

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Development of Novel Micro Total Analysis System for Radioactive Waste Management and Decommissioning
著者(和文)	BRANDTAileen
Author(English)	Aileen BRANDT
出典(和文)	学位:博士(学術), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12047号, 授与年月日:2021年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:塚原 剛彦,竹下 健二,加藤 之貴,鷹尾 康一郎,吉田 克己
Citation(English)	Degree:Doctor (Academic), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12047号, Conferred date:2021/6/30, 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

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	BRANDT Aileen	
		氏名	職名	氏名	職名
論文審査 審査員	主査	塚原 剛彦	准教授	吉田 克己	准教授
	審査員	竹下 健二	教授		
		加藤 之貴	教授		
		鷹尾 康一郎	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Development of Novel Micro Total Analysis System for Radioactive Waste Management and Decommissioning」と題し、6章より構成されている。

第1章「Introduction」では、福島第一原子力発電所の廃止措置等を推進する上で様々な放射性核種を μM 以下の濃度で精緻に分析することが必要不可欠となっていることを述べると共に、これら放射性核種を分離分析するための既存手法の現状と課題について概説している。さらに、既存手法に代わる新しい分離分析法を開発する意義を示した上で、マイクロ流体化学と顕微分光分析法とを組み合わせた極微量・高効率な新しいマイクロ化学分離分析システムを開発すると共に、マイクロ空間特有の流体及び物質輸送挙動を解明することを本研究の目的とすると述べている。

第2章「Se(IV) Microchip Extraction with Fluorescence Detection」では、長寿命半減期核種の一つである ^{79}Se を同位体として有し水溶液中で生体毒性の高いオキソアニオン種(Se(IV)O_3^{2-})として存在するSe(IV)に着目し、Se(IV)のマイクロ溶媒抽出と蛍光顕微鏡による抽出過程のリアルタイム計測を実現している。水溶液中のSe(IV)に2,3-Diaminonaphthalene(DAN)を混和させた後、シクロヘキサン相と平行二相流を形成させることにより蛍光性セレン錯体4,5-Benzopiazselenol (BPS)としてマイクロ溶媒抽出することができ、このシクロヘキサン相の蛍光強度変化を蛍光顕微鏡にて観測することで、マイクロ空間におけるSe(IV)濃度をその場かつ定量的に評価することに成功している。その結果、マイクロ油水接触時間約20秒で抽出平衡に達し、バルク抽出の900秒に比して45倍速く、マイクロ抽出の速度定数 $k=0.33\text{ sec}^{-1}$ はバルク抽出の $k=0.02\text{ sec}^{-1}$ より16.5倍大きいことを明らかにしている。

第3章「Microchip Lanthanide Group Extraction」では、3種の抽出剤CMPO [octyl(phenyl)-N,N-diisobutyl carbamoyl methyl phosphine oxide]、TODGA [N,N,N',N'-tetra(n-octyl)diglycolamide]及びADAAM [2-ethylhexyl diamide amine]を用いた全ランタノイド元素の平行二相流マイクロ溶媒抽出を実施し、抽出前後の試料のICP-MS分析を行うことで、抽出挙動を評価している。その結果、TODGAを用いることで3M硝酸水溶液から約7秒で全ランタノイド元素を一括抽出でき、硝酸濃度を0.1MにすることによりDy以上の重ランタノイド元素のみの選択的抽出が可能になることを見出している。また、ADAAMにより軽ランタノイド元素(La~Sm)を高効率に抽出できる反面、CMPOではバルク抽出とほぼ類似した抽出挙動を示すことを明らかにしている。さらに、硝酸濃度やTODGA濃度に応じて油水とは異なる分子凝集に起因する第三相がマイクロ液液界面で顕在化されることから、この第三相形成がマイクロ空間における抽出挙動に大きな役割を果たしているものと提案している。

第4章「Microtube Europium Extraction and Thermal Lens Spectroscopic (TLS) System」では、マイクロ平行二相流よりも制御条件が容易なマイクロプラグ流抽出と、ファイバー型熱レンズ顕微分光(TLS)計測から成るオンチップリアルタイム計測システムを構築している。水相にEu(III)を含む硝酸水溶液、抽出剤にTODGA、有機相にドデカン及びイオン液体1-butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide ($[\text{C}_4\text{min}][\text{NTf}_2]$)をそれぞれ選択し、これらをT字型マイクロ流路内に導入して油水マイクロプラグ流抽出を実施した後、疎水性膜を組み込んだセパレーターにて油水を連続的に分離回収することに成功している。分離後の水相を比色剤ArsenazoIII含有水溶液と混和させ、ファイバー型TLS(励起658 nm、プローブ光785 nm)を組み込んだマイクロ流路内に移送することで、試料量ピコリットル(10^{-12} L)かつ濃度下限 10^{-7} M でEu(III)をリアルタイム計測できることを実証している。

第5章「Microtube Lanthanide Group Extraction」では、前章で構築したシステムを用いて、ランタノイド元素を含む硝酸水溶液、TODGA抽出剤、ドデカンによるマイクロプラグ流抽出を行い、最適条件では接触時間25秒で全ランタノイド元素を100%一括抽出できることを示している。また、様々な硝酸濃度、油水接触時間、流速条件下にて求めた分配比を平行二相流の結果と比較することにより、マイクロ液液界面における物質輸送効率はプラグ流が平行二相流より約2.3倍高いが、比界面積は約4.5倍小さくなるため、プラグ流抽出に係る時間が約2倍長くなることを明らかにしている。また、プラグ流抽出の数値流体力学解析結果と比較し、水相プラグ流の油水界面から抽出は進行し、プラグ内の渦流が抽出速度に影響しているものと考察している。以上より、比界面積増大と渦流促進効果を併せ持つ微小プラグ流が、マイクロ抽出法として最も効率的で利便性があると結論付けている。

第6章「Conclusions and Future Work」では、各章において得られた結果を総括し本論文の結論としている。これを要するに、本論文はマイクロ流体化学と顕微分光分析法から成る新規マイクロ化学分離分析システムを構築すると共に、それを用いてマイクロ空間における流体挙動や物質輸送挙動を解明することに成功しており、液液界面における放射性核種の構造物性や抽出機構の理解に繋がることから、学術上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士(学術)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。