

令和 2 年 6 月 19 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2019

課題番号：15H04248

研究課題名(和文) レーザーを使った新奇元素分離技術の開発および高レベル放射性廃液からの元素回収試験

研究課題名(英文) Development of elemental separation using laser induced reaction and its application to high-level radioactive waste

研究代表者

佐伯 盛久 (Saeki, Morihisa)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 東海量子ビーム応用研究センター・上席研究員(定常)

研究者番号：30370399

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では「レーザー微粒子化分離により使用済み核燃料溶解液からPdを選択的かつ効率よく回収する技術の開発およびその実証試験」を大目標に設定し、Pd回収効率を最大化する分離条件の探索、被爆リスクを低減させるための分離手順の確立、使用済み核燃料溶解液からのPd回収試験を進めた。その結果、レーザー照射方式改良による分離効率の向上、模擬溶液でのPd回収効率を最大にする分離パラメータの最適化、時間分解XAFS分光による反応メカニズム解明を行い、使用済み核燃料溶解液からPdを、アクチノイド元素の混入を0.01%以下に抑えた条件で、90%以上の効率で回収することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レーザー微粒子化分離は新しい概念に基づく元素回収法であり、非接触で遠隔操作による分離が可能なので、放射性廃液からの元素分離に適すると考えられていたが、本課題で使用済み核燃料溶解液からのパラジウム回収試験を行うことにより、そのことを初めて実証した。これは使用済み核燃料の処理・処分における負担軽減に資する成果である。また、時間分解XAFS測定でレーザー微粒子化の反応メカニズムを調べ、金属微粒子成長で重要な役割を果たす自己触媒反応が光吸収により促進されることを発見した。こちらもナノ科学などの観点から重要な知見である。

研究成果の概要(英文)：A big goal of this project is to achieve selective and effective recovery of a palladium (Pd) from a solution of spent nuclear fuel (SNF) using a laser-induced particle formation. For the big goal, we searched the separation condition that maximizes recovery efficiency of the Pd from the SNF solution, established the recovery procedure to decrease radiation exposure risk in treatment of the SNF solution, and performed verification test of the Pd recovery from the SNF solution. As the result of these efforts, we have succeeded (i) in increasing the Pd recovery efficiency by improvement of a laser irradiation condition, (ii) in optimizing the separation parameters that maximizes the Pd recovery efficiency, (iii) in elucidating reaction mechanism of the laser-induced particle formation in the Pd solution, and (iv) in recovering the Pd metal, which does not contain the radioactive actinide elements (<0.01%), from the SNF solution with the efficiency of >90%.

研究分野：レーザープロセッシング

キーワード：レーザープロセッシング 反応・分離工学 使用済み核燃料 パラジウム 廃棄物再資源化 X線吸収分光

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 高レベル放射性廃液から白金族元素を分離回収する技術の必要性: 近年、地球環境への負荷軽減の観点から使用済み核燃料の放射能低減および処理・処分における負担軽減が要求されており、そのための元素分離や核変換研究が進められている。原子力発電施設から排出された使用済み核燃料を処理することにより発生する使用済み核燃料溶解液や、そこからウランやプルトニウムを除去した高レベル放射性廃液にはウラン核分裂生成物としてランタノイド元素以外にも白金族元素であるルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、パラジウム(Pd)等有用な希少元素が含まれており、本課題開始当初、これら希少元素を使用済み核燃料溶解液などから分離・回収することにより、環境負荷軽減のみならず、資源として有効に再利用することが計画されていた[1]。また、白金族元素同位体の中でも長寿命放射性核種である ^{107}Pd (半減期 650 万年)は、使用済み核燃料の処理・処分においてその存在量の把握が重要な核種であり、 ^{107}Pd 分析の前処理法としても白金族元素の分離回収技術が必要とされていた。

(2) 既存の白金族元素回収技術における課題: 古くから白金族元素の回収法として、イオン交換法や溶媒抽出法、共沈法、電解還元法など、いくつかの確立した手法が存在し、これらの手法に基づく放射性廃液からの白金族元素の回収技術はすでに開発されていた。しかしその一方で、(i)放射性廃液に長時間接触させたイオン交換樹脂や金属電極、また溶液環境を調整するために加える金属塩(ナトリウム塩など)が2次放射性廃棄物になり、処分すべき廃棄物が増加する、(ii)多段階の煩雑な分離操作が必要のため放射線被曝のリスクが高まる、(iii)回収した白金族元素がイオン交換樹脂などの分離媒質に強く吸着してしまい、そこからの再回収が困難になるなどの課題をかかえており、これらの問題に対応できる新しい元素回収技術が必要とされていた。

(3) レーザーによる新奇元素分離法の原理: 一方、2009 年から佐伯(研究代表者)らは「レーザー微粒子化分離法」に着目し、放射性廃液からの白金族元素回収に利用することを考案していた[2]。本分離法の原理を図1に示す。この手法では、アルコールなどの還元助剤を添加した試料溶液に単色性の高い紫外レーザーを照射し、白金族元素イオンだけを選択的に電子励起する。電子励起された白金族元素イオンはアルコールと反応して還元された後、自発的に凝集して微粒子を形成するので、ろ過などの手法により他の元素イオンと分離して回収できる。

