

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03404

研究課題名(和文) 湿式精錬とイオン液体電析の連携による新規希土類高純度化技術の開発

研究課題名(英文) Development of novel purification technology for rare earths by hydrometallurgy and electrodeposition using ionic liquids

研究代表者

松宮 正彦 (Matsumiya, Masahiko)

横浜国立大学・大学院環境情報研究院・准教授

研究者番号：00370057

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では基礎研究から過電圧によりNd(III)/Nd(0)の核生成過程(初期の電解過程)がInstantaneous～Progressiveに変化することを明らかにした。電解析出工程での析出物の形態制御において過電圧設定の重要性が示唆された。応用研究では、実廃棄物から酸化磁粉:4.08kgを作製し、前処理～湿式精錬～イオン液体電析から成る一連の工程を実施した。脱鉄工程では種結晶法と酸素バブリングの導入により、鉄分離率>99.9%を達成できた。最終的に回収した希土類アミド塩:4.07kg(純度>97.0%)であった。本研究により希土類アミド塩の大量生成技術の確立と高純度化の目標を達成できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では湿式精錬における酸溶出工程でアミド酸を14.2L/batch(ラボスケールの56.8倍)まで増大させて、酸化磁粉中の希土類成分の溶出率を90%以上に向上させることができた。脱鉄工程では酸素バブリングによるpH調整と種結晶法による沈殿形成を新たに導入することにより、溶出液からの鉄分離率>99.9%まで達成できた。材料開発分野で汎用性の高い噴霧乾燥技術を応用し、塩生成工程では希土類アミド塩の純度を97.0%以上に高めた上で、総量:4.07kgの回収に成功した。このように新規の希土類アミド塩という形態で97%以上の高純度化とkgスケールの大量生成技術を確立できた点に社会的意義を有する。

研究成果の概要(英文)：In this study, as a fundamental research, it was revealed that the nucleation behavior was changed from instantaneous to progressive process by the overpotential. This result indicated that the control of the overpotential was very important for the morphological control of the electrodeposits. As an applied research, the oxidized Nd-Fe-B powders (4.08kg) were obtained from the actual waste by pretreatment process. A series of process consisting of pretreatment, wet separation and electrodeposition was executed in this study. As a result, the separation percentage of Fe component was confirmed to be >99.9% by the effect of the seed crystal method and the oxygen bubbling. Finally, a series of hydrometallurgical experiment was contributed to the mass production and the purification technology of novel rare earth amide salts, because the recovered rare earth amide salts were reached to be 4.07 kg and the purity of the rare earth components was confirmed to be >97.0%.

研究分野：応用電気化学

キーワード：有価物回収 イオン液体 湿式精錬 電解析出

### 1. 研究開始当初の背景

本研究では希土類資源の中でも工業的な世界生産量が年間 65,000t に及び、強磁性体として広く利用されている Nd-Fe-B 磁石に着目した。Nd-Fe-B 磁石は高い比率で希土類元素 (Pr,Nd,Dy) を含有しており、地下鉱石に比べて 1,000 倍以上の濃度に相当する。

使用済 Nd-Fe-B 磁石から希土類元素を金属の形態で回収する従来技術として熱還元法や熔融塩電解法がある。しかしながら、熔融金属中で Na 金属により還元させる、あるいは希土類フッ化物系熔融塩中で電解還元させるなど、高温制御に伴う熱エネルギー消費が極めて高いことが問題視されている。

上記の乾式技術では「使用エネルギー削減」という大きな課題が残存しており、近年の環境負荷低減技術に適するとは言い難い。我が国における持続的発展と将来的な環境調和型技術の到来を視野に入れた場合、次世代向けの希土類回収技術は省エネルギー型プロセスが強く望まれている。本研究では環境調和型溶媒である「イオン液体」を用いた低温電析を実現できる新規の希土類高純度化技術 (Fig.1) の確立を目指した。

上記の乾式技術では「使用エネルギー削減」という大きな課題が残存しており、近年の環境負荷低減技術に適するとは言い難い。我が国における持続的発展と将来的な環境調和型技術の到来を視野に入れた場合、次世代向けの希土類回収技術は省エネルギー型プロセスが強く望まれている。本研究では環境調和型溶媒である「イオン液体」を用いた低温電析を実現できる新規の希土類高純度化技術 (Fig.1) の確立を目指した。

