

## 循環型社会形成推進科学研究費補助金 総合研究報告書概要版

研究課題名 = 環境調和型溶媒イオン液体を用いた廃家電品からのレアメタル再資源化技術  
の開発

研究番号 = K1907, K2026, K2173

国庫補助金精算所要額 32,823,971 円

研究期間 (西暦) = 2007-2009

代表研究者名 = 後藤 雅宏 (九州大学)

共同研究者名=神谷典穂 (九州大学)、久保田富生子 (九州大学)

### 研究目的

本研究の目的は、イオン液体を分離媒体として用いることにより、使用済み製品（スクラップ）からのレアメタルの再資源化を可能にする高効率金属回収システムの開発を行うことである。希土類金属、貴金属を含むレアメタルは、記憶媒体、OA 機器、携帯電話、自動車などあらゆるハイテク機器に少量ずつ含まれているが、複雑な組成からの分離回収技術が確立しておらず、その再資源化はほとんど進んでいない。最近環境調和型の溶媒として注目されているイオン液体は、有機性陽イオンと陰イオンのみからなる熔融塩で、各イオンの組み合わせにより物性をコントロールすることができる。本研究では、分子設計に基づき分離媒体として優れたイオン液体を合成し、目的金属を高度に認識する抽出剤を組み合わせることにより、溶媒抽出法に基づく高度なレアメタルの分離回収プロセスを提案する。スクラップからのレアメタルリサイクルが実現する分離プロセスの開発を目指す。

### 研究方法

本研究は (I) レアメタルの物質フロー解析、(II) レアメタルの分離回収のためのイオン液体抽出系の開発、(III) イオン液体抽出系を用いた高効率分離プロセスの開発 (IV) 総合評価 によって進めた。具体的には

(I) **レアメタルの物質フロー解析**：レアメタルの物質フローを調査・解析することにより、エミッションの現状と問題点を明らかにし、その結果から再資源化可能な使用済み製品の選定を行った。

(II) **レアメタル分離回収のためのイオン液体抽出系の開発**：抽出溶媒に利用できるイオン液体の開発と、これに抽出剤を組み込んだ新しい抽出系の開発を行った。

1. 抽出剤の開発：対象金属を高度に認識し、かつイオン液体中で優れた能力を示す抽出剤の分子

設計と合成を行った。

2. イオン液体の開発: 溶媒として用いるイオン液体の分子設計と合成を行った。諸物性を測定し、その後の結果との関連を明らかにして、分子設計の指針とした。

3. 抽出平衡の検討: 種々イオン液体と抽出剤を組み合わせた抽出系により金属の抽出挙動を調べ、分離回収に利用可能な抽出系の抽出機構を明らかにした。

4. 逆抽出法の開発: 抽出相からの金属の逆抽出 (回収) および抽出溶媒のリサイクル性能を検討した。

以上から、総合的に最適なイオン液体抽出系を見いだした。

5. 実廃液 (スクラップからの金属浸出溶液) を用いて金属回収実証試験を行い、開発した抽出系の有用性を示した。

### (III) イオン液体抽出系を用いたレアメタルを分離回収する高効率分離プロセスの設計

(II) で開発した抽出系を用いて、溶媒抽出法を効率化した液膜プロセスの開発を行った。膜の安定性および金属の分離回収性能から液膜システムを評価し、実廃液への適用性を検討した。

### (IV) 総合評価

物質フローを検討し、目的金属の再資源化を物質循環の観点から評価した。

## 結果と考察

### 1. レアメタルの物質フロー解析

我が国は金属資源を有していないため原料および金属製品を海外からの輸入に頼っている。希土類金属の場合、総輸入量は1996年の18,500tから10年間で40,000tを突破し、最近では輸入数量の伸びに比して金額の伸びが大きくなっている (工業レアメタル, アルム出版社)。国別輸入量で、中国からの輸入が全体の約90%を占めて寡占化が進み、希土類金属はレアな金属ではないにもかかわらず、入手が困難なレアメタルとなっている。そこで本研究課題では、主に希土類金属について検討した。希土類金属の物質フローを図1に示す。この中で、リサイクルは磁石製造工程における磁石屑の回収などごく一部で、ほとんどがスクラップとして廃棄されている。今後電子機器、ハイブリット車の開発、増産により希土類金属の需要が増大するため、これら金属の安定供給のためには使用済み製品からのリサイクルが必要となると考えられる。

そこで、1. 希土類含有比率が高く、製品からの分離が比較的容易である「蛍光体」に着目し、2. 2001年よりの家電リサイクル法により製品の回収が制度として整っており、福岡県でもリサイクル試験が行われている「テレビ、および蛍光管」を選定し、蛍光体からの希土類金属 (主にY, Eu) をリサイクル技術開発のモデルとして選定した。リサイクル試験では、テレビ (CRT) および蛍光管の蛍光体は吸引により剥離され、前者は廃棄料を支払って廃棄 (埋め立て) され、後者は一部が再生蛍光体として利用されている。CRTの年間廃棄量2011年には廃棄量が1200万tになると予想され、その後はPDP、LCDの廃棄が徐々に増加する。照明用蛍光体もバックライトとして電子製品に組み込まれ廃棄量は増加すると考えられる。