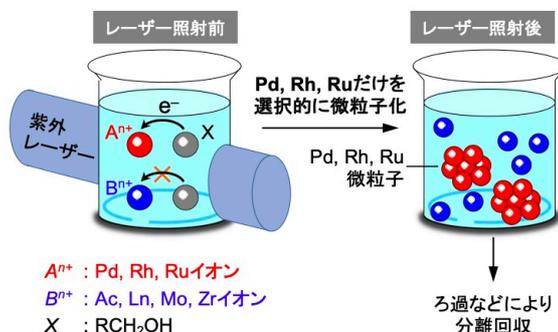


図1 レーザー微粒子化分離の概念図 [1 1 a]

(4) レーザー微粒子化分離法の利点: レーザー微粒子化分離では、分離時にレーザー光で元素イオンを還元・微粒子化するので、(i)放射性廃液に金属電極のような媒体を接触させる必要がなく、(ii)レーザー光の直進性を利用した単純な、遠隔からの光照射により分離操作ができ、(iii)金属回収はろ過などで行うため、白金族元素が分離媒質に強く吸着せず、回収が容易である、という利点をもつ。これらの点において、レーザー微粒子化分離は放射性廃液からの白金族元素回収に適した手法と言える。

(5) レーザー微粒子化分離法の実証研究: レーザー微粒子化分離の研究例は少なく、我々が研究を開始するまで、ディスプロシウム(Dy)とPdの2元素模擬溶液でのみ報告されていた[3]。そこで我々は、レーザー微粒子化分離の有効性を示すため、使用済み核燃料中に含まれるPd, Ru, Rhとネオジウム(Nd)の4種類の元素イオンから調整した試料溶液で分離実験を行い、混合溶液系からPd, Rhをほぼ100%、Ruは60%程度の効率で回収できること、さらにレーザー照射条件を調整することによりPdだけを優先的に回収できることも実証した[4]。また、使用済み核燃料中にウラン核分裂生成物として比較的多く含まれる14元素(Rb, Cs, Sr, Ba, Mo, Zr, Ru, Rh, Pd, La, Ce, Pr, Nd, Sm)を選択し、それらを含む試料溶液で分離試験を行った結果、この系でもPdだけを50%程度の効率で回収することに成功していた。

2. 研究の目的

本課題では、レーザー微粒子化分離により使用済み核燃料溶解液からPdを選択的かつ効率よく回収する技術の開発およびその実証試験、を大目標に設定した。そしてこの大目標を達成するために、

- ① 多様な元素イオンが共存する溶液系でのPd回収効率を最大化する分離条件の探索、
- ② 放射性廃液の取り扱いにおける被曝リスクを低減させるための分離手順の確立、
- ③ ①および②で決めた分離条件・手法による使用済み核燃料溶解液からのPd回収試験

という、3つの小目標を掲げて研究を進めた。特に目標①について、我々は本課題開始前に14元素混合溶液からの選択的Pd回収には成功していたが、その回収率は4元素混合溶液よりも大きく低下していた(100%@4元素系 → 50%@14元素系)。これはPdイオンに対して、共存元素イオンの量や種類が増えるとレーザー微粒子反応が阻害されることを示唆しており、30種類以上の元素イオンが共存する使用済み核燃料溶解液にレーザー微粒子化分離を適用するには、この問題を解決する必要がある。

3. 研究の方法

(1) 目標①のための研究方法: レーザー微粒子化分離を効率的に行う実験条件を探索するために、使用済み核燃料に含まれる複数種の元素(Pdを含む)の硝酸溶解液(模擬溶液)を準備した。そして、考え得る実験パラメーター(レーザー照射条件、分離試料調整条件など)を変えながら模擬溶液で Pd 回収実験を行い、ICP 発光分光分析装置(ICP-AES)および ICP 質量分析装置(ICP-MS)により Pd 回収率を測定し、分離効率が最大になる条件を探索した。また予期せぬ実験パラメーターを見いだすために、大型放射光施設 SPring-8(兵庫県佐用郡)において時間分解 X 線吸収微細構造(XAFS)分光による Pd 溶液系でのレーザー微粒子化の反応速度論的研究を行い、反応メカニズムに基づき新たなパラメーターを見いだして、Pd 回収効率の向上に役立てた。

(2) 目標②のための研究方法: 使用済み核燃料のような高濃度の放射性物質を含む試料の分析時には、取り扱う試料の量を少なくして設備の汚染や作業者の被曝を低減する必要がある。そこで、取り扱う放射性物質の量を抑制しつつ、一定量の Pd を回収できる試料濃度を明らかにするために、希釈率を変えた模擬溶液からのレーザー微粒子化分離による Pd 回収実験を行い、使用済み核燃料溶解液での実験を行う時に使用する試料濃度や作業手順を確立した。

