#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業



交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文):ランタノイドとアクチノイドのf-f遷移を介する共鳴多光子電荷移動の研究を行った。メタノール溶媒中の3価ユウロピウムの共鳴2光子還元の量子収率を決定した。また、3価アメリシウム硝酸 錯体における共鳴多光子電荷移動を発見した。これはアクチノイドで初めての観測であり、共鳴多光子電荷移動 による酸化反応の最初の例である。そして、レーザー照射実験、放射光X線吸収微細構造解析、量子化学計算な どからメカニズムを解明した。さらに、共鳴多光子電荷移動による酸化状態の制御と溶媒抽出を組み合わせた、 新奇なfブロック元素分離法である「レーザーアシスト元素分離」を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究で実証したレーザーアシスト元素分離は、他のfブロック元素へ適用できる可能性がある。そして、原理 的には周期表で隣り合う元素の相互分離も可能である。そのため、光による元素選別を用いる分離に初めて成功 したことは、予想を上回る成果であり、1つの分岐点と言えるほど大きなインパクトがある。実用に向けての現 実的な次のステップとして、励起状態の情報を実験的に明らかにし、効率的な励起プロセスの開拓が期待され る。また、本研究にレクチノイドの光化学分野の発展に貢献する。アクチノイドは多数の酸化状態をもつため、 配位子を選択することで酸化あるいは還元の自在な制御も期待される。

研究成果の概要(英文):We investigated resonance-enhanced multiphoton charge transfer (REMPCT) via f-f transitions in lanthanides and actinides complexes. The quantum yields of each step of two-photon reduction of trivalent europium in methanol were determined. In addition, we found REMPCT in a nitrate complex of trivalent americium. This is the first observation of REMPCT for actinides and also the first finding of oxidation for f-block elements by REMPCT. Laser-irradiation experiments, synchrotron radiation X-ray absorption fine structure analyses, and quantum chemical calculations revealed its mechanism. Furthermore, we demonstrated laser-assisted element separation, which is a novel separation method for f-block elements using optical control of their oxidation states through REMPCT in combination with solvent extraction.

研究分野:物理化学

キーワード: 共鳴多光子電荷移動 アクチノイド f電子 レーザーアシスト元素分離 選択励起 共鳴吸収 多光子過程 ランタノイド

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。



#### 1.研究開始当初の背景

周期表において f ブロック元素に分類される元素群は、f 軌道に電子が順に占有されるという 特徴を持つ。第6周期の原子番号 57~71 までを4f元素(ランタノイド)、第7周期の原子番号 89~103 までを5f元素(アクチノイド)と呼ぶ。ランタノイドは発光材料や磁性材料として身近 に存在し、アクチノイドは使用済み核燃料に含まれる。ランタノイドは希少資源であるため、ア クチノイドは放射性廃棄物の減容化につながるため、これらの分離回収技術の研究開発が行わ れてきた。しかし、一般的にこれらの元素分離は難しい。多くは3価の酸化状態にあり、外殻電 子配置が共通していることに加え、イオン半径と酸化還元電位にほとんど差がないためである。 また、既存の分離手法には、工程が多段階に及ぶ点や二次廃棄物の発生などの課題がある。

近年では、酸化状態を制御し、価数を変更することで分離を容易にするというアプローチがある。具体的には、配位子で表面修飾した電極を用い、電気化学的手法によりアメリシウム(Am)の3価から5価あるいは6価への酸化反応を選択的に誘起することに成功したとの報告がある[1]。これに対して本研究では、fブロック元素の分光学的な特徴に着目した。

