



新規分離試薬の設計を可能にする 元素分離の計算手法の開発

令和3年11月18日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター
原子力化学ディビジョン 放射化学研究グループ

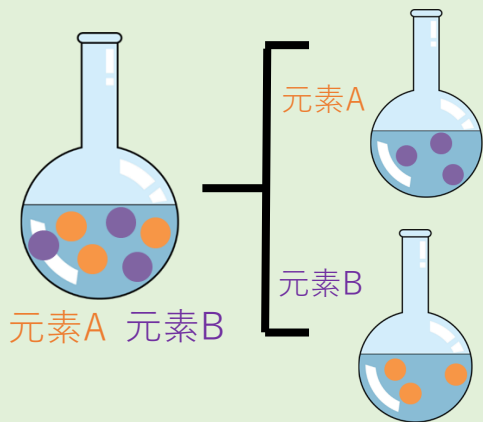
研究員 金子 政志

元素分離による再処理・リサイクル

元素分離の重要性

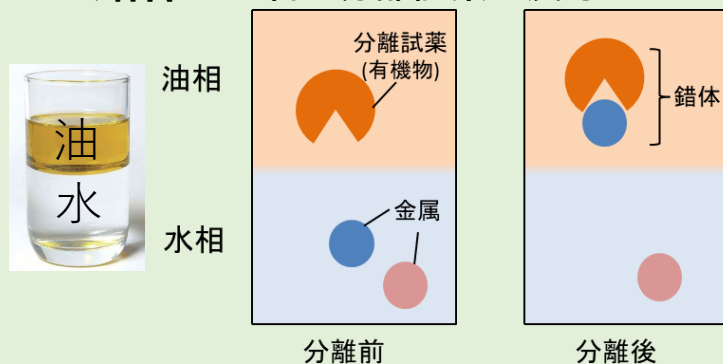
この安定性が重要！

元素分離イメージ



溶媒抽出法による元素分離

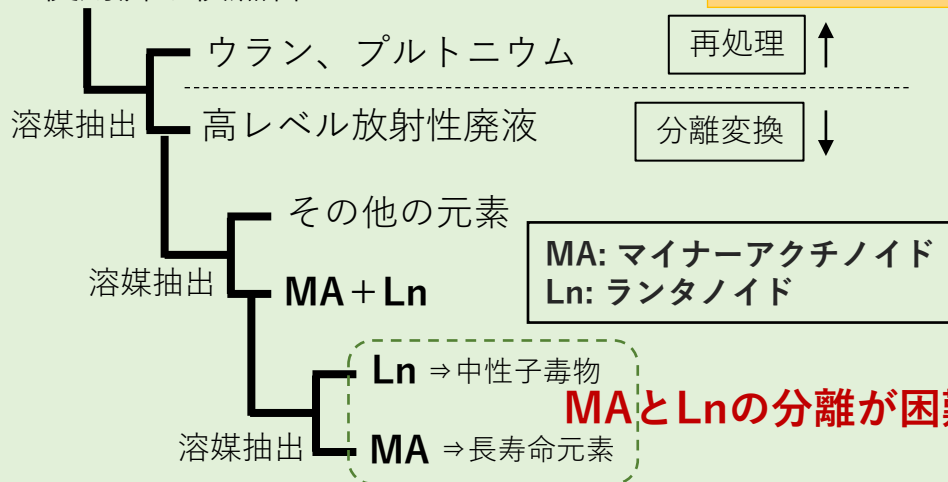
錯体：金属と分離試薬が反応したもの



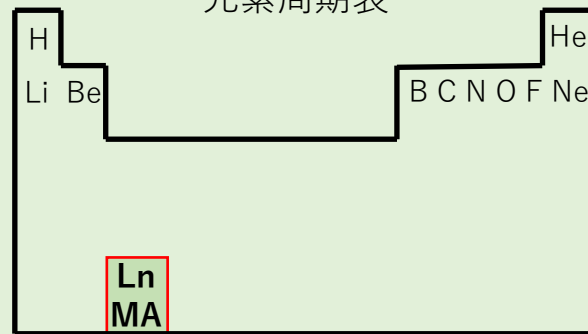
原子力で使われている元素分離

分離変換技術：高レベル放射性廃液に含まれる放射性元素をその半減期や利用目的に応じて分離し、長寿命元素を短寿命あるいは非放射性元素に変換するための技術

使用済み核燃料



元素周期表



上下の関係にある元素の分離は最も難しい

計算科学による元素分離試薬開発の加速化

従来の試薬開発

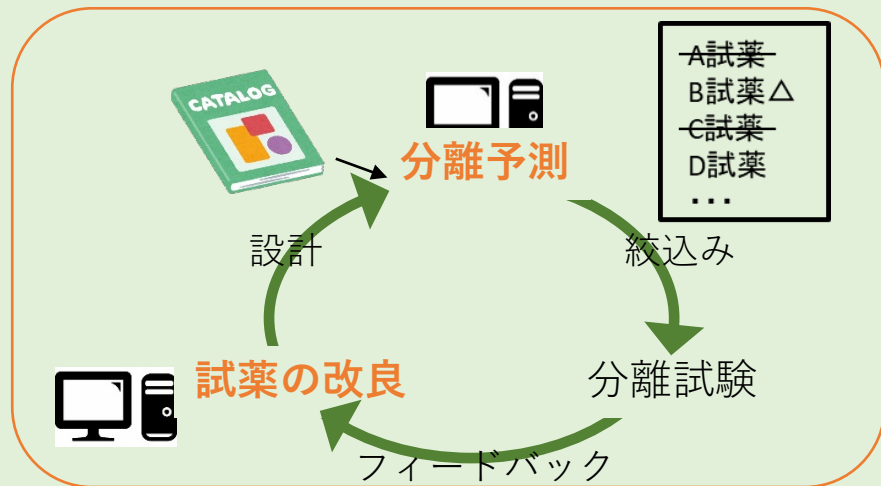


A試薬 → 分離試験 → ×
B試薬 → 分離試験 → △