(3) 目標③のための研究方法: 目標②で確立した分離手順に、目標①で見いだした Pd 回収効率を向上させるための工夫を加え、使用済み核燃料硝酸溶液からの Pd 回収実験を行った。実験は日本原子力研究開発機構原子力科学研究所(茨城県東海村)内の放射線管理区域で実施した。

4. 研究成果

(1) レーザー照射方式改良による分離効率の向上[5]: レーザーは照射方式により、一定の出力を連続的に発生する連続発振レーザーと、一定の繰り返しで出力を短時間(10^{-15} – 10^{-9} 秒)に発生するパルス発振レーザーに大別できる。パルス発振レーザーでは、Q スイッチと呼ばれる技術により光を光共振器内で蓄積させてからパルスの放出するため、連続発振レーザーよりも高強度の光を発生でき、それを溶液中の元素イオンに吸収させた時、特殊な光化学反応が期待できる。

そこで佐伯らはレーザー照射方式によりレーザー微粒子化分離での Pd 回収率が変化するか調べるために、波長 355 nm のナノ秒パルス紫外レーザー光(繰返し 10 Hz、パルス幅 8 ns)および疑似連続紫外レーザー光(繰返し 30 kHz)を用意した。そして、Pd とモリブデン Mo(使用済み核燃料の主要元素の 1 つ)から調整した模擬溶液(1 v/v% エタノール添加)に両方のレーザーを照射し、生成した微粒子をろ過(孔径 200 nm フィルター使用)により回収し、回収前後の溶液中の金属イオン濃度の比較から回収効率を求めた。なお照射時は、単位時間あたりの照射強度がパルスレーザーと疑似連続レーザーで等しくなるよう(実験時は 0.5 W に設定)、光学フィルターを用いてレーザー強度を調整した。

実験の結果、図2に示すようにレーザー照射方式によらず Pd と Mo は分離されるが(Mo 回収率は 0%)、最終的な Pd 回収率はパルスレーザーでは 84%、疑似連続レーザーでは 72% となり、同じ照射強度でもパルス照射方式の方が回収効率が向上した。さらに田口(研究分担者)が、回収した Pd 微粒子を電子顕微鏡で観察した結果、パルスレーザー照射時には 100–500 nm の微粒子が多く生成するのに対し、疑似連続照射時にはナノ微粒子(<10 nm)の凝集体が生成することがわかった。孔径 200 nm のフィルターで微粒子を回収していることを考慮して、疑似連続レーザー照射時には微粒子成長はナノサイズで止まり、取りこぼしがあるために回収率が下がったものと結論した。

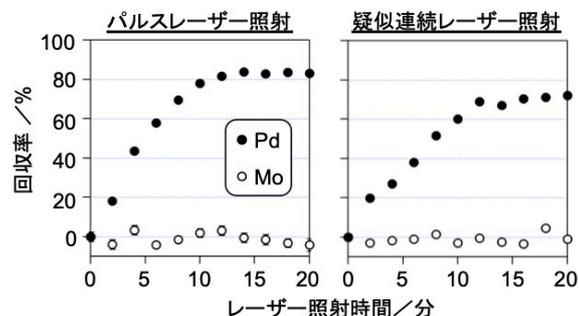


図2 Pd&Mo 模擬溶液でレーザー照射方式を変えた時の元素回収率の時間変化の違い [X]

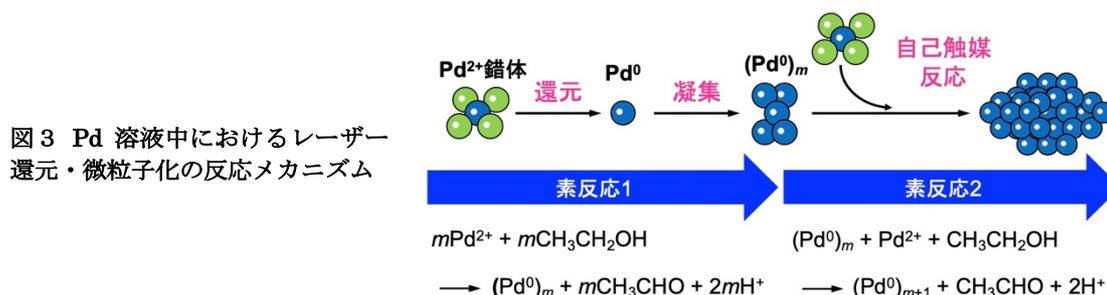
(2) パラメーターサーベイによる分離条件の探索[6]: 先に、レーザー微粒子化分離における実験パラメーターの1つとしてレーザー照射方式を挙げたが、それ以外にも(a)添加する還元助剤(エタノールなど)の濃度、(b)レーザー照射時間、(c)レーザー強度が考えられる。そこで、浅井・蓬田(研究分担者)らは使用済み核燃料に含まれる非放射性の主要14元素(Rb, Sr, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm)から準備した模擬溶液を用い、添加エタノール濃度を 0–50 v/v%、レーザー照射時間を 0–60 分、レーザーパルス強度を 10–150 mJ の範囲で変化させて、パルスレーザー照射により Pd 回収実験を行い、回収効率が最大になる条件を探索した。その結果、エタノール濃度 40 v/v% で回収効率最大になり、レーザー照射時間は 20 分以上、パルス強度は 50 mJ 以上で回収効率が一定になることがわかった。そして、最適化した条件(エタノール濃度 40 v/v%、レーザー照射時間 20 分、レーザー強度 50 mJ)で分離試験を行い、14元素模擬溶液から 60% 程度の Pd を選択的に回収し、不純物の混入を数%以下に抑えることに成功した。なお、エタノール濃度が 0% と 100% の中間あたりで Pd 回収効率が最大になるのは、エタノールには還元効果だけでなく、溶媒和により Pd イオンを安定化させる効果があり、この2つの効果のバランスにより微粒子化効率が決まるためと考えられる。

