地下水中に存在するコロイドの 特性評価に関する研究 (II):本編 (核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書)

2003年2月

三菱マテリアル株式会社

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 49

核燃料サイクル開発機構 技術展開部 技術協力課

電話:029-282-1122(代表) ファックス:029-282-7980 電子メール:jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section, Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,

Japan

## ©核燃料サイクル開発機構

( Japan Nuclear Cycle Development Institute ) 2003

# 地下水中に存在するコロイドの特性評価に関する研究 (II):本編 (核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書)

久野 義夫\*,上田 真三\*

## 要旨

地下水中に存在するコロイドは,放射性廃棄物の処分場から漏洩する収着性の核種に対して,移行を助長する媒体として作用することが懸念されている。このようなコロイドが核種移行に及ぼす影響を評価するためには,地下深部の地下水中のコロイドの特性データ(例えば,コロイドの濃度や核種のコロイドへの分配係数)を取得し,またコロイドが存在したときの核種移行への影響を予測するための解析コードを整備しておくことが必要とされる。

本研究では天然のコロイドの存在量を調べるために,結晶質岩系の鉱山坑道において地下水試料の採取を行った。コロイドの濃度や粒径の分布,およびコロイドの化学組成を,地下水を分画することによって測定した。コロイドとしては,主としてシリカ鉱物や Caに富む成分が確認された。今回採取した地下水中には,溶存している有機物成分は検出されなかった。それらの結果,コロイドの特性は,母岩や地下水の組成に依存していることが推測された。また原位置における地下水条件を模擬するために,炭酸分圧を変化させることによって地下水条件の調整を行い,それぞれの地下水中でのコロイドの形成について検討した。

亀裂性多孔質媒体中におけるコロイドに助長された核種移行についてのメカニズムを考慮した数学モデル(COLFRAC)が、米国オハイオ州立大学で開発されている。この計算コードでは、核種のコロイドへの収着として平衡論と速度論の両者を扱うことができる。このコードの利用法を習得するためのガイダンスを実施するとともに、ユーザーズマニュアルの作成を行った。

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が核燃料サイクル開発機構との委託研究契約により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室:東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ

\* 三菱マテリアル株式会社

The Study on the Characterization of Colloids in Groundwater (II)

(Document Prepared by Other Institute, Based on the Trust Contract)

Yoshio Kuno\*, Shinzo Ueta\*

## **Abstract**

Groundwater colloids may act as carriers for sorbing radionuclides released from a radioactive waste repository. To evaluate the influence of colloids to nuclide transport, it is necessary to obtain the characteristic data of groundwater colloids (e.g. colloid concentration, the distribution coefficient for sorption of nuclides on colloids) in the deep geological media and to prepare the simulation code of nuclide transport with colloids.

In this study, the groundwater sample was collected from the gallery of the mine in crystalline rock media to investigate the population of the natural colloids. The concentration, size distribution and chemical compositions of colloids were measured by using filtration method. Colloidal particles consist mainly of silicate minerals and Ca-rich particles. The dissolved organic materials were not detected in the groundwater. The properties of colloids seem to depend on the host rock type and the groundwater chemistry. To simulate the in-situ condition of groundwater, chemical conditions were controlled by varying the partial pressure of  $CO_2$  and the colloid generation in each groundwater was investigated.

The numerical model (COLFRAC) is developed in Ohio state university that incorporates the mechanism of colloid-facilitated nuclide transport in fractured porous media. Both equilibrium and kinetic sorption of nuclides onto colloidal materials can be considered in this calculation code. The guidance to learn how to use this code was conducted and the user's manual was prepared.

This Work was performed by Mitsubishi Materials Corporation under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Barrier Performance Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works.

<sup>\*</sup> Mitsubishi Materials Corporation

## 目 次

1. はじめに		1
2. 実施項目		1
3. 核種移行に与える地下	水中の天然コロイドの特性評価方法の整備	2
3.1 地下水採取場所		2
3.2 地下水コロイドの打	采取方法	ô
3.3 コロイド特性評価	5法1′	1
3.3.1 周辺岩盤の構成	戈鉱物の推定1′	1
3.3.2 コロイドの濃原	きおよび粒径分布の評価方法1′	1
3.3.3 コロイドの状態	<u> </u>	3
3.4 原位置地下水環境/	への補完処置の方法19	5
3.4.1 還元雰囲気に	- 己慮した地下水の補完処置15	5
3.4.2 炭酸分圧に配原	優した地下水の補完処置16	ô
3.5 コロイドの特性評价	画の結果17	7
3.5.1 周辺岩盤の構成	戈鉱物の推定結果17	7
3.5.2 事前採水地下	kの分析結果19	9
3.5.3 コロイドの濃原	<b>きおよび粒径分布の確認結果22</b>	2
3.5.4 コロイドの状態	<b>態観察の結果28</b>	3
3.6 地下水条件の補完好	D置の結果 32	2
3.6.1 地下水の水質	こ関する検討32	2
3.6.2 還元雰囲気に	R ■ では、日本のは、日本のでは、日本のは、日本のではは、日本のでは、日本のでは、日本のでは、日本のでは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のはは、日本のは、日本の	7
3.6.3 炭酸分圧に配原	튛した地下水の補完処置結果42	2
3.6.4 地下水の補完好	见置に関するまとめ47	7
3.7 地下水の採水手法1	こ関する検討49	9
3.7.1 地下水流れの打	憂乱影響の低減49	9
3.7.2 地下水水質の	変化が及ぼす影響50	J
3.7.3 地下水採水手	まに関する提案52	2
4. コロイドを考慮した核	種移行評価コードの整備54	4
4.1 多孔質媒体あるい	は不連続亀裂-多孔質媒体におけるコロイドを考慮した核種移行	Ţ
評価コードの位置付けし	こついて 54	1

# JNC TJ8400 2003-024

4.2 COLFRAC 導入のガイダンスについて	56
4.2.1 ガイダンスの日時および場所	56
4.2.2 スケジュール	56
4.2.3 ガイダンスおよびトレーニングに用いた資料	56
5. おわりに	57
5.1 核種移行に与える地下水中の天然コロイドの特性評価方法の整備	57
5.2 コロイドを考慮した核種移行評価コードの整備	58
6. 参考文献	59

# 図 目 次

义	3.1-1	明延鉱山の所在地
図	3.1-2	明延鉱山の地質図および採水場所
図	3.2-1	地下水の採水に関する種々の方法
図	3.2-2	本研究における地下水採水方法の概略図
図	3.2-3	坑道壁面における岩石亀裂部への採水管の設置状況10
义	3.3-1	TEM 観察で使用したマイクログリッド(有機膜)の拡大図14
図	3.5-1	採取した岩体の状態1
図	3.5-2	明延鉱山の採水坑道で採取した岩盤の XRD 分析結果18
図	3.5-3	事前採水地下水の各元素の分析結果2
図	3.5-4	事前採水地下水の各陰イオンの分析結果2
図	3.5-5	採取直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布20
図	3.5-6	採取1週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布20
図	3.5-7	レーザ回折式粒度分布測定装置での測定結果(約3週間後)2
図	3.5-8	分画による粒径分布の測定結果(約1週間後)2
図	3.5-9	地下水中コロイドの TEM 観察結果(マイクログリッド上に捕捉された粒子
図	3.5-10	地下水中コロイドの EDX 分析結果3
図	3.6-1	地下水水質形成の模式図3
図	3.6-2	炭酸分圧の変化とそれに伴う pH 変化の関係3
図	3.6-3	炭酸分圧による pH 変化とそれによる主要溶存イオンの濃度変化との関係
図	3.6-4	固相に硫酸カルシウムを想定した場合の濃度変化3
図	3.6-5	バブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布4
図	3.6-6	バブリング 1 週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布4
図	3.6-7	バブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布4
図	3.6-8	バブリング 1 週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布 4
図	3.6-9	炭酸カルシウムを溶解度制限固相としたときの Ca 濃度の計算値と地下が
	試料の	実測値の関係4
図	4 1-1	地下水コロイドの核種移行への影響に関する検討フロー 5

-**v**-

# 表目次

表	3.1-1	地下水採取坑道の概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・4
表	3.3-1	周辺岩盤の分析に使用した機器・・・・・・・・・・・・・・・・・11
表	3.3-2	分画操作に用いるフィルタ・・・・・・・・・・・・・・・・・12
表	3.3-3	地下水試料の分画処理により得られるコロイドの粒径分布・・・・・・・・ 12
表	3.3-4	地下水組成の分析およびコロイドの特性評価に使用した機器・・・・・・・ 13
表	3.3-5	地下水中のコロイドの状態観察およびゼータ電位の測定において・・・・・ 14
表	3.5-1	事前採取地下水試料の分析結果・・・・・・・・・・・・・・・・ 20
表	3.5-2	現地採取地下水試料の分析結果(平成 14 年 12 月 16 日)・・・・・・・・ 24
表	3.5-3	地下水試料中のコロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/I)・・・・・・ 24
表	3.5-4	採取 1 週間後の地下水試料中のコロイド成分の各粒径範囲での濃度値
		)
表	(mg/l)	) 25
表表	(mg/l)	)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・25 ゼータ電位の測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・30
表表表	(mg/l) 3.5-5 3.6-1	) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
表表表表	(mg/I) 3.5-5 3.6-1 3.6-2	)
表表表表表	(mg/I) 3.5-5 3.6-1 3.6-2 3.6-3	)
表表表表表	(mg/I) 3.5-5 3.6-1 3.6-2 3.6-3 3.6-4 3.6-5	25 ゼータ電位の測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
表表表表表表	(mg/I) 3.5-5 3.6-1 3.6-2 3.6-3 3.6-4 3.6-5	25 ゼータ電位の測定結果 30 還元雰囲気を補完処置した地下水試料の分析結果 39 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/I):バブリング直後 39 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/I):バブリング 1 週間後 40 炭酸分圧を補完処置した地下水試料の分析結果 44 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/I):1%CO <sub>2</sub> によるバブリング直後