C試薬 → 分離試験 → ×
D試薬 → 分離試験 → ○
E試薬 →
F試薬 . . .

Trial-and-Error

加速するには？

計算科学の導入



→ 試薬開発に時間がかかる

→ 計算による **試薬の絞込み・改良**が可能

【本研究の目的】

○ MA/Ln分離性能を再現できる計算手法を開発する

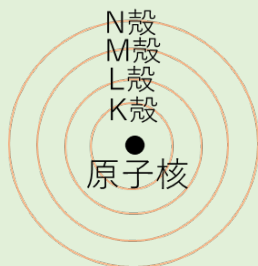
○ 分離を決定している原因“分離メカニズム”を明らかにする

⇒ **分離性能予測・分離メカニズム**を基に分離試薬の開発が可能に！

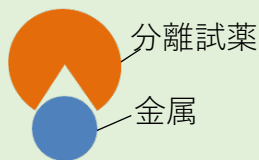
化学における計算手法“密度汎関数法”

密度汎関数法

⇒原子・分子中の電子を量子力学（波動方程式）を用いて解く方法



原子の構造



分離試薬
金属

波動方程式

電子のエネルギー

電子の軌道の形

電子の容れもの

錯体の安定性を評価する

MA/Ln分離係数の計算

⇒Lnより何倍MAを抽出分離できるかの指標



反応エネルギー
 E

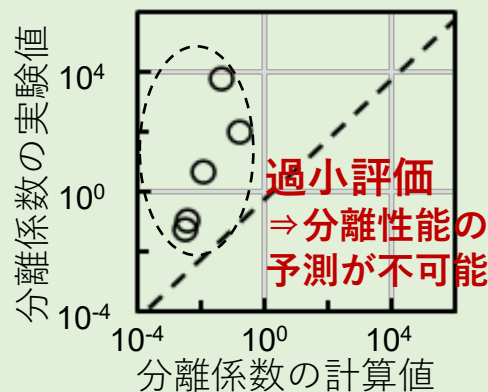
安定性の大小を決定

$$\text{MA/Ln分離係数} = \exp\left\{\frac{(E_{\text{Ln}} - E_{\text{MA}})}{RT}\right\}$$