(3) 時間分解 XAFS 分光によるレーザー微粒子化の反応メカニズム研究[7]: レーザー微粒子化分

離の実験パラメーターとして、上述したように、レーザー照射方式、還元助剤濃度、レーザー照射時間・強度、を考えたが、これ以外にも予期せぬパラメーターが存在する。さらに、レーザー微粒子化では、光照射方式に依存して Pd 回収率が変化するなど、ランプやガンマ線照射による光誘起微粒子化とは異なる現象が見つかった。そこで、これらの問題を解明するために、佐伯・松村(研究分担者)は研究協力者の助力の下、その場・時間分解 XAFS により Pd 溶液中でのレーザー微粒子化の反応速度論的研究を行った。

実験は、SPring-8 BL14B1 にパルス発振紫外レーザーを設置し、エタノールを添加した Pd 試料溶液に強度を変えた紫外レーザーを照射し、Pd K-edge (24.3 keV) 近傍の X 線吸収スペクトル変化を松村らが開発した Dispersive XAFS 装置により追跡した。そして、X 線吸収スペクトルから Pd²⁺→Pd⁰還元反応にともなう Pd²⁺イオンの濃度変化を求め、反応速度論的モデルに基づきデータを解析し、反応速度と照射レーザー強度との相関を調べた。

実験データを解析した結果、図3のようなプロセスで反応が進行していることが明らかになった。すなわち、Pd²⁺イオン溶液に紫外レーザーが照射されると、Pd²⁺イオン錯体は1光子吸収により電子励起され、エタノールと反応して Pd⁰ に還元される。Pd⁰ は溶液中で自発的に凝集して Pd 微粒子を形成するとともに、ある程度の大きさまで成長した Pd 微粒子は触媒としてふるまい、Pd²⁺→Pd⁰還元反応を促進する(自己触媒反応)。自己触媒反応は照射レーザー強度に対して多光子依存性を示し、そのため高強度レーザー照射により還元・微粒子化反応を効率的に進行させることができる。また、自己触媒の種となる Pd 微粒子は Pd²⁺イオンが多いとたくさん生成するので、Pd²⁺イオン濃度を高めると自己触媒反応もより起こりやすくなり、レーザー微粒子化反応を効率的に進行できると考えられる。



(4) 模擬溶液による分離手順の確立[6]: 使用済み核燃料溶解液での実験を行う時に使用する試料濃度や作業手順を確立するために、浅井・蓬田らは非放射性の主要14元素(Rb, Sr, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm)について、実際に使用する使用済み核燃料溶解液中的のものと濃度を揃えた模擬溶液を準備し、それを用いてレーザー微粒子化分離による Pd 回収実験を行った。模擬溶液を2000倍(Pd濃度0.24 μg/mL)、200倍(Pd濃度2.4 μg/mL)、20倍(Pd濃度24 μg/mL)に希釈した3種類の試料溶液を調整し、Pd回収率を比較した。その結果、2000倍では4.5%、200倍では58.9%、20倍では86.9%となり、Pd濃度が高くなるにつれ、回収率も向上した。しかし希釈倍率を20倍に下げると、200倍や2000倍では1%以下に抑えられていたRuやRhの回収率が、それぞれ3.5%および1.1%まで上昇した。そこで使用済み核燃料溶解液で実験する時の希釈率は、6割程度のPdを回収しつつ、RuやRhの除去率も99%以上と十分に高い、200倍を採用することにした。なお、希釈倍率200倍では主要な放射線源となる元素(Sr, Cs, Ba)の回収率は0.05%を下回り、沈殿分離や溶媒抽出によるPdの分離方法と比較しても同等の性能を有することが明らかになった。

(5) 使用済み核燃料溶解液からのPd回収試験[8]: 本項目では、使用済み核燃料溶解液からのPd回収率はどの程度か調べるとともに、天然にない長寿命放射性核種¹⁰⁷Pdの定量を目的とした。¹⁰⁷Pdを正確に定量するために、浅井は使用済み核燃料に天然組成のPd標準液を添加した分析試料を準備し、そこからPdを分離して質量分析する定量法を考案した。標準液中の¹⁰²Pdは天然にのみ存在して使用済み核燃料中にはなく、一方¹⁰⁷Pdは天然に存在しない。よって、添加した¹⁰²Pd量と、スパイク添加後の分析試料中の¹⁰⁷Pdと¹⁰²Pdの同位体比の実測値から、¹⁰⁷Pdの存在量が直接求まる。なお、Pd標準液を添加するには、Pd²⁺濃度を高めて自己触媒反応を起こりやすくし、反応を効率的に進行させる効果もある(3)参照)。