図1にランタノイドとアクチノイドの一部に関して、3価の水溶液における吸収スペクトルを示す。液相であるにも関わらず、線幅の狭い元素固有の吸収ピークが可視域に確認できる。これはf軌道電子の光学遷移である。Laporte 則では禁制であるため吸収は弱い。しかし、この選択的な吸収を利用して価数を制御、つまり、光酸化還元を引き起こすことができれば、新奇な分離手法が実現する可能性がある。弱い可視域の吸収を介して反応を誘起するには、多光子励起が必要である。そこで、共鳴多光子イオン化法に倣い、共鳴多光子酸化還元を引き起こす。歴史的には、1970年代後半にDonohueが、f-f遷移を介する多光子酸化還元は元素分離へ応用することが期待できると提唱した[2,3]。以降、液相では Nakashima らのグループがユウロピウム(Eu) サマリウム(Sm)、イッテルビウム(Yb)の共鳴多光子還元を報告している[4-7]。



の一部の10元素、(b)アクチノイドの一部の8元素。

2.研究の目的

共鳴多光子酸化還元による元素の選別法と、従来の抽出分離法を組み合わせた「レーザーアシスト元素分離」を創出することを目指した。そのために、fブロック元素の共鳴多光子酸化還元の基礎知見を集積した。応用に向けて重要な課題が効率である。そこで、まず分光分析装置を構築し、効率の向上を図る上で不可欠な効率の評価法を確立した。そして、取り扱いが容易な4f元素(ランタノイド)を用い共鳴多光子過程の量子収率を明らかにした。また、これまで報告されている例は全てランタノイドであり、なおかつ還元反応のみである。そこで、5f元素(アクチノイド)での共鳴多光子酸化還元を調べ、アクチノイドの酸化状態の制御に取り組んだ。また、配位子によって錯体を制御することで酸化反応の実現を目指した。さらに、4f元素及び5f元素の混合溶液から標的元素を分離し、レーザーアシスト元素分離を実証することを目的とした。

3.研究の方法

(1) <u>4f 元素(ランタノイド)</u>

3 価ユウロピウム ( $Eu^{III}$ )の共鳴多光子還元の 量子収率を実験的に調べた。そのための光学シス テムを構築した。図 2 にその光学配置を示す。ポ ンプ用に Ti:sapphire レーザー (394 nm, 15Hz, FWHM  $\leq$ 30 pm )を使用した。出力は 1/2 波長板と 偏光子で構成した減衰器により制御した。ポンプ 光はレンズ L1 と L2 でコリメートした。L3 のレ ンズで  $a = 2f_3$ を満たすように、セル位置の像を CMOS カメラに転送した。取得したビームプロフ ァイルから断面積 S を見積もった。

プローブ用に OPO レーザー (350 nm, 20 Hz,



FWHM ≤40 pm)を用い、生成物の吸光度変化をその場測定した。逆反応(1光子酸化)を抑えるため、透過光強度の S/N 比が許す限り減衰器で低出力にした。

#### (2) 5*f* 元素 (アクチノイド)

3 価アメリシウム(Am<sup>III</sup>)の硝酸錯体の共鳴多光子電荷移動を実験的に調べた。レーザー照射 実験では、励起光減に OPO レーザー(503 nm,~5 ns,<34mJ,10 Hz)を使用した。照射時間は 10– 40 min。レーザー内の OPO 用光学結晶のビームプロファイルを石英セル位置へ像転送すること で、ビーム直径を~2 mm に制御した。紫外可視分光光度計を用いて吸収スペクトルを測定し、反 応物と生成物の同定と定量を行った。メカニズムの解明のために、Am<sup>III</sup> 硝酸錯体の共鳴多光子 電荷移動の励起波長依存性、励起光強度依存性、硝酸濃度依存性を測定した。さらに、光化学反 応の鍵となる Am<sup>III</sup> 硝酸錯体の構造を、大型放射光施設 SPring-8 での X 線吸収微細構造(XAFS) 解析及び大型計算機を用いた量子化学計算により検討した。加えて、多光子励起後の f 電子の挙 動を電子励起状態計算により推定した。