### 2. 研究の目的

#### (1) 鉄族元素の選択的分離及び湿式精錬技術の確立

現在までの予備的検討 (特許第 5555842 号) において、鉄族元素は湿式分離法により選択的に分離できることが明らかとなっている。しかしながら、磁石成分中の鉄族元素は 7 割程度と含有率が高く、沈殿形成剤に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  を選定した場合、Ca 含有量の増大に伴い、希土類アミド塩中の希土類比率が小さくなるのが課題点であった。そこで本研究では、まず初めに Fig.1 の湿式分離工程を湿式精錬工程に改善する【改良プロセス】 (Fig.2 参照) の確立を目指した。

廃磁石から希土類水酸化物:  $\text{RE}(\text{OH})_3$  ( $\text{RE}=\text{Pr,Nd,Dy}$ ) を生成させ、沈殿形成剤として適用した。ここで、 $\text{RE}(\text{OH})_3$  を廃磁石から作製することは、廃棄物の有効利用とリサイクルの概念に基づいている。また、 $\text{RE}(\text{OH})_3$  を沈殿形成剤として適用することで、湿式精錬工程で回収する希土類アミド塩の純度を高めること及び高純度化技術へ結びつけることも重要な開発要素である。

故に、湿式精錬工程において、高純度希土類アミド塩を生成させるため、完全なる脱鉄処理 (Fe 分離率 >99.9%) を実現できる分離条件の明確化を第一の研究目的とした。次に、後続の電解析出工程では希土類濃度の高いイオン液体中から Nd 金属を効率回収する手法を確立することを第二の研究目的とした。

#### (2) 希土類錯体種の分光学的解析及び核生成挙動解析

本研究で希土類元素を回収する際、「イオン液体電析法」を適用する。ここで、イオン液体中での希土類元素の錯形成状態及び還元過程での核生成挙動が重要となる。そこで、Raman 分光法により希土類 TFSA 錯体種のイオン液体:  $[\text{P}2225][\text{TFSA}]$  中での溶媒和構造を明らかにすることを本項目での研究目的とした。

また、Raman 分光法による溶媒和構造の解析だけではなく、希土類 TFSA 錯体の核生成挙動 (初期の電解析出過程) に関して、電気化学的手法により過電圧を変化させていき、核生成過程と核成長挙動を評価することを研究目的とした。

#### (3) 廃磁石からの鉄族元素及び希土類元素回収プロセスの適用性検討

実廃棄物である voice coil motor (Nd-Fe-B 磁石) を使用して、前処理～湿式精錬～希土類塩生成～イオン液体電析までの一連の工程を実施し、プロセスの適用性を検討した。本研究では、効率的な鉄族元素の分離条件、希土類アミド塩の大量生成、高純度化条件及び Nd 電析に関する電解析出条件を探索することで、プロセスの適用性検討を本項目での研究目的とした。

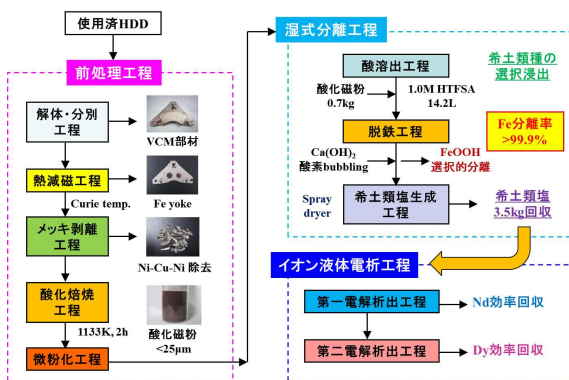


Fig.1 イオン液体を利用した省エネルギー型希土類回収プロセスの概略図

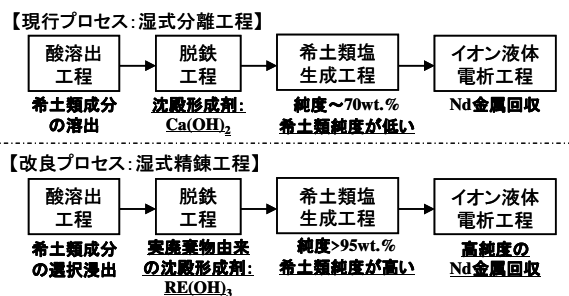


Fig.2 湿式分離工程 (現行プロセス) と湿式精錬工程 (改良プロセス) の比較図

### 3. 研究の方法

#### (1) 鉄族元素の選択的分離及び湿式精錬工程の確立

実廃棄物(voice coil motor)から希土類水酸化物:  $\text{RE}(\text{OH})_3$ , ( $\text{RE}=\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}$ )を生成させる改良型の湿式精錬工程を Fig.3 に示す。湿式精錬工程は前処理～酸溶出～脱鉄処理～ $\text{RE}(\text{OH})_3$  生成工程)～希土類塩生成に基づく構成とした。前処理工程では解体～熱減磁～メッキ剥離～酸化焙焼～微粉化工程を順次実施した。

