1A03 2017年秋の大会

# 相転移型水系溶媒抽出法による白金族元素の分離

1東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

温度応答性ポリマーを用いた硝酸水溶液からの白金族元素の抽出実験を行い、抽出率に対する配位子、硝酸、及び硝酸ナトリウム濃度の依存性を明らかにした。

キーワード:温度応答性ポリマー、白金族元素、溶媒抽出

## 1. 緒言

ガラス固化に係る課題の解決には、高レベル放射性廃液から白金族元素(Ru, Rh, Pd)を選択的かつ効率的に分離回収する手法の確立が不可欠である。溶媒抽出やクロマト法に基づく分離技術が研究されているが、作業量や二次廃液の増加という点で課題がある。一方、温度応答性ポリマーPoly(N-isopropylacrylamide) (PNIPAAm)は、水中では32℃付近に下限臨界溶解温度(LCST=Lower Critical Solution Temperature)を持ち、僅かな温度変化だけで親水・疎水性が変化するため、新しい分離媒体と成り得る。金属イオンを含む水溶液に疎水性抽出剤・PNIPAAm を導入しLCST 以上に昇温するだけで、PNIPAAm のゲル化が引き起こされ、そのゲル内に金属錯体として吸着・回収可能となる[1][2]。本研究では、PNIPAAm の相転移を利用した硝酸水溶液からの白金族元素の抽出特性の解明を目的とする。

### 2. 実験

白金族イオン(Ru(III)、Rh(III)、Pd(II))を含む 0~2 M 硝酸水溶液に、PNIPAAm 及び疎水性配位子である 1,3-dibutylthiourea (DBT) を添加して LCST 以下で攪拌し、白金族錯体を形成させた。その後、LCST 以上 に昇温し、PNIPAAm を凝集・ゲル化させると共に、PNIPAAm ゲル内に白金族錯体を疎水性相互作用によって取り込ませ分離回収した。水溶液中に残存する白金族イオンの濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置にて定量し、抽出率及び分配比を算出した。

### 3. 結果・考察

Ru(III)、Rh(III)、Pd(II)の抽出率の配位子濃度及び硝酸濃度依存性を調べたところ、全体として、抽出率は配位子濃度の増加と共に増加した。Pd(II)はすべての硝酸濃度において 100%抽出されたが、Ru(III)とRh(III)の抽出率は  $0.1\,\mathrm{M}$  硝酸水溶液において約 40%であり、硝酸濃度の増加と共に減少した。また、Ru(III)と Rh(III)の抽出率に対する硝酸ナトリウム濃度依存性を調べたところ、正の依存性を示した。硝酸濃度に対しては負の依存性を持つことから、 $\mathrm{H}^+$ と  $\mathrm{NO_3}^-$ は抽出率に対して逆の効果を持つことが明らかになった。さらに、分配比に対する配位子濃度及び硝酸イオン濃度の依存性から、 $\mathrm{Ru}(\mathrm{III})$ 及び  $\mathrm{Rh}(\mathrm{III})$ の主な抽出種は、それぞれイオン対が解離した $\mathrm{[Ru(NO)(NO_3)(DBT)]^{2+}}$ 及び多核錯体 $\mathrm{[Rh_3(NO_3)_3(DBT)]^{6+}}$ あることが示唆された。

#### 参考文献

[1] H. Tokuyama and T. Iwama, Sep. Purif. Technol., 2009, 68, 417–421.

[2] K. C. Park and T. Tsukahara, Jpn. Patent 2015-014508, 2015.

<sup>\*</sup>Haruka Tateno<sup>1</sup> and Takehiko Tsukahara<sup>1</sup>

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology