高レベル放射性廃液ガラス固化体の高品質・減容化のための白金族元素高収着能を有するシアノ基架橋型配位高分子材料の開発

(1) プロジェクト概要

Development of cyano-group bridge-type coordination polymer with a high sorption characteristic of Platinum-group elements for high quality and volume reduction of vitrified objects containing high-level radioactive nuclear wastes

(1) Introductory talk

*尾上 順¹, 渡邊 真太¹, 稲葉 優介², 針貝 美樹², 竹下 健二²

¹名古屋大学, ²東京工業大学

本講演では、ナノ空間を有するシアノ基架橋型配位高分子ナノ粒子を用いて、高レベル放射性廃液（HLLW）のガラス固化プロセスにおいて問題となっている白金族元素およびモリブデン元素を HLLW から一括回収する研究プロジェクトの概要を紹介する。

キーワード：シアノ基架橋型配位高分子, 白金族元素, 収着, ガラス固化体, 高レベル放射性廃液

1. 研究背景

高レベル放射性廃液（HLLW）のガラス固化プロセスにおいて、モリブデン（Mo）酸塩によるイエローフェーズ形成とメルター側壁への白金族元素（ルテニウム Ru, ロジウム Rh, パラジウム Pd）の沈積により、通電によるジュール加熱の不調やガラス流下性低下・不調・閉塞などの事象が発生する問題が生じている。

これまで、我々は文科省原子力システム研究開発事業（H26～H28 年度）の助成を受けて、プルシアンブルー（PB）に代表されるジャングルジウム型構造を有する種々のシアノ（CN）基架橋型配位高分子材料を合成し、模擬廃液および実高レベル廃液を用いて、白金族元素および Mo に対する収着性能を調べた結果、3 価のアルミニウム（Al）イオンと 2 価の鉄（Fe）イオンを CN 基で架橋した配位高分子材料（Al-CN-Fe）が高い収着能を示すことを見出すとともに、PB（Fe-CN-Fe）や Al-CN-Fe に対して白金族元素や Mo がジャングルジウム型構造内のナノ空間を拡散しながら Al や Fe イオンと置換することを明らかにした [1]。また、これらの元素の HLLW 中での化学形態の錯構造や安定性が、PB や Al-CN-Fe に対する収着率の差に影響を与えていることもわかってきた [2]。

2. 研究概要

本講演では、① Al-CN-Fe 配位高分子の合成技術をさらに深化させ、模擬廃液に対する収着性能を評価した上で、②PB や Al-CN-Fe および他の配位高分子材料で得られた収着試験結果から、収着性能を支配する物理因子を抽出し、③種々の 3 価金属イオン M と 2 価の Fe の配位高分子 M-CN-Fe の物理因子を第一原理計算により算出し、収着性能-物理因子相関マップを作成することで、④Al-CN-Fe を超える新規配位高分子材料を設計・創製し、⑤模擬 HLLW を用いて、白金族元素や Mo に対する収着性能を検証し、⑥ガラス固化実プロセス適用への工学的評価を行うことを目的として、H29 年 10 月から文部科学省・戦略的原子力共同研究プログラム（H29-H31 年度）がスタートしたので、その概要を紹介する。

参考文献

[1] 竹下, 尾上ら: 文部科学省原子力システム研究開発事業 H28 年度成果報告書 (2017).

[2] S. Watanabe *et al.*, *AIP Adv.* **8**, 045221 (2018).

*Jun Onoe¹, Shinta Watanabe¹, Yusuke Inaba², Miki Harigai², Kenji Takeshita²

¹Nagoya Univ., ²Tokyo Inst. Technol.