#### JNC TJ8400 2003-024

### 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの安全性評価(核種移行評価)においては,地下水中に存在するコロイドが核種移行に及ぼす影響を考慮した検討が必要である。したがって,今後,処分予定地が選定され,処分場としての成立性を審議する過程では,地下水中のコロイドに関する特性データを含めた,種々の原位置でのデータ取得を行う必要がある。ここでは核種移行影響評価の観点から,地下水中に天然に存在するコロイドに関するデータ取得手法の検討および採取した地下水については原位置での環境を模擬するための補完処置を試行し,環境の相違がコロイドの特性に及ぼす影響について考察を行った。

またこのような特性データの蓄積とともに、コロイドの影響を考慮した核種移行評価モデル(コード)を整備していくことが、今後必要とされると考えられる。そこでコロイド影響評価の信頼性向上を目的として、核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用について平衡論と速度論を考慮することができる核種移行計算コード(COLFRAC)を導入するための、必要な助勢を行った。

### 2. 実施項目

- (1) 核種移行に与える地下水中の天然コロイドの特性評価方法の整備
- (2) コロイドを考慮した核種移行評価コードの整備

#### 3. 核種移行に与える地下水中の天然コロイドの特性評価方法の整備

地下水中に天然に存在するコロイドは,地下水水質の化学的な変化や地下水流れの物理的な変化の影響によって,コロイドの濃度や粒径分布といった特性に変化が生じることが考えられる。そのため核種移行に及ぼす地下水中のコロイドの影響を評価するにあたっては,研究に供するコロイドの特性に極力変化を与えないように採水方法を配慮することや,あるいは原位置を想定した環境で特性データを取得したり,そのための補完処置を行うことが重要であると考えられる。

本研究では、地下水が擾乱されないように採水した現地でのコロイドの特性データと、実験室に持ち運んだ地下水中のコロイドのそれとを比較することにより、粒径分布等の経時的な変化を確認した。また実験室に搬送した地下水については、地質的情報から原位置での環境を推定するとともに、実際に地下水からの脱ガス等の影響を補完する処置を試行することにより、これらの要因がコロイドの特性に及ぼす影響について考察を行った。

#### 3.1 地下水採取場所

本研究では、地下水コロイドに関する特性データを取得するために、坑道内で採取される湧水を実地下水として試料に供することにした。平成 13 年度のサイクル機構殿委託研究<sup>1)</sup>において、坑道内の湧水中にコロイド成分の含有が確認されたことおよび現時点での坑道内作業の安全性の観点から、本年度の研究では明延鉱山(細倉鉱業㈱・明延事業所)の坑道で地下水の採水を行った。

表 3.1-1 に地下水の採取を行った明延鉱山の坑道や採水方法の概要を,また図 3.1-1 に は明延鉱山の所在地を示す。

明延鉱山は兵庫県養父郡大屋町に所在する。平安朝初期に発見され,明治 29 年に三菱合資会社に払い下げとなり,明治 33 年から本格的な開発に着手した。金属市況の低迷や円高の影響により昭和 62 年に閉山となっている。

明延鉱山付近の地質は,二畳紀の舞鶴層群と貫入岩類から成る。舞鶴層群は,層厚 1,000 m 以上の塩基性火山岩類を主とし,粘板岩,石灰岩,チャートを挟存する須留ヶ峰層と,厚層 500 m で粘板岩を主とし,砂岩,礫岩を挟存する世谷層から成る。塩基性火山岩類は, さらに千枚岩質凝灰岩から成る金木谷部層と溶岩に富む大仙部層に細分される。貫入岩類

は,夜久野岩類,珪長岩,変質安山岩等である。夜久野岩類は,舞鶴層群中に併入する変斑レイ岩,変閃緑岩から成る比較的大きな岩体である。斑レイ岩は,中粒~祖粒,暗緑色で角閃石,輝石,斜長石,緑泥石等を主要構成鉱物とし,有色鉱物と無色鉱物の配列による縞状構造を呈するものが多い。

明延鉱山付近の卓越する構造は NE-SW であり、地層の走向、褶曲、主要断層および貫入岩類の方向は走向 NE-SW である。鉱床は銅、亜鉛、錫を含む多金属鉱脈鉱床であり、主要鉱脈は走向 NW-SE、傾斜 NE を示す。鉱脈裂罅は NW-SE 方向の水平圧縮応力により白亜紀末~古第三紀に形成し、NE-SW 系の主要断層は鉱化作用の前後に活動したと考えられる。

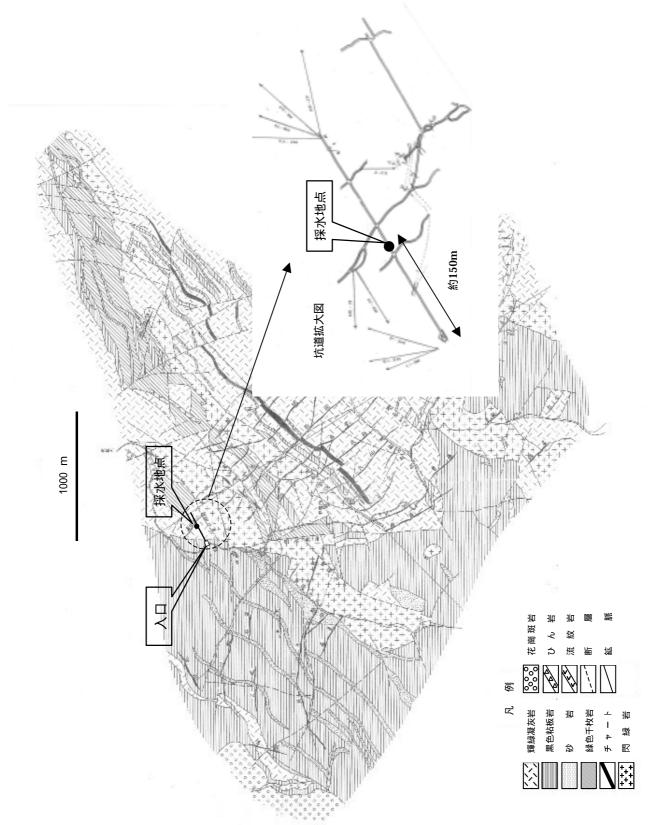
図 3.1-2 には,明延鉱山の地質図および採水を行った周辺の坑内拡大図を示す。本研究では,現状において岩盤亀裂部から湧水が得られていることおよび作業の安全性の確保の観点から,東山-4L坑(昭和 26 年開削)の入口から約 150m 入った地点で坑道湧水を採取し,地下水コロイドの特性評価に供した。地質図からわかるように,この地点は鉱山における輝緑凝灰岩層に位置し,またそのかぶり厚さはおよそ 100m ほどであった。

表 3.1-1 地下水採取坑道の概要

場所	明延鉱山			
<b>-</b> ∕勿り	(兵庫県養父郡大屋町)			
所有者	細倉鉱業㈱・明延事業所			
別有有	(三菱マテリアル(㈱子会社)			
採取地下水 坑道上のかぶりを通過した地下水				
	坑道壁の岩盤亀裂部にステンレス製の採			
採水方法	水官(10mm 程度)を設置し,そこから			
	湧出する地下水を採水容器で採取			
坑道のかぶり	主として輝緑凝灰岩層			
が有のかがら	かぶり厚さ: 100m 程度			



図 3.1-1 明延鉱山の所在地



### 3.2 地下水コロイドの採取方法

地下水の採取方法として、図 3.2-1 の模式図に示すような様式が考えられる。トンネル 坑を掘削し、岩盤亀裂中など地下水が存在する箇所から採水を実施する方法と、地表から 試錐井を掘削し地下水を採取する方法とに分類される。またそれぞれの方法について、地下水を汲み上げて採取し分析試料に供する方法と、原位置にセンサーを設置して、直接データを取得する方法とに区分することができる。また、地下水に関する詳細なデータを取得する場合には、実験施設に試料を搬入して試料に供する必要がある。

地下水コロイドを採取して、その特性評価を行うにあたっては、コロイドが天然に存在する状態を維持させて分析を行うことが重要であると考えられる。地下水やそこに存在するコロイドは大気と接触することによって、その特性が変化することが考えられるので、試錐孔や試錐井を掘削し大気と遮断した系で地下水を汲み出して分析に供したり、あるいは地下環境に直接センサーを設置することが望ましい。しかしこのような試錐井を掘削したり、センサーを設置すること自体が地下環境を擾乱することになるので、懸濁物を発生させるなどの問題を伴うことになる。

