

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2007～2009

課題番号：19206101

研究課題名（和文） 地層中におけるコロイド移行モデリング：ナノサイズ移行経路への展開

研究課題名（英文） Colloid Migration Modeling in Geosphere: Development to Nano-size Transport Paths

研究代表者

長崎 晋也（NAGASAKI SHINYA）

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：20240723

研究成果の概要（和文）：地層中における核種移行挙動に及ぼすコロイド輸送挙動の影響について、レーザ分光実験、カラム実験などの実験と、量子化学シミュレーションなどの理論とを結び付けて、とくにナノサイズでの移行経路内における核種移行モデルの構築を行った。

研究成果の概要（英文）：In this study, the impact of colloids on radionuclide migration in geosphere was investigated, by using not only laser spectroscopy and column experiments but also quantum chemical simulation technique. Especially, the migration model of radionuclides in the presence of nano-size colloids through nano-size transport paths was developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	23,400,000	7,020,000	30,420,000
2008年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2009年度	6,600,000	1,980,000	8,580,000
年度			
年度			
総計	37,300,000	11,190,000	48,490,000

研究分野：原子力学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：核種移行, コロイド, ナノサイズ

1. 研究開始当初の背景

高レベル放射性廃棄物の処分に関しては、原子力発電環境整備機構による文献調査地区公募が行われ、「原子力立国計画」において“この1, 2年が正念場”と記載されるなど、正式な候補地応募への期待が高まっていた。その中で、原子力への国民の信頼を確保し、あわせて高い安全性と経済性を有しながら健全な原子力エネルギー利用を推進するためには、「トイレなきマンション」と一部で言われ、国民の大多数がその安全性に多大の懸念を表明する高レベル放射性廃棄物処分の安全性と信頼性の向上、とりわけ安全評価結果の信頼性に対し大きな不確かさを与

えるコロイド（地下水中に安定に分散する粒径が1nm～1・mの粒子）の移行特性を明らかにすることが必須となっていた。

2. 研究の目的

平成19年までに研究代表者らは、表面構造や表面電荷誘起とその分布ならびに移行挙動が核種移行に重要な影響を与えることを明らかにしていた。そこで、表面構造と表面電荷誘起挙動が互いに異なる硬いコロイドと柔らかいコロイドの両方に適用でき、固相中のナノサイズ移行経路内におけるコロイド移行現象を、物理化学に基づいて定量的にかつフィッティングパラメータを用いる

ことなく予測できるコロイド移行モデルを構築することを目的とした。

3. 研究の方法

硬いコロイドとしてラテックス粒子を用い、イオン-コロイド-固相系において、表面電荷調整を考慮したコロイドと固相表面間の電位分布や電荷分布などを評価するための相互作用モデルを検討した。そしてイオン-コロイド-固相系においてコロイドと固相間に作用するポテンシャル評価モデルをコロイド粒子の運動方程式に組み込み、水分子との衝突によるブラウン運動を考慮し、モンテカルロ計算によってコロイド粒子のナノサイズ移行経路中の移行挙動をシミュレートした。ここで構築した表面電荷調整を考慮した相互作用モデル（金属（水）酸化物コロイドに対してはコロイド表面と固相表面の両者の電荷調整を考慮）を、コロイドの移行モデルに組み込み、マイクロリアクタ内部におけるラテックス粒子の移行挙動を評価し、レーザ分光やカラム実験、精緻な滴定実験などの実験と量子化学理論に基づくシミュレーション手法とを組み合わせ、核種移行モデルの構築を進めた。

4. 研究成果

表面構造や表面電荷誘起とその分布ならびに移行挙動が互いに異なる硬いコロイドと柔らかいコロイドの両方を対象として、地層中におけるコロイド移行モデリングを構築するために、コロイドや固相の不均質な表面に表面近傍の溶液条件の変化に対応した電荷が不均質に誘起される現象を取り扱うモデルを、既存の DLVO 理論に組み込み、あるいはそれをさらに改良・発展させて、ナノサイズ移行経路内でコロイドと固相との間に作用するポテンシャルを評価できるようにした。このとき、レーザ分光のほか、高輝度放射光による分光など各種分光手法による実験結果も取り込んだ。合わせて、量子化学理論によるシミュレーションを利用し、実験結果に物理化学的意義づけを行った。このポテンシャルから計算されるコロイドと固相との間に作用する力を考慮したモンテカルロ計算を行うことでナノサイズ経路内におけるコロイドの拡散係数を求めるためのシステムを構築した。これらの値を用いることで、コロイド移行挙動をフィッティングパラメータを何ひとつ要することなく予測できる移行モデルを作成した。移行モデルは、コロイド移行実験から観察される破過挙動やカラム内濃度分布などと比較することで検証された。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者に

は下線）

〔雑誌論文〕（計3件）

Saito, T., Sao, H., Ishida, K., Aoyagi, N., Kimura, T., Nagasaki, S., Tanaka, S.: Application of Parallel Factor Analysis for Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy: Implication for Metal Speciation Study, *Environmental Science and Technology*, **44**, 5055-5060 (2010). 査読有

Saito, T., Koopal, L. K., Nagasaki, S., Tanaka, S.: "Electrostatic Potentials of Humic Acid: Fluorescence Quenching Measurements and Comparison with Model Calculations", *Colloids Surf. A* **347**, 27-32 (2009). 査読有

Hattori, T., Saito, T., Ishida, K., Scheinost, A., Tsuneda, T., Nagasaki, S., Tanaka, S.: The Structure of Monomeric and Dimeric Uranyl Adsorption Complexes on Gibbsite: A Combined DFT and EXAFS Study, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol. 73, No. 20, 5975-5988 (2009). 査読有

〔学会発表〕（計0件）

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長崎 晋也 (NAGASAKI SHINYA)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：20240723

(2) 研究分担者

田中 知 (TANAKA SATORU)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：10114547

斉藤拓巳 (SAITO TAKUMI)
東京大学・大学院工学系研究科・助教
研究者番号：90436543

小田 卓司 (ODA TAKUJI)
東京大学・大学院工学系研究科・助教
研究者番号：40436556

(3) 連携研究者

()

研究者番号：