900°C, 2h の条件下で酸化焙焼を繰り返し実施し、酸化磁粉中の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (hematite)層,  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ 層の形成は XRD から確認した。酸化磁粉を粉碎後、25 $\mu\text{m}$  以下に分級して、最終的に酸化磁粉:4.08kg を作製した。

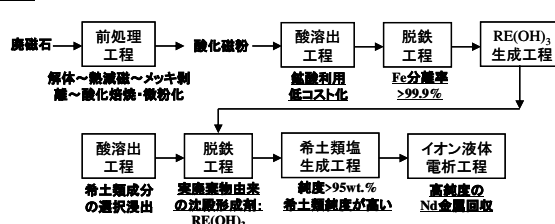


Fig. 3 湿式精錬工程(改良プロセス)の概略図

#### 酸溶出工程

1.0M H[TFSA]溶液(アミド酸)14.2L を使用し、343K, 350rpm の条件下で溶出処理を実施した。高精度 pH 計(MM-43X, DKK-TOA Corp.)により溶出挙動の経時変化を測定し、各種金属の溶出率は ICP-AES 分析から評価した。希土類成分の溶出量が 90%以上に到達した時点(pH $\sim$ 3.2)で溶出処理を完了させた。

#### 脱鉄工程

別の水酸化物生成工程で廃棄物から作製した  $\text{RE}(\text{OH})_3$  を脱鉄工程における沈殿形成剤として適用した。また、コロイド状沈殿物: $[\text{Fe}(\text{OH})_x]^{3-x}$ を効率良く分離するため、脱鉄工程では hematite ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )による種結晶法と酸素バブリング処理を導入した。脱鉄工程においても pH 経時変化測定を継続しながら、段階的に ICP-AES 分析を行うことで、Fe 分離率を評価した。最終的に pH $\sim$ 4.95 の条件下で脱鉄処理を完了させた。

#### 希土類塩生成工程

脱鉄処理後のアミド酸溶液の evaporation 処理を迅速かつ大量に行うため、蒸発管部に dry  $\text{N}_2$  gas を導入できる耐酸性仕様の Spray dryer に改良した装置を希土類アミド塩生成に適用した。Spray dryer では、熱風入口温度: 473 K, Atomizing: 110kPa, Flow rate: 100mL/h,の条件下で脱鉄処理後のアミド酸を順次投入した。希土類アミド塩の回収部を 423 K に加温保持することでアミド塩の潮解性を抑制し、効率良く回収できた。希土類アミド塩: $\text{M}(\text{TFSA})_3$ , ( $\text{M}=\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Dy}, \text{B}, \text{Al}, \text{traces}$ )の生成量から回収率を評価した。また、 $\text{M}(\text{TFSA})_3$ の組成は ICP-AES 分析により決定した。

#### (2) 希土類錯体種の分光学的解析及び核生成挙動解析

##### Raman 分光法による希土類錯体の構造解析

希土類 TFSA 錯体の溶媒和構造を分光学的観点から解析することは重要である。そのため、本研究では希土類 TFSA 錯体として Pr(III), Nd(III), Dy(III)の 3 種類を選定し、イオン液体: $[\text{P}_{2225}][\text{TFSA}]$ 中での溶媒和構造を Raman 分光法により評価した。Raman 分光法では Laser 波長:532nm(Pr, Nd), 785nm(Dy), Grating: 1800 $\text{mm}^{-1}$  (Pr, Nd), 1200 $\text{mm}^{-1}$  (Dy), 積算回数:512 回の条件下で測定し、希土類種の濃度依存性から溶媒和構造解析を実施した。