本研究では地下水採水の施設として,現存する坑道を利用する方法を用いた。また採水地下水と大気との接触を極力避けるために,坑道壁面の岩石亀裂部に採水管(ステンレス製;10mm)を打ち込み設置した。試料として,この採水管から自然に湧出してくる地下水を採取することにした。

採水管設置後 1 ヶ月程度はそのままの状態で放置し、もとの地下環境に復元するよう配慮した。その間、経時的に予備試料の採水および分析を実施することにより、地下水組成の定常化を確認し、採水管を設置したことによる擾乱の影響の有無を判断することとした。

地下水水質に関する事前確認の終了後,地下水試料の採取を行った。図 3.2-2 に,本研究における地下水採水方法の概略図を,また図 3.2-3 には坑道壁面における岩石亀裂部への採水管の設置状況を示す。坑道壁面に設置した採水管と,予め窒素置換を行った気密性の採水容器とをチューブで接続し,大気と接触しないようにしながら採水管からの湧水を容器に採取した。この採水容器を気密性の無菌パック内へ封入して窒素置換を行い,このパック内で pH や Eh の測定および地下水試料のろ過による分画操作を行った。ここまでの操作を現地で採水直後に実施し,その後試料を実験室に移送した。

またコロイドの特性の経時変化を確認することを目的として、これとは別に大気下で地

## JNC TJ8400 2003-024

下水試料を採取し,実験室に移送して分析試料とした。

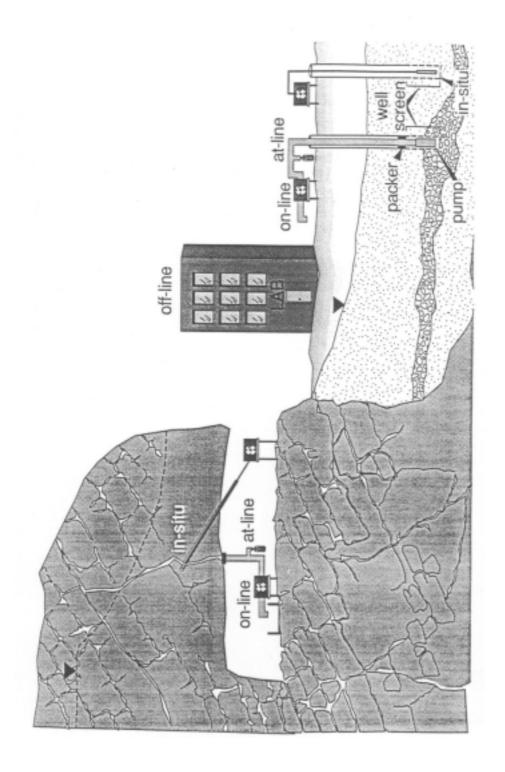


図3.2-1 地下水の採水に関する種々の方法 2)

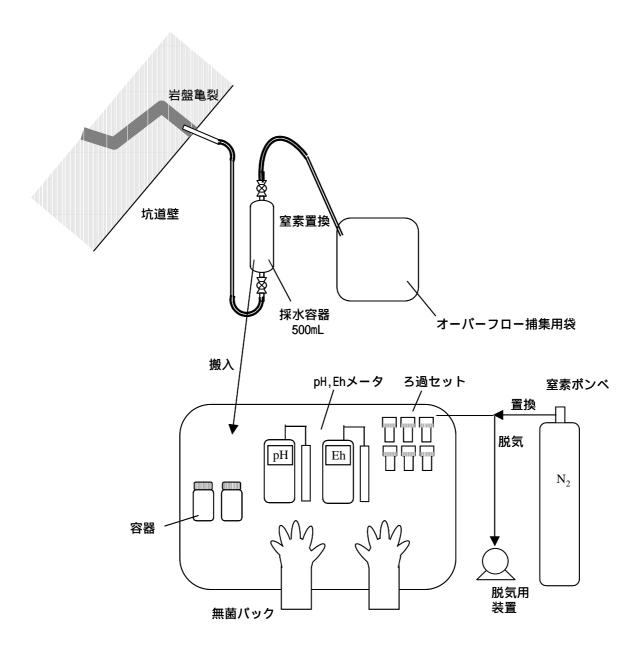


図 3.2-2 本研究における地下水採水方法の概略図

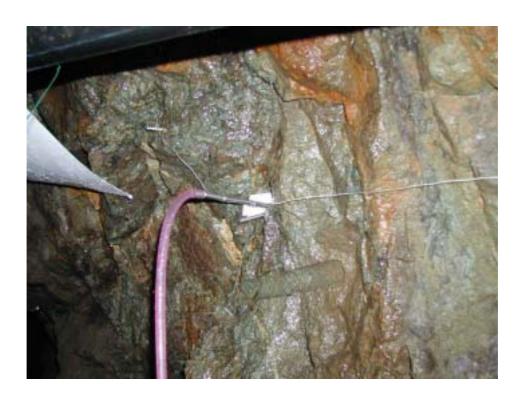


図 3.2-3 坑道壁面における岩石亀裂部への採水管の設置状況

### 3.3 コロイド特性評価方法

#### 3.3.1 周辺岩盤の構成鉱物の推定

地下水と接触する採水箇所周辺の岩盤は,地下水組成に影響を与えたりあるいは含有鉱物自体が地下水中に天然に存在するコロイドの生成起源となることが考えられる。そこで採水箇所周辺の岩盤の構成鉱物を確認するために,X線回折法(XRD)による分析を実施した。地下水を採水した坑道壁面の岩盤の一部を採取し,粉末状に粉砕して分析試料とした。表 3.3-1 に XRD 分析において使用した機器を示す。

分析項目	使用機器
XRD	MAC サイエンス社製 MPX-3

表 3.3-1 周辺岩盤の分析に使用した機器

#### 3.3.2 コロイドの濃度および粒径分布の評価方法

本研究では地下水中のコロイドの特性として、濃度、粒径分布および化学組成を評価するものとする。これらは採取した地下水試料を孔径の異なるフィルタを用いて分画し、各々のろ液の化学組成を測定することで確認することができる。また地下水試料は大気と接触することにより化学的性質が変化することが考えられるので、明延鉱山の現地での分画処理は、窒素置換を行った無菌パック内で実施した。

ここでは平成 13 年度の委託研究の試験条件を参考にして,表 3.3-2 に示す孔径のメンプランフィルタや限外ろ過フィルタを用いるものとした。表 3.3-3 に示すように,孔径の大きいフィルタでろ過を行ったろ液の測定結果から,孔径の小さいろ液のそれを差し引くことにより,各粒径範囲でのコロイド相成分の濃度と粒径分布を求めた。

地下水中に存在する各化学成分については、ICP 発光分光分析(ICP-AES)により定量分析を行った。また地下水中の各陰イオンについてはイオンクロマトグラフで定量を行った。ただし、イオンクロマトグラフについては装置の制約上、分画処理による粒径分布の評価は行わなかった。溶存している有機および無機炭素については、全有機炭素測定(TOC)で分析を行った。

#### JNC TJ8400 2003-024

また,地下水中のコロイドの粒径分布に関する参考データとして資するために,大気下で採取した地下水については,別法による粒径分布の評価(レーザ回折式粒度分布測定)を試行した。

表 3.3-4 に地下水組成の分析およびコロイドの特性評価に使用した機器を示す。

表 3.3-2 分画操作に用いるフィルタ

孔径または分画分子量(MWCO)	フィルタ		
800 nm	メンブランフィルタ(ADVANTEC 社製)		
450 nm			
200 nm			
MWCO: 200,000			
(孔径約 10 nm に相当)	- 限外ろ過フィルタ(ADVANTEC 社製)		
MWCO: 10,000			
(孔径約 1.5 nm に相当)			

表 3.3-3 地下水試料の分画処理により得られるコロイドの粒径分布

	>800nm	800 ~ 450nm	450 ~ 200nm	200 ~ 10nm	10 ~ 1.5nm	<1.5nm
ろ過なし	<b>*</b>					<b>→</b>
ろ過(<800 nm)						<b>→</b>
ろ過(<450 nm)			<b>4</b>			<b></b>
ろ過(<200 nm)				*		<b>─</b>
ろ過( <mwco: 200,000)<="" td=""><td></td><td></td><td></td><td></td><td><b>4</b></td><td><b></b></td></mwco:>					<b>4</b>	<b></b>
ろ過( <mwco: 10,000)="" <="">: 成分分析の対</mwco:>						<del> </del>

分析方法	使用機器	定量下限
ICP 発光分光分析(ICP-AES)	㈱日立製作所製 P-5200	> 0.1 ppm*1
全有機炭素測定(TOC)	島津製作所㈱製 TOC-5000A	> 1 ppm
イオンクロマトグラフ	DIONEX 社製 DX-AQ	> 1 ppm*2
レーザ回折式粒度分布測定	島津製作所㈱製 SALD-7000	-