表1 使用済み核燃料溶解液での回収率 [文献8より改編]

元素	回収率(%)	元素	回収率(%)
Pd	91.4±0.5	Pr	0.05
Am	<0.01	Pu	<0.01
Ba	0.10	Rb	0.07
Ce	0.08	Rh	0.05
Cm	<0.01	Ru	0.03
Cs	0.03	Sm	<0.01
La	0.05	Sr	0.26
Mo	<0.01	Tc	0.45
Nd	0.03	U	<0.01
Np	<0.01	Zr	0.02

回収試験は、浅井・佐伯・蓬田、研究協力者らで行った。使用済み核燃料溶解液は、日本の加圧水型原子炉で燃焼度44.9 GWd/tの条件下で5年半運転した後、28年間冷却した燃料ペレットから調製したものをういた[9]。使用済み核燃料の溶解液中の沈殿物は除去し、上澄みを7M硝酸で希釈したものを分析試料溶液とした。そして、Pd標準液と分析試料溶液の混合溶液を純水で200倍に希釈し((4)参照)、さらに40v/v%になるようにエタノール濃度を添加した後、キャップ付石英セルに封入した。そして、模擬試料で決めたレーザー照射条件((2)参照)に基づき、ナノ秒パルス紫外レーザーを分離試料に照射してPd回収試験を実施した。なお、この実験条件での試料溶液セル表面での放射線量率は25

μSv/h にとどまり、被爆リスクを低減することができた。

元素分離試験の結果、表1に示すように、Pd を 90 %以上の効率で回収し、かつウランなどアクチノイド元素の混入は 0.01 %以下に抑えることに成功した。さらに回収した Pd について ICP-MS で ^{107}Pd の質量分析を行い、分離前の試料に含まれるウラン同位体 ^{238}U との存在比を求めた結果、測定した使用済核燃料の溶解液試料では 1 mg の ^{238}U に対して 239 ± 9 ng の ^{107}Pd が含まれることを明らかにした。

(6) 得られた成果の国内外における位置づけとインパクト: 佐伯らが開発し、模擬廃液や実廃液でその有効性を実証したレーザー微粒子化分離は新しい元素分離技術として国内で注目を引くようになり、いくつもの研究会や委員会から招待講演の依頼を受けたり[10]、研究分担者・協力者らと紹介記事を執筆した[11]。特に、大場(研究協力者)が JST 新技術説明会(2019年5月30日開催)で本技術の紹介をしてからは、新聞記事や科学雑誌でも紹介され[12]、また、企業からの共同研究の問い合わせも受けるようになった。

一方、浅井・蓬田らが中心となって進めた、使用済み核燃料溶解液からレーザー微粒子化分離により Pd を回収して ^{107}Pd を定量した成果は、世界で始めて使用済み核燃料に含まれる ^{107}Pd 存在量を測定した重要な研究として評価され、国際的には Royal Society of Chemistry と JAPAN Analytical Instruments Manufacturers' Association が共催した国際会議(RSC-TIC 2017)において RSC Poster Award を受賞したり、Analytical and Bioanalytical Chemistry 誌に投稿した論文[13]が a Paper in Forefront 注目記事として採用された。さらに、国内でも複数の新聞記事が掲載され[14]、事故を起こした原子力発電所で溶け落ちた燃料(デブリ)の組成分析にも応用できる技術として紹介された。

(7) 今後の展開: これまで我々は、既存の分離法とは異なる概念をもつレーザー微粒子化分離を使用済み核燃料の模擬溶液および実廃液に適用し、分離条件調節により Pd だけを選択的に回収できることを実証してきた。また、時間分解 XAFS 分光によりレーザー微粒子化の反応メカニズムを解明し、自己触媒反応という、重要な実験パラメーターを見いだした。今後は、Pd 以外の白金族元素(Rh, Ru, Pt)でも同様の研究を進め、原子力分野のみならず、一般の貴金属リサイクル分野でも利用できるように本技術を改良していく。また、本研究課題ではバッチ処理による実証分離試験を中心に研究を進めてきたが、本技術はレーザーを平行光で操作すること、短時間で還元過程が完了すること、さらに大径微粒子が生成して回収が容易であることを特長としており、連続処理へ拡張することができる。そこで、大量の廃液を処理することのできる、レーザー微粒子化分離の連続処理装置を開発することを計画している。