##### 希土類錯体の核生成挙動解析

電解析出過程の初期段階である核形成過程を解析することは、希土類錯体の電解析出工程において大変重要である。電気化学測定では作用極:Pt 円盤電極( $\phi$ 1.6mm)、対極・擬似参照極:Pt wire を用いて、373K の加温条件下で Chronoamperometry(CA)測定を行った。電流密度-時間曲線( $j-t$  曲線)の無次元解析 $[(j/j_m)^2 \text{ vs. } t/t_m]$ により、Scharifker 理論に基づいて核生成過程を評価した。

#### (3) 廃磁石からの鉄族元素及び希土類元素回収プロセスの適用性検討

##### 実廃棄物からの湿式精錬及び電解試験

実廃棄物(voice coil motor)を利用し、前処理～湿式精錬～電解析出工程に至る一連のプロセスを実施することで、鉄族元素の分離及び希土類回収の可能性を検討した。また、鉄族元素の完全分離条件を確立することで、後続の電解回収に要するエネルギー投与の少ない省エネルギー型のプロセス技術の構築を目指した。

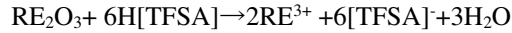
電解析出工程ではスケールアップ電解を行い、作用極に Cu 基板、対極に Fe rod を使用した。Fe rod は $[\text{P}_{2225}][\text{TFSA}]$ 中に浸漬させ、Glass filter で電解浴から隔離する構造とし、Anode 側での溶解種が電解浴中へ拡散することを抑制した。擬似参照極として Pt 線を使用した。核生成挙動の解析結果に基づき、過電圧:-3.25V の設定で Ar 雰囲気 Glove box 中で定電位電解を行った。電析前後の Anode, Cathode の重量変化から陽極及び陰極電流効率を評価した。また、電析物は SEM/EDX, XPS により元素分析、酸化状態を評価した。

#### 4. 研究成果

##### (1) 鉄族元素の選択的沈殿分離及び湿式精錬工程の確立

###### 希土類元素の酸溶出試験

酸化磁粉中の希土類成分(RE=Pr,Nd,Dy)の溶出反応は以下の通りである。



Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Nd<sup>3+</sup> の酸媒体に対する溶存形態は Pourbaix diagram により判断できるため、Fe<sup>2+</sup>:Fe<sup>3+</sup>=1.00:9.95 の分析結果に基づき、実際の溶出条件に合致した電位(E)-pH 図を作成できた。酸溶出工程では溶出時間:15h において、Nd 溶出率=84.2%, Fe 溶出率=1.06%であり、48h 処理で Nd 溶出率=96.1%, Fe 溶出率=0.0%に至ることを ICP-AES 分析結果から確認した。

###### 鉄族元素の沈殿分離試験

アミド酸中での沈殿形成において Fe<sup>2+</sup> の状態では Fe と希土類種の完全分離が困難なため、酸素バブリングの酸化作用(Fe<sup>2+</sup>→Fe<sup>3+</sup>)を pH~3.2 から発現させた。Hematite の種晶法、酸素バブリングの継続と希土類水酸化物 RE(OH)<sub>3</sub>, (RE=Pr,Nd,Dy)の段階的投与により、pH=3.25 から徐々に pH が上昇し、pH=4.95 の段階では ICP-AES 分析結果から Fe は検出されないことを確認できた。故に、[Fe(OH)<sub>x</sub>]<sup>3-x</sup> として選択的に沈殿形成され、Fe 分離率>99.9%が実現できることが確認された。また、種結晶法の導入により、分離困難なコロイド状析出物の形態ではなく、濾過性の高い沈殿物に改善できたため、工業的規模で適用できる濾過速度条件を満たしていた。

###### 希土類塩生成工程

Spray dryer による 10 回の連続的な希土類アミド塩の生成条件を Table 1 に示す。1L/batch 以上の脱鉄処理後のアミド酸を投入し、希土類アミド塩の回収量は 400g/batch 以上を達成することができた。蒸発管部とサイクロン部の塩を含めた形で回収量から評価した結果、85%以上の回収率を維持することができた。また、希土類アミド塩の組成分析結果を Table 2 に示す。Fe は検出されず、完全なる脱鉄処理を実現できた。Pr,Nd,Dy を合算した希土類含有量(RE で表示)は 97%以上であり、高純度の希土類アミド塩を大量生成(総回収量:4720.4g)できることを実証した。