表 3.3-4 地下水組成の分析およびコロイドの特性評価に使用した機器

### 3.3.3 コロイドの状態観察およびゼータ電位の測定

ろ過処理を行ったフィルター上を SEM 等で観察することにより,コロイドの状態観察 は可能であると考えられるが,分散状態でのコロイドを確認することは困難である。また フィルター上で XRD 分析や重量法による評価を行うためには、十分な量のコロイドをろ 別するために,コロイド濃度が希薄な地下水試料の場合(ppm オーダー)では,大量の地 下水を限外ろ過処理する必要がある。

ここでは透過型電子顕微鏡(TEM) / エネルギー分散型 X 線分光分析(EDX)によるコロイ ド相の状態観察や組成の定性分析を実施した。マイクログリッド(有機膜)を張った銅製メ ッシュで地下水試料をすくうことにより,メッシュ上に採取された粒子を TEM により直 接観察した。また,観察された粒子に対して EDX 分析を行い,その化学組成に関する定 性分析を行った。

一方、コロイドの水中での分散安定性は粒子表面での電気的特性の影響を受けることが 考えられる。ここでは一般に帯電状態の指標として用いられているゼータ電位について、 電気泳動法により測定を行った。

表 3.3-5 に TEM, EDX 分析およびゼータ電位測定において使用した機器を,また,図 3.3-1 に TEM 観察で使用したマイクログリッド(有機膜)の拡大図を示す。

表 3.3-5 地下水中のコロイドの状態観察およびゼータ電位の測定において 使用した分析機器

分析方法	使用機器		
透過型電子顕微鏡(TEM)	(株)日立製作所製 H-9000 型		
エネルギー分散型 X 線分光分析(EDX)	㈱日立製作所製 HF-2000 型		
電気泳動光散乱光度計(ゼータ電位)	大塚電子㈱製 ELS-6000		

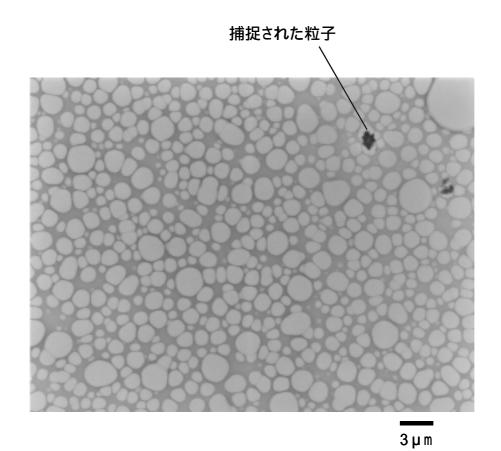


図 3.3-1 TEM 観察で使用したマイクログリッド(有機膜)の拡大図

### 3.4 原位置地下水環境への補完処置の方法

#### 3.4.1 還元雰囲気に配慮した地下水の補完処置

原位置の地下水に存在するコロイドと,採取した後の地下水に含まれるコロイドとでは,雰囲気の相違によってコロイドの特性が変化することが考えられる。例えば Fe などの酸化・還元条件に依存するイオンが顕著に含まれる場合は,試料が大気と接触することによる雰囲気の変化が,コロイドの存在状態に及ぼす影響も大きいと考えられる。溶液を還元状態に保つための実験的手法として,試験溶液を嫌気性の雰囲気制御ボックスに搬入し,バブリングにより十分な脱気を行う方法や,さらにここへ還元剤を添加して溶液条件を調製する方法がある。しかし,コロイドの分散状態は溶液のイオン組成にも依存するので,原位置環境では存在しない成分(還元剤)を新たに試料に添加するのは,コロイドとしての特性を評価する上では好ましい操作ではないと考えられる。ここでは大気下で採取した地下水試料を雰囲気制御ボックス内で脱気することにより,試料採取時に混入した溶存酸素を除去し,溶液内を嫌気性に戻す操作をまず試行した。

現地において大気下で採取した地下水試料を実験施設に移送し、その後、この試料 1 リットルを Ar 雰囲気グローブボックス (O2<1ppm)に搬入した。エアポンプによるバブリング (流量約 25ml/min)を 3 時間実施することにより、溶存する酸素の脱気を行った。また、この操作後の pH および Eh を電極法で確認した。バブリングを実施した直後の地下水については、この雰囲気制御ボックス内において、表 3.3-2 と同様のフィルタを用いて分画操作を実施した。

また,この地下水については,そのまま雰囲気制御ボックス内に静置し,バブリング 実施後1週間を経過した時点で,再度同様の分画操作を実施した。分画したろ液につい ては組成の分析を行い,嫌気性に配慮した雰囲気におけるコロイドの特性を確認した。

### 3.4.2 炭酸分圧に配慮した地下水の補完処置

土壌中では植物根の呼吸やバクテリアの活動に伴い、地下水中での炭酸濃度が高くなると考えられている。原位置での地下水は、初期において大気下と比較して炭酸分圧が高い条件にあるが、今回実施したように地下坑道で採水を行う場合は、地下水が坑道に至るまでの大気開放される過程で、大気下の炭酸分圧(PCO2 = 10-3.5atm)まで低下することが起こると考えられる。このような炭酸分圧すなわち炭酸濃度の変化は、特に炭酸塩鉱物の溶解や析出挙動に影響を与え、析出過程において、本来地下水中に存在しなかった安定なコロイドが生成するといった挙動も想定され得る。そこでここでは大気よりも炭酸濃度が高いガスを用いたバブリングによって、地下水試料の炭酸分圧を増加させる手法を試行した。

大気下で採取した地下水試料(約 10 分間で採水)を実験施設に移送し、この試料 1 リットルを無菌パック内に搬入した。本試験では、N2(CO2 1%含有;濃度設定の根拠は後述)ガスをボンベより供給して使用した。予め、無菌パックへの 1%CO2 ガスの供給と、エアポンプによる排気を複数回繰り返し、内部雰囲気の置換を実施した。その後、無菌パック内に搬入している地下水試料を、1%CO2 ガスでバブリング(流量およそ25ml/min)し、これを3時間実施することにより、溶液の脱気を行った。また、この操作後のpHをpHメータで確認した。バブリングを実施した直後の地下水については、無菌パック内で表 3.3-2 と同様のフィルタを用いて分画操作を実施した。

なお余剰の地下水については、上述の操作を終了後、無菌パックから取り出し、大気開放下で1日静置してpHの変化を確認した。その後、さらに大気との平衡状態を保つために、エアポンプによる大気でのバブリング(流量約25ml/min)を3時間実施した。十分な大気バブリングを行った後、pHの変化を確認し、さらに表3.3-2と同様のフィルタを用いて試料の分画を実施した。

ろ液については組成の分析を行い, $1\%CO_2$  ガスで平衡状態にある地下水と,大気と平衡状態にある地下水との分析結果を比較することにより,炭酸分圧の相違がコロイドの特性に及ぼす影響を確認した。

## 3.5 コロイドの特性評価の結果

### 3.5.1 周辺岩盤の構成鉱物の推定結果

明延鉱山における地下水の採水箇所周辺で採取した岩体を図 3.5-1 に,また XRD 分析結果を図 3.5-2 に示す。測定結果からは岩盤の構成鉱物として,主に $(Mg\ Fe)_6(Si\ Al)_4O_{10}(OH)_8$  と  $SiO_2$  の回折ピークが得られた。明延鉱山の地質図に示したように今回の湧水の採水地点は,鉱山における輝緑凝灰岩層に位置しており,この岩層は緑泥石,緑レン石,曹長石,方解石などを特徴的に含有する岩種とされている。 $(Mg\ Fe)_6(Si\ Al)_4O_{10}(OH)_8$  は緑泥石類に分類される鉱物であるので,ここでの分析結果は妥当であるものと思われる。XRD で推定された  $SiO_2$  はコロイドを形成しやすい鉱物の1つと考えられる。



図 3.5-1 採取した岩体の状態

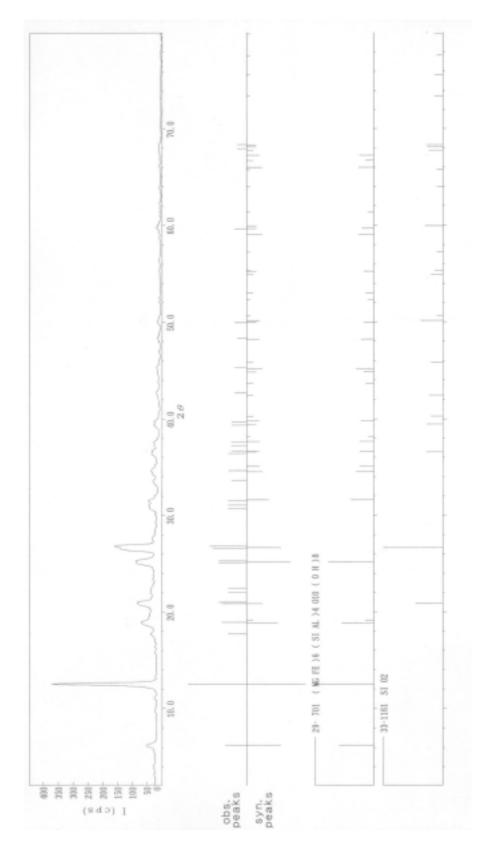


図3.5-2 明延鉱山の採水坑道で採取した岩盤のXRD分析結果

## 3.5.2 事前採水地下水の分析結果

本研究では地下水採水の施設として鉱山坑道を用い,その坑道壁面の岩石亀裂部に採水管を設置して,そこから湧出してくる地下水を採取した。また採水管設置後1ヶ月程度は設置状態で放置し,その間経時的に予備試料の採水および分析を実施することによって,地下水水質に変動が見られるかを事前に確認した。表 3.5-1 に事前に採取した地下水試料の分析結果を,また図 3.5-3 には各元素および図 3.5-4 には各陰イオンの濃度の経時変化をまとめたグラフを示す。