#### (3) 4f 及び 5f 元素混合系におけるレーザーアシスト元素分離

核分裂生成物の模擬としてランタノイドの1つであるプラセオジム(Pr)を加え、Am と混合 した 2 元素混合硝酸水溶液に対してレーザー照射を行った。元素混合系においても標的元素 Am<sup>III</sup>の共鳴多光子電荷移動が選択的に誘起されるかを確認した。その後、光化学反応で変化し た状態の Am を溶媒抽出法により分離した。試料として 0.1 mM Am<sup>III</sup> と 0.55mM Pr<sup>III</sup> を混合した 3 M 硝酸(HNO<sub>3</sub>)水溶液を~100 μL 調製した。この試料へ 503 nm、~30 mJ の OPO レーザーを 15 時間照射した。照射後、16 mM の抽出剤 TODGA (N,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide) のドデカン溶液を~100 μL 加えて溶媒抽出を行った。水相と有機相それぞれの吸収スペクトルを 分光光度計で測定した。

4.研究成果

#### (1) 4f 元素 (ランタノイド)

メタノール溶媒中の Eu<sup>III</sup>へ 394 nm のレーザーを照射した。溶存酸素を取り除くため、試料は 事前に凍結脱気を行い密閉した。レーザー照射前後の差スペクトルから生成物を 2 価ユウロピ ウム(Eu<sup>II</sup>)と同定した。そこで、レーザー照射前後の差スペクトルにおける 350 nm での吸光度 差( $\Delta A_{350}$ )を用いて生成物 Eu<sup>II</sup>を定量した。 $\Delta A_{350}$ から Eu<sup>II</sup>濃度へ換算するため、Eu<sup>II</sup>のモル吸 光係数(220–450 nm)を事前に測定し、350 nm でのモル吸光係数 $\varepsilon_{350}$ を決定した。

 $\Delta A_{350}$ の励起波長依存性は、Eu<sup>III</sup>の*f-f* 遷移( ${}^{5}L_{6}-{}^{7}F_{0}$ )の吸収スペクトルとよく一致した。そのため、*f-f* 遷移において還元反応が誘起されることが確認できた。

従来よりも広いフルエンス領域を測定するため、励起レーザーのパルスエネルギーとビーム 断面積を制御した。これにより、 $10^2-10^4$  mJ cm<sup>-2</sup>の範囲の励起光強度依存性を測定することがで きた。測定した  $\Delta A_{350}$  のレーザーフルエンス依存性を単純に冪関数でフィットすると、<  $<10^3$  mJ cm<sup>-2</sup>の領域では冪指数~2 が得られた。そのため、観測された Eu<sup>III</sup>の還元反応を 2 光子過程とし て解析した。

単パルス当たりの2光子還元反応の確率は  $p_{red} = N_{II}/N_{III}$ と定義できる。 $N_{III}$ はレーザーパルス 照射前の反応体積における  $Eu^{III}$ の数であり、 $N_{II}$ は照射後に生成した  $Eu^{II}$ の数である。3準位の 分布に関する微分方程式から2光子過程の反応確率  $p_{red}$ は、1光子目の量子収率( $\varphi_1$ )2光子目 の量子収率( $\varphi_2$ )レーザーフルエンスを用いて表現できる。また、励起波長 394 nm は生成物  $Eu^{II}$ も電荷移動帯の裾でわずかに吸収する。そのため、生成した  $Eu^{II}$ が、同じパルスで  $Eu^{III}$ へ戻る

逆反応(1光子酸化)が起こりうる。そこで、逆 反応をモデルに取り入れた。1光子酸化の反応確 率 $p_{\text{oxi}}$ を用いると、観測される正味の還元反応確 率は $p = p_{\text{red}}(1 - p_{\text{oxi}})$ と表すことができる。

図3に測定値 $\Delta A_{350}$ から換算した反応確率pに 対するレーザーフルエンス依存性を示す。光吸収 の飽和と逆反応をモデル化して解析することで 実験結果をよく再現した。これにより1光子目の 量子収率( $\varphi_1$ )と2光子目の量子収率( $\varphi_2$ )を決 定できた。このように共鳴多光子酸化還元の各ス テップの量子収率を決定することは、全体の効率 を見積る上で欠かせない。また、共鳴多光子酸化 還元後の酸化状態が励起光を吸収する可能性は、 他のfブロック元素でも考えられる。そのような 場合でも、この研究で行った測定及び解析法は適 用できるため有用である。