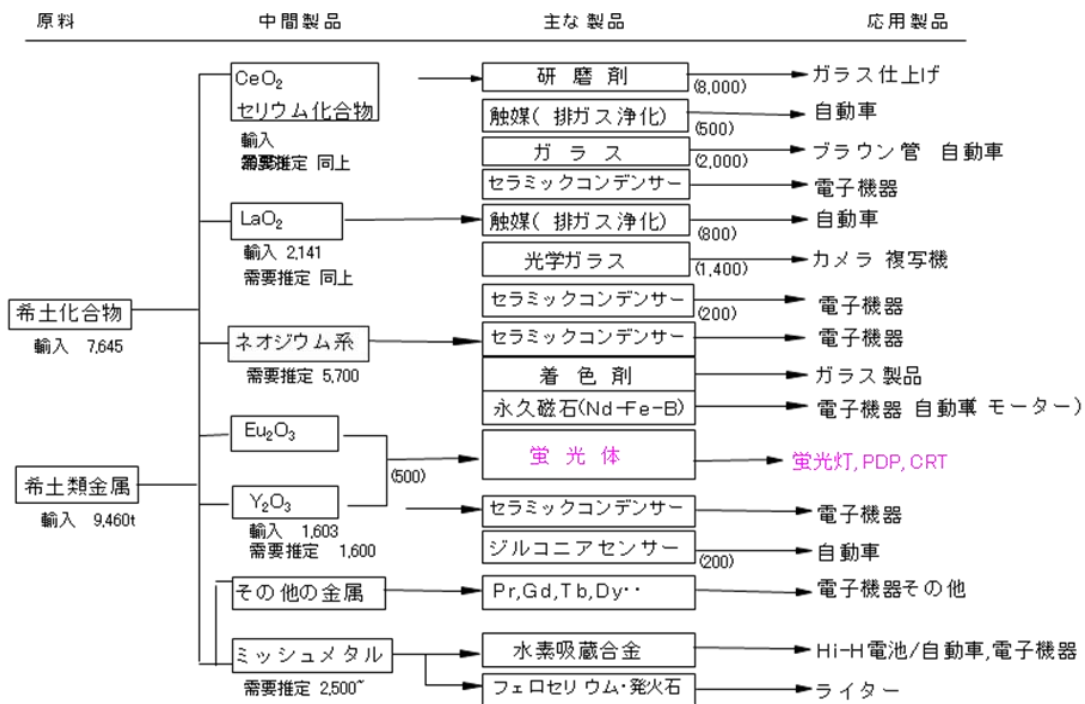


図1. 希土類金属の物質フロー (2006年)

工業レアメタル No.123, 他

## 2. 使用済み製品中の金属組成の分析および酸浸出

蛍光体はCRT 前面パネルおよび蛍光管内側より掻き取り、捕集して(図2)、蛍光 X 線分析装置により金属組成を測定した。図3(a)に示すように高品質の三波長蛍光管からは希土類として Y, La, Ce, Eu, Tb, Pr などが検出された。一方、テレビの CRT 蛍光体の平均的組成は図3(b)のように Y, Eu および多量の Zn の他種々金属が含



図2. 捕集蛍光体

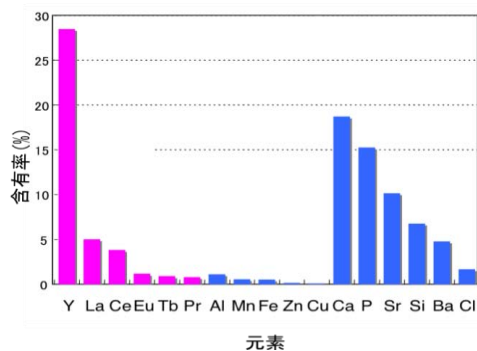


図3(a). 三波長蛍光体の蛍光 X 線による金属組成分析結果例

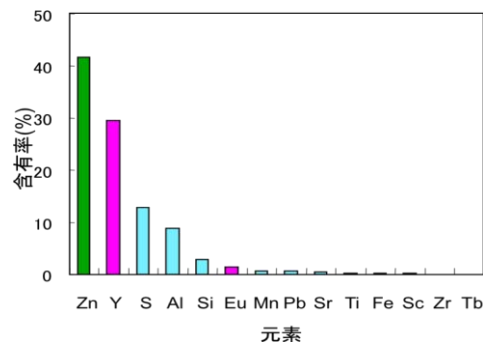


図3(b). CRT 蛍光体の金属組成分析例

まれていることがわかった。いずれの蛍光体も希土類の含有率は30~40%であった。なお、三波長ではない蛍光管(ハロリン酸蛍光体)は、希土類含有率は低いことがわかった。

そこで製品より分離した蛍光体からの硝酸及び硫酸溶液による金属の浸出を行った。一例として、CRTからの浸出溶結果を、1gの廃蛍光体からの浸出量に換算して図4に示す。このように希土類金属の回収には多量の不純物金属との分離が必要であることが明らかとなった。蛍光管からは蛍光体サンプル1g当たり180~280mgのYと14~27mgのEuが溶出した。La, Ce, Tbは1回の浸出では不十分であり、浸出時にY, Euと分離することができることがわかった。CRT蛍光体からは、Y 250 mg, Eu13~17mgを浸出した。