Table 1 塩生成工程における Spray dryer の設定条件、回収量及び収率結果

No.	流速 /mL min <sup>-1</sup>	Atomizer /kPa	Blower /m <sup>3</sup> min <sup>-1</sup>	溶液量 /mL	1batch の回収量 /g	収率 /%
1	2.9	110	0.50	1350	568.2	89.9
2	2.9	110	0.50	1350	551.6	87.3
3	2.9	110	0.35-0.50	1350	542.3	85.8
4	2.5-2.9	100-110	0.35-0.50	1100	426.4	82.8
5	2.5-2.9	100-110	0.35-0.50	1100	442.8	86.0
6	2.5	100-110	0.35-0.50	1100	436.4	84.8
7	2.5	100-110	0.35	1050*	454.2	92.4
8	2.5	100	0.35	1050*	441.6	89.9
9	2.5	100	0.35	1000*	430.2	91.9
10	2.5	100	0.35	1000*	426.7	91.2
					Total:4720.4	Average:88.2

\*蒸発管部とサイクロン部の回収溶液

Table 2 塩生成工程で回収した希土類アミド塩の組成分析結果

No.	Composition /wt.%							分子量 M(TFSA) <sub>n</sub>	係数 n
	Pr	Nd	Dy	RE*	Fe	B	Al 他		
1	25.59	69.23	3.22	97.04	0	0.18	2.78	979.92	3.00
2	24.47	69.64	3.11	97.22	0	0.15	2.64	980.38	3.00
3	24.44	69.47	3.13	97.04	0	0.15	2.81	980.08	3.00
4	24.70	69.32	3.16	97.18	0	0.14	2.68	980.30	3.00
5	25.34	68.51	3.21	97.06	0	0.15	2.79	980.09	3.00
6	24.22	69.66	3.23	97.11	0	0.17	2.72	980.08	3.00
7	25.14	68.81	3.34	97.29	0	0.18	2.53	980.22	3.00
8	24.70	69.15	3.26	97.11	0	0.16	2.73	980.09	3.00
9	24.94	69.06	3.18	97.18	0	0.15	2.67	980.24	3.00
10	24.86	68.99	3.16	97.01	0	0.14	2.85	980.10	3.00
Average	24.74	69.18	3.20	97.12	0	0.16	2.72	980.15	3.00

\*RE……Pr, Nd, Dy の合計値

## (2) 希土類錯体種の分光学的解析及び核生成挙動解析

### Raman 分光法による希土類錯体の構造解析

希土類 TFSA 錯体の分光学的解析では Pr(III), Nd(III) 及び Dy(III) の  $[P_{2225}][TFSA]$  中における Raman 分光解析の一例を以下に記述した。Fig.4 に  $0.23\sim 0.45 \text{ mol kg}^{-1}$  RE(III), (RE=Pr,Nd,Dy)の振動数  $720\sim 770 \text{ cm}^{-1}$  における deconvolution 処理後の Raman スペクトルを示す。  $740 \text{ cm}^{-1}, 751 \text{ cm}^{-1}$  の band は free [TFSA] 及び  $RE^{3+}$  (RE=Pr,Nd,Dy) と溶媒和した [TFSA] の  $\delta_s(CF_3)$ ,  $\nu_s(S-N-S)$  振動に基づくものである。Fig.4 から溶液中の  $RE^{3+}$  の濃度増加に伴い, free [TFSA] の強度は減少し, 希土類イオンと溶媒和した [TFSA] の強度は増大することが明確に示された。

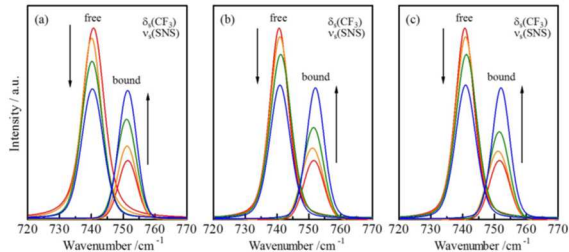


Fig.4 0.23, 0.30, 0.38, 0.45  $\text{mol kg}^{-1}$  の RE(III), in  $[P_{2225}][TFSA]$  の Raman スペクトル (a) Pr(III), (b) Nd(III), (c) Dy(III)