今回採水を行った地点は地層のかぶり厚さがおよそ 100m ほどであり,地下水流量やその水質に経時的変動が生じることが懸念された。しかし,ここでの結果によれば,各成分の分析値は採水管設置後,概ね一定した値を示しており,地下水水質に関しては定常的な状態を維持しているものと考えられた。また採水管から流出する地下水の流量は採水日によって多少変動が見られたが,100~160ml/min 程度であり,水温は13~15であった。採水管設置当初から試料の懸濁や溶存成分の特異的な増加は認められず,採水管を設置したことによる地下水流の擾乱や水質の変化は顕著に認められなかった。

表 3.5-1 事前採取地下水試料の分析結果

	採水管設置時 (10 月 24 日)	7日後 (10月31日)	22 日後 (11 月 15 日)	35 日後 (11 月 28 日)
Na(mg/l)	5.8E+00	5.7E+00	5.8E+00	6.1E+00
Mg(mg/l)	1.3E+01	1.4E+01	1.4E+01	1.4E+01
Si(mg/l)	9.3E+00	8.6E+00	9.2E+00	9.3E+00
K(mg/l)	3.9E+00	3.8E+00	3.9E+00	3.6E+00
Ca(mg/l)	6.8E+01	6.6E+01	6.7E+01	6.6E+01
Cl-(mg/l)	4.2E+00	5.0E+00	4.8E+00	4.0E+00
SO <sub>4</sub> <sup>2</sup> -(mg/l)	2.6E+01	2.7E+01	2.7E+01	2.7E+01
NO <sub>3</sub> -(mg/l)	2.7E+00	2.4E+00	2.5E+00	2.3E+00
IC (無機 C; mg/l)	3.9E+01	3.7E+01	4.1E+01	3.7E+01
рН	7.6	7.7	7.6	7.6
Eh(mV)	320	300	350	350

検出限界以下; Fe ( < 0.1 mg/l)

Al ( <0.1 mg/l )

有機 C ( <1 mg/l )

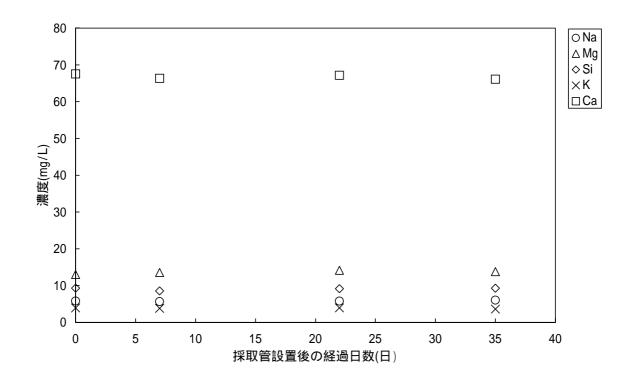


図 3.5-3 事前採水地下水の各元素の分析結果

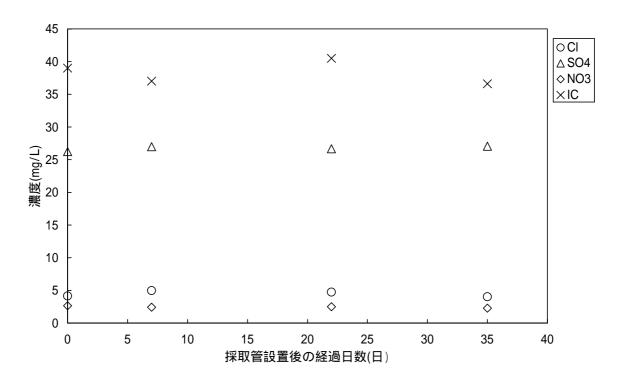


図 3.5-4 事前採水地下水の各陰イオンの分析結果

(IC:無機炭素濃度)

#### 3.5.3 コロイドの濃度および粒径分布の確認結果

坑道内で採取した地下水試料について,溶存している各元素(ICP-AES)や各種陰イオン(イオンクロマトグラフ),および有機や無機の全炭素(TOC)の分析を行った。また粒径の分布を確認するために,採取した地下水試料を孔径の異なる種々のフィルタを用いて分画し,それぞれのろ液について化学組成を測定した。地下水採水直後,現地で窒素置換した無菌パック内で分画操作を行った試料と,これとは別に地下水試料を採取してから約1週間後に分画を行った試料について,各々分析を行うことによりコロイドの特性の経時変化を確認した。

表 3.5-2 に分画する前の地下水試料の成分濃度分析結果を示す(地下水成分の欄に表示)。コロイド特性評価のための地下水試料の採取は、採水管の設置 53 日後に実施した。 表 3.5-1 の事前採取地下水の分析結果と比較して、水質に顕著な相違は認められないので、地下水水質の定常した状態はコロイド特性評価試料の採取時にも維持されていたものと考えられる。

表 3.5-2 には、分画する前の地下水試料の分析結果とともに、分画分子量 10,000(孔径約 1.5 nm に相当)のフィルタで限外ろ過したろ液の分析結果も併せて示す。両者の分析値の差から、地下水中にコロイドとして存在する成分の濃度を示すとともに、地下水組成全体に対するコロイド成分の重量比を算出して示した。その結果、地下水中の主要成分として分析を実施したこれらの元素については、全てコロイド成分としての形態も存在すると考えられる。ただし、最もコロイド領域での溶存量が多い Ca に関しても、その濃度は 1.6mg/l 程度であり、コロイド全体としての濃度もこのオーダーを越えるものではないと考えられる。コロイドの分散安定性は溶液のイオン濃度が増加するのにつれて、減少する傾向がある。10-4M 以上の濃度で Ca を含む地下水中では,天然のコロイドは安定に存在しにくいという事例もあり4),明延鉱山で採取した地下水のように Ca に富む地下水中では顕著な量のコロイドは存在しにくいことが認められた。

表 3.5-3 および図 3.5-5 に採取直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布を,また表 3.5-4 および図 3.5-6 に採取 1 週間後のそれをそれぞれ示す。この結果より,採取直後の地下水試料と比較して,1 週間経過後の地下水試料の方が粒径の大きい粒子の濃度が若干ではあるが増加する傾向が見られる。これは経時的なコロイドの凝集が影響していることが考えられる。後述するように,この地下水中に浮遊する粒子のゼータ電位

は電気的に中性に近い値を示しており、電気的な反発力による粒子の分散安定化の効果 は低いものと推測される。

一方,地下水中のコロイドの粒径分布に関する参考データとして,大気下で採取した地下水をレーザ回折式粒度分布測定装置を用いて測定した結果(採水後約3週間)を図3.5-7に示す。また図3.5-8は,表3.5-4に示した採取1週間後の地下水試料の分画測定結果をもとに,各粒径範囲でのNa,Mg,Si,K,Caの各成分の濃度の和を求めて,粒径分布に換算して示したものである。

レーザ回折式粒度分布測定の場合は、球相当径として間接的な粒径を定義するのに対し、分画操作の場合は不規則な形状の粒子のうち、短軸径の長さが粒子径として代表されると考えられる。したがって、コロイドが球形ではなく不規則な形状を有している場合は、原理的に両者の分布を比較することは難しい。また、レーザ回折式粒度分布測定の場合は測定下限は 0.1 μm 程度と言われており、数 nm ~ 100nm のような低粒子径の評価は困難である。このような制約があるため、直接的な粒径の比較は困難であるものの、両者の粒径分布はともに 800nm 以上の高粒径側にピークを示しており、全体的な分布の傾向としては類似しているものと思われる。コロイドは一般に 1nm ~ 1 μm 程度の粒径をもつ粒子として定義されるが、この地下水中に存在しているコロイドとしては、数 100nm 以上の高粒径側の粒子の存在割合が高いことが推察される。

表 3.5-2 現地採取地下水試料の分析結果(平成14年12月16日)

	地下水成分(mg/l)	イオン状成分*1 (mg/l)	コロ仆 状成分*2 (mg/l)	コロイド状成分の割 合*³(wt.%)
Na	5.5E+00	5.0E+00	5.7E-01	10
Mg	1.4E+01	1.3E+01	1.5E-01	1
Si	9.0E+00	8.3E+00	6.7E-01	7
K	4.0E+00	3.4E+00	6.3E-01	16
Ca	6.8E+01	6.6E+01	1.6E+00	2
Cl-	4.6E+00	-	-	-
SO <sub>4</sub> 2-	2.6E+01	-	-	-
NO <sub>3</sub> -	2.3E+00	-	-	-
IC (無機 C)	3.8E+01	3.7E+01	1.0E+00	3
pН	7.6	-	-	-

検出限界以下; Fe ( <0.1 mg/l ), Al ( <0.1 mg/l ), 有機 C ( <1 mg/l )

表 3.5-3 地下水試料中のコロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l)

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	2.4E-01	1.1E-01	1.3E-01	2.0E-02	7.0E-02
Mg	3.0E-02	N.D.	4.0E-02	N.D.	8.0E-02
Si	2.9E-01	N.D.	4.0E-02	1.8E-01	1.6E-01
K	6.0E-02	3.0E-02	4.6E-01	8.0E-02	N.D.
Ca	4.7E-01	4.4E-01	N.D.	3.1E-01	4.0E-01
IC	5.0E-01	2.0E-01	1.0E-01	2.0E-01	N.D.

