

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	薄膜ゲル塗布クロマト分離剤を用いた核種分離用ゲル液抽出プロセスの開発
Title(English)	Development of Gel-liquid Extraction Process using Thin-film Gel coated Chromatographic Agent for Nuclide Separation
著者(和文)	河村卓哉
Author(English)	Takuya Kawamura
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10169号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹下 健二,池田 泰久,小澤 正基,加藤 之貴,塚原 剛彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10169号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	河村 卓哉	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	竹下 健二	教授	塚原 剛彦	准教授
	審査員	池田 泰久	教授		
		小澤 正基	教授		
加藤 之貴		教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「薄膜ゲル塗布クロマト分離剤を用いた核種分離用ゲル液抽出プロセスの開発」と題し、6章より構成されている。

第1章「緒言」では、高レベル廃液からの長半減期核種、発熱性核種や有価希少金属などを分離回収する核種分離工程の導入が先進再処理工程において検討されており、その分離技術には従来法（溶媒抽出法や抽出クロマト法）と共に、多座配位子を共重合した親水性ゲルに目的金属イオンを吸脱着させる「ゲル液抽出法」が適用できると述べている。さらに、含窒素6座配位子TPENの分子末端にビニル基を有する配位子モノマーとアクリルアミドを共重合した親水性ゲルによるソフト/ハード金属分離(MA/Ln分離プロセスの基盤技術)を対象に、従来研究の10倍量の配位子モノマーを含むゲルで金属イオンの高吸着容量と高速吸脱着を同時達成し、実用的なゲル液抽出プロセスを構築するという本研究の目的を述べている。

第2章「多座包接型配位子および共重合ゲルの合成と物性評価」では、分子末端のビニル基の位置、数の異なる6種類のTPEN配位子モノマーを合成し、さらに各種のアクリルアミドを骨格高分子とした共重合ゲルを合成している。その結果、高強度でかつ水に溶解しない3次元骨格構造を有するゲルを合成するには4つの末端ビニル基を有するN,N,N',N'-tetrakis(4-propenyloxy-2-2-pridylmethyl)ethylenediamine (TPPEN)とアクリルアミドにN-isopropylacrylamide (NIPA)を用いることで5~70mol%のTPEN配位子含有率においても安定に共重合ゲルが合成できることを明らかにしている。

第3章「TPEN型共重合ゲルのソフト金属イオン吸着特性評価」では、TPPEN-NIPA共重合ゲルによるソフト金属イオン(Cd^{II})の吸着性能とゲルの感温性の関係を検討している。TPPEN-NIPA共重合ゲルはCd^{II}に対する強い吸着能を示したが、飽和吸着量はTPPEN含有率15mol%で最大(0.25mmol/g)となり、目標である30mol%TPPEN含有率(従来研究の10倍量相当)のゲルでは吸着容量は1/4に低下したと述べている。さらにTPPEN-NIPA共重合ゲルの感温性を調べたところ、ゲルは30℃付近に体積相転移点を持ち、それより低温では膨潤(親水化)するが、TPPEN含有率の増加に伴いゲルは膨潤度を低下(硬直化)するために、吸着量が低下することを明らかにしている。ゲル断面の電子線マイクロアナライザ(EPMA)分析の結果、低TPPEN含有率では比較的ゲル体の内部までCd^{II}が吸着するが、高TPPEN含有率ではCd^{II}は表面吸着に留まり、高TPPEN含有率のゲルで高い吸着容量を達成するにはゲルの薄膜化が不可欠であると結論している。

第4章「ゲル薄膜塗布分離剤の合成および物性評価」では、多孔質シリカ粒子を用いて毛管力を使ったモノマーの含浸とラジカル重合による細孔表面へのゲルの薄膜塗布について検討している。粒径50µm、平均細孔径100nm、細孔容量0.77ml/g、細孔表面積27m²/gの多孔質シリカに対してTPPEN-NIPAゲルの塗布を行った結果、30mol%の高いTPPEN含有率であっても、細孔は57%(0.44ml/g)残存しており、細孔表面積は22m²/g、ゲルの平均厚みは僅か12nmと評価され、多孔質シリカへのゲルの薄膜塗布に成功したと結論している。

第5章「ゲル薄膜塗布クロマト分離剤によるソフトイオン金属吸着」では、TPPEN-NIPA共重合ゲルを多孔質シリカの細孔表面に薄膜塗布したクロマト分離剤によるCd^{II}吸着挙動およびカラムクロマトグラフィによるCd^{II}(ソフト金属)/Eu^{III}(ハード金属)の動的な吸着・溶離挙動について検討している。ゲルを薄膜塗布したクロマト分離剤では、Cd^{II}吸着容量はTPPEN含有率に伴って増加し、TPPEN含有率30mol%のクロマト分離剤では飽和吸着量は0.838mmol/gと高く、ゲル単独試験の最大吸着容量と比較して3.3倍に増加したと述べている。Cd/Eu分離係数も最大60以上が得られ、クロマト分離剤がソフト金属イオンに対して高い選択性を示すことを明らかにしている。またゲルの薄膜塗布によってクロマト剤内部のTPPENまでCd^{II}が均質に吸着されていることをEPMA分析により明らかにしている。カラムクロマトグラフィ試験では30mol%の高TPPEN含有率のクロマト分離剤であっても鋭いCd破過曲線が得られ、Eu^{III}はpH4の弱酸で、Cd^{II}はpH1の強酸で迅速に分離回収(溶離率は95%以上)できることを見出している。クロマトカラムによる3回のCd^{II}吸脱着繰り返し試験(吸着pH5、溶離pH1)では、飽和吸着容量に対して94.3%→83%→83%と一定の吸着率が維持され、溶離率は99.3%→95.3%→95.3%と高く、ゲル薄膜塗布クロマト分離剤が優れたカラム特性を示すと結論している。

第6章「本研究の総括」では、各章で得られた結果を総括し、結論を述べている。

これを要するに、本論文はMA/Ln分離プロセスの構築に必要な高吸着容量、高速吸脱着及びソフト/ハード金属イオン分離が可能なゲル液抽出プロセス用クロマト分離剤の合成に成功しており、工学上及び工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として十分価値あるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。