

滞留水中微粒子捕集のための曇点抽出とその相構造の解明

Cloud point extraction for particulate collection in accumulated water
and elucidation of the phase structure

高貝 慶隆¹⁾ 中川 太一²⁾ 上田 祐生²⁾ 元川 竜平²⁾

Yoshitaka TAKAGAI Taichi NAKAGAWA Yuki UEDA Ryuhei MOTOKAWA

¹⁾福島大学 ²⁾原子力機構

(概要)

福島第一原子力発電所原子炉内の滞留水には、様々な材料（燃料デブリ、構造材等）を起源とする微粒子が存在し、汚染水中に含まれていることが考えられる。特に、ナノサイズの微粒子は、浄化装置等のフィルターの細孔よりも小さく、分離できていない。これらの汚染水中の微粒子を定性的に調べることで、炉内・デブリ状況の把握や構造材等の劣化度合いを理解できる可能性がある。しかし、液体中の微粒子は分散しているため、通常は乾燥させるが、乾燥によって微粒子は容易に凝集体を形成し、粒径・粒状・表面状態等が変化し全く異なる性質を示し、微粒子を正確に調べることは困難である。また、滞留水の微粒子濃度は不明であるため、微粒子の濃縮・抽出が必要である。そのため、本研究グループでは、界面活性剤がもつ曇点（相分離を起こす温度）を利用した曇点抽出を用いて微粒子の抽出を行っている。しかし、抽出前後の微粒子状態は透過型電子顕微鏡を用いて観察可能だが、抽出剤である界面活性剤は観察することが出来ない。界面活性剤の微粒子への吸着状態、水溶液中でのミセル形状等の情報は界面活性剤による微粒子抽出メカニズムの考察に重要である。そこで、透過性が高い中性子小角散乱を用いてソフトマターである界面活性剤を可視化・観察することで抽出メカニズムを把握し滞留水中の微粒子を定性的な調査が可能になると考える。

キーワード：界面活性剤、ミセル、微粒子

1. 目的

本研究では、JRR-3 の SANS-J を用いて実験を行った。サンプルは、界面活性剤水溶液及び曇点抽出後の抽出相を対象とした。水素/重水素コントラストをつけることで、抽出相溶液中での標的分子（界面活性剤）の可視化が可能となると考えた。また、小角散乱の Guinier 領域から、ミセル・エマルジョンのサイズと、Porod 領域から微粒子/界面活性剤間の界面構造に関する情報がそれぞれ得られる。これらの情報から界面活性剤による微粒子の抽出メカニズムを解明する。

2. 方法

界面活性剤は、両性イオン界面活性剤 3-(nonyldimethylammonio)propyl sulfate (C_9 -APSO₄)を使用した。また、標準微粒子として金ナノ粒子を用いた。サンプルは、 C_9 -APSO₄ 溶液はコントラスト法を用いるために D₂O を用いて 0.1-5.0 w/w% に調製した。その際、金ナノ粒子（粒子径 20 nm）を 30 vol% で添加した物と無添加の物を調製した。測定は、SANS-J 集光型偏極中性子小角散乱装置を使用し、試料厚み 2 mm の石英セルを用いて行われた。

3. 結果及び考察

両性イオン界面活性剤 C_9 -APSO₄ のミセル形成条件を確認するために、臨界ミセル濃度 (CMC) を測定した。SANS 測定による CMC の決定は、 $[C_9\text{-APSO}_4]_T = 0.1\text{-}5.0$ w/w% の濃度範囲で測定し、Guinier プロットから求めた絶対散乱強度 $I(q=0)$ を $[C_9\text{-APSO}_4]_T$ に対してプロットし、その変曲点から求めた。25°C 条件下では、セル内でサンプル溶液が二相分離したため、曇点以下条件は、40°C（明確な二相分離は確認できなかった）とした。結果は、表面張力測定と同様に曇点（65°C）前後で CMC は変化し、40°C で 1.36 w/w% (43.9 mM)、70°C で 2.04 w/w% (65.7 mM) であった。

SANS の測定結果より、ミセル形状・サイズと会合数を算出した。CMC を超えるとミセルを形成し、その形状は球形であり、サイズは 1.2 nm (40°C)、1.3 nm (70°C)、会合数は 16 (40°C)、20 (70°C) であった。イオン性界面活性剤のミセルサイズは 5.0 nm 程度であり、非イオン性界面活性剤は 1-2 nm と報告されている。これらと比較すると非イオン性界面活性剤と似た挙動をとると思われる。非イオン性界面活性剤は楕円形のミセルを形成し、高濃度になるにつれロッド形状になることが知られているが、両性イオン界面活性剤に関しても更に高濃度条件ではミセル形状が変化する可能性があることが示唆された。

金ナノ粒子を混合したサンプルに関しては、無添加のものと比較してもミセル形状・サイズと会合数ともに大きな変化はなかった。これは、金ナノ粒子の粒子数濃度に対してミセルの粒子数濃度が大きく勝っていたため、散乱プロファイルに金ナノ粒子による大きな影響が出なかったと思われる。しかし、金ナノ粒子の粒子径に対して、ミセルサイズは小さいためミセル内に金ナノ粒子が封入されるのではなく、金ナノ粒子表面に界面活性剤が吸着し捕集していると考えられる。

今後は、更に高濃度に調製した両性イオン界面活性剤のミセル情報の収集を行う。また、金ナノ粒子添加サンプルに関しても金ナノ粒子と両性イオン界面活性剤濃度を調整し、金ナノ粒子と両性イオン界面活性剤の微粒子/界面活性剤間の界面構造に関する情報を得る。

4. 引用(参照)文献等

特になし。