HOKKAIDO UNIVERSITY

| | |
|---|---|
| Title | Application of gold nanoparticles as representative colloids to understand environmental fate and behavior in barrier materials relevant to radioactive waste disposal [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review] |
| Author(s) | Carlos, Eduardo Ordonez Castillo |
| Degree Grantor | 北海道大学 |
| Degree Name | 博士(工学) |
| Dissertation Number | 甲第14230号 |
| Issue Date | 2020-09-25 |
| Doc URL | https://hdl.handle.net/2115/79947 |
| Rights(URL) | https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/ |
| Type | doctoral thesis |
| File Information | Carlos_Eduardo_Ordonez_Castillo_review.pdf, 審査の要旨 |

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称　博士 (工学)　氏名　Carlos Eduardo Ordonez Castillo

審査担当者　主　査　准教授　渡邊 直子
副　査　教　授　小崎 完
副　査　教　授　柴山 環樹
副　査　教　授　加美山 隆

学位論文題名

Application of gold nanoparticles as representative colloids to understand environmental fate and behavior in barrier materials relevant to radioactive waste disposal
(金ナノ粒子を適用した放射性廃棄物処分バリア材中のコロイドの環境動態・挙動の研究)

原子力発電所の運転に伴い生じる高レベル放射性廃棄物の地層処分において、人工および天然バリアを組み合わせることで、長期間にわたり放射性核種の生物圏への移行を遅延することが考えられている。このため、地層処分の安全評価においては、人工および天然バリア材中の放射性核種の長期の移行挙動を予測することが重要となっている。移行挙動の予測には、従来考えられてきた収着などの固相との相互作用を伴う地下水による移行に加えて、放射性核種がコロイドとして、あるいはコロイドを担体として移行する現象も考慮に入れる必要がある。しかし、地層処分環境下のコロイドの移行挙動については、天然に存在するコロイドが多様かつ複雑であり、また様々な固相が存在すること等の理由から十分に理解されていない。そこで、本論文では、特定のサイズや表面特性を有し、かつ検出が容易な金ナノ粒子を模擬コロイド試料として用いた試験を行うことで、1) 天然バリア材中のコロイドの移行挙動に及ぼすコロイドサイズの影響、2) バリア材とコロイド粒子、およびコロイド粒子同士の相互作用、3) 人工バリア材であるベントナイト粒子とコロイド粒子の相互作用の 3 点に特に焦点を当てた検討を行い、天然および人工バリア材中でのコロイドの移行挙動の理解の深化を目指した。

本論文は 5 章から構成される。第 1 章では、放射性廃棄物の種類とその処分方法を概説し、処分における人工および天然バリア材の役割、コロイドの移行およびコロイド担体輸送に関する研究の重要性を紹介するとともに、本研究で用いた金ナノ粒子の特性に関する知見を整理して紹介した。また、最後に、本研究の目的と概要を述べた。

第 2 章では、金ナノ粒子の特性を把握した上で、天然バリアを構成する鉱物としては最も単純な珪砂を用い、金ナノ粒子と珪砂との共存系での安定性、挙動を評価した。さらに、カラム実験を行い、金ナノ粒子の移行に影響を与える因子について検討を加えた。この結果、粒径の大きな金ナノ粒子ほど、珪砂への収着および金ナノ粒子の凝縮が認められ、ファンデルワールス力と電気二重層の相互作用を考慮する DLVO 理論の予測とは反対の結果となった。このことから、天然バリア材中のコロイドの移行挙動では、DLVO 理論では考慮されていないコロイドの持つ多様な特性が支配的因子となり得ることを明らかにした。

第 3 章では、珪砂と金ナノ粒子、および金ナノ粒子同士の相互作用を微視的に解析し、2 章で得られた移行挙動のメカニズムを検討した。この結果、金ナノ粒子は珪砂表面の限られた表面のみに

収着すること、また、粒径の大きな金ナノ粒子は珪砂表面の窪みやひび割れなどの表面の粗い部分に凝集して収着する傾向が見られることを明らかにした。これらのことから、金ナノ粒子は、珪砂表面の不均一な電荷分布、または表面粗さに由来すると考えられるサイトに選択的に収着すること、また粒径の大きな粒子は水中で凝集体を形成し珪砂上のサイトに収着・脱離するか、またはサイト上で凝集し、凝集体として脱離する可能性があると結論付けた。

第 4 章では、人工バリア材であるベントナイトの主成分であるナトリウム型モンモリロナイトと金ナノ粒子の相互作用について検討した。強い永久負電荷を持つモンモリロナイトは珪酸塩鉱物がシート状に積み重なった構造を持ち、基底面とエッジ表面では DLVO 理論による相互作用のポテンシャルエネルギーが大きく異なる。このため、エッジ表面への収着が優先的に起こると考えられたが、収着実験の結果、エッジ表面への選択的な収着は認められず、金ナノ粒子は基底面、エッジ表面の両方にランダムに存在することを明らかにした。また、珪砂への収着との比較より、金ナノ粒子の収着には、電荷の分布する面積の大きさや形状が寄与する可能性、または、DLVO 理論で考慮される相互作用以外の因子の寄与が支配的である可能性を示した。

第 5 章は結論であり、得られた結果を総合し、本論文のまとめとした。

これを要するに、著者は、高レベル廃棄物の地層処分の安全評価において課題とされている、コロイド輸送現象に対して、新たに金ナノ粒子を模擬コロイド試料として用いた実験手法を確立するとともに、コロイドとバリア材との相互作用、ならびに、人工および天然バリア材中でのコロイドの移行への影響に関する新知見を得た。これらの功績は、高レベル放射性廃棄物の地層処分に係る安全評価の信頼性向上に貢献すると期待され、原子力工学の発展に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格があるものと認める。