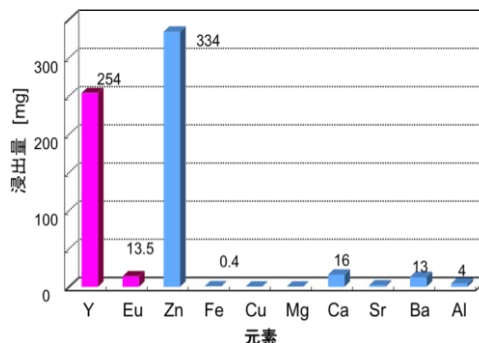


図4. 金属浸出例 浸出量/CRT 廃蛍光体 1g  
5 M 硝酸

このように希土類金属の回収には多量の不純物金属との分離が必要であることが明らかとなった。

### 3. レアメタル分離回収のためのイオン液体抽出系の開発

以上の結果から、蛍光体からの希土類金属の分離回収をモデルに、イオン液体抽出系の開発を行った。

#### 1) イオン液体の合成

イオン液体は有機性の陽イオンとイオンのみからなる熔融塩である。本研究では、陽イオンとして

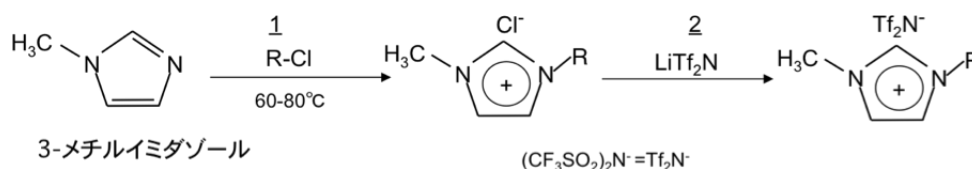


図5. イオン液体の合成スキーム

イミダゾリウム型イオン液体を選定し、これに種々置換基を導入し、陰イオン交換を行うことにより、さまざまなイオン液体の合成を行った。疎水性、粘性などの物性は陰イオンにより大きく、またイミダゾリウムに導入する置換基で微細に変化させることができた。

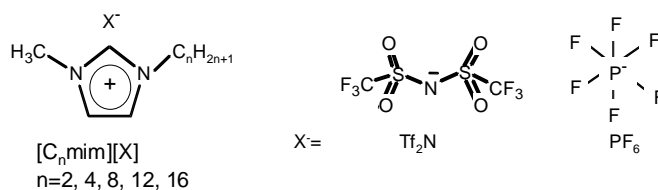


図6. イミダゾリウム型イオン液体

イミダズリウムに C2~C16 のアルキル基を導入し、陰イオンは疎水性を示す Tf<sub>2</sub>N をまた C<sub>4</sub>mim に対しては、Tf<sub>2</sub>N および PF<sub>6</sub> を組み合わせたイオン液体に的を絞って、本研究課題の溶媒として用いた。後にも示すように、[C<sub>n</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N] では C2 < C4 < C8 < C12 とアルキル鎖長が長くなるほど疎水性および粘性が高くなり、C16 では固体となった。これらの化合物は 示差走査熱量計 (DSC) により、安定で 200℃ までは分解しないことを確認した。

## 2) 抽出剤の開発

### 工業用抽出剤によるイオン液体抽出系の検討

#### 抽出剤のイオン液体への溶解性

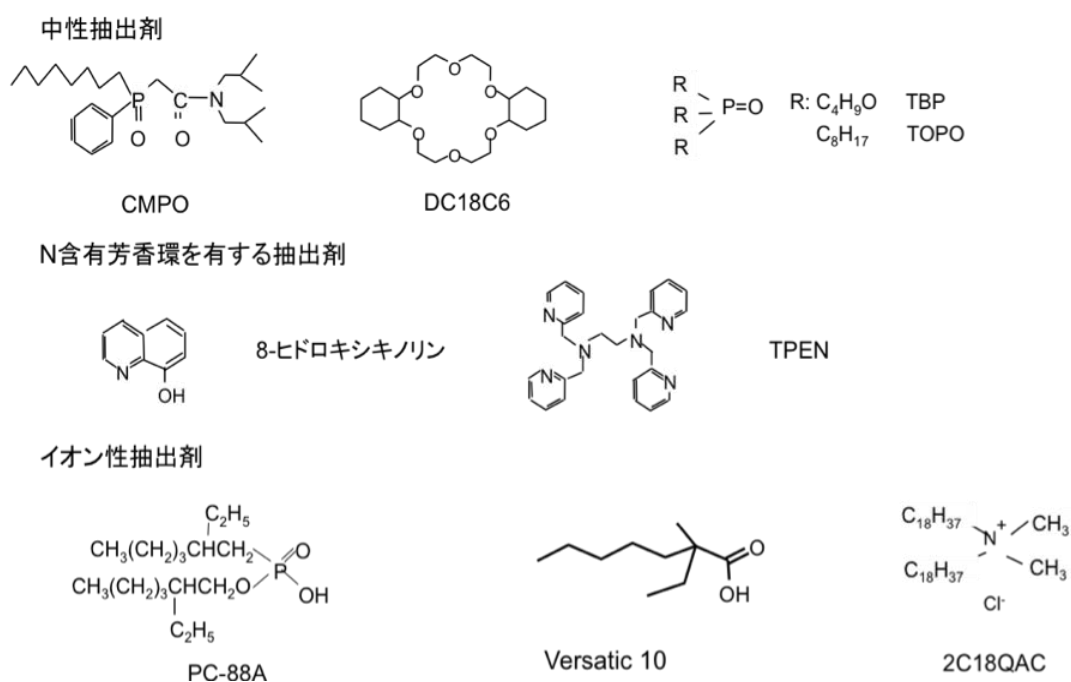
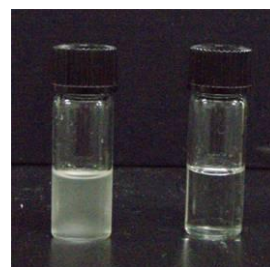


図7. 工業用抽出剤

金属イオンの抽出に用いる主な抽出剤 (図7) について、典型的なイオン液体 [C<sub>4</sub>mim][PF<sub>6</sub>] あるいは [C<sub>4</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N] への溶解性を調べた。その結果、DC18C6、CMPO、TBP、TOPO といった中性抽出剤が容易に溶解し、8-ヒドロキシキノリンや TPEN のように、イオン液体と構造が類似した窒素含有の芳香環を含む抽出剤も良好な溶解性を示した。一方、イオン性の抽出剤は溶解しにくく、陰イオン性の PC-88A や D2EHPA、陽イオン性の 2C18QAC のような長鎖のアルキル基を有する抽出剤は難溶であることがわかった。