R: 気体定数, T: 温度

Ln, MA錯体の“**安定性の差**”から
分離係数を求めることが可能

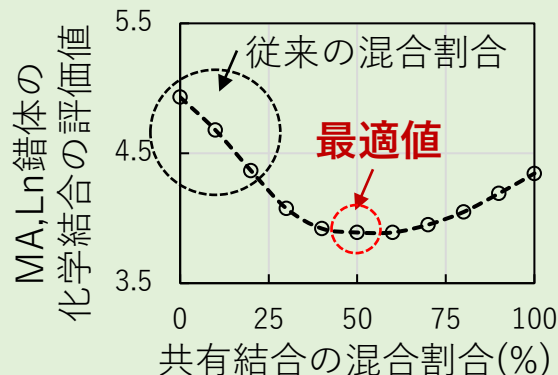
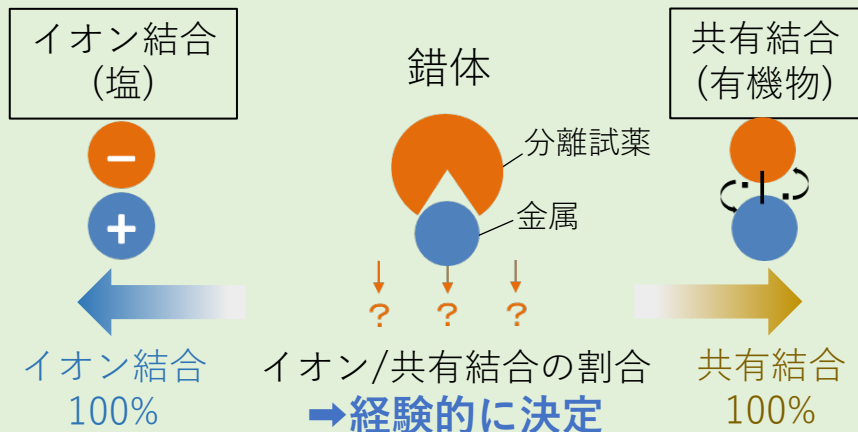
“デフォルト”の密度汎関数法を使用



【問題点】 従来法ではMA/Ln分離係数“**錯体の安定性**”を再現できない
⇒密度汎関数法自体のチューニングが必要

MA/Ln分離を再現する密度汎関数法の開発

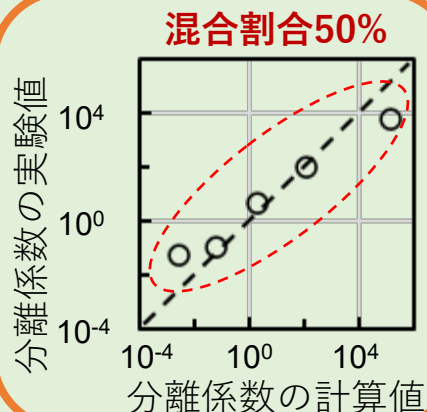
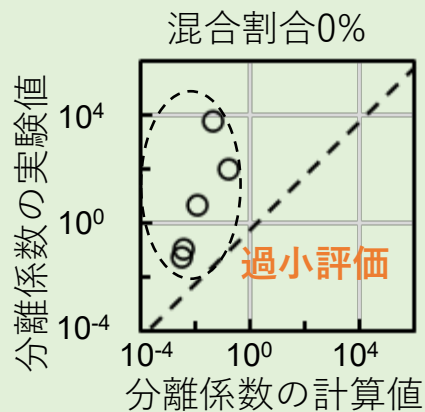
錯体における化学結合の特徴 ⇒ MA, Ln錯体については良く分かっていない



MA, Ln錯体の最適な混合割合を決定

世界初

MA/Ln分離係数の再計算 ⇒ 混合割合を従来法(0%)から50%にして計算



MA/Ln分離係数の再現に成功

分離性能の予測が可能に!