希土類元素に対する [TFSA] の数(溶媒和数:  $n$ )は,  $c_T/c_M$  に対する  $I_T/c_M$  plot の傾き及び切片から評価した。slope analysis を行い,  $RE^{3+}$  への [TFSA] の溶媒和数:  $n$  を算出した結果, 溶媒和数:  $n=5$  であった。故に,  $[RE^{(III)}(TFSA)_5]^{2-}$ , (RE=Pr,Nd,Dy) の錯形成状態を形成することが明らかとなった。

### 希土類錯体の核生成挙動解析

Nd(III) の CA 測定から核生成挙動を解析した結果を Fig.5 に示す。2 種類の核生成挙動に関する理論曲線は以下の式を適用した。

Instantaneous:

$$(j/j_m)^2 = 1.9452/(t/t_m) \{1 - \exp[-1.2564(t/t_m)]\}^2$$

Progressive:

$$(j/j_m)^2 = 1.2254/(t/t_m) \{1 - \exp[-2.3367(t/t_m)^2]\}^2$$

過電圧:  $-3.40V$  では Instantaneous の理論式に概ね合致していた。過電圧を卑側に増加させた場合、Instantaneous から Progressive 側に移行することが明らかとなった。電解析出過程において、過電圧により核生成機構が変わるため、過電圧制御は電析物の析出形態に対して、重要であることが示唆された。

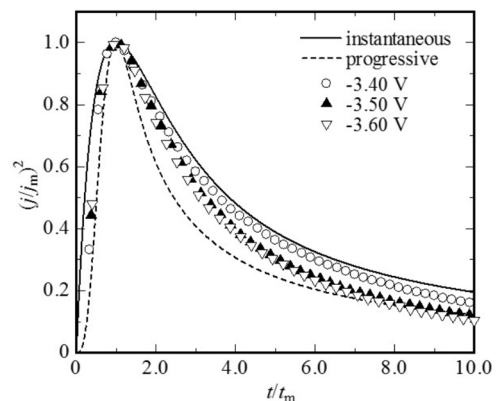


Fig.5 Nd(III)の核生成挙動解析結果

## (3) 廃磁石からの鉄族元素及び希土類元素回収プロセスの適用性検討

### 実廃棄物からの湿式精錬及び電解試験

実廃棄物を使用し、前処理工程で酸化磁粉を  $4.08\text{kg}$  作製した。酸溶出工程ではアミド酸:  $14.2L$  を使用し, Nd 溶出率  $\sim 90\%$  以上まで進行させた。脱鉄処理では  $RE(OH)_3$ , (RE=Pr,Nd,Dy) を沈殿形成剤として適用し, 酸素バブリングと種結晶法を活用することにより, Fe 分離率  $>99.9\%$  以上を実現できた。最終的な希土類アミド塩の総回収量は  $4.07\text{kg}$  (純度  $>97.0\%$ ) であり,  $400\text{g/batch}$  以上の大量生成と高純度化の目標を達成できた。

電解析出工程では、過電圧:  $-3.25V$  において、定電位電解試験を実施した結果、電流値は拡散律速に伴い、緩やかな減少傾向を示した。積算電気量:  $5425C$  に対して、Nd 回収量は  $1.928\text{g}$  であり、各電極の重量変化から評価した電流効率は  $90.8\%$  (Anode),  $71.3\%$  (Cathode) であった。陰極では黒色電析物が得られ、SEM/EDX で表面形態を観察した結果、最大約  $5.0\mu\text{m}$  に及ぶ粒子状物質が観察された。この粒子状物質の位置で Nd のエネルギースペクトルが顕著に観測された。Nd が検出された場所の一部分では酸素も検出されていた。故に、電析物の最表面層では Nd 金属層と Nd 酸化物層の混在であることが示唆された。Nd 電析物の最表面層から  $-0.25\mu\text{m}$ ,  $-1.7\mu\text{m}$  の深さ位置で XPS 測定を行った結果を Fig.6 に示す。金属 Nd は  $980.5\sim 981.0\text{eV}$  に peak を生じ、酸化物の場合、 $981.7\sim 982.3\text{eV}$  に位置する。本試験の電析物では  $Nd3d_{5/2}$  の peak top は  $980.7\text{eV}$  であったため、 $-1.7\mu\text{m}$  の深さ位置では Nd 金属層であることを確認できた。

