

チオ尿素系配位子を用いた PNIPAAm による Pd(II)分離の基礎検討

Fundamental study on separation of Pd(II) using thiourea type ligand by PNIPAAm

*山崎 博貴¹, 浅沼 徳子¹, 館野 春香², 塚原 剛彦²

¹東海大学, ²東工大・先導原子力研究所

PNIPAAm とチオ尿素系配位子を用いた、高レベル放射性廃液からの Pd(II)分離の基礎検討を行った。Pd(II)に対する配位子のモル比と吸着率の関係から、配位子による吸着特性の違いを考察した。

キーワード：ジフェニルチオ尿素, ジアルキルチオ尿素, HNO₃

1. 緒言

高レベル放射性廃液に含まれる Pd(II)はガラス固化プロセスを妨害する要因となり、これを分離する必要がある。Poly(*N*-isopropylacrylamide) (以下 PNIPAAm)には、下限臨界溶液温度(LCST=Lower Critical Solution Temperature)を境に親水性と疎水性が変化する性質がある。この性質により、LCST 以上に昇温すると PNIPAAm がゲル化するため、配位子と PNIPAAm との疎水性相互作用により、ゲルに Pd(II)-配位子の錯体を吸着分離することができる[1-3]。従って、Pd(II)に選択的な疎水性配位子を用いることで、温度変化のみで PNIPAAm による分離が可能となる。本研究では、Pd(II)との錯形成能を有する疎水性のチオ尿素誘導体として、ジフェニルチオ尿素、ジシクロヘキシルチオ尿素、ジヘキシルチオ尿素、ジオクチルチオ尿素を配位子に用いて、PNIPAAm による Pd(II)分離のための基礎検討を行った。

2. 実験

ウォータージャケット付きビーカーに、Pd(NO₃)₂を溶かした 1M (M=mol/dm³) HNO₃ 溶液と PNIPAAm を入れ、15°Cで攪拌した。PNIPAAm 溶解後、配位子を投入し 1 時間攪拌した。その後、50°Cで溶液を 1 時間攪拌し PNIPAAm をゲル化させた。シリンジフィルターを介して溶液を回収し、溶液中の Pd(II)濃度を、原子吸光光度計を用いて測定した。

3. 結果及び考察

各配位子を用いた Pd(II)の吸着特性を図 1 に示す。吸着率は次式により求めた。

$$\text{吸着率(\%)} = \frac{[\text{Pd(II)}]_0 - [\text{Pd(II)}]}{[\text{Pd(II)}]_0} \times 100$$

[Pd(II)]₀: 初期 Pd(II)濃度

[Pd(II)]: ろ液の Pd(II)濃度

ジヘキシルチオ尿素を配位子に用いると、Pd(II)に対し 6 倍の配位子投入量でほぼ 100%の Pd(II)を吸着し、約 10 倍量を要するジオクチルチオ尿素よりも効率的な吸着特性を示した。一方、ジフェニルチオ尿素を用いると、Pd(II)分離のためには 20 倍以上の添加量を必要とし、ジシクロヘキシルチオ尿素では、完全回収には至らなかった。このことから、環状官能基を有する配位子よりも直鎖アルキル基型の方が吸着特性に優れ、その疎水性が吸着能に影響を及ぼすものと推察する。

一方、ジフェニルチオ尿素を用いると、Pd(II)分離のためには 20 倍以上の添加量を必要とし、ジシクロヘキシルチオ尿素では、完全回収には至らなかった。このことから、環状官能基を有する配位子よりも直鎖アルキル基型の方が吸着特性に優れ、その疎水性が吸着能に影響を及ぼすものと推察する。

参考文献

- [1] 塚原 剛彦, 特開 2016-138319, 「金属元素の分離方法」 2016 年 8 月 4 日, [2] H. Tateno, *et al.*, *Chem. Lett.*, **47**, 318 (2018).
[3] K. C. Park, *et al.*, *React. Chem. Eng.*, **3**, 48 (2018).

*Hiroki Yamazaki¹, Noriko Asanuma¹, Haruka Tateno² and Takehiko Tsukahara²

¹ Tokai University, ² Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Tokyo Institute of Technology

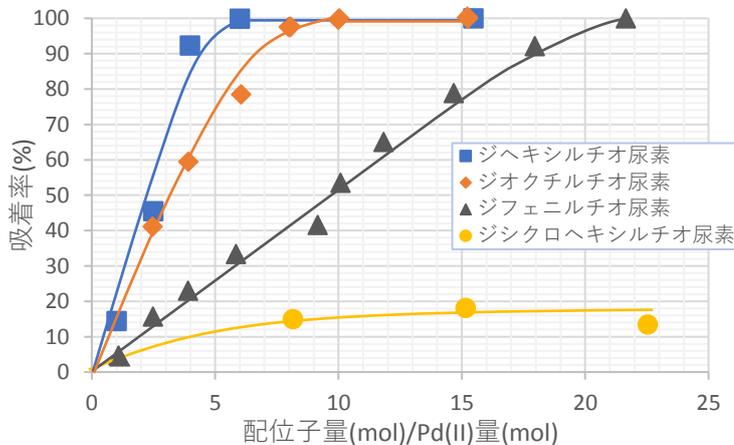


図 1 配位子量/Pd(II)量のモル比と吸着率の関係
([Pd(II)]₀=0.6mM, 1M HNO₃)