〈参考文献〉

1. (a)革新的研究開発推進プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」(藤田玲子 PM)、(b)M.Ozawa et al. "A new back-end cycle strategy for enhancing separation, transmutation and utilization of materials" Prog.Nucl.Energy., 50 (2008), 476、など
2. 佐伯ら、「白金族元素の回収方法」、特開 2010-275588
3. K. Song et al, Microchem J., 68 (2001) 121
4. 佐伯ら、「レーザー微粒子化を利用した白金族元素分離に関する研究」、JAEA-Research 2012-03
5. M. Saeki et al. "Wet separation between palladium(II) and molybdenum(IV) ions by using laser-induced particle formation: Enhancement of recovery efficiency of palladium by laser condition" J. Photochem. Photobiol. A 299 (2015) 189
6. 蓬田ら、「 ^{107}Pd の ICP-MS 測定のためのレーザー誘起光還元法による非接触・選択的パラジウム分離 一分離条件と Pd 回収率の関係」分析化学 66 (2017) 647
7. M. Saeki et al. "In Situ Time-Resolved XAFS Studies on Laser-Induced Particle Formation of Palladium Metal in an Aqueous/EtOH Solution" J. Phys. Chem. C 123, (2019) 817
8. S. Asai et al. "Determination of ^{107}Pd in Pd Recovered by Laser-Induced Photoreduction with Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry" Anal. Chem. 88 (2016) 12227
9. S. Asai et al. "Determination of ^{79}Se and ^{135}Cs in Spent Nuclear Fuel for Inventory Estimation of High-Level Radioactive Wastes" J. Nucl. Sci. Technol. 48 (2011) 851
10. (a)第 35 回環境資源工学会シンポジウム(東京)2018年2月27日、(b)日本原子力学会「将来原子力システムのための再処理技術」研究専門委員会(東京)2018年5月11日、(c)第 80 回マテリアルズ・テラリング研究会(長野)2018年7月26日、(d)QST 放射光科学シンポジウム 2019年3月1日(兵庫)、(e)第 98 回日本化学会特別企画「液相高エネルギープロセッシング」(東京)2018年3月23日、(f)素材プロセッシング第 69 委員会第 4 分科会 第 16 回研究会(千葉)2020年1月20日
11. (a)佐伯ら、「レーザー微粒子化反応を利用した放射性廃液からの白金族元素分離法の開発」ぶんせき、4巻 (2018) 138、(b)大場ら、「廃液にレーザーを照射して希少金属を回収する」ケミカルエンジニアリング 65 (2020) 347
12. (a)日経産業新聞 2019年9月18日、(b)日経サイエンス 2020年2月号 NEWS SCAN
13. S. Asai et al. "Determination of ^{107}Pd in Pd purified by selective precipitation from spent nuclear fuel by laser ablation ICP-MS" Anal. Bioanal. Chem. 411 (2019) 973
14. (a)福井新聞 2017年2月26日「核燃料中に含む放射性物質実測」、(b)福島民報 2017年2月26日「原子力機構が放射性物質分離測定の新技術」、(c)福島民友 2017年2月26日「原子力機構が新技術 パラジウム分離、測定」

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 9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 大場弘則; 中西隆造; 佐伯盛久	4. 巻 65
2. 論文標題 廃液にレーザーを照射して希少金属を回収する	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ケミカルエンジニアリング	6. 最初と最後の頁 347-352
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス 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	国際共著 -
1. 著者名 Saeki Morihisa, Matsumura Daiju, Yomogida Takumi, Taguchi Tomitsugu, Tsuji Takuya, Saitoh Hiroyuki, Ohba Hironori	4. 巻 123
2. 論文標題 In Situ Time-Resolved XAFS Studies on Laser-Induced Particle Formation of Palladium Metal in an Aqueous/EtOH Solution	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 817 ~ 824
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b09532	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -
1. 著者名 Nakanishi Ryuzo, Saeki Morihisa, Taguchi Tomitsugu, Ohba Hironori	4. 巻 383
2. 論文標題 Photoinduced gold recovery mediated by isopolymolybdate in strongly acidic HCl/NaCl solutions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry	6. 最初と最後の頁 111994 ~ 111994
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jphotochem.2019.111994	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -
1. 著者名 Kurosaki Yuzuru, Nakanishi Ryuzo, Saeki Morihisa, Ohba Hironori	4. 巻 746
2. 論文標題 Ab initio MRCl study on potential energy curves for a single Cl loss from the palladium tetrachloride anion PdCl4 ²⁻	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 137288 ~ 137288
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.cpllett.2020.137288	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Asai Shiho, Ohata Masaki, Yomogida Takumi, Saeki Morihisa, Ohba Hironori, Hanzawa Yukiko, Horita Takuma, Kitatsuji Yoshihiro	4. 巻 411
2. 論文標題 Determination of 107Pd in Pd purified by selective precipitation from spent nuclear fuel by laser ablation ICP-MS	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Analytical and Bioanalytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 973 ~ 983
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00216-018-1527-3	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 佐伯 盛久、浅井 志保、大場 弘則	4. 巻 4
2. 論文標題 レーザー微粒子化反応を利用した放射性廃液からの白金族元素分離法の開発	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ぶんせき	6. 最初と最後の頁 138-143
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 蓬田 匠、浅井 志保、佐伯 盛久、半澤 有希子、堀田 拓摩、江坂 文孝、大場 弘則、北辻 章浩	4. 巻 66
2. 論文標題 107PdのICP-MS測定のためのレーザー誘起光還元法による非接触・選択的パラジウム分離 分離条件とPd回収率の関係	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 分析化学	6. 最初と最後の頁 647 ~ 652
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/bunseki.kagaku.66.647	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 佐伯 盛久、田口 富嗣、大場 弘則、松村 大樹、辻 卓也、蓬田 匠	4. 巻 EFM-17
2. 論文標題 時間分解X線吸収分光による水溶液中パラジウムイオンのレーザー微粒子化反応研究	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料	6. 最初と最後の頁 15-18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 浅井 志保, 蓬田 匠, 佐伯 盛久, 大場 弘則, 半澤 有希子, 堀田 拓摩, 北辻 章浩	4. 巻 88
2. 論文標題 Determination of 107Pd in Pd Recovered by Laser-Induced Photoreduction for Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 12227-12233
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.6b03286	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nakashima Nobuaki, Yamanaka Ken-ichi, Saeki Morihisa, Ohba Hironori, Taniguchi Seiji, Yatsushashi Tomoyuki	4. 巻 319-320
2. 論文標題 Metal ion reductions by femtosecond laser pulses with micro-Joule energy and their efficiencies	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry	6. 最初と最後の頁 70 ~ 77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jphotochem.2015.12.021	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Saeki Morihisa, Taguchi Tomitsugu, Nakashima Nobuaki, Ohba Hironori	4. 巻 299
2. 論文標題 Wet separation between palladium(II) and molybdenum(IV) ions by using laser-induced particle formation: Enhancement of recovery efficiency of palladium by laser condition	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry	6. 最初と最後の頁 189 ~ 193
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jphotochem.2014.11.022	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

