

平成21年 6月 9日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18760662
 研究課題名（和文） 超音波照射による局所的高温高圧場におけるアクチノイドの挙動と
 その分離への応用
 研究課題名（英文） Behavior of actinide under external ultrasound irradiation
 研究代表者
 有坂 真 (ARISAKA MAKOTO)
 日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究職
 研究者番号：80354843

研究成果の概要：超音波照射によるアクチノイド（ウラン、ネプツニウム、プルトニウム）の
 原子価調整法を開発した。水溶液への超音波照射は微細な気泡の生成を誘起し、この気泡の崩
 壊に伴い酸化性および還元性ラジカルが発生することから、これを利用する。各元素の原子価
 を照射条件によりそれぞれ制御できることを明らかにし、実際にこの方法により原子価調整を
 行い、陰イオン交換樹脂を用いてこれらの元素が相互に分離できることを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,900,000	0	1,900,000
2007年度	1,400,000	0	1,400,000
2008年度	300,000	90,000	390,000
総計	3,600,000	90,000	3,690,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：超音波、アクチノイド、局所的高温高圧場

1. 研究開始当初の背景

使用済核燃料中に含まれるウラン、ネプツ
 ニウム、プルトニウムなどのアクチノイドは、
 効率的なエネルギー利用（ウラン、プルトニ
 ウムの再利用）という観点から、高効率、か
 つ選択的に分離回収されることが望ましい。
 これらの各元素は、水溶液中において3価か
 ら6価までの多様な原子価状態で存在し得る
 ため、各元素をいかに精度良く定量的に目的
 の原子価状態に制御するかが効果的な分離
 回収達成のための鍵となる。

これまで、アクチノイドを効果的に分離回

収するために、その前段における原子価調整
 法として、(i)酸化還元剤の利用、(ii)電気
 化学的手法の適用、(iii)光または放射線の
 利用などが検討されてきた。しかし、(i)は
 多くの場合、酸化還元剤起因の金属イオンや
 塩などが溶液中に残されるため、後段の分離
 回収工程に及ぼす影響を考慮する必要があ
 った。また、(ii)は目的の金属イオン濃度が
 希薄な場合に適用が難しく、(iii)は光照射
 では効率を上げるのが難しい、放射線照射で
 は⁶⁰Co線源や加速器などの特殊な施設・設備
 が必要などの課題があった。

近年、超音波に由来する局所的高温・高圧場を利用する研究分野はソノケミストリー (Sonochemistry) と呼ばれ、一種の極限環境を利用した化学として注目を集めており、アクチノイドの原子価調整法への適用を考えた。

これまで、超音波をアクチノイドの溶液化学へ適用した研究は、1990年代にロシア、フランスなどで数例行われただけである。それらの研究は、低周波数領域 (20~40 kHz) の超音波を利用したものであり、そのような場合、攪拌および洗浄などの物理的作用が優位であり、ラジカルなどの活性種がもたらす化学的作用は殆ど期待できない。本研究では、これまで行われてこなかった高周波数領域 (200~600 kHz) の超音波による化学的効果に着目した。水溶液に対する超音波照射は微細な気泡の生成を誘起し、この気泡の崩壊に伴い水素ラジカル(H \cdot)やOHラジカル(OH \cdot)が発生するため、遠隔からの超音波照射による酸化・還元双方向への原子価操作が実現できると考えた。

2. 研究の目的

超音波照射の核燃料再処理分野への応用を見込み、超音波照射によるアクチノイド (ウラン、ネプツニウム、プルトニウム) の選択的遠隔原子価調整法を確立するとともに、それを利用する新規な分離回収系の構築を行うことを試みる。