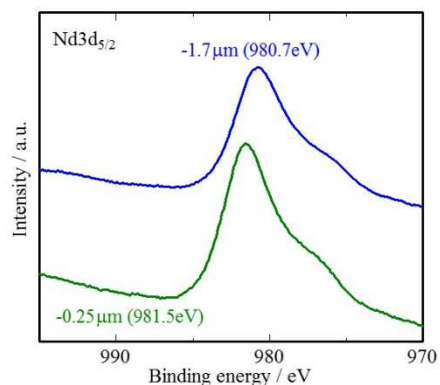


Fig.6 Nd 電析物の XPS 解析結果

電析物の深さ方向(a)  $-0.25\mu\text{m}$ , (b)  $-1.7\mu\text{m}$

電析物の深さ方向(a)  $-0.25\mu\text{m}$ , (b)  $-1.7\mu\text{m}$  に及ぶ粒子状物質が観察された。この粒子状物質の位置で Nd のエネルギースペクトルが顕著に観測された。Nd が検出された場所の一部分では酸素も検出されていた。故に、電析物の最表面層では Nd 金属層と Nd 酸化物層の混在であることが示唆された。Nd 電析物の最表面層から  $-0.25\mu\text{m}$ ,  $-1.7\mu\text{m}$  の深さ位置で XPS 測定を行った結果を Fig.6 に示す。金属 Nd は  $980.5\sim 981.0\text{eV}$  に peak を生じ、酸化物の場合、 $981.7\sim 982.3\text{eV}$  に位置する。本試験の電析物では  $Nd3d_{5/2}$  の peak top は  $980.7\text{eV}$  であったため、 $-1.7\mu\text{m}$  の深さ位置では Nd 金属層であることを確認できた。