世界初

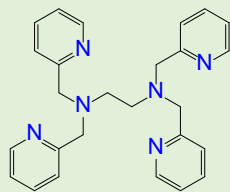
MA/Ln分離“錯体の安定性”を理解する上で共有結合が重要
⇒ MA, Ln錯体の共有結合に着目して解析

共有結合の解析によるMA/Ln分離メカニズム解明

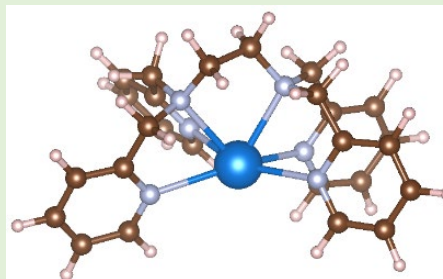
高性能分離試薬“TPEN”との錯体構造



金属



TPEN試薬



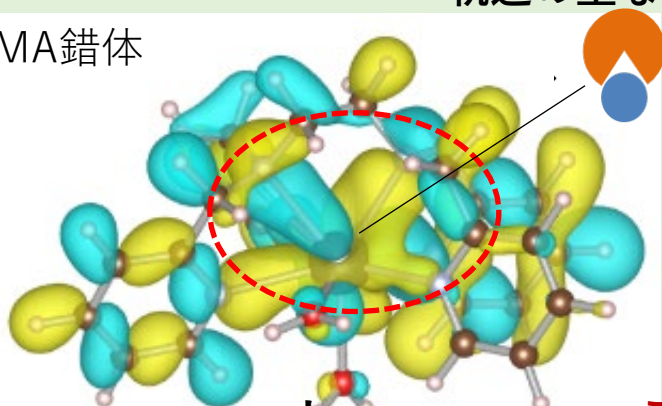
錯体の構造

共有結合 = 電子の“軌道の重なり”