[Matsuda et al., Chem. Phys. Lett. 802, 139759 (2022)]



図3 単一パルスによる Eu<sup>III</sup>の共鳴多光 子還元の反応確率のレーザーフル エンス依存性。

## (2) 5f元素(アクチノイド)

Am<sup>III</sup> 硝酸水溶液への 503 nm レーザー照射により、Am<sup>III</sup> の消費、5 価アメリシウム(Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>) と亜硝酸(HNO<sub>2</sub>)が生成した。この Am<sup>III</sup> から Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>への光酸化の反応機構を解明するために、 励起波長依存性、励起光強度依存性、硝酸イオン依存性を調べた。解析では、それぞれの吸収ピ ークの変化量から擬一次反応速度定数を見積り、上記の各依存性を評価した。以下では、この光 酸化による Am<sup>III</sup> 消費の速度定数を k<sup>III</sup>、Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>生成の速度定数を k<sup>V</sup>で示す。



図 4 Am<sup>III</sup> 硝酸水溶液における共鳴多光子酸化の(a)励起波長依存性と(b)励起光強 度依存性。(a, b)硝酸濃度[HNO<sub>3</sub>] = 3 M、照射時間 10 min。(a)塗りつぶしは Am<sup>III</sup> 硝酸水溶液の吸収スペクトル、パルスエネルギー~32 mJ。(b)励起波長 503 nm。

励起波長依存性の結果(図 4a)から観測された光酸化は Am<sup>III</sup>の *ff* 遷移( ${}^{5}L_{6}-{}^{7}F_{0}$  遷移)で起こることがわかった。励起光強度依存性の結果(図 4b)を冪関数で近似し最適化したところ、冪指数~1.5 が与えられた。この単純な解析には、光吸収の飽和が組み込まれていない。そのため、1よりも有意に大きな冪指数は、2 光子過程を示唆している。実際、503 nm の 2 光子のエネルギーは 39761 cm<sup>-1</sup>であり、この値は電荷移動帯(CT バンド)の閾値 42500 cm<sup>-1</sup>とおおよそ一致する。以上から、Am<sup>III</sup>の*f* 電子励起状態( ${}^{5}L_{6}$ )を介する Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub>+への共鳴多光子酸化が誘起されたことがわかった。



図 5 Am<sup>III</sup> 硝酸水溶液における共鳴多光子酸化の(a)硝酸イオン依存性と(b)スキーム。 (a)横軸は NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の活量 *a*<sub>NO3</sub>。錯体の比率 *f<sub>n</sub>* = [Am<sup>III</sup>(NO<sub>3</sub>)<sub>n</sub>]<sup>3-n</sup>/∑<sup>2</sup><sub>i=0</sub>[Am<sup>III</sup>(NO<sub>3</sub>)<sub>i</sub>]<sup>3-i</sup>、 *n* は NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の数(*n* = 0, 1, 2, …)。503 nm 励起、~32 mJ、10 min。挿入した錯体構 造は、密度汎関数理論(DFT)計算により最適化した。

