

放射性核種の分離・抽出における熱感応性界面活性剤の分子構造特性の解明

高貝慶隆¹⁾, 楠裕翔¹⁾, 上田祐生²⁾, Micheau Cyril²⁾, 元川竜平²⁾

Yoshitaka TAKAGAI, Yuto KUSUNOKI, Yuki UEDA, Micheau CYRIL, 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には燃料デブリが存在し、これを冷やすために常に注水が行われているため、高濃度の放射性物質を含んだ汚染水が発生する。この汚染水は、ストロンチウム、セシウムを除去した後、多核種除去設備(ALPS)によってトリチウム以外の大部分の放射性核種が取り除かれる。ALPSでは、共沈法と吸着剤を使用した処理を行っているが、吸着剤は使用後に放射性廃棄物として取り扱われる。そこで、放射性廃棄物量低減のために共沈法後の溶液から放射性核種を分離・抽出する手法を考案する。

分離・抽出法は、マイナーアクチノイド分離などにも使用されている溶媒抽出法に着想を得て、高倍率に抽出が可能な曇点抽出法を検討している。界面活性剤は両親媒性分子であり、水溶液中に浮遊している非極性物質に対しては界面自由エネルギーを小さくする働きがあるため、非極性物質をミセル内に捕集する。そのため、汚染水中に浮遊している微粒子に対して曇点抽出が可能であると考えられる。しかし、イオンに対する抽出は、キレート剤等を使用した例しかない。今回、両性イオン界面活性剤を自家合成し、界面活性剤の極性を変化させることで、キレート剤等を用いない金属イオンの抽出を考案した。これまでの検討の結果、疎水基鎖長を変えずに親水基部の構造を変化させることで、界面活性剤の曇点温度を変えることが可能であるとわかった。このことから、界面活性剤の親水基部の極性が変化していることが示唆された。しかし、水溶液中での界面活性剤のようなソフトマテリアルの挙動を観察することは困難である。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・観察することで水溶液中での界面活性剤の挙動を把握し水中の金属イオンの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，曇点抽出法，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。試料は、均一溶液状態の界面活性剤を対象とした。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領域から水/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の挙動を把握することを目的とした。

2. 方法

両性イオン界面活性剤は12種類の3-(alkylammonio) propyl sulfate(C_n -APSO₄)を自家合成して使用した。これらは分子構造を変化させたものであり、具体的には、ジメチル- C_8 -APSO₄、ジエチル- C_8 -APSO₄、ジプロピル- C_8 -APSO₄、ジメチル- C_9 -APSO₄、ジエチル- C_9 -APSO₄、ジプロピル- C_9 -APSO₄、ジメチル- C_{10} -APSO₄、ジエチル- C_{10} -APSO₄、ジプロピル- C_{10} -APSO₄、ジメチル- C_{12} -APSO₄、ジエチル- C_{12} -APSO₄、ジプロピル- C_{12} -APSO₄を合成・精製したものを使用した。また、 C_n -APSO₄は重水(D₂O)に溶かすことで調製した。装置は、集光型偏極中性子小角散乱装置を使用した。また、試料は石英製試料セル(厚み2 mm)に封入した。

3. 結果及び考察

12種類の C_n -APSO₄は、それぞれ異なる濃度または濃度範囲を調製して測定した。具体的には、以下の通りである。[ジメチル- C_8 -APSO₄]_T = 5-40wt%，[ジエチル- C_8 -APSO₄]_T = 1-30wt%，[ジプロピル- C_8 -APSO₄]_T = 1-30wt%，[ジメチル- C_9 -APSO₄]_T = 3wt%，[ジエチル- C_9 -APSO₄]_T = 3wt%，[ジプロピル- C_9 -APSO₄]_T = 3wt%，[ジメチル- C_{10} -APSO₄]_T = 0.1-10wt%，[ジエチル- C_{10} -APSO₄]_T = 0.3-20wt%，[ジプロピル- C_{10} -APSO₄]_T = 0.1-10wt%，[ジメチル- C_{12} -APSO₄]_T = 0.01-3wt%，[ジエチル- C_{12} -APSO₄]_T = 0.01-3wt%，[ジプロピル- C_{12} -APSO₄]_T = 0.01-3wt%。これらは、均一溶液状態で測定するため、70°Cに加熱した後、恒温測定した。測定の結果、 C_{12} -APSO₄系は、解析するのに十分な散乱強度が得ら

れなかった。これは恒温条件 70°C で均一溶液にならずに、石英セル内で二相分離したためと考えられる。その一方で、 $\text{C}_8\text{-APSO}_4$ 系、 $\text{C}_9\text{-APSO}_4$ 系および $\text{C}_{10}\text{-APSO}_4$ 系は、散乱ベクトルの大きさ q に対し、散乱強度 $I(q)$ をプロットしたグラフを得ることができた。 q および $I(q)$ を演算することで q^2 に対し、 $\ln\{I(q)\}$ をプロットしたグラフ(ギニエプロット)を作成することができた。ギニエプロットにカーブフィッティングをかけることでミセルサイズを算出した。また、ジメチル- $\text{C}_9\text{-APSO}_4$ のミセル形状が球状であったことがこれまでの実験(課題番号：2022A-A24)で明らかになっているため、今回の実験でもミセル形状が球状であると推定して、Guinier 則からミセル半径を算出した。その結果、 $[\text{ジメチル-}\text{C}_9\text{-APSO}_4]_{\text{T}}=4.5\text{wt}\%$ のミセル半径は 2.0 nm であった。また、臨界ミセル濃度(cmc)以上の濃度において $I(q=0)$ は、界面活性剤濃度の上昇と共に 0.04 cm^{-1} から 0.36 cm^{-1} へと増加していき、ある濃度を境界に $I(q=0)$ が逆に 0.20 cm^{-1} へと減少する傾向がみられた。他の $\text{C}_n\text{-APSO}_4$ 系については、現在解析を進めており、分子構造とミセル性状の関係について検討したいと考えている。

4. 引用(参照)文献等