

相転移性ゲル化抽出法によるウランイオンの分離特性評価

Evaluation of Separation Ability of Uranyl Ions Using Temperature-Swing Gelification Extraction

*成瀬 惇喜¹, 井戸田 直和^{1,2}, 朴 基哲², 塚原 剛彦^{1,2},

¹東工大・物質理工,²東工大・ゼロカーボンエネルギー研究所

温度応答性高分子の相転移特性を利用して、硝酸水溶液からウランイオンを直接ゲル化回収する試験を実施し、ウランの分離回収効率やウラン-配位子-高分子間の微構造と分離挙動との関係を明らかにした。

キーワード：温度応答性高分子，ゲル化，ウラン分離，モノアミド抽出剤。

1. 緒言 原子力関連施設から発生する様々な放射性廃液からウランを安全かつ合理的に分離回収する手法の確立は不可欠となっている。溶媒抽出法やクロマトグラフィーに基づく汎用的手法は優れた技術であるものの^[1]、作業量や二次廃棄物の増加という点で課題がある。一方、これまで我々は、下限臨界溶解温度（LCST=Lower Critical Solution Temperature）を持つ温度応答性高分子の相転移を利用して、水系廃液から金属イオンを直接回収できる相転移性ゲル化抽出法を構築してきた^[2]。金属イオンを含む水溶液に高分子と疎水性配位子とを導入し LCST 以上に昇温するだけで、高分子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・回収できる仕組みである（図 1）。本研究では、モノアミド系疎水性配位子を用い、硝酸水溶液からのウランイオン(UO_2^{2+})のゲル化抽出試験を実施し、その分離性能を評価すると共に、分離特性と微構造との関係を解明することを目的とする。

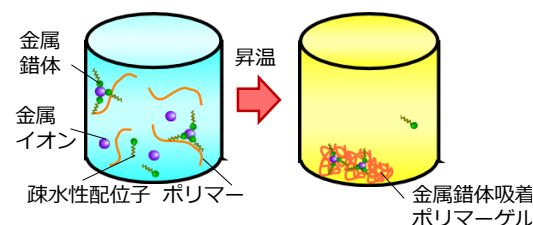


図 1 ゲル化抽出法の概念図

2. 実験 フリーラジカル重合法によって合成した Poly-(N-isopropylacrylamide) [PNIPAAm] 及び Poly-(N-isopropylmethacrylamide) [PNIPMAAm] を温度応答性高分子として、N,N-Di(ethylhexyl)octanamide [DEHOA] を疎水性配位子としてそれぞれ用いた。 UO_2^{2+} を含む硝酸水溶液（0～7 M）に PNIPAAm 又は PNIPMAAm と DEHOA を添加して LCST 以下で 1 時間攪拌した後、LCST 以上に昇温してさらに 1 時間攪拌することで、高分子を凝集・ゲル化させた。濾過によりゲルと水溶液とを分離回収し、水溶液中に残存する UO_2^{2+} 濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置にて測定することで、ウランの回収率を算出した。また、核磁気共鳴分光や紫外可視分光等を用い、ゲル化過程における UO_2^{2+} -配位子-高分子間の相互作用及び構造の変化を解析した。

3. 結果・考察 PNIPAAm 及び PNIPMAAm いずれのゲル化であっても、 UO_2^{2+} 回収率は硝酸濃度の増加に伴って増加し、5 M で最も高い値が得られたが、PNIPAAm で 55%、PNIPMAAm で 82% となり、PNIPMAAm の方が高い分離能を有することが分かった。これは高分子の疎水度の強さに起因していると考えられる。また、DEHOA 及び PNIPMAAm の濃度増加によっても UO_2^{2+} 回収率が増加する傾向が見られた。分光分析の結果を踏まえると、 UO_2^{2+} と DEHOA の 1:1 錯体と硝酸アニオンとがそれぞれゲルに吸着した $[\text{UO}_2^{2+}(\text{DEHOA})(\text{NO}_3)_n]^+$ $\equiv (\text{PNIPAAm})_{(\text{solid})} / [\text{NO}_3]^- \equiv (\text{PNIPAAm})_{(\text{solid})}$ として分離されることが示唆された。

参考文献

[1] K. Alcock, *et al*, J. Inorg. Nucl. Chem., **6**, 328 (1958)

[2] Ki Chul Park, *et al*, React. Chem. Eng., **3**, 48-54 (2018)

*Atsuki Naruse¹, Naokazu Idota^{1,2}, Ki-Chul Park², and Takehiko Tsukahara^{1,2}

¹ School of Mater. Chem. Tech., Tokyo Institute of Technology, ²Laboratory for Zero-Carbon energy, Tokyo Institute of Technology