最終的に希土類電解回収のエネルギーを評価した結果、希土類金属 1t の回収に要するエネルギーは約  $1.8\text{MWh/t}$  と算出された。これは従来法である溶融塩電解(約  $14\text{MWh/t}$ )と比較して、約  $1/10$  の消費エネルギーであり、省エネルギー型プロセス技術の開発に貢献できた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Masahiko Matsumiya, Daiki Nomizu, Yusuke Tsuchida, Yuji Sasaki	4. 巻 199
2. 論文標題 Synergistic solvent extraction of lanthanide ions with mixtures of D2EHPA and MIDPA in phosphonium-based ionic liquids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Hydrometallurgy	6. 最初と最後の頁 105539(1-8)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.hydromet.2020.105539	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 Masahiko Matsumiya, Daiki Nomizu, Yusuke Tsuchida, Yuji Sasaki	4. 巻 168(5)
2. 論文標題 Spectroscopic and electrochemical analyses for dysprosium complexes in potassium bis(trifluoromethylsulfonyl)amide melts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of The Electrochemical Society	6. 最初と最後の頁 56502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/1945-7111/abfab7	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 Masahiko Matsumiya, Yusuke Tsuchida, Yuji Sasaki, Ryoma Ono, Masahiko Nakase, Kenji Takeshita	4. 巻 327
2. 論文標題 Trichotomic separation of light and heavy lanthanides and Am by batchwise multi-stage extractions using TODGA	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 597-607
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10967-020-07464-3	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 Yuji Sasaki, Masahiko Matsumiya, Masahiko Nakase, Kenji Takeshita	4. 巻 49(10)
2. 論文標題 Extraction and separation between light and heavy lanthanides by N,N,N',N'-tetraoctyl-diglycolamide from organic acid	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1216-1219
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200431	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 Yuji Sasaki, Keisuke Morita, Masahiko Matsumiya, Masahiko Nakase	4. 巻 108(9)
2. 論文標題 Simultaneous separation of Am and Cm from Nd and Sm by multi-step extraction using the TODGA-DTPA-BA-HNO <sub>3</sub> system	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiochimica Acta	6. 最初と最後の頁 689-699
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/ract-2019-3215	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 Daiki Nomizu, Yusuke Tsuchida, Masahiko Matsumiya, Katsuhiko Tsunashima	4. 巻 318
2. 論文標題 Solvation structure and thermodynamics for lanthanide complexes in phosphonium-based ionic liquid evaluated by Raman spectroscopy and density functional theory	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 114008(1-5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2020.114008	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 Yuji Sasaki, Masahiko Matsumiya, Yusuke Tsuchida	4. 巻 36(11)
2. 論文標題 Basic research on batchwise multi-stage extractions using TODGA for Dy/Nd separation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 1303-1309
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/analsci.20P129	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 Yuji Sasaki, Yasutoshi Ban, Keisuke Morita, Masahiko Matsumiya, Ryoma Ono, Hidenobu Shiroishi	4. 巻 27(1)
2. 論文標題 Preliminary study on separation of Dy and Nd by multi-step extraction using TDdDGA	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Solvent Extraction Research and Development, Japan	6. 最初と最後の頁 63-67
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.15261/serdj.27.63	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 松宮 正彦	4. 巻 61(3)
2. 論文標題 溶媒抽出法と電解析出法の連携による有用元素の回収	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 溶融塩および高温化学	6. 最初と最後の頁 86-93
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 Yusuke Tsuchida, Masahiko Matsumiya, Katsuhiko Tsunashima	4. 巻 269
2. 論文標題 Solvation structure for Fe(II), Co(II) and Ni(II) complexes in [P2225][NTf2] ionic liquids investigated by Raman spectroscopy and DFT calculation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 8-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2018.08.004	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14件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 佐々木 祐二, 金子 政志, 松宮 正彦, 中瀬 正彦, 竹下 健二
2. 発表標題 DGA化合物による3価ランタノイド、アクチノイド分離とSr, Tc, Pdの挙動
3. 学会等名 日本原子力学会 2021年春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 松宮 正彦
2. 発表標題 DGA化合物を用いるDyとNdのバッチ式多段抽出分離
3. 学会等名 第39回溶媒抽出討論会
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 Daiki Nomizu, Yusuke Tsuchida, Masahiko Matsumiya, Yuji Sasaki
2. 発表標題 Electrochemical behavior of dysprosium complex in potassium bis(trifluoromethylsulfonyl)amide melts
3. 学会等名 PRiME 2020 ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuji Sasaki, Keisuke Morita, Masahiko Matsumiya, Masahiko Nakase
2. 発表標題 Behavior of lanthanides and actinides for their mutual separation using extractant and masking agent
3. 学会等名 Global 2019 International Nuclear Fuel Cycle Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 森田 圭介, 松宮 正彦
2. 発表標題 バッチ式多段抽出法によるNd/Dy分離
3. 学会等名 第16回茨城地区分析技術交流会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 松宮 正彦
2. 発表標題 DGA抽出剤を用いる多段抽出法による希土類元素の相互分離
3. 学会等名 第38回溶媒抽出討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松宮 正彦
2. 発表標題 希土類元素高純度化に向けたイオン液体系抽出-電解技術の開発
3. 学会等名 2019年度資源・素材関係学協会合同秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 北辻 章浩, 松宮 正彦
2. 発表標題 溶媒抽出法によるAn, FP分離技術開発
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 伴 康俊, 森田 圭介, 松宮 正彦, 中瀬 正彦
2. 発表標題 DOODAを利用する抽出系での希土類パターンとランタノイド、アクチノイド相互分離
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 伴 康俊, 森田 圭介, 松宮 正彦
2. 発表標題 ジグリコールアミドを用いる向流接触多段抽出法による希土類元素の分離基礎検討
3. 学会等名 第15回茨城地区分析技術交流会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 伴 康俊, 森田 圭介, 松宮 正彦, 小野 遼真, 城石 英伸
2. 発表標題 DGA化合物を用いる多段抽出法によるDy, Nd相互分離
3. 学会等名 第37回溶媒抽出討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松宮 正彦
2. 発表標題 溶媒抽出法と電解析出法の連携による有用元素の回収
3. 学会等名 第197回溶融塩委員会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木 祐二, 松宮 正彦
2. 発表標題 D00DA-DGA系多段抽出法を用いるLn, An相互分離
3. 学会等名 日本原子力学会2018年秋の大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 土田 裕介, 松宮 正彦, 網島 克彦
2. 発表標題 Solvation structure and thermodynamics for lanthanide complexes in ionic liquids evaluated by ADF and MD simulations
3. 学会等名 8th International Symposium on Molecular Thermodynamics and Molecular Simulation (MTMS'18) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 松宮 正彦	4. 発行年 2020年
2. 出版社 公益社団法人 石油学会	5. 総ページ数 81
3. 書名 PETROTECH	

1. 著者名 松宮 正彦	4. 発行年 2019年
2. 出版社 化学工業社	5. 総ページ数 80
3. 書名 「化学工業」2019. Vol.70, No.7	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	佐々木 祐二  (Sasaki Yuji)  (20354839)	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・研究主幹   (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------