 $Am^{III}$ の共鳴多光子酸化は、これまでのところ硝酸水溶液でのみ観測された。硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 依存性の結果(図 5a)から、硝酸イオンの活量  $a_{NO3} < ~1$  M の領域では、 $k^{III}$  は傾き1に近く比 例しているが、 $a_{NO3} > ~1$  M の領域では、飽和が確認できる。これは、 $Am^{III}$ の水和イオンでは共 鳴多光子酸化が起こらず、 $Am^{III} \ge NO_3^-$ の錯体で起こることを意味する。そこで、反応スキーム (図 5b)に基づいて、 $k^{III}(a_{NO3})$ をモデル化した。 $k^{III}$ を各錯体由来に分割した  $k_n \ge$ 平衡定数  $K_n$ を 用いると、 $k^{III}(a_{NO3})$ を表現できる。 $k_n$ をパラメーターとして解析すると測定値をよく再現した(図 5a)。最適化された  $k_n$ から、 $k_0/k_1 = 0.0040 \pm 0.0003 \ge k_2/k_1 = 0.44 \pm 0.07$ が得られた。 $k_1$ が $k_0$ に対 して 3 桁大きいことは、1:1 錯体( $Am^{III}NO_3^{2+}$ )が共鳴多光子酸化に必須であると理解できる。ま た、 $k_2$ が $k_1$ に対して<1/2 であることは、1:2 錯体( $Am^{III}(NO_3)_2^+$ )では共鳴多光子酸化が抑制され ることを示唆している。

反応機構として、反応(1)のように2光子あるいは3光子によって、Am<sup>v</sup>O<sub>2</sub>+とニトロソニウム イオン(NO<sup>+</sup>)が生成されるモデルを提案した。また、HNO<sub>2</sub>の生成は、反応(2)で説明できる。

$$Am^{III}NO_3^{2+} \xrightarrow{mn\nu} Am^{\nu}O_2^{+} + NO^{+} (m = 2 \text{ or } 3)$$

$$NO^{+} + H_2O \qquad HNO_2 + H^{+}$$
(2)



図 6 (a)Am<sup>III</sup>-NO<sub>3</sub>-錯体における共鳴多光子電荷移動の概念と(b)AmNO<sub>3</sub>の断熱ポテンシャルエネルギー曲面と構造変化。(a)左から Am<sup>III</sup>のエネルギーダイアグラム、電子配置、光学遷移と電子移動のイメージ。(b)左上は座標系の定義。

図 6a に Am<sup>III</sup>–NO<sub>3</sub> - 錯体における共鳴多光子電荷移動の概念を示した。電子構造を考えると、 Am<sup>III</sup> は 503 nm を 1 光子吸収することで基底状態  ${}^{7}F_{0}$  から *ff* 遷移し、励起状態  ${}^{5}L_{6}$  の電子配置 (5*f*)<sup>6</sup> に変化する。2 光子目の吸収により  ${}^{5}L_{6}$  の 2 電子で占有された 5*f* 軌道から 6*d* 軌道への *f-d* 遷 移が起こると、Am<sup>IV</sup>の基底状態  ${}^{6}H_{5/2}$  の電子配置(5*f*)<sup>5</sup> になりうる。さらに 3 光子目を吸収し、 ${}^{6}H_{5/2}$ の 5*f* 軌道から 6*d* 軌道への *f-d* 遷移が起こると、Am<sup>V</sup> の基底状態  ${}^{5}I_{4}$  の電子配置(5*f*)<sup>4</sup> になりうる。 配位構造が類似する 3 価ネオジム ( Nd<sup>III</sup> ) 硝酸錯体の XAFS 解析結果から、Am<sup>III</sup>–NO<sub>3</sub> - 錯体で も、NO<sub>3</sub> つ 0 原子 2 つが Am<sup>III</sup> へ対称的に二座配位することが示唆された。そのため、図 6a の ように *f-d* 遷移によって NO<sub>3</sub> つ空軌道への電荷移動が起こり、Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub>+と NO+に変化する可能性 がある。この反応経路を検証するために量子化学計算を行った。その結果、ポテンシャルエネル ギー曲面に沿って、錯体は図 6b のように構造変化することがわかった。また、各構造での *f* 電 子数の計算結果を考慮すると、Am の酸化数が III IV V と段階的に変わる、つまり、Am<sup>III</sup> か ら NO<sub>3</sub> に 2 電子が段階的に移動することが明らかになった。このように、光励起で直接 Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub>+

