

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

(9) フェロシアン化アルミニウムの合成と金属イオン収着性能評価

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

(9) Synthesis and sorption studies of aluminum ferrocyanide

*稲葉 優介¹, 針貝 美樹¹, 三島 理愛^{1,2}, 立岡 壮太郎¹, 斉藤 慧太¹, 竹下 健二¹,
渡邊 真太³, 尾上 順³

¹東京工業大学, ²JAEA, ³名古屋大学

白金族元素及び Mo に対する収着性能に優れるフェロシアン化アルミニウム (AIHCF) の合成条件を再検討した結果と、単一金属イオン (Mn, Co, Ni, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Gd) に対する AIHCF、FeHCF、MnHCF、CdHCF、CuHCF、CoHCF、NiHCF の収着性能評価について報告する。

キーワード: フェロシアン化物, フェロシアン化アルミニウム, 白金族元素, モリブデン, ガラス固化体

1. 緒言 高レベル放射性廃液 (HLLW) 中の白金族元素のガラスメルトへの沈積や Mo 酸塩によるイエローフェーズの形成は、ガラス固化体の発生量増大を招いている。我々の研究グループは、HLLW から白金族元素と Mo を分離することによるガラス固化体の高品質、高減容化を目指し、フェロシアン化金属を用いた模擬 HLLW からの収着試験を行い、AIHCF が白金族元素 (Ru, Rh, Pd) と Mo に対して高い収着性能を有することを明らかにしてきた。本発表では、AIHCF の更なる高性能化と収着特性の解明を目的に、AIHCF の合成条件の再検討及び模擬 HLLW に対する収着試験の結果と、AIHCF、FeHCF、MnHCF、CdHCF、CuHCF、CoHCF、NiHCF を用いた単一金属イオンに対する収着試験結果について報告する。

2. 結果と考察 AIHCF の合成条件の再検討を行った。反応後の乾燥温度を凍結乾燥、25、75°C の 3 条件として AIHCF を合成後、7 成分模擬 HLLW (Fe, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Gd, 各 1 mM) を用いて収着試験を行った (固液比: 20 mg/10 mL、室温、24 時間振盪)。凍結乾燥を行った AIHCF は、Mo、ニトロシル Ru、Rh に対する収着性能が、他の乾燥方法と比べて約 5~10% 向上した。また、各種分析から AIHCF は、AIHCF 成分と FeHCF 成分の混合状態であることが分かった。FTIR 分析等の結果より、乾燥温度が低い AIHCF ほど (Fe-CN-Al/Fe-CN-Fe) 比が高いことが明らかとなった。また、レーザー回折法による粒度分布測定の結果、他の乾燥方法と比べて、凍結乾燥のメジアン径と平均径が小さいことが明らかとなった。AIHCF の収着性能の向上に、(Fe-CN-Al/Fe-CN-Fe) 比と粒子径が影響している可能性が示唆された。

10 mM の単一金属イオンを含む 1.5 M 硝酸水溶液 10 mL に、フェロシアン化物 20 mg を加え、室温で 96 時間振盪することにより収着試験を行った。Ru に対しては AIHCF、CdHCF、MnHCF が比較的高い収着率 (約 75, 62, 74%) を示した。Rh に対しては、全てのフェロシアン化物において低い収着率を示した (0~5%)。Pd に対しては、AIHCF と MnHCF、CuHCF が中程度の収着率 (60, 55, 67%) を示した。Mo に対しても全てのフェロシアン化物において低い収着率 (約 10% 以下) を示した。これらの結果より、模擬 HLLW と単一金属イオン溶液では、収着挙動や収着機構が異なる可能性が示唆された。AIHCF の模擬 HLLW に対する収着試験では、Pd 等の白金族元素の収着によって AIHCF の構造が変化し、Mo に対する収着性能が向上している可能性が考えられる。

【謝辞】 本研究は、文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の助成により行われた。

*Yusuke Inaba¹, Miki Harigai¹, Ria Mishima^{1,2}, Sotaro Tachioka¹, Keita Saito¹, Kenji Takeshita¹, Shinta Watanabe³, Jun Onoe³

¹Tokyo Tech, ²JAEA, ³Nagoya Univ.