そこで、希土類金属の優れた抽出剤の一つである PC-88A のイオン液体への溶解性について検討した。イ



(a) C<sub>2</sub>,C<sub>4</sub>mim (b) C<sub>8</sub>,C<sub>12</sub>mim

図8. PC-88A の溶解性

ミダゾリウム側鎖のアルキル鎖長が 2, 4 のイオン液体[C<sub>n</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N] (n=2, 4) に PC-88A を加えた場合、図 8(a)のように溶液は乳化したが、鎖長を C8, C12 と長くすることで図 8 (b)のようにこれを溶解させることができた。同様に、Versatic10 やアニオン種の金属イオンの抽出剤となる陽イオン性の四級アンモニウム塩 2C18QAC も C8、C12 のイオン液体を用いることにより溶解することができた。

### CMPO による希土類金属の抽出分離

中性抽出剤 CMPO による一連の希土類金属の抽出挙動を典型的なイオン液体[C<sub>4</sub>mim]により検討した。図 9 に示すように、イオン液体系では、有機溶媒系で全く抽出しない条件下でもほぼ定量的な抽出を達成し、抽出剤濃度を有機溶媒系の 1/100 に低減できることがわかった。また、イオン液体に抽出した金属は、0.1 M クエン酸、0.4 M ギ酸、0.4 M ヒドラジンの混合液によりほぼ定量的に回収することができた。イオン液体系ではこれまで困難であった逆抽出の成功によりイオン液体が有機溶媒に替わる高効率分離の媒体になり得ることを示した。

イオン液体の種類では、陰イオンが[Tf<sub>2</sub>N]<sup>-</sup>>[PF<sub>6</sub>]<sup>-</sup>の順で抽出能力が高く、溶媒の物性調整により、抽出性能を制御できることを明らかにした。

一方、問題点としては、酸濃度のコントロールによる逆抽出が不可能で錯化剤を使用することから、コストが高くなることがあげられた。さらに溶媒抽出では、逆抽出した後の溶媒を再び抽出相として繰り返し使用するが、図 10 に示すように、繰り返しの回を重ねるとともに一部の金属では抽出効率が落ちるため、実用化には更なる検討が必要であることがわかった。

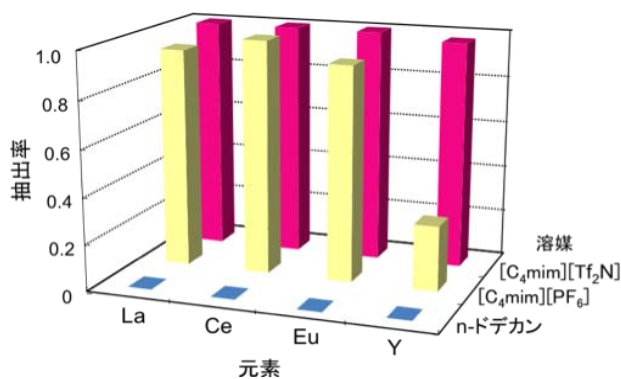


図 9. 希土類金属のイオン液体への抽出性能

C<sub>MiO</sub>=0.1mM, C<sub>CMPO</sub>=5 mM  
 C<sub>HNO<sub>3</sub></sub>=0.1M (イオン液体系)  
 C<sub>HNO<sub>3</sub></sub>=1M (n-ドデカン系)

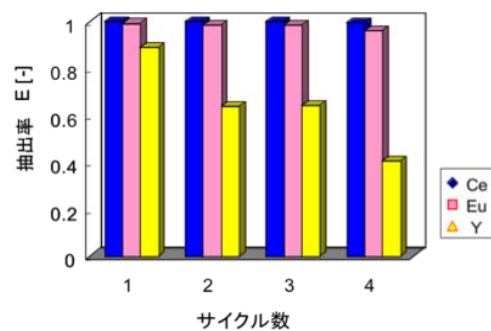
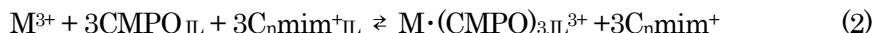


図 10 イオン液体再利用の抽出

性能への影響 逆抽出：  
 0.1 M クエン酸+ 0.4 M ギ酸  
 +0.4 M ヒドラジン

このようなイオン液体系での逆抽出の困難さ、繰り返し使用による抽出効率の低下は、イオン液体系と有機溶媒系とで、金属の抽出機構が異なることに起因することが明らかとなった。すなわち、有機溶媒系では(1)式のように、酸陰イオンが対イオンとして金属が抽出されるのに対し、イオン液体系では(2)式のように、イオン液体陰イオンが対イオンとなり、陽イオンが水相に放出される。





抽出反応にイオン液体の構成イオンが関与する場合は、平衡論的に逆抽出は難しい。したがって効率的な抽出分離を行うには、有機溶媒系と同じ抽出機構のイオン液体系を用いることが重要であることが明らかとなった。

### PC-88A による希土類金属の抽出分離

そこで、希土類金属の典型的な酸性抽出剤である PC-88A を用いて、イオン液体系での抽出挙動を検討した。PC-88A が溶解可能な C8、C12 のイオン液体を溶媒とした。[C<sub>8</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N] では、有機溶媒系の抽出挙動と同様に (図 16 参照)、pH の上昇とともに抽出率が増大しほぼ定量的な抽出が達成できた。表 1 にその能力を半値 pH (50%抽出する pH) として示している。[C<sub>8</sub>mim] は有機溶媒と同等、またイオン液体では[C<sub>8</sub>mim] > [C<sub>12</sub>mim] では抽出能力が低下した。

