

プログラム名：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

PM名：藤田玲子

プロジェクト名：分離回収技術開発

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平 成 2 7 年 度

研究開発課題名：

イオン液体を用いた

長寿命核分裂生成物（LLFP）分離回収技術の開発

研究開発機関名：

慶應義塾大学

研究開発責任者

片山 靖

# I 当該年度における計画と成果

## 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

本研究開発課題は、高レベル放射性廃棄物中に含まれる長寿命核分裂生成物である Pd, Cs, Se および Zr をイオン液体を用いた電気化学的手法によって高純度の金属（ナノ粒子）として分離・回収する技術を開発することを目的とする。当該年度の具体的な検討事項および目標は以下の通りである。

### 1-1. イオン液体の選定

本研究開発に用いることができるイオン液体を選定するために、各種イオン液体中における有機カチオン塩化物および各種金属塩化物の溶解度を測定する。

### 1-2. イオン液体の放射線耐性の検討

イオン液体の放射線耐性を明らかにするために、いくつかのイオン液体に $\gamma$ 線を照射し、その影響を電気化学的手法を用いて評価する。

### 1-3. 塩化物イオン含有イオン液体に対する Pd, Se および Zr の溶解度挙動の検討

イオン液体に対する  $\text{PdCl}_2$  の溶解挙動を明らかにするために、 $\text{PdCl}_2$  の溶解度の温度依存性を明らかにする。

### 1-4. 前処理工程の検討

硝酸セシウム ( $\text{CsNO}_3$ ) から選択的に  $\text{Cs}^+$  を分離回収し、イオン液体に可溶性化学形態に転換する手法について検討する。

### 2-1. Pd, Se および Zr の電気化学反応の解明

塩化物イオンを含むイオン液体中における  $\text{PdCl}_2$  および  $\text{SeCl}_4$  の電極反応について予備的検討を行う。

## 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

### 2-1 進捗状況

各研究開発項目の進捗状況は以下の通りである。

#### 1-1. イオン液体の選定

BMITFSA ( $\text{BMI}^+ = 1\text{-butyl-3-methylimidazolium}$ ,  $\text{TFSA}^- = \text{bis(trifluoromethylsulfonyl)amide}$ ), BMPTFSA ( $\text{BMP}^+ = 1\text{-butyl-1-methylpyrrolidinium}$ ) および PP13TFSA ( $\text{PP13}^+ = 1\text{-methyl-1-propylpiperidinium}$ ) に対するそれぞれ  $\text{BMCl}$ ,  $\text{BMPCl}$  および  $\text{PP13Cl}$  の溶解挙動を検討した結果、 $\text{BMPCl}$  を含む  $\text{BMPTFSA}$  をイオン液体として選定した。 $\text{BMPCl}$  の物性評価を実施し、 $25^\circ\text{C}$  でのアルカリ金属塩化物、アルカリ土類金属および希土類金属の塩化物の溶解度を ICP-OES を用いて測定した。

#### 1-2. イオン液体の放射線耐性の検討

BMITFSA, BMPTFSA および PP13TFSA に対して  $0.5\sim 2.0\text{ MGy}$  の $\gamma$ 線を照射し、照射後のイオン液体の質量測定、核磁気共鳴スペクトルの測定および電気化学測定を実施した。

#### 1-3. 塩化物イオン含有イオン液体に対する Pd, Se および Zr の溶解度挙動の検討

$\text{BMPCl/BMPTFSA}$  中における  $\text{PdCl}_2$  の溶解度を  $25\sim 75^\circ\text{C}$  の温度範囲で ICP-OES を用いて測定した。

#### 1-4. 前処理工程の検討

CsNO<sub>3</sub>水溶液におけるCs<sup>+</sup>のゼオライトへの吸着実験およびCs<sup>+</sup>を吸着したゼオライトからの脱着実験を実施した。