〔学会発表〕 計23件(うち招待講演 6件/うち国際学会 4件)

1. 発表者名 佐伯盛久
2. 発表標題 レーザー微粒子化反応を利用した廃液からの貴金属回収法の開発
3. 学会等名 素材プロセッシング第69委員会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐伯盛久、蓬田匠、松村大樹、中西隆造、田口富嗣、辻卓也、齋藤寛之、大場弘則
2. 発表標題 ナノ秒パルス紫外レーザー照射時のPd溶液における光誘起微粒子化の時間分解XAFS研究：パルスエネルギーに依存した反応機構変化の発見
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、蓬田匠、田口富嗣、辻卓也、齋藤寛之、中西隆造、大場弘則
2. 発表標題 レーザー誘起パラジウム微粒子化反応のDXAFS研究
3. 学会等名 XAFS・X線顕微鏡分光分析分野でのIMSS, PF戦略的利用に関する研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、蓬田匠、田口富嗣、辻卓也、齋藤寛之、中西隆造、大場弘則
2. 発表標題 パラジウムイオン溶液中でのレーザー微粒子化反応を対象としたその場・時間分解XAFS研究
3. 学会等名 QST放射光科学シンポジウム2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、蓬田匠、田口富嗣、辻卓也、齋藤寛之、中西隆造、大場弘則
2. 発表標題 白金族元素イオン溶液におけるレーザー微粒子化反応のその場・時間分解XAFS研究
3. 学会等名 日本化学会 第99春季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐伯盛久
2. 発表標題 レーザーを用いた光化学反応による 元素分離法開発
3. 学会等名 日本原子力学会「将来原子力システムのための再処理技術」研究専門委員会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐伯盛久
2. 発表標題 レーザー微粒子化反応を利用した 白金族元素分離法開発および 時間分解XAFSによる反応メカニズム解明
3. 学会等名 第80回マテリアルズ・テラリング研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 浅井志保、大畑昌輝、蓬田匠、佐伯盛久、大場弘則、半澤有希子、堀田拓摩、北辻章浩
2. 発表標題 使用済燃料から回収した金属パラジウムの LA-ICP-MS による同位体測定
3. 学会等名 日本分析化学会第67年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Saeki, S. Asai, T. Yomogida, Y. Hanzawa, T. Taguchi, T. Horita, Y. Kitatsuji, H. Ohba
2. 発表標題 Separation of platinum-group metals from radioactive waste liquid by la-ser induced particle formation
3. 学会等名 ADVANCED TECHNIQUES IN ACTINIDE SPECTROSCOPY (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐伯 盛久
2. 発表標題 レーザー誘起還元法を利用した白金族元素分離法の開発 放射性廃棄物処理分野での応用に向けて
3. 学会等名 環境資源工学会シンポジウム「リサイクル設計と分離精製技術」第35回：放射性物質の分離技術に関する研究・開発における新展開，環境資源工学会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐伯 盛久
2. 発表標題 Time-resolved XAFS studies on laser-induced particle formation of palladium metal in an aqueous solution
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会2018，日本化学会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Asai Shiho, Ohata Masaki, Yomogida Takumi, Saeki Morihisa, Ohba Hironori, Hanzawa Yukiko, Horita Takuma, Kitatsuji Yoshihiro
2. 発表標題 Direct measurement of ^{107}Pd in Pd metal recovered from spent nuclear fuel with laser ablation ICP-MS
3. 学会等名 RSC Tokyo International Conference, JASIS Conference（国際学会）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐伯 盛久， 松村 大樹， 辻 卓也， 蓬田 匠， 田口 富嗣， 大場 弘則
2. 発表標題 時間分解XAFS分光による水溶液中パラジウムイオンのレーザー微粒子化反応研究
3. 学会等名 2017年光化学討論会，光化学協会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐伯 盛久, 蓬田 匠, 松村 大樹, 斉藤 拓巳, 岡本 芳浩、大場 弘則
2. 発表標題 Laser Raman Spectroscopic studies on isopoly-molybdate(VI) in a highly acidic solution
3. 学会等名 2nd Asian Symposium on Laser Induced Breakdown Spectroscopy, ASLIBS2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐伯盛久, 大場弘則, 田口富嗣, 横山 淳, 浅井志保, 蓬田 匠, 半澤有希子, 中島信昭
2. 発表標題 レーザー誘起光還元法を利用した白金族元素分離法の開発