表 1 PC-88A による希土類金属抽出の半値 pH

溶媒	Y	Eu	Ce	La
[C <sub>12</sub> mim]	1.9	2.4	3.1	3.6
[C <sub>8</sub> mim]	1.6	2.2	-	3.4
n-ドデカン	1.5	2.2	3.0	3.4

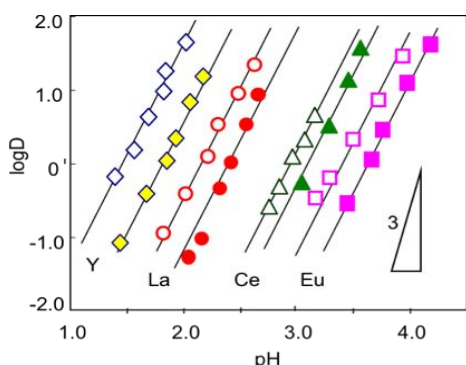


図 11 分配比 D と pH の関係

◆, ●, ▲, ■ [C<sub>12</sub>mim]、◇, ○, △, □, n-ドデカン

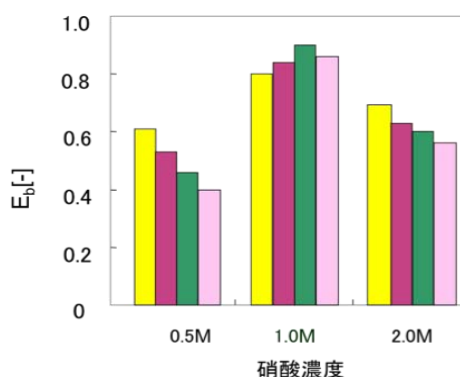
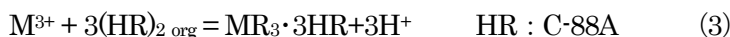


図 12 [C<sub>8</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N]からの逆抽出

そこで、本抽出系での抽出機構を検討した。リン酸系抽出剤 HR は有機溶媒中では 2 量体(HR)<sub>2</sub>として存在している。イオン液体系でも、分配比 D は抽出剤 2 量体濃度と傾き 3 の、また図 11 に示すように log D と pH は傾き 3 の直線関係を示し、抽出は式 (3) のように有機溶媒系と同様の抽出機構で表されることが明らかとなった。



したがって、本抽出系では、酸濃度によって抽出を制御できることが推察された。しかしながら、図 12 に示すように、イオン液体相からの金属の回収は十分ではなく、これは錯体のイオン液体への溶解性が低いことに起因するものであることが示唆された。





属のみを定量的に抽出することが可能であった。さらに DODGAA は同じカルボキシル基を有する工業用抽出剤 Versatic10 と比べて、抽出能力、Zn との分離性能ともに極めて高く、本抽出剤が、多量の不純物金属を含むスクラップ廃液からの希土類金属の分離回収に高選択的な抽出剤であることが明らかとなった。

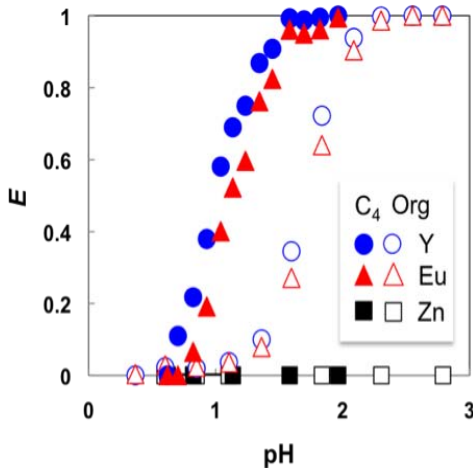


図 15 DODGAA による金属の抽出挙動  
 ([C<sub>4</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N], n-ドデカン)  
 C<sub>Mi0</sub>=0.1mM, C<sub>DODGAA</sub>=10mM

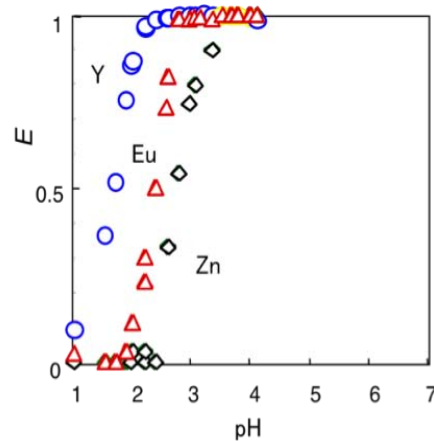


図 16 PC-88A による抽出挙動  
 (有機溶媒系)  
 C<sub>Mi0</sub>=0.1mM, C<sub>PC-88A</sub>=20mM

### DODGAA による希土類金属の抽出機構

DODGAA を分離試薬として用いるために、その抽出機構を調べた。Versatic 10 のようなカルボン酸系の抽出剤は、リン酸系の PC-88A と同様に有機溶媒中では 2 量体を形成し、式 (3) と同様に、金属は抽出剤 2 量体と 1 : 3 の錯体を形成して抽出される。一方、DODGAA は、金属と抽出剤単量体が 1 : 3 の錯体として存在していると考えられた。DODGAA によるイオン液体系の金属の抽出挙動は有機溶媒系と類似し (図 15)、分配比  $D (=C_{MR3}/C_M)$  は抽出剤濃度と傾き 3 の、図 17 に示すように  $\log D$  と pH は傾き 3 の直線関係を示したことから、抽出反応は(4) 式で表されることが明らかとなった。これらの結果より、(5) 式に基づいて抽出平衡定数を算出した。

