

2023年9月22日(金)

A会場

奨励賞 受賞講演

奨励賞受賞講演

座長:北辻 章浩(日本原子力研究開発機構)

16:10 ~ 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S02] アクチノイドの溶液内複合反応研究と微量分析法

開発

*大内 和希¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

16:10 ~ 16:40

奨励賞 受賞講演

奨励賞受賞講演

座長:北辻 章浩(日本原子力研究開発機構)

2023年9月22日(金) 16:10 ~ 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S02] アクチノイドの溶液内複合反応研究と微量分析法開発

*大内 和希¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

16:10 ~ 16:40

2S02

アクチノイドの溶液内複合反応研究と微量分析法開発

(日本原子力研究開発機構¹⁾○大内和希¹

【緒言】ウラン (U) やネプツニウム (Np) などのアクチノイドは溶液中で 3~6 価の原子価を比較的安定にとる。その反応性は各種原子価によって異なることから、溶液内反応の素過程の解明や分離手法を開発するうえで原子価状態を把握・制御することが重要である。本発表では、原子価状態に着目し取り組んだ反応研究や分析法の開発について講演する。

【溶液内の反応研究】還元に伴う析出反応 従来、主に平衡状態での錯生成反応が研究されてきたが、本研究では電解と水晶振動子マイクロバランスの組合せにより、電極反応と析出反応を速度論的な相関を調べることで、析出物形成が 3 段階に進むことを見出し、反応の過程で形成されるコロイド粒子が U の還元を促進する特異な触媒作用を明らかにした[1]。また、形成した U 析出物を X 線吸収微細構造や電気化学インピーダンス法により分析し、U(IV)が水酸化物として析出し、時間経過とともに酸化物に変化する反応機構を明らかにした[2]。得られた知見は、地下環境のような還元雰囲気におけるアクチノイド移行などへの展開が期待される。

イオン液体-有機混合溶媒中の電極反応 劣化 U の有効利用法として期待されている、U を電極活物質とするレドックスフローバッテリー開発の基礎となる各種原子価状態の U の電極反応特性を調べた。水溶液中では不安定である U(III)及び U(V)がイオン液体中で安定化することに着目し、高粘度なため充放電効率の低下やポンプによる送液に課題があるイオン液体に有機溶媒を混合して粘度を下げることを着想した。結果として、イオン液体-有機混合溶媒中の U(IV)塩化物が、カーボン電極を作用極とすることで繰返し性の高い U(III)/U(IV)の電解が実現できることを見出した[3]。

【微量分析法の開発】 マイクロ化学チップによる微量 U 試料の分析手法の開発 マイクロ流路に陰イオン交換樹脂を充填したマイクロ流路カラムを作製し、高効率なイオン分離に適したカラム形状を調べ、幅及び深さ方向に配列する樹脂の必要数を明らかにした。知見に基づき設計・製作した分離カラムを高濃度の Cs を含む海水試料に適用して U を分離し分析に成功した。[4]。

ゲル電気泳動による Np(V)O₂⁺の微量分析法 蛍光プローブを利用する手法に着目し、複数の蛍光プローブ群からなる化学ライブラリーの中からポリアクリルアミドゲル電気泳動 (PAGE) を用いる速度論的手法により、解離不活性な Np(V)O₂⁺-フルオレセイン修飾フェナントロリン-2,9-ジカルボン酸錯体を見出した。この蛍光プローブは錯形成に伴い Np(VI)O₂²⁺を Np(V)O₂⁺に自動還元する特異な性質を有する。この原理に基づく PAGE 分析により検出限界 68 pmol dm⁻³ (17 fg) の極微量検出を達成し、模擬使用済み核燃料等の分析への適用にも成功している[5]。

これらの微小試料の分析法は 1 F で発生する高線量の放射性試料分析時の被ばく低減に大きく貢献する技術として期待される。

[1] K. Ouchi et al., *ECS Trans.*, **2017**, 75(27), 51–57. [2] K. Ouchi et al., *RSC Adv.*, **2023**, 13, 16321–16326. [3] K. Ouchi et al., *Chem. Lett.*, **2021**, 50, 1169–1172. [4] K. Ouchi et al., *Anal. Sci.*, **2021**, 37, 1789–1194. [5] K. Yamagata, K. Ouchi et al., *Inorg. Chem.* **2023**, 62, 730–738.

Studies on complex reactions of actinides in solution and development of analytical methods for small amounts of samples
OUCHI, K.