N.D.: 検出限界以下

<sup>\*1: &</sup>lt; 1.5 nm の成分

<sup>\*2:</sup> コロイド状成分 = 地下水成分 - イオン状成分

<sup>\*3:</sup> コロイド状成分の割合=コロイド状成分/地下水成分

表 3.5-4 採取1週間後の地下水試料中のコロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l)

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	3.4E-01	1.9E-01	N.D.	9.0E-02	1.2E-01
Mg	1.1E-01	1.4E-01	N.D.	9.0E-02	9.0E-02
Si	2.7E-01	1.0E-01	2.2E-01	2.2E-01	N.D.
K	1.5E-01	8.0E-02	2.1E-01	8.0E-02	N.D.
Ca	5.4E-01	4.3E-01	3.4E-01	N.D.	3.6E-01
IC	5.0E-01	3.0E-01	2.0E-01	1.0E-01	N.D.

N.D.: 検出限界以下

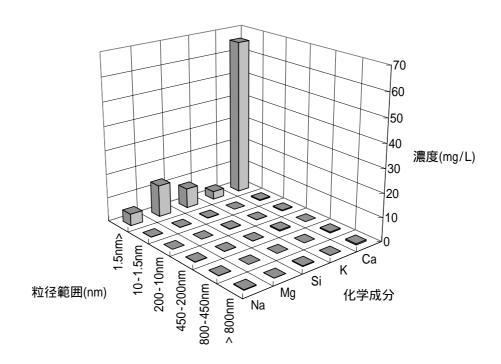


図 3.5-5 採取直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

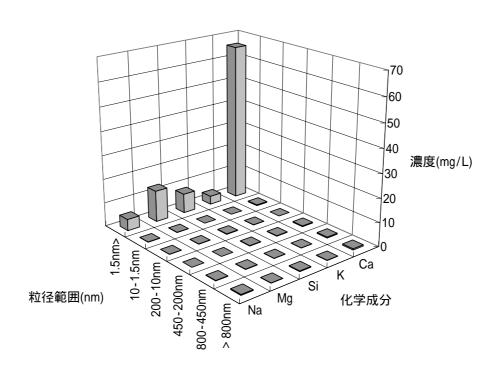


図 3.5-6 採取 1 週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

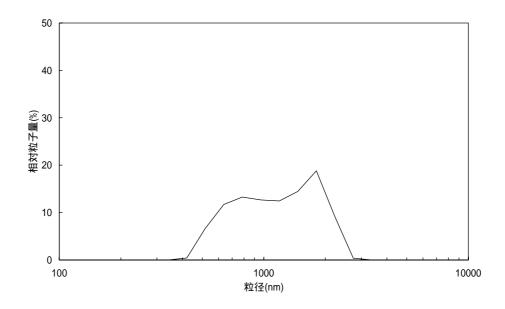


図 3.5-7 レーザ回折式粒度分布測定装置での測定結果(約3週間後)

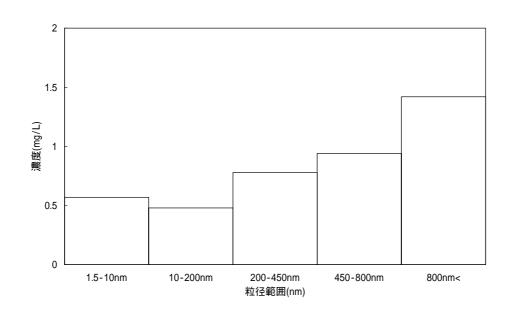


図 3.5-8 分画による粒径分布の測定結果(約1週間後)

#### 3.5.4 コロイドの状態観察の結果

図 3.5-9 に , 大気下で採取した地下水中のコロイドの TEM 観察の結果を示す。マイクログリッド上に捕捉された粒子はほとんど見受けられず(図 3.3-1 参照), 粒径も数 100nm~数 μm 程度の大きさであった。これは前述した粒径分布の測定結果とも一致した傾向である。また数 10 μm 以上の大きさを有するような凝集体も , 特に見られなかった。

EDX 分析は図中の測定点の範囲を対象とし,化学組成の定性分析を実施した。その結果を図 3.5-10 に示すが,主に C,O,Ca,Cu が成分として検出された。このうち Cu については,EDX の測定に際しマイクログリッドの支持台として銅製のメッシュを用いていることから,その成分が検出されたものと考えられる。このことより,本地下水中に含まれる主要なコロイド成分の1つとして,Ca を主として含む鉱物が推測される。これに対し,前述した地下水中コロイドの濃度の測定結果(表 3.5-2)においても,Ca が最もコロイド領域での溶存量が多い成分として検出されており,粒子観察の結果と地下水分析の結果とは整合しているものと思われる。またコロイドの濃度の測定結果では,同程度の濃度の無機炭素(炭酸イオンに起因する)も検出されており,したがってこのコロイドは炭酸塩の形態を含んでいることが推察される。ただし液組成の分析では,上記成分以外にも,Mg,Si,Na,K もコロイド形態として検出されており,岩盤中に確認されたSiO2に起因するコロイドの存在や,あるいはイオンがコロイドに収着して見かけ上コロイド化していることが推測される。

一方,この溶液中に存在する粒子のゼータ電位を電気泳動法で測定した結果を表 3.5-5 に示す。コロイドの主成分の1つとして,上述のように炭酸カルシウムの形態が推定されるが,その電位は-9mV 程度であった。炭酸カルシウムに関するゼータ電位としては,pH8.5 で 5mV,pH9 で-10mV 程度との報告値が見られるが 5),ここでの測定結果は概ね整合しているものと思われる。コロイドを形成しやすいと考えられる鉱物,例えばシリカのゼータ電位は中性領域の液中で-60~-70mV 程度,粘土鉱物であるモンモリロナイトのそれは-30~-40mV 程度であることが報告されており 6),これらと比較すると炭酸カルシウムの測定値は電気的に中性に近いことがわかる。ゼータ電位が 0mVに近いと,粒子間の電気的反発力が小さいことが推定される。したがって,ここで確認された炭酸カルシウムと考えられるコロイドは,シリカやモンモリロナイトといった鉱

# JNC TJ8400 2003-024

物よりも,コロイドとしての分散安定性は低いと考えられ,凝集を起こしやすいことが 推測される。

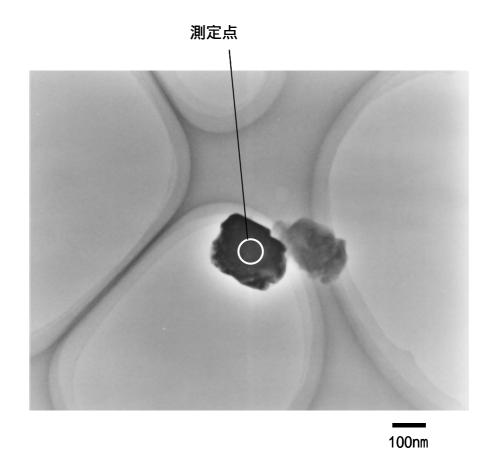


図 3.5-9 地下水中コロイドの TEM 観察結果(マイクログリッド上に捕捉された粒子)