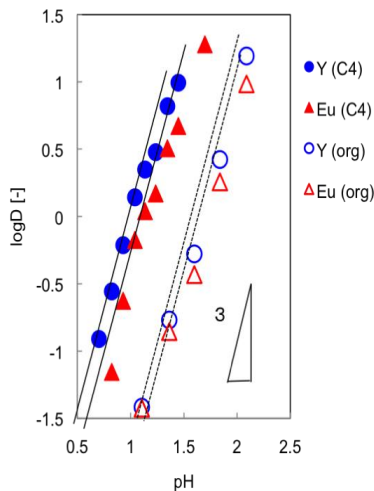
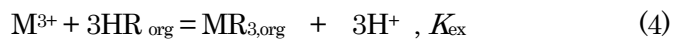


図 17 DODGAA による希土類金属の分配比 D と pH の関係

動は有機溶媒系と類似し (図 15)、分配比  $D (=C_{MR3}/C_M)$  は抽出剤濃度と傾き 3 の、図 17 に示すように  $\log D$  と pH は傾き 3 の直線関係を示したことから、抽出反応は(4) 式で表されることが明らかとなった。これらの結果より、(5) 式に基づいて抽出平衡定数を算出した。



$$\log D = 3pH + 3\log[HR] + \log K_{ex} \quad (5)$$

表 2. 抽出平衡定数  $K_{ex}$

	$K_{ex}$		分離係数 $\beta$
	Y	Eu	
[C <sub>4</sub> mim]	8.2x10 <sup>2</sup>	3.0x10 <sup>2</sup>	2.7
ドデカン	15.0	11.1	1.4

### 逆抽出とイオン液体の繰り返し使用に関する検討

イオン液体の実用化に重要な、イオン液体相からの金属の逆抽出と、逆抽出後のイオン液体相の繰り返し使用について検討した。図 18 に示すように、抽出した希土類金属は本実験条件下 0.5M 程度の酸で容易に逆抽出が可能であることがわかった。逆抽出後のイオン液体の抽出性能を調べた。図 19 に示すように、繰り返し使用してもイオン液体抽出系の抽出能力は低下せず、DODGAA を抽出剤とする本抽出系が優れた抽出系であることが明らかとなった。

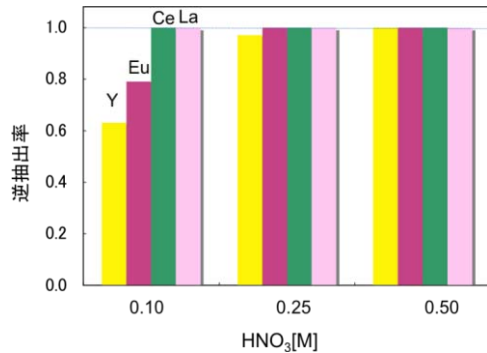


図 18 DODGAA/C<sub>4</sub>mim からの逆抽出

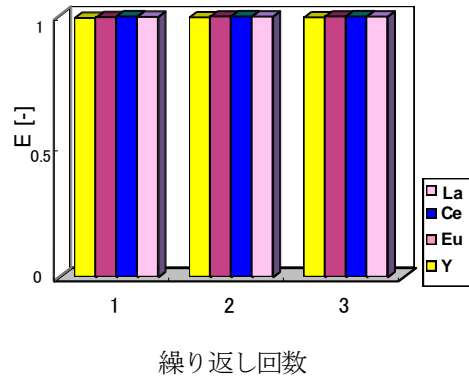
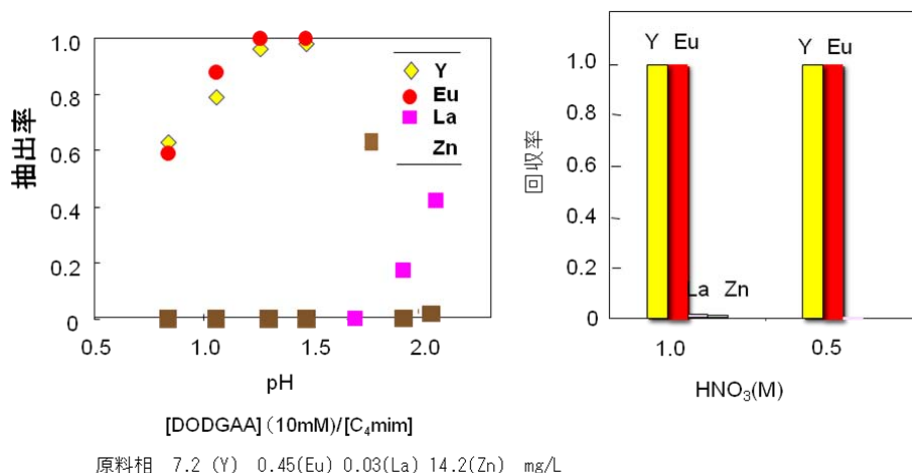


図 19. イオン液体再利用の抽出性能への影響 (DODGAA/C<sub>4</sub>mim)

### 4. スクラップからの実廃液を用いた希土類金属の分離回収試験

以上の結果から、実際に CRT 蛍光体からの硝酸浸出溶液から希土類金属の回収試験を行った。蛍光体を 5M 硝酸で浸出し、濾過したあとの溶液を水酸化ナトリウムにより pH 調整した。この原料溶液 (Y:7.2, Eu:0.45, La:0.03, Zn:14.2mg/L, その他多種微量金属) から DODGAA の[C<sub>4</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N]で抽出を行った結果、希土類金属のみを抽出分離することができた。さらに 0.5M 濃度以上の硝酸を



