear fuel reprocessing", *Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Systems, GLOBAL 95*, Versailles, France, (1995).
- 16) C.W. Forsberg, "Rethinking high-level waste disposal : Separate disposal of high-heat radionuclides (^{90}Sr and ^{137}Cs)", *Nucl. Technol.*, **131**, 252 (2000).
- 17) B. Weaver, F.A. Kappelmann, *Talspeak : A new method of separating americium and curium from lanthanides by extraction from an aqueous solution of Aminopolyacetic acid complex with a monoacidic phosphate or phosphorate*, ORNL-3559, (1964).
- 18) K.L. Nash *et al.*, "Fundamental investigations of separations science for radioactive materials", *Solv. Extr. Ion Exch.*, **18**, 605 (2000).
- 19) C. Madic, *et al.*, "New partitioning techniques for minor actinides", *EC Nuclear Science and Technology*, EUR 19149, (2000).
- 20) Y. Xhu, "The separation of americium from light lanthanides by Cyanex 301 extraction", *Radiochim. Acta*, **68**, 95 (1995).
- 21) G. Modolo, R. Odoj, "The separation of trivalent actinides from lanthanides by dithiophosphinic acids from HNO_3 acid medium", *J. Alloys Compounds*, **271-273**, 248 (1998).
- 22) W.W. Schulz, L.A. Bray, "Solvent extraction recovery of byproducts ^{137}Cs and ^{90}Sr from HNO_3 solution—A technology review and assessment", *Sep. Sci. Technol.*, **22**, 191 (1987).
- 23) J.F. Dozol, *et al.*, "New macrocyclic extractants for radioactive waste treatment : Ionizable crown ethers and functionalized calixarenes", *EC Nucl. Sci. and Technol.*, EUR 17615, (1997).
- 24) J.E. Miller, *et al.*, "Development and properties of cesium selective crystalline silicotitanate (CST) ion exchangers for radioactive waste applications", *Science and Technology for Disposal of Radioactive Tank Wastes*, Ed. by W. W. Schulz, N.J. Lombardo, Plenum Press, New York, p.269 (1998).
- 25) 館盛勝一, 鈴木伸一, 酸性水溶液中からテクネチウムを環状アミド化合物により分離回収する方法, 特願平 11-333226, (1999).
- 26) S. Tachimori, "Simulation study on behavior of technetium and its controlled strip during codecontamination process of fuel reprocessing", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 456 (1994).