

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

(10) フェロシアン化アルミニウムの白金族元素に対する収着性能評価

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

(10) Platinum-group elements sorption studies of aluminum ferrocyanide

*三島 理愛^{1,2}, 稲葉優介², 立岡 壮太郎², 針貝 美樹², 渡邊 真太³, 尾上 順³, 中瀬 正彦², 松村 達郎¹, 竹下 健二²

¹原子力機構, ²東京工業大学, ³名古屋大学

我々はこれまでフェロシアン化アルミニウム(AIHCF)は高レベル放射性廃液(HLLW)から高効率に白金族元素(PGMs: Ru, Rh, Pd)を一括回収できる収着材であることを見出している。詳細な収着挙動を理解するために、PGMs 競合収着とそれに伴う金属イオンの溶出を調べたので報告する。

キーワード: 白金族元素, 収着, フェロシアン化アルミニウム, 高レベル放射性廃液

1. 背景・目的 HLLW のガラス固化プロセスで問題となっている PGMs は、将来の高燃焼度化燃料や使用済 MOX 燃料再処理時に益々重要となる。3 価の金属イオンと 2 価の Fe イオンがシアノ基で架橋された構造を持つ種々のフェロシアン化物を合成および収着試験を行った結果、AIHCF が PGMs に対して最も高い収着性能を有することを見出した。更なる性能向上のためには収着メカニズムの解明が求められる。特に収着率の高い Pd が鍵と考え、① Pd 単成分系と② Pd と Ru(硝酸ニトロシル)ないしは Rh の二成分競合収着系、のそれぞれについて収着実験を行った。

2. 実験方法 AIHCF と PGMs (①単成分時は 5 mM, ②競合収着時は Pd 2 mM, Ru と Rh はそれぞれ 3 mM)を含有する 1.5 M 硝酸溶液を固液比 20 mg/10 mL でバイアル瓶に入れ、室温振とうで収着させた。その後、遠心分離ならびにメンブレンフィルターで固液分離し、水相中の PGMs ならびに AIHCF 構成元素である Fe, Al の濃度を ICP 発光分析装置で定量分析した。

3. 結果と考察 表 1 に収着結果を示す。単成分系と二成分競合系の結果の比較から、Pd が共存することで単成分時よりも水相からの Ru, Rh の回収が促進されることが分かった。図 1 に AIHCF に収着した Pd と溶出した AIHCF 骨格の Fe, Al の量論関係を示した。明確な直線関係が得られ、その傾きの比は AIHCF の元素組成比である Fe : Al = 4 : 3 ではなく Fe : Al = 1 : 3.7 となり、Fe の量論比が Al に比べて少ないことが分かった。様々なメカニズムが考えられるが、Pd と置換した Fe が再度構造に取り込まれるなど部分的な構造変化が示唆される。系統的な収着試験の結果、AIHCF では単純なイオン交換のみならず幾つかの化学反応が起こることにより、Ru や Rh に対して高い収着性能を発現すると考えられる。

表 1 競合収着実験結果

Time (d)	Pd	Ru (nitrosyl)	Rh	Pd-Ru (nitrosyl)		Pd-Rh	
				Pd	Ru'	Pd	Rh
5.2	99.9	72.2	-	100.0	97.5	99.9	48.3
11.2	100.2	85.7	17.6	101.8	100.0	102.0	54.8
19.2	100.2	90.3	37.9	101.1	100.4	101.6	63.9
26.2	100.2	93.4	51.2	100.6	100.4	101.6	65.4

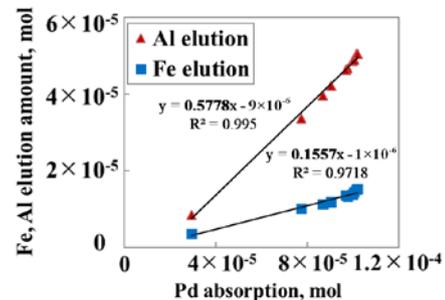


図 1 Pd 収着量と Fe, Al 溶出量の相関

4. 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。

*Ria Mishima^{1,2}, Yusuke Inaba², Sotaro Tachioka², Miki Harigai², Shinta Watanabe³, Jun Onoe³, Masahiko Nakase², Tatsuro Matsumura¹, and Kenji Takeshita², ¹Japan Atomic Energy Agency, ²Tokyo Institute of Technology, ³Nagoya Univ.