#### 2-1. Pd, Se および Zr の電気化学反応の解明

塩化物イオンを含むBMPTFSAにPdCl<sub>2</sub>またはSeCl<sub>4</sub>を溶解し、各種電気化学測定を実施した。

### 2-2 成果

各研究開発項目の目標、成果および達成率は以下の通りである。

#### 1-1. イオン液体の選定

目標	アルカリ金属、アルカリ土類金属および希土類金属の硝酸塩および塩化物の溶解度が10 mM程度以下であるイオン液体を選定することを目指す。	達成率
成果	BMPTFSAをイオン液体として選定し、BMPCl/BMPTFSA中における各種金属塩化物の25°Cにおける溶解度を明らかにした。	60%

#### 1-2. イオン液体の放射線耐性の検討

目標	いくつかのイオン液体についてγ線照射を実施し、核磁気共鳴法および電気化学測定による安定性の評価を実施することを目指す。	達成率
成果	BMITFSA, BMPTFSAおよびPP13TFSAに0.5~2.0 MGyのγ線を照射した結果、質量の減少率はいずれも1%以下であり、核磁気共鳴スペクトルからも分解生成物による顕著なピークが観察されないことを確認した。電気化学測定ではいずれのイオン液体においても分解生成物の還元が観察されたが、その分解生成物は熱処理によって除去できる可能性を見いだした。	100%

#### 1-3. 塩化物イオン含有イオン液体に対する Pd, Se および Zr の溶解度挙動の検討

目標	PdCl <sub>2</sub> のイオン液体中での溶解度の測定手法を確立し、温度依存性を明らかにすることを目指す。	達成率
成果	BMPCl/BMPTFSA中においてPdCl <sub>2</sub> は[PdCl <sub>4</sub> ] <sup>2-</sup> としてイオン液体に溶解し、25から100°CでのPdCl <sub>2</sub> の溶解度を測定した結果、PdCl <sub>2</sub> の溶解度は温度の上昇と共に増加し、75°C以上の温度でPdCl <sub>2</sub> は100 mM以上溶解することがわかった。	100%

#### 1-4. 前処理工程の検討

目標	CsNO <sub>3</sub> 水溶液中からのCs <sup>+</sup> の吸着効率の検討およびCsTFSAへの変換手法を確立することを目指す。	達成率
成果	CsNO <sub>3</sub> 水溶液中のCs <sup>+</sup> をゼオライトに吸着させ、適切な溶離液を用いることで脱着させることでCsTFSAに転換できることを確認した。	100%

#### 2-1. Pd, Se および Zr の電気化学反応の解明

目標	塩化物イオンを含むイオン液体中におけるPdCl <sub>2</sub> およびSeCl <sub>4</sub> の電極反応について	達成率
----	---	-----

	て予備的検討を行うことを目標とする。	
成果	PdCl <sub>2</sub> については既報の再現性を確認した。SeCl <sub>4</sub> はBMPClを含むBMPTFSAに[SeCl <sub>6</sub> ] <sup>2-</sup> として溶解し、-1.3 V付近で還元されて金属Seとして析出することを見いだした。	100%

## 2-3 新たな課題など

各研究開発項目の課題は以下の通りである。

### 1-1. イオン液体の選定

用いるイオン液体は水と混ざらないことから、有機溶媒を用いた金属イオンの定量手法を確立する必要があったため当初の計画よりも時間を要した。しかし、水溶液を用いた定量手法を見いだしたため、今後は研究が加速される見込みである。溶解度の測定は平成 28 年度も継続して実施する。

### 1-2. イオン液体の放射線耐性の検討

イオン液体の放射線分解に関する定性的な評価をほぼ完了できたが、PUREX 法で用いられる有機化合物との定量的な比較を平成 28 年度に実施する予定である。

### 1-3. 塩化物イオン含有イオン液体に対する Pd, Se および Zr の溶解度挙動の検討

特になし。

### 1-4. 前処理工程の検討

ゼオライトを用いて CsNO<sub>3</sub> から CsTFSA に転換できることを確認したが、溶離液に用いる成分との分離が課題となる。

### 2-1. Pd, Se および Zr の電気化学反応の解明

電析する Se の電気伝導性が低く、析出条件の最適化が必要である。

## 3. アウトリーチ活動報告

特になし。