

氏名	ふせいせい 付生生
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第324号
学位授与の日付	平成15年7月25日
学位授与の要件	学位規程第3条第3項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 材料科学専攻
学位論文題目	Separation of Metal Ions by Supported Liquid Membranes (主査)
審査委員	教授 寺本 正明 教授 木原 壮林 教授 浦川 宏 助教授 松山 秀人

論文内容の要旨

キャリヤー輸送機能を有する液膜は、高選択性、高濃縮性を有することから、多方面への応用が期待されている。種々の形態の液膜のうち、多孔膜（支持膜）の細孔内にキャリヤー溶液を含浸して調製する含浸液膜は、分離プロセスがシンプルであるという特徴を有するが、膜の安定性などに問題があるため、その実用化例は極めて少ない。本論文では、含浸液膜の分離対象として低レベル放射性廃液の模擬廃液、すなわち多量の硝酸と硝酸ナトリウムを含むCe(III)水溶液を選び、Ce(III)のキャリヤーとして octyl(phenyl)-N,N-diisobutylcarbamoylphosphine oxide (CMPO)を用い、Ce(III)の分離濃縮機構、透過速度解析、液膜の安定化、多孔膜の作製とその含浸液膜支持体としての適用について研究している。なお、Ce(III)を用いた理由は、その抽出挙動がAm(III)と類似しているからである。本論文は7章よりなり、その内容は以下の通りである。

第1章： 本論文と関連する既往の研究をレビューし、本研究の目的を掲げている。

第2章： CMPOとtributyl phosphate(TBP)のドデカン溶液をキャリヤー溶液とする含浸液膜によるCe(III)の透過実験を攪拌透過セルを用いて行ない、原料液中の硝酸ナトリウム濃度が高く硝酸濃度が低いほど、また温度が高いほど透過速度が大きいことを見出し、この挙動を、キャリヤー溶液へのCe(III)の分配、膜内でのCe(III)錯体の拡散性と関連させて論じている。また、Ce(III)の回収率を上げるには、透過側水相へのCe(III)の錯化剤（クエン酸ナトリウム）の添加が有効であることを示している。

第3章： CMPOの溶媒として2-nitrophenyl octyl ether (NPOE)を用いたCMPO/NPOE系の含浸液膜は、キャリヤー溶液にTBPを添加しなくても、また透過側水相に錯化剤を添加しなくても、原料液中のCe(III)がほぼ完全に汲み上げ輸送されることを見出し、よって、本液膜系は回収液の減量化の点で有利であることを示している。また、本液膜系のCe(III)の透過速度を透過モデルに基づいてシミュレートしている。

第4章： CMPO/TBO/ドデカン系の平膜型含浸液膜モジュールによるCe(III)の透過実験において、透過側水溶液にキャリヤー溶液の液滴を混入させることにより、含浸液膜が安定化することを示している。

第5章： 含浸液膜の性能は、その支持膜（多孔膜）の特性と密接に関連する。そこで、既製の市販多孔膜ではなく、熱誘起相分離法を用いてポリプロピレン多孔膜（平膜）を種々の冷却条件

で自作した。空气中で徐冷して作製した膜を支持膜とする含浸液膜は市販の膜と比較して著しく高い透過性を示し、製膜時の冷却速度を変化させることにより膜透過性を広範囲に制御できることを見出している。

第6章： 中空糸膜は平膜よりも膜比表面積の点で有利である。そこでポリエチレン中空糸多孔膜を熱誘起相分離法により自作し、これを用いて中空糸膜モジュールを作製した。Ce(III)の透過速度は市販の中空糸膜の約3倍となり、高透過性を示した。

第7章： 本研究で得られた成果、結論をまとめている。

論文審査の結果の要旨

申請者は、含浸液膜の分離対象として低レベル放射性廃液の模擬廃液を選び、先ず最初に、模擬廃液中のCe(III)の透過性に対するキャリヤー溶液、原料液および透過側液の組成などの影響を検討し、高透過性、高濃縮性を達成するための液膜分離系の最適化を行なった。特にCMPO/NPOE系の液膜では、透過側液として純水を用いてもCe(III)の汲み上げ輸送が効率よく起こりCe(III)の回収率が極めて高いこと、Ce(III)の透過速度が申請者の透過モデルでよくシミュレートできることを示した。さらに、透過液にキャリヤー溶液を少量混入することにより含浸液膜が安定化することも見出している。

次に、含浸液膜の調製に用いられる多孔性支持膜の構造は、含浸液膜の性能を支配する重要な因子であるにもかかわらず、これまでの含浸液膜に関するほとんどすべての研究では既製の多孔膜が支持膜として使用してきた。申請者は、熱誘起相分離法を用いて平膜状および中空糸状の多孔膜を独自に作製し、冷却速度を調節して多孔膜の細孔構造を制御することにより含浸液液の透過性を広範囲に制御できることを示すとともに、市販の支持膜と比較して著しく高い透過速度を得ることにも成功している。本論文で得られた知見は、含浸液膜を種々の分離に適用していく上で有用であり、高く評価される。

本論文の内容は、審査システムの確立している学術雑誌に以下に示す5編の論文として投稿しており、そのうち2編は刊行済み、2編は掲載決定、1編は審査中である。掲載決定の論文2編は、申請者が筆頭著者となっている。

1. M. Teramoto, S. S. Fu, K. Takatani, N. Ohnishi, T. Maki, T. Fukui, K. Arai, "Treatment of Simulated Low Level Radioactive Wastewater by Supported Liquid Membranes: Uphill transport of Ce(III) using CMPO as carrier", Separation and Purification Technology, 18 (2000)57-69.
2. M. Teramoto, Y. Sakaida, S. S. Fu, N. Ohnishi, H. Matsuyama, T. Maki, T. Fukui, K. Arai, "An Attempt for the Stabilization of Supported Liquid Membrane", Separation and Purification Technology, 21 (2000)137-144.
3. S. S. Fu, H. Matsuyama, M. Teramoto, D. Lloyd "Preparation of Polypropylene Membranes via Thermally-Induced Phase Separation as Support of Liquid Membrane used for Metal Recovery", Journal of Chemical Engineering of Japan, accepted for publication.

4. S. S. Fu, M. Teramoto, H. Matsuyama, "Uphill Transport of Ce(III) by Supported Liquid Membrane Containing Octyl(phenyl)-N,N-diisobutyl- carbamoylmethylphosphine Oxide in 2-Nitrophenyl Octyl Ether", submitted to Separation Science and Technology. (審査中)
5. S. S. Fu, H. Mastuyama, M. Teramoto, "Ce(III) Recovery by Supported Liquid Membrane using Polyethylene Hollow Fiber Prepared via Thermally Induced Phase Separation", Separation and Purification Technology, in press.