ここまでの結果から、アクチノイドの共鳴多光子電荷移動を初めて観測した。また、fブロック元素の共鳴多光子電荷移動において初めて酸化反応に成功した。

すくなることで、安定な Am<sup>V</sup>O2<sup>+</sup>が生成される反応経路をたどることが示唆された。

#### (3) 4f 及び 5f 元素混合系におけるレーザーアシスト元素分離

調製した溶液の吸収スペクトルのピークは、Am<sup>III</sup> と Pr<sup>III</sup>の *f*-*f* 遷移に帰属された。これに対し 503 nm レーザ ー照射後の吸収スペクトルでは、新たに Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>に帰属 される *f*-*f* 遷移と HNO<sub>2</sub>の吸収が現れた(図 7a)。また、 照射中の各元素の酸化状態から、Pr<sup>III</sup> と Am (total)は一 定で、他の価数は確認されなかった。従って、元素混合 系でも期待通り Am<sup>III</sup>の選択的な価数制御が実現した。

照射後の試料に対し、3価に作用する抽出剤 TODGA を用いて溶媒抽出した結果が図 7b である。選択励起で 価数制御した Am<sup>V</sup>O2<sup>+</sup>を水相に、残りの Am<sup>III</sup> と Pr<sup>III</sup> は 有機相に分離することができた。この結果から共鳴多 光子電荷移動による元素の選別と、従来の抽出分離の 組み合わせである「レーザーアシスト元素分離」を実証 できた。

[Matsuda et al., *Sci. Adv.* **8**, eabn1991 (2022)] https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.abn1991

## 参考文献

- [1] C. J. Dares et al., Science 350, 652–655 (2015)
- [2] T. Donohue, J. Chem. Phys. 67, 5402–5404 (1977)
- [3] T. Donohue, Chem. Phys. Lett. 48, 119–121 (1977)
- [4] M. Kusaba et al., Chem. Phys. Lett. 221, 407–411 (1994)
- [5] N. Nakashima et al., J. Phys. Chem. A. 103, 3910–3916 (1999)
- [6] D. Nishida et al., J. Phys. Chem. A. 114, 5648–5654 (2010)
- [7] N. Nakashima, K. Yamanaka, T. Yatsuhashi, J. Phys. Chem. A. 117, 8352–8359 (2013)



図7 (a) Am<sup>III</sup> と Pr<sup>III</sup> を含む3 M 硝 酸水溶液へのレーザー照射 (503 nm, ~30 mJ, 15 h) 前後 の吸収スペクトル。(b)溶媒 抽出後の水相と有機相の吸 収スペクトル。

# 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件(うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件)

1.著者名	4.巻
松田晶平,横山啓一	786
2.論文標題	5 . 発行年
高レベル放射性廃液中の元素を光で選別	2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Isotope News	6-9
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
し なし	無
「オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1.著者名	4.巻
Matsuda Shohei, Nakashima Nobuaki, Yokoyama Keiichi, Taniguchi Seiji, Chosrowjan Haik, Somekawa	802
Toshihiro、Yatsuhashi Tomoyuki	
2.論文標題	5 . 発行年
Laser-fluence dependence of resonance-enhanced multiphoton reduction of trivalent europium	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Chemical Physics Letters	139759 ~ 139759
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.cplett.2022.139759	有
	-
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1.著者名 Yamaguchi Akiko、Nagata Kojiro、Kobayashi Keita、Tanaka Kazuya、Kobayashi Tohru、Tanida Hajime、Shimojo Kojiro、Sekiguchi Tetsuhiro、Kaneta Yui、Matsuda Shohei、Yokoyama Keiichi、 Yaita Tsuyoshi、Yoshimura Takashi、Okumura Masahiko、Takahashi Yoshio	4 . 巻 25
2.論文標題	5 . 発行年
Extended X-ray absorption fine structure spectroscopy measurements and ab initio molecular dynamics simulations reveal the hydration structure of the radium(II) ion	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
iScience	104763 ~ 104763
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.isci.2022.104763	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