表 3.5-5 ゼータ電位の測定結果

測定項目	測定値
ゼータ電位	-9 mV

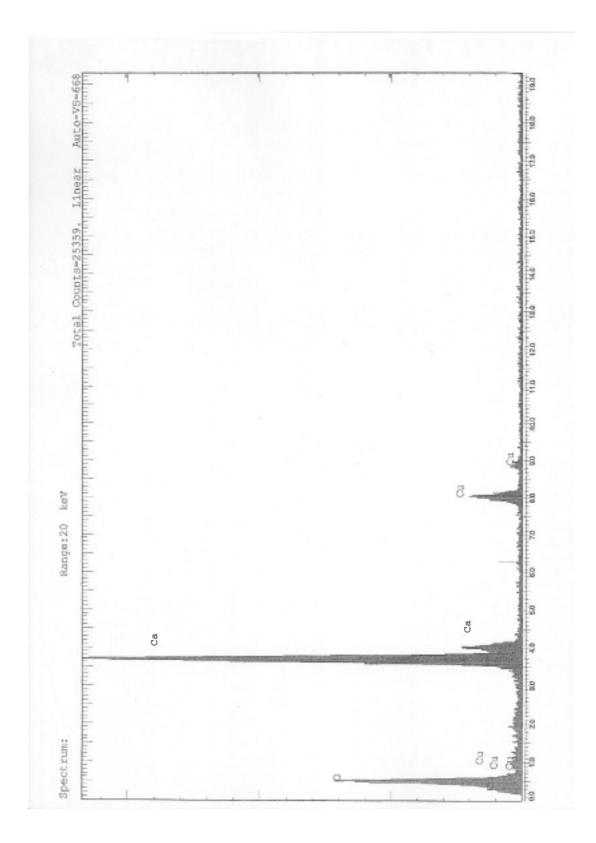


図3.5-10 地下水中コロイドのEDX分析結果

# 3.6 地下水条件の補完処置の結果

# 3.6.1 地下水の水質に関する検討

地下水の水質は降水が地下に浸透し、土壌や岩石中に含まれる種々の成分と反応する過程において形成される。したがって地下水が浸透する地質媒体について、十分な知見が得られれば、水質の形成機構についても予測することは可能であると考えられる。今回の採水では、地下水採取場所付近についての詳細な地質学的情報や、あるいは溶存ガスに関するデータは得られていない。よって、限られた情報や仮定をふまえた検討ではあるが、地下水水質に関する以下の評価を行ってみた。

まず大気中でのガス・水反応としては,降水(純水)が大気中に含まれる炭酸ガスを吸収することによって炭酸濃度および pH が変化し,さらに酸素を吸収する過程を考える。大気と平衡になった水の炭酸および酸素分圧は, $PCO_2=10^{-3.5}atm$ , $PO_2=10^{-0.7}atm$ である。

今回の地下水試料には酸化・還元条件に依存する Fe は,分析機器の検出感度上 (>0.1 mg/l)検出されなかったが,炭酸濃度の影響を顕著に受ける Ca については,主要な溶存イオンとして確認された。そこで次のプロセスとして,土壌中で炭酸分圧が高くなる過程を想定した。ただし,今回の採水では,土壌中のガス濃度に関するデータは取得されていないので,ここでは  $PCO_2 = 10^{-1.0} atm$  と仮定した。また岩盤中に含まれる鉱物としては,今回採水を実施した地点の岩層である輝緑凝灰岩が一般的に含むとされる,緑泥石,緑レン石,曹長石,方解石と,坑道で採取した岩石の XRD 分析により同定された石英を想定し,これらの鉱物と水との反応が溶解平衡に達することを仮定した。

今回実施したように地下坑道で採水を行う場合は,地下水が坑道に至るまでに大気開放(炭酸の脱ガス)される過程が考えられる。そこで地下水と平衡となる炭酸分圧を $PCO_2 = 10^{-1.0}$ atm から  $10^{-6.0}$ atm まで低下する過程を模擬した。(大気平衡を仮定すれば,炭酸分圧は  $PCO_2 = 10^{-3.5}$ atm となるが,今回の試験では雰囲気制御ボックス内での作業も実施しているので,それより低い分圧での影響も検討した。) その際,析出する可能性がある固相として,Ca は方解石(Ca は硫酸塩も比較的溶解性が低く,固相を形成しやすい性質を有するので石こうについても,別途検討を加えた。),Mg は苦灰石,Si は石英を想定し,溶解度制限固相としている(図 3.6-1 の模式図を参照)。

JNC-TDB  $^{70}$ を熱力学データとして用い、地球化学計算コード Phreeqc で計算した、 炭酸分圧の変化とそれに伴う pH の変化の関係を図 3.6-2 に、またその際に起きる主要 な溶存イオンの濃度変化との関係を図 3.6-3 にそれぞれ図示する。図 3.6-2 より,炭酸分圧が高いことを仮定した原位置条件では pH が小さいが,大気開放により炭酸分圧が低下する過程において,pH はアルカリ側に移行することが示唆された。この炭酸分圧と pH 変化(あるいは,炭酸イオン濃度の変化)の関係は,炭酸カルシウムの溶解性と関連している。

 $Ca^{2+} + 2HCO_{3-} = CaCO_3 + CO_2 + H_2O$ 

また,Ca については方解石との平衡を想定したこの予測結果に基づけば,大気開放された状態( $PCO_2 = 10^{-3.5}atm$ )では,地下水は pH8.4 程度を示すことが予測される。表 3.5-2 に示したように,採水を実施した時点での地下水は pH7.6 であり,大気平衡よりも炭酸分圧が高い状態を保持していることが考えられる。このことより採水時点の地下水については,原位置における地下水と大気平衡に達した地下水との中間的な性質を有するものと考えられる。また採水を行う作業上の知見としては,地下水が大気開放されても,炭酸濃度に関しては瞬時に大気平衡の状態に推移しないことが示唆される。図 3.6-3 の pH 変化とそれによる主要溶存イオンの濃度変化との関係を示した図には,表 3.5-2 に示した現地採取地下水の分析値も併せて示している。方解石,苦灰石,石英を溶解度制限固相として想定した場合,Ca と Si に関しては過飽和,Mg に関しては未飽和の傾向を示している。このことより Ca や Si に関しては,固相を析出したりあるいは条件によってはコロイド形成し得ることが推測される。

一方, 図 3.6-4 は上述の過程において, Ca の溶解度を制限する固相を方解石ではなく石こうとして想定した結果である。Ca については硫酸塩も比較的溶解性が低く,固相を形成しやすい性質を有すると考えられるが,この結果からわかるように,硫酸カルシウムと平衡に達した場合のCa濃度は,実測値よりもオーダーで大きいことが予想され,ここでの溶液系において溶解度を規定する固相とはなり得ないことがわかる。このことからも,本地下水における Ca 濃度は,炭酸カルシウムとの平衡に支配されていることが示唆される。

今回の地下水採取では、原位置における溶存ガスに関するデータは取得されていない。 しかし上述の pH 測定での知見から,原位置では大気下よりも炭酸分圧が高い環境にあったことが推測される。ここでは主要成分である Ca の濃度(1.7E-3M,68mg/l)が, 方解石と平衡となることが予測される条件(pH7.2, $PCO_2=10^{-2}atm$  相当)を,採水地下水における原位置の環境として仮定した。炭酸分圧を補完処置した試験では,炭酸ガ

スを 1%含有したものを使用したが,これは上述の推定に基づく。予測計算にしたがうと,これよりも炭酸分圧を増加させた条件では,Ca についても未飽和の状態を形成することになる。そのため,試験上の補完処置として地下水を飽和ないし過飽和にするためには,炭酸カルシウムを別途添加する必要が生じ,溶液の組成を煩雑にすることが懸念された。そこで今回の試験では,採水した試料の地下水組成に基づいて,飽和状態まで炭酸分圧を増加させることを補完処置とした。