原料相 7.2 (Y) 0.45(Eu) 0.03(La) 14.2(Zn) mg/L

(a) 抽出操作

(b) 逆抽出操作

図 20. 実廃液からの金属の分離回収試験

用いて、イオン液体相からこれらをほぼ定量的に回収することが可能であった(図 20)。大量の不純物金属からの希土類金属の分離を低抽出 pH および低回収酸濃度により、1 段の操作で効率的に分離回収ができることが明らかとなった。

## 5. イオン液体抽出系を用いた高効率分離プロセスの開発-液膜システムの開発-

イオン液体抽出がレアメタルのリサイクル技術として有用であることが明らかとなったがイオン液体にコストがかかるため、実用化にはイオン液体の減量化を測る必要がある。もっとも実現可能なプロセスが液膜プロセスである。

液膜は図 21 のように高分子多孔質支持体に、目的金属高選択的なキャリアを含む液膜相を含浸させ、原料相と回収相の間に挟んでその両側で抽出と逆抽出(回収)を同時に行う(図 22)極めて効率の良いプロセスである。液膜プロセスを稼働させるには、長期に安定な液膜の構築が不可欠であるが、有機溶媒が用いられる従来の液膜では、膜液の漏出や水の透過などによる膜の不安定化のためほとんど実用化されていない。そこで本研究では、イオン液体の特性に着目し、イオン液体を液膜相とした安定な液膜の開発を行った。

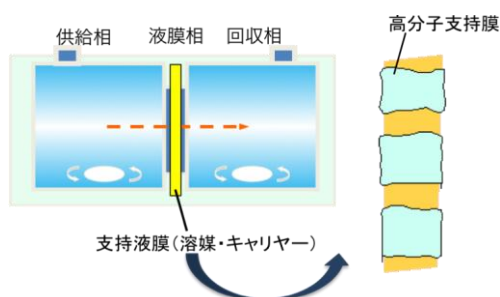


図 21 液膜システム

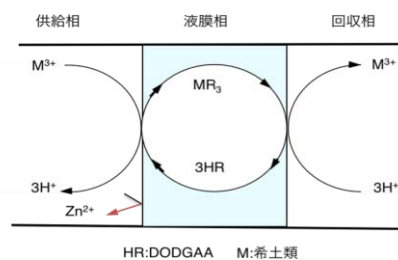


図 22 金属の膜透過機構

### 液膜の調製

液膜の多孔質高分子支持体として、次のポリフッ化ビニリデン PVDF 膜 (ミリポア製) を用いた。

疎水性 膜厚:125  $\mu\text{m}$ , 孔径:0.45  $\mu\text{m}$

親水性 膜厚:125  $\mu\text{m}$ , 孔径:0.45  $\mu\text{m}$  または 0.22  $\mu\text{m}$

高分子支持体にキャリア分子を含む液膜相を含浸させ (有効膜面積 5cm<sup>2</sup>)、供給相、回収相それぞれ 55ml の膜透過装置に設置し、一定時間毎に両相の金属濃度を測定した。

### 液膜の構築と金属の液膜輸送

これまで検討した抽出剤を液膜のキャリアとして液膜実験を行った。親水性膜ではいずれの孔径の膜でもイオン液体による液膜を形成できなかった。そこで疎水性膜により、有機溶媒および種々イオン液体と抽出剤の組み合わせで液膜を調製し、Y、Eu、Zn 含有のモデル溶液を供給相として液膜透過実験を行った。主な結果を下記にまとめている。

(キャリア)	(溶媒)	(結果)
DODGAA	n-ドデカン, [C <sub>4</sub> mim][Tf <sub>2</sub> N]	液膜不安定化
PC-88A	n-ドデカン	液膜不安定化
DODGAA	[C <sub>8</sub> mim] [C <sub>12</sub> mim]	安定な膜形成と高選択的膜透過

有機溶媒を液膜相をとした場合は、図 23 (a)に示すように、供給相と回収相の金属濃度が徐々に近づき最終的には均一濃度となった。DODGAA とは反応しない Zn も透過し、また供給相側の酸濃度の上昇から膜破壊が起こっていることが明らかとなった。イオン液体でも[C<sub>4</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N]の場合は、図 23(a)と同様に安定な膜の形成はできなかった。一方[C<sub>8</sub>mim]では 図 24 (b) に示すように、供給相

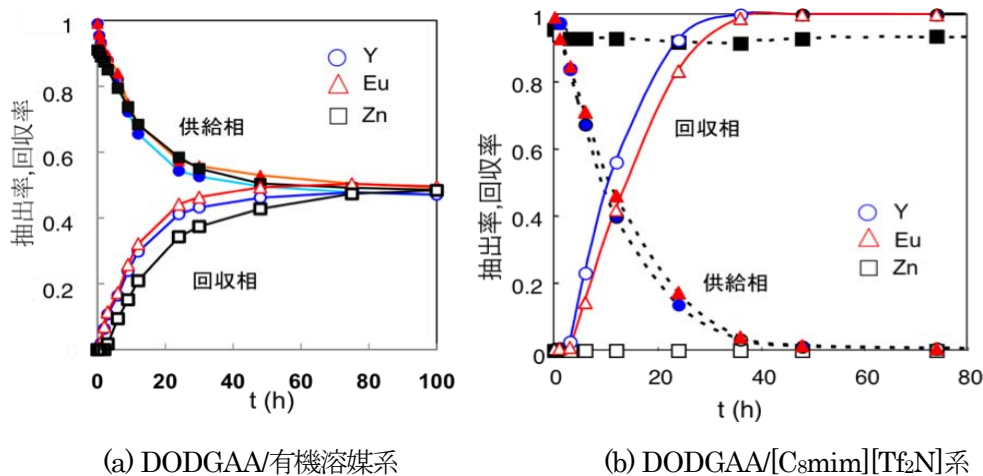


図 23 金属の膜透過挙動 (供給相、回収相の金属抽出率、回収率の変化)  
 供給相 C<sub>Mi0</sub>=0.1mM, i= Y, Eu Zn, pH 4, 液膜相 C<sub>HR</sub>=10mM  
 回収相 1M 硝酸