1.著者名	4.巻
Matsuda Shohei、Yokoyama Keiichi、Yaita Tsuyoshi、Kobayashi Tohru、Kaneta Yui、Simonnet Marie、	8
Sekiguchi Tetsuhiro, Honda Mitsunori, Shimojo Kojiro, Doi Reisuke, Nakashima Nobuaki	
2.論文標題	5 . 発行年
Marking actinides for separation: Resonance-enhanced multiphoton charge transfer in actinide	2022年
complexes	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Science Advances	eabn1991
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1126/sciadv.abn1991	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

1.著者名	4.巻
山口瑛子,永田光知郎,田中万也,小林恵太,小林徹,下条晃司郎,谷田肇,関口哲弘,金田結依,松田	45
晶平,横山啓一,矢板毅,吉村崇,奥村雅彦,高橋嘉夫	
2.論文標題	5 . 発行年
EXAFSによるRaの水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
放射化学	28-30
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
なし	無
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-
	1

1.著者名	4.巻
Nobuaki Nakashima, Tomoyuki Yatsuhashi, Kenji Sakota, Izumi Iwakura, Sena Hashimoto, Keiichi	752
Yokoyama, Shohei Matsuda	
2.論文標題	5.発行年
An electron-capture efficiency in femtosecond filamentation	2020年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Chemical Physics Letters	137570
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.cplett.2020.137570	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

#### [学会発表] 計4件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件) 1.発表者名

松田晶平,横山啓一,矢板毅,小林徹,中島信昭

2.発表標題

硝酸溶液における三価アメリシウムのf-f遷移を介する多光子励起により誘起される酸化過程

3.学会等名

2021年光化学討論会

4 . 発表年 2021年

1.発表者名

山口瑛子,永田光知郎,田中万也,小林恵太,小林徹,下条晃司郎,谷田肇,関口哲弘,金田結依,松田晶平,横山啓一,矢板毅,吉村崇,奥村雅彦,高橋嘉夫

#### 2.発表標題

EXAFSによるRaの水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明

#### 3 . 学会等名

日本放射化学会第65回討論会

4.発表年 2021年

#### 1.発表者名

山口瑛子,永田光知郎,田中万也,小林恵太,奥村雅彦,小林徹,下条晃司郎,谷田肇,関口哲弘,金田結依,松田晶平,横山啓一,矢板 毅,吉村崇,高橋嘉夫

# 2 . 発表標題

ラジウムの水和構造及び粘土鉱物への吸着構造の解明

3.学会等名

日本地球化学会第68回年会

4.発表年 2021年

# 1.発表者名

MATSUDA, Shohei; YOKOYAMA, Keiichi; YAITA, Tsuyoshi; KOBAYASHI, Tohru; NAKASHIMA, Nobuaki

#### 2.発表標題

Photooxidation of trivalent americium in nitric acid

3 . 学会等名

第36回化学反応討論会

4 . 発表年

2021年

## 〔図書〕 計0件

#### 〔産業財産権〕

〔その他〕

ブレスリリース
高レベル放射性廃液中の元素を光で選別、分別回収の革新的原理を実証
デザインされた光により、光反応の元素選択性と反応性を両立させることに成功
2022年5月20日
(日本原子力研究開発機構)https://www.jaea.go.jp/02/press2022/p22052003/
(大阪公立大学)https://www.omu.ac.jp/info/research\_news/entry-00833.html
(SPring-8)http://www.spring8.or.jp/ja/news\_publications/press\_release/2022/20220520/
報道
日刊工業新聞「レーザー光で分別回収 放射性廃液中の元素 希少金属精錬に応用」2022年5月24日
https://www.nikkan.co.jp/articles/view/637196
電気新聞「廃心マメリシウム分離 実証成功 減容化も」2022年5月25日
科学新聞「ラレイル放射性廃液中の元素 光で選別して分別回収」2022年6月17日
Science Japan「JAEA and others successfully separate and recover americium from highly radioactive waste」2022年7月13日
https://sj.jst.go.jp/news/202207/n0713-03k.html

6.研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

#### 7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

# 8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況