3. 学会等名 日本原子力学会2017春の年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐伯 盛久, 松村 大樹, 辻 卓也, 蓬田 匠, 田口 富嗣, 大場 弘則
2. 発表標題 パラジウム水溶液中におけるレーザー微粒子化反応の時間分解XAFS研究
3. 学会等名 第20回XAFS討論会, 日本XAFS研究会,
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、田口富嗣、蓬田 匠、大場弘則
2. 発表標題 Time-resolved XAFS study on photo-induced particle formation of palladium in presence of molybdenum ion
3. 学会等名 第32回化学反応討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Yomogida, S. Asai, M. Saeki, Y. Hanzawa, F. Esaka, H. Ohba and Y. Kitatsuji
2. 発表標題 Non-contact Pd separation based on laser-induced particle formation for determination of 107Pd with ICP-MS
3. 学会等名 PittCon2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、蓬田匠、田口富嗣、辻卓也、草野翔吾、宮崎達也、鷹尾康一郎、中島信昭、大場弘則
2. 発表標題 XAFS study on effect of molybdenum addition on photo-induced particle formation of palladium
3. 学会等名 光化学討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 佐伯盛久、松村大樹、蓬田匠、田口富嗣、辻卓也、草野翔吾、宮崎達也、鷹尾康一郎、中島信昭、大場弘則
2. 発表標題 XAFS study on effect of molybdenum addition on photo-induced particle formation of palladium
3. 学会等名 分子化学討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 佐伯 盛久
2. 発表標題 レーザーを使った貴金属の新規分離技術
3. 学会等名 CSJフェスタ (日本化学会主催)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 蓬田匠、浅井志保、佐伯盛久、半澤有希子、江坂文孝、大場弘則、北辻章浩
2. 発表標題 放射性廃棄物中107Pd分析のためのレーザー微粒子化反応を利用したPd分離法の開発
3. 学会等名 分析化学会第64年会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 蓬田 匠、浅井 志保、佐伯 盛久、半澤 有希子、江坂 文孝、大場 弘則、間柄 正明
2. 発表標題 ICP-MSによる長寿命核種107Pdの定量を目的としたレーザー微粒子化元素分離を用いるPd同位体の分析手法開発
3. 学会等名 第75回分析化学討論会
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 回収装置、回収システム、及び回収方法	発明者 大場 弘則、佐伯 盛久、田口 富嗣、中西 隆造	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2019-097119	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<p>QST 東海量子ビーム応用研究センター プロジェクト「元素分離・分析研究」 https://www.qst.go.jp/site/sepa-ana/</p> <p>高崎研だより 国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 https://www.qst.go.jp/uploaded/attachment/10919.pdf</p>
--

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
研究分担者	浅井 志保 (Asai Shiho) (10370339)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員 (82626)	
研究分担者	松村 大樹 (Matsumura Daiju) (30425566)	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 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究主幹 (82110)	
研究分担者	田口 富嗣 (Taguchi Tomitsugu) (50354832)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 東海量子ビーム応用研究センター・上席研究員(定常) (82502)	
研究分担者	蓬田 匠 (Yomogida Takumi) (40743349)	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 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究職 (82110)	
研究協力者	大場 弘則 (Ohba Hironori)		
研究協力者	半澤 有希子 (Hanzawa Yukiko)		
研究協力者	中西 隆造 (Nakanishi Ryuzo)		
研究協力者	辻 卓也 (Tsuji Takuya)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	中島 信昭 (Nakashima Nobuaki)		
研究協力者	堀田 拓摩 (Horita Takuma)		
研究協力者	北辻 章浩 (Kitatsuji Yoshihiro)		
研究協力者	齋藤 寛之 (Saitoh Hiroyuki)		
研究協力者	黒崎 譲 (Kurosaki Yuzuru)		