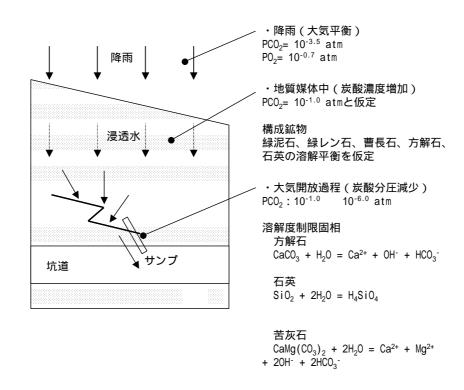


図 3.6-1 地下水水質形成の模式図

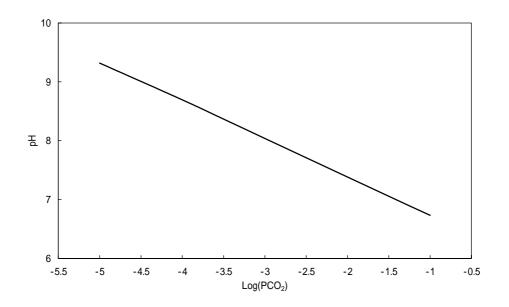


図 3.6-2 炭酸分圧の変化とそれに伴う pH 変化の関係

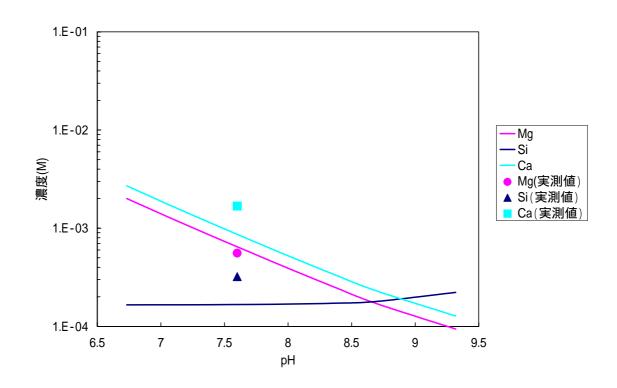


図 3.6-3 炭酸分圧による pH 変化とそれによる主要溶存イオンの濃度変化との関係

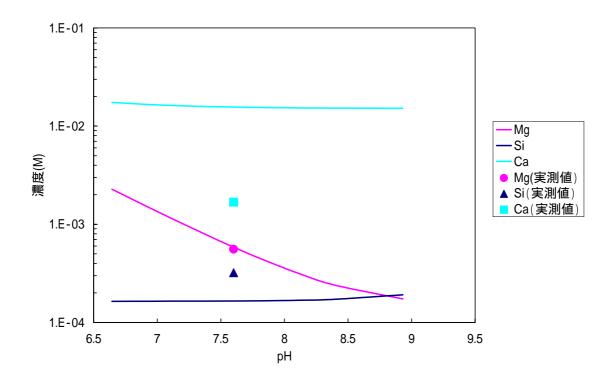


図 3.6-4 固相に硫酸カルシウムを想定した場合の濃度変化

# 3.6.2 還元雰囲気に配慮した地下水の補完処置結果

原位置環境における地下水中のコロイドの特性を復元させるための処置として、大気 下で採取した地下水試料を雰囲気制御ボックス内で脱気し、溶存酸素を除去することに よって、溶液を嫌気性に戻す操作を行った。バブリングによる脱気直後の地下水試料の 分析結果を表 3.6-1 に示す。分画する前の地下水試料の成分濃度分析結果(地下水成分 の欄に表示)について,表 3.5-2 の処置前の結果と比較すると, Ca の濃度が 68mg/l か ら 29mg/l に減少し, それに伴い pH も 7.6 から 9.2 へと増加したことが分かる。これは 図 3.6-2 および図 3.6-3 に示したように Ar 雰囲気制御ボックス内で地下水をバブリン グしたことにより気相の炭酸分圧が減少し、それにより pH の増加および Ca の溶解度 の減少が起きたためと考えられる。なお表 3.6-1 に示したように ,この操作によって Ca についてはコロイド状成分に相当する濃度が若干増加する傾向が見られたが,濃度減少 に相当する Ca(約 40mg/l)は容器壁面に付着していたことが,試験後の容器壁を酸に よって洗浄し,この洗浄液中の Ca 濃度を分析することによって確認された。よってこ こでの補完処置では、酸素分圧だけではなく炭酸分圧も低い嫌気性の雰囲気に調整した ことにより,カルシウムが関与する化学種が析出したと考えられる。ただし,炭酸分圧 の減少によって Ca の溶解性が減少しても、コロイドとしての安定な分散状態は形成し にくく、比較的速やかに沈殿や沈着を析出することが推測された。これはゼータ電位の 測定(表 3.5-5)において上述したように,炭酸カルシウムと推定される化学種につい てはゼータ電位が電気的に中性に近く 5),凝集を起こしやすいという考察と整合してい る。

なお,表 3.6-2 および図 3.6-5 にバブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布を,

表 3.6-3 および図 3.6-6 にバブリング 1 週間後のそれをそれぞれ示す。1 週間経過することにより、Ca については粒径の大きい粒子の濃度が若干減少する傾向が見られるが、これは分布が低粒径側に推移したというより、固相の析出により浮遊成分自体の濃度が減少したためと考えられる。一方、Si 成分については、本操作において全体としての濃度に顕著な変化は見られていない。

還元雰囲気に配慮するための地下水の補完処置として,ここでは嫌気性ガスによる脱気を行った。しかしながら,酸素や炭酸分圧を低下させたことに起因してカルシウムに

### JNC TJ8400 2003-024

関与する化学種の析出が生じてしまい,必ずしも原位置を模擬した環境に復元することはできなかった。今回用いた地下水試料は,酸化・還元雰囲気に依存する Fe は分析感度上確認できず,その一方で Ca は主成分として含まれることから補完処置に伴う溶解性の変化を追跡してみた。 3.6.1 で上述したように,主要な析出物として炭酸カルシウムが想定される場合は,炭酸分圧に配慮した地下水環境の補完処置が必要であると考えられ,次項ではこの点に着目して試験を実施した。

表 3.6-1 還元雰囲気を補完処置した地下水試料の分析結果

	地下水成分(mg/l)	イオン状成分*1 (mg/l)	□小˙ 状成分*² (mg/l)	コロイド状成分の割 合*³ (wt.%)
Na	5.7E+00	5.5E+00	1.6E-01	3
Mg	1.4E+01	1.3E+01	2.3E-01	2
Si	9.1E+00	8.4E+00	6.5E-01	7
K	4.1E+00	3.8E+00	3.2.E-01	8
Ca	2.9E+01	2.7E+01	2.7E+00	9
pН	9.2	-	-	-
Eh	340mV	-	-	-

検出限界以下; Fe ( < 0.1 mg/l ), Al ( < 0.1 mg/l )

表 3.6-2 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l):バブリング直後

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	5.0E-02	N.D.	5.0E-02	6.0E-02	N.D.
Mg	7.0E-02	N.D.	8.0E-02	N.D.	8.0E-02
Si	4.1E-01	N.D.	1.4E-01	1.0E-01	N.D.
K	6.0E-02	1.4E-01	N.D.	1.2E-01	N.D.
Ca	1.5E+00	4.6E-01	N.D.	4.7E-01	2.6E-01

N.D.: 検出限界以下

<sup>\*1: &</sup>lt; 1.5 nm の成分

<sup>\*2:</sup> コロイド状成分=地下水成分-イオン状成分

<sup>\*3:</sup> コロイド状成分の割合 = コロイド状成分 / 地下水成分

表 3.6-3 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l): バブリング 1 週間後

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	6.0E-02	7.0E-02	N.D.	7.0E-02	1.0E-02
Mg	1.2E-01	N.D.	1.0E-01	N.D.	9.0E-02
Si	1.7E-01	1.8E-01	N.D.	3.0E-01	N.D.
K	2.3E-01	N.D.	5.0E-02	3.0E-02	N.D.
Ca	8.5E-01	N.D.	1.3E-01	2.0E-01	N.D.

N.D.: 検出限界以下

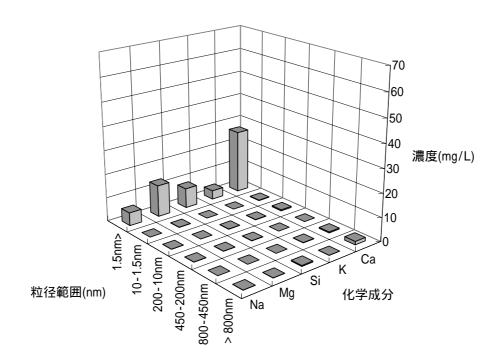


図 3.6-5 バブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

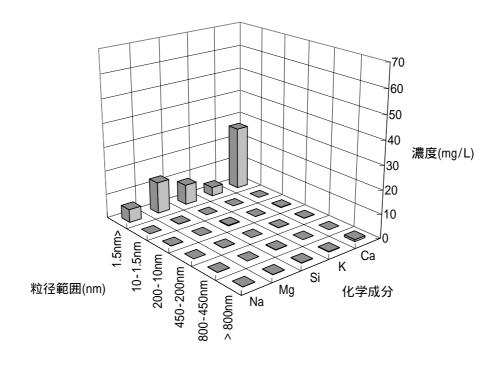


図 3.6-6 バブリング 1 週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

# 3.6.3 炭酸分圧に配慮した地下水の補完処置結果

原位置環境における地下水中のコロイドの特性を復元させるための処置として,大気よりも炭酸濃度が高いガス(1%)を用いることによって,溶液と平衡となる炭酸分圧を増加させる処置を行った。 $1\%CO_2$  ガスによるバブリング直後の地下水試料の分析結果を表 3.6-4 に示す。表 3.5-2 の補完処置前の分析結果と比較すると,特に液組成には大きな変化は見られなかったが,pH については 7.6 から 7.3 へと若干酸性側へ変化した。これは図 3.6-2 に示したように,炭酸分圧を大気環境から 1% ( $PCO_2 = 10^{-2}$ atm)まで増加させた影響と考えられ, $1\%CO_2$  ガスと平衡状態にある試料の pH 値 (7.3)も,炭酸カルシウムとの平衡を想定した予測計算結果とほぼ一致している。

余剰の地下水については、1%CO₂ガスによるバブリングを終了した後、大気下で系を開放した。大気と接触した状態で1日静置した段階ではpH=8.0程度に推移したが、これをさらに大気でバブリングするとpH=8.5まで増加した。このことから、炭酸に関して高分圧下の環境に存在する地下水の大気環境への平衡の推移は、瞬時には進行しないことが考えられる。地下坑道における採水作業でも同様の挙動が考えられ、地下水が原位置から坑道に至るまでの過程で大気に開放されるが、炭酸分圧に関しては大気と接触しても瞬時的には平衡状態には達しないものと推測される。

なお,表 3.6-5 および図 3.6-7 に 1%CO2 ガスによるバブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布を示す。また 表 3.6-6 には大気によるバブリングを実施した後の地下水試料の分析結果を,表 3.6-7 および図 3.6-8 には大気平衡時のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布を示す。これより 1%CO2 ガスによる原位置として仮定した平衡状態から,大気による平衡状態まで炭酸分圧を低下させても,液組成に顕著な変化は見られなかった。またここでの炭酸分圧の減