⇒ 電子の波としての性質に注目

軌道の重なりを表した錯体の構造

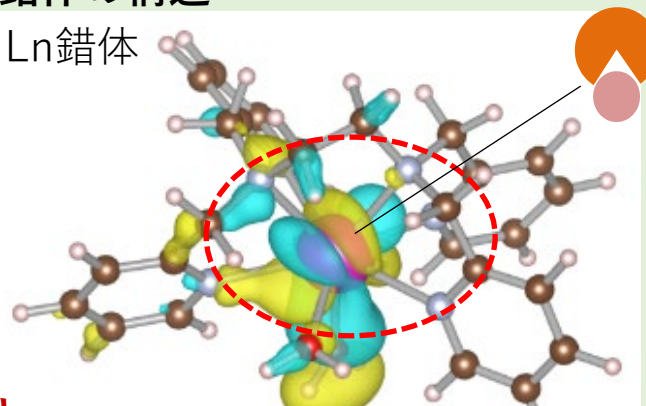
MA錯体



軌道の重なり大 → 強い共有結合

錯体の安定性 **大**

Ln錯体



軌道の重なり小 → 弱い共有結合

錯体の安定性 **小**

この差により
分離が達成される

軌道の重なり的大小が“**錯体の安定性 = 分離メカニズム**”の正体
⇒ 分離メカニズムに基づく分離試薬の設計・改良が可能に！

【本成果のまとめ】

MA/Ln分離に密度汎関数法を導入

→MAとLnの分離性能を再現することに成功

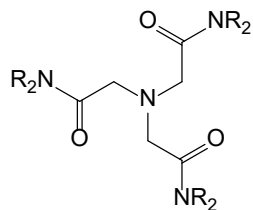
→共有結合により分離メカニズムを解明

【本成果の波及効果】

分離メカニズムに基づく新規分離試薬の分子設計と性能予測

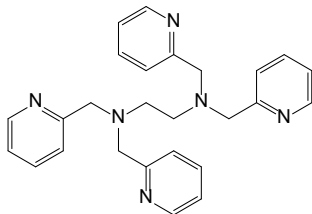
→高い分離性能を持つMA/Ln分離試薬の開発をサポート

計算科学を用いた分離試薬開発



HONTA試薬
分離係数 ~10

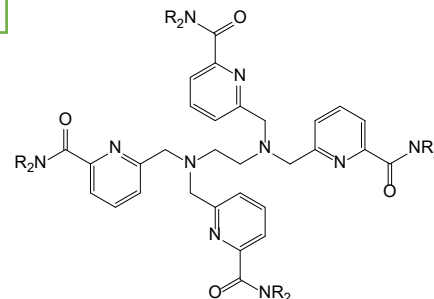
JAEAで開発した従来試薬の例



TPEN試薬
分離係数 ~100

もっと良くするには?

錯体の安定性を制御
→従来試薬の改良



TPAMEN試薬

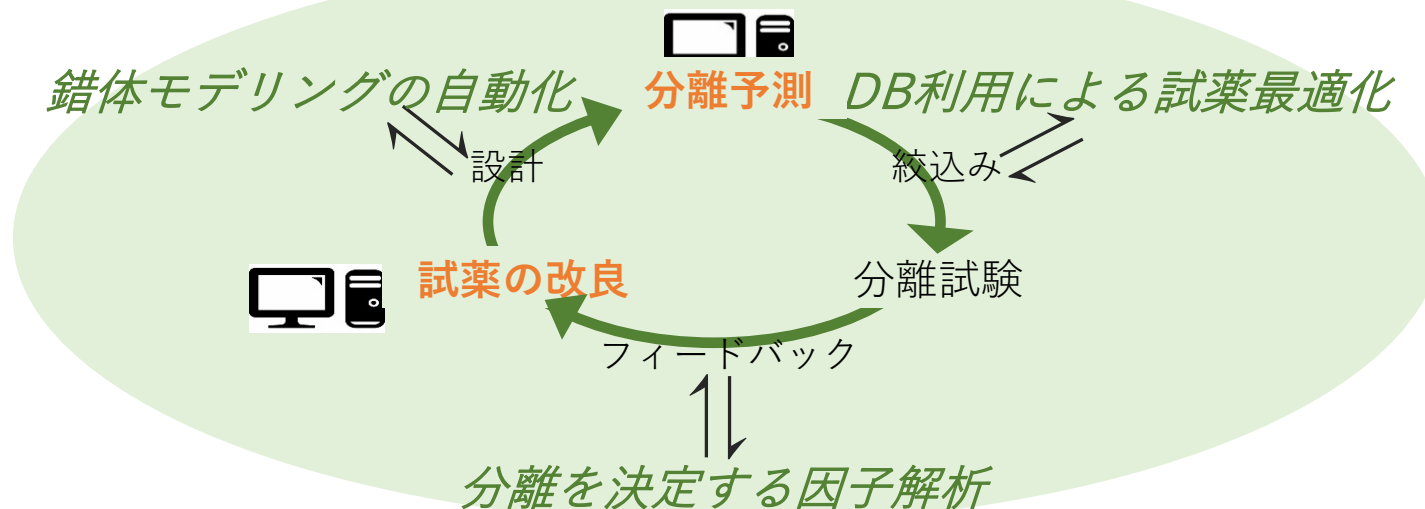
分離係数(予測値) 3800

計算により設計した新規試薬

実験での性能評価の効率化により分離試薬開発を加速!

第4期中長期目標に向けた展望

計算科学 + 人工知能を用いた分離試薬開発



原子力分野

高レベル放射性廃液からの
アクチノイド分離 白金族元素分離

非原子力分野

例) 医療用RI製造
Ac: 治療用 α 線源として有望
⇒Ac/Th, Ln分離が重要

例) 貴金属回収
Pd: 自動車触媒として利用
⇒Pd/Pt分離が重要

非原子力分野の元素分離へも応用可能!