配位子搭載型ハイドロゲルによる硝酸溶液からのウラン，トリウムの吸着分離

Adsorption separation of uranium and thorium by ligand-immobilized hydrogel from nitric acid solution

*中瀬 正彦[1]，山村朝雄[2]，白崎謙次[3]，永井満家[3]，小林徹[4]，松村大樹[4]，竹下健二[1]
[1]東工大先導原研，[2]京大複合原科研，[3]東北大学金研，[4]原子力機構

重合性官能基を有する *N,O*-ハイブリッドドナー配位子，感温性モノマーの *N*-イソプロピルアクリルアミド(NIPA)，架橋剤の *N,N'*-メチレンビスアクリルアミド(BIS)をラジカル重合により感温性ハイドロゲル吸着剤を合成し，硝酸溶液からの UO_2^{2+}, Th^{4+}の吸着分離挙動を調査した．吸着に及ぼす振とう時間，酸濃度，温度依存性を取得したところ，溶媒抽出と吸着分離挙動に差異が見られた．高レベル廃液程度の数 M の酸濃度での U/Th 分離の可能性と，複雑な吸着メカニズムが示唆された．

キーワード：ウラン，トリウム，再処理，ゲル液抽出，溶媒抽出，分離科学

1. 緒言　Th サイクルが再注目されているが，バックエンド技術が未成熟で成立性は不透明であるため検討が必要である．Th 燃料再処理では既往のリン酸トリブチルやモノアミドが利用可能だが分離係数が十分高くはなく，強烈な放射線環境による配位子の分解抑制も課題となる．そこで配位子を化学結合によってポリマーに取り込ませたゲル吸着剤を開発している (Fig.1) [1, 2]．ポリマー中の水環境変化，ゲルの化工物性も吸着分離挙動に影響すると考えられ，まずは系統的な吸着実験によって吸着挙動との相関を調べた．

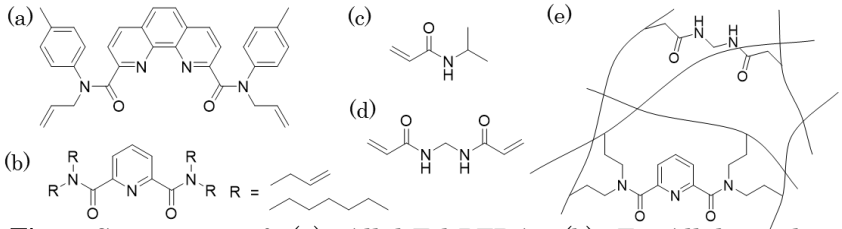

Fig.1 Structures of (a) Allyl-Tol-PTDA, (b) Tet-Allyl- and Tet-Hex-PDA, (c) NIPA, (d) BIS, and (e) ligand-immobilized gel.

2. 実験方法　合成後に乾燥，粉砕したゲル 3mg と UO_2^{2+}乃至は Th^{4+}を含む 1 mL の水相を 5mL 容器に加えて 5, 25, 40℃で規定時間振とうした．その後シリンジフィルタで溶液を分取して 0.5 mL を蒸発乾固後に内標準のイットリウムと硝酸を加えて ICP-AES で分析した．

3. 結果と議論　**Fig.2** に硝酸濃度と温度が PTDA-gel による UO_2^{2+}, Th^{4+}吸着に及ぼす影響を示した．UO_2^{2+}吸着には大きな酸濃度と温度依存性は見られなかったのに対し，Th^{4+}は酸濃度について吸着量に明確な極大値が見られると共に温度も複雑な傾向を示した．UO_2^{2+}と Th^{4+}はともに配位子以外の高分子骨格，おそらく NIPA のカルボキシル基との相互作用，ゲル中の金属イオンの水和や溶媒和挙動の差異による配位子場効果，複雑な酸濃度依存性，温度依存性を示しものと考えられる．講演では溶媒抽出結果との比較や吸着等温線も示し，考え得る吸着メカニズムと本吸着材の改良・設計方針についても論ずる．

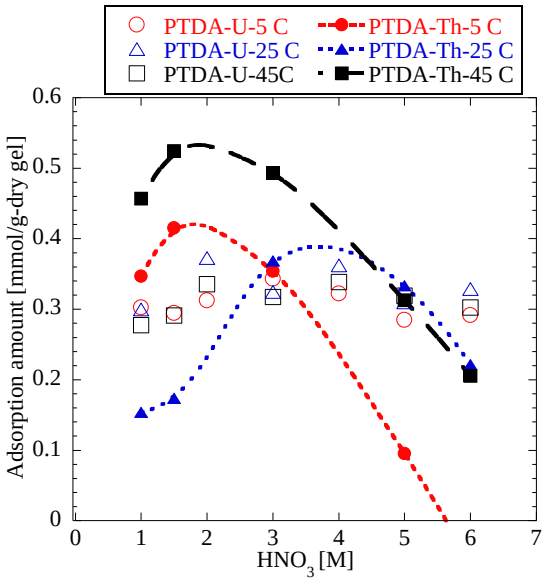

Fig.2 Effect of acidity and temperature on UO_2^{2+} and Th^{4+} adsorption by PTDA-gel

4. 謝辞　本研究は日本学術研究会科研費挑戦的研究(萌芽)(18K19043). 東北大学金研 α 放射体実験室利用共同研究, 17K0086, 18K0108 によって推進されている．

*Masahiko Nakase[1],Tomoo Yamamura[2],Kenji Shirasaki[2],Mitsuie Nagai[3],Tohru Kobayashi,Daiju Matsumura and Kenji Takeshita[3]
[1]Tokyo Institute of Technology, [2]Kyoto University, [3]Tohoku University, [4]Japan Atomic Energy Agency.