の Y、Eu 濃度の減少とともに回収相の濃度が上昇し、ほぼ定量的な液膜透過が達成できた。亜鉛は全く透過せずこれによって、希土類金属のみを回収相に分離することができた。液膜は稼働させた 140 時間以上安定であり、安定な液膜では図 22 に示す反応が保たれていることが示された。

実験条件下、[C<sub>8</sub>mim]の粘度はドデカン (1.6 mPa・s) の 75 倍以上であり、細孔に安定に膜液が保持されるには溶媒の粘度が重要な要素であることが明らかとなった。

本液膜システムを用いて、CRT 実廃液(酸浸出液)

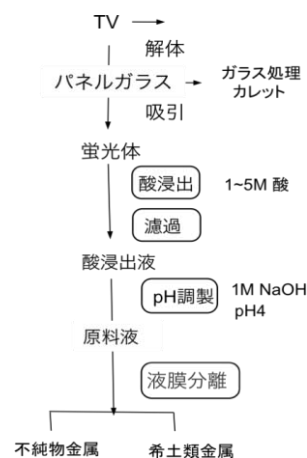


図 24 CRT 蛍光体からの金属リサイクルフロー

の液膜処理を行った。リサイクルのフローは図 24 のとおりである。廃液（例：Y:11.7, Eu:0.82, Al:12, Zn:42ppm、他微量金属）から一回の液膜操作により Y、Eu のみをほぼ定量的に回収することができた。（図 25）

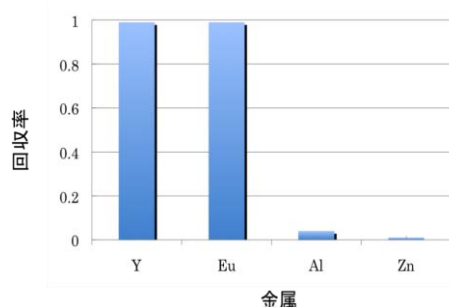


図 25 実廃液からの液膜による希土類金属の回収（供給相 pH4、回収相 HNO<sub>3</sub>=1M）

## 6. 総合評価

40W の直管型蛍光管約 250g に塗布される蛍光体は 5.5-6.5 g、テレビ CRT には 3-5 g の蛍光体が含まれている。国内で排出される蛍光灯のうち直管型蛍光管は 32,000 万本/年、CRT は 800 万台/年でこれから試算される廃棄蛍光体量はそれぞれ約 1900t, 30~60t と試算される。回収可能金属は、酸化物ベース(M<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)でテレビ CRT から Y:10~20t, Eu:0.6~1.2t, 蛍光灯から（三波長型 40W 直管 10,000 万本あたり）Y:150t, Eu:14t となり、酸浸出液からの金属回収ができれば、リサイクルの効果は高いと考えられる。ガラス処理の一環として、CRT や蛍光管ガラスからの蛍光体の抜き取りは既に行われているため、原料は容易に図 24 のフローに乗せられる。

DODGAA/イオン液体系では廃蛍光体の中から希土類金属のみを回収することが可能であり、これを液膜化することにより抽出法が金属リサイクル技術として利用可能であると考えられる。

## 7. 結論

物質フローを解析したレアメタルの中から、供給の寡占化が進んでいる希土類金属を対象にイオン液体抽出法によるリサイクル技術の開発を行った。高性能の抽出系を創成するには、高性能の抽出剤と、これに適したイオン液体の組み合わせが重要である。種々イオン液体を合成し、これに工業用抽出剤を組み込んで金属の抽出挙動を検討した結果をもとに、新たにイオン液体に適した優れた抽出剤を開発した。本抽出剤は、希土類金属を高選択的に認識し、イオン液体中で高い抽出性能を示すうえ、従来イオン液体系では困難であった逆抽出も容易にした。さらに高効率化のために、抽出相を含浸させた高分子薄膜を介して抽出と逆抽出を同時に行う液膜プロセスの開発を行った。イオン液体により長期安定な膜を形成し、希土類金属を定量的、高選択的に透過する液膜の開発に成功した。本法は実用化可能なレアメタルリサイクル技術のひとつとして有望であることが明らかとなった。

**Development of a novel extraction technique for the recovery of rare-metals from spent electric appliances by using eco-friendly ionic liquids as separation media**

Head Investigator	Masahiro Goto,	Kyushu University
Investigators	Noriho Kamiya,	Kyushu University
	Fukiko Kubota,	Kyushu University

Industrial wastes and scraps have been highlighted as valuable secondary resources of rare metals under serious consideration due to resource scarcity, and the development of an efficient technique for the recovery of rare metals is anticipated. The purpose of this work is to develop a novel extraction system for the recovery of the metals from the spent electric appliances by using ionic liquids as separation media. In the present work, we focused on the recovery of rare earth metals from the phosphor powder of spent fluorescent light and TV tube as a recycling model. A novel extractant DODGAA, which showed the high performance for the recovery of rare earth metals in a suitable ionic liquid, was developed. Then, we have employed the ionic liquid system to construct a highly efficient liquid membrane system for the separation of rare-earth metals. The membrane was stable enough for long-term operation and only the target metal ions (Y and Eu) were successfully recovered from leach liquor from the phosphor powder containing a large amount of impurity metal ions such as zinc. The novel ionic liquid system was demonstrated to be a useful technique for the recycling of rare metals from such spent electric appliances.

Keywords : Rare metals、 Recycling、 Ionic liquids、 Extraction、 Spent electric appliances