3. 研究の方法

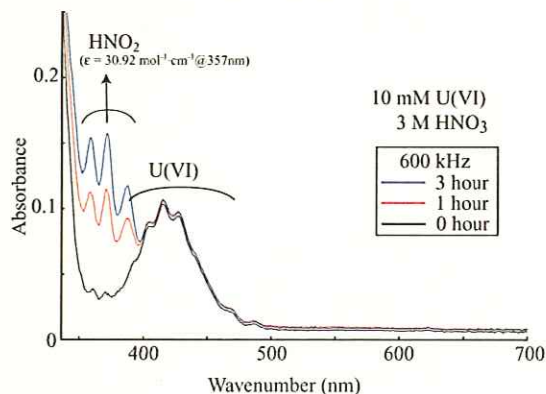
対象とするアクチノイドを含む水溶液にある一定時間超音波を照射した後、その吸収スペクトルを測定した。得られた吸収スペクトルの変化に基づき、その原子価の変化を調べた。また、陰イオン交換樹脂が共存する系で同様に超音波照射を行い、照射前後の吸着量の変化を吸収スペクトルに基づいて決定し、原子価の変化を調べた。

4. 研究成果

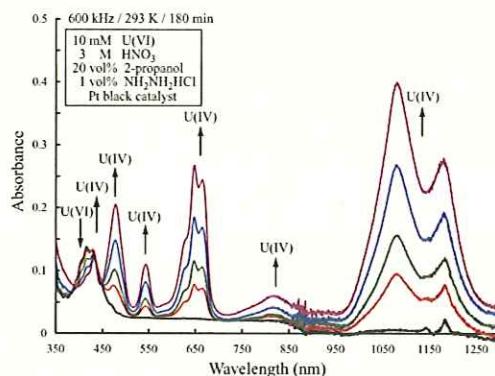
(1) 研究の主な成果

① ウランの原子価調整

ウラン(VI)は硝酸溶液中で非常に安定で

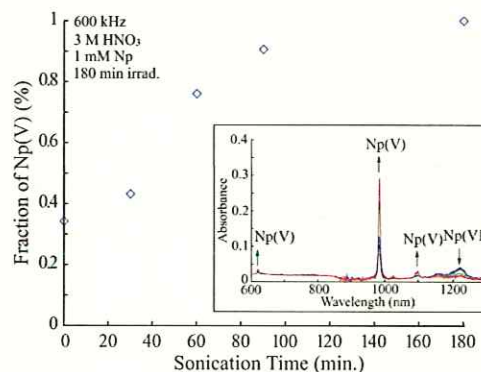


あり、600 kHz の超音波照射のみでは原子価は変化しないことを明らかにした。一方、超音波照射に伴い生成する酸化性ラジカルを適当なスカベンジャの添加により除去し、貴金属固体触媒 (白金黒など) を用いることで超音波照射のみならず還元力を増大させることに成功し、ウラン(VI)のウラン(IV)への還元を達成した。

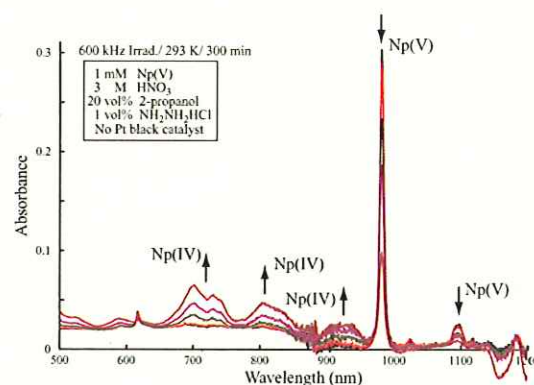


② ネプツニウムの原子価調整

ネプツニウム(VI)と(V)の混合状態の硝酸水溶液に 600 kHz の超音波照射を行うことによりネプツニウムの原子価を(V)に揃えることができることを明らかにした。

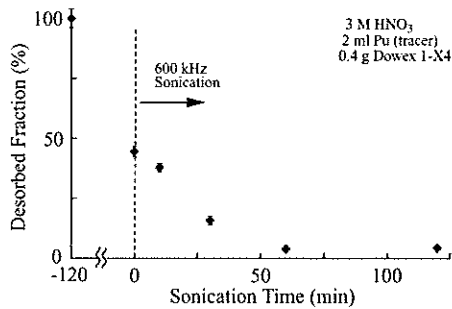


また、ウランの場合と同様、スカベンジャを添加し、貴金属固体触媒を用いることでネプツニウム(V)をネプツニウム(IV)へと還元することに成功した。

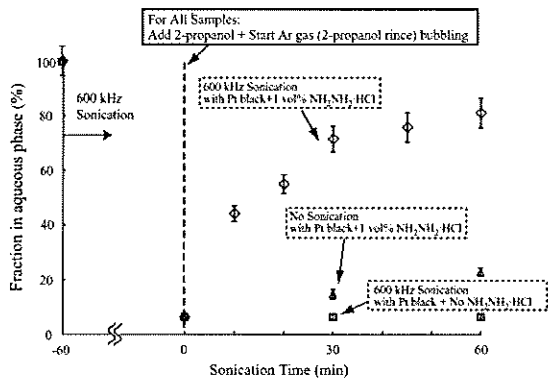


③プルトニウムの原子価調整

プルトニウム(VI)と(IV)の混合状態の硝酸水溶液に600 kHzの超音波照射を行うことによりプルトニウムの原子価を(IV)に揃えることができることを明らかにした。

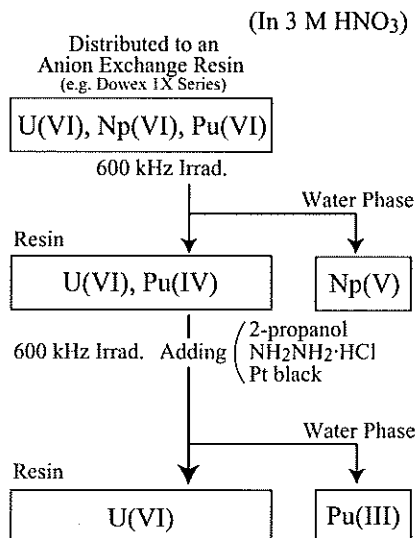


また、ウランの場合と同様、スカベンジャを添加し、貴金属固体触媒を用いることでプルトニウム(IV)をプルトニウム(III)へと還元することに成功した。



④分離スキームの提案

上記の①～③の成果から、照射条件の違いにより各元素が異なる原子価となることが明らかとなったため、陰イオン交換樹脂を用いる方法によりこれらの元素の相互分離スキームを提案することができた。



(2)国内外における位置付け

高周波数領域(200~600 kHz)の超音波による化学的効果に着目したアクチノイドの溶液化学的研究は今までに無い。また、遠隔操作が可能であることは高放射能を有する使用済燃料の再処理工程において大きなアドバンテージとなると考えられ、原子力界へ大きなインパクトを与えると考えられる。

(3)今後の展望

今後詳細な反応機構を調べるために、金属イオンの水和および錯形成に対して超音波照射が与える影響など、より基礎的なデータを取得していく必要があると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2件)

- ① T. Toraiishi, T. Kimura, M. Arisaka: *Chem. Commun.*, 3, 240-241 (2007).

"A remote valency control technique; catalytic reduction of uranium(VI) to uranium(IV) by external ultrasound irradiation" 査読有

- ② T. Toraiishi, T. Kimura, M. Arisaka: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 44(9), 1220-1226 (2007).

"Toward innovative actinide separation processes: sequential reduction scheme of uranium, neptunium and plutonium in 3 M HNO₃ by external ultrasound irradiation" 査読有

[学会発表] (計 1件)

- ① 虎石貴、「超音波照射によるアクチノイドの原子価調整法の開発」、日本原子力学会、2006年9月28日、札幌

[産業財産権]

○出願状況 (計 2件)

- ①「超音波照射による6価ウランの還元法」、
発明者：虎石貴、木村貴海、有阪真、権利者：日本原子力研究開発機構、特許、2006-196748、2006年7月19日、国内

- ②「超音波照射による6価ウランの還元法」、
発明者：虎石貴、木村貴海、有阪真、権利者：日本原子力研究開発機構、特許、PCT/JP2007/064220、2006年7月19日、外国

6. 研究組織

(1)研究代表者

有阪 真 (ARISAKA MAKOTO)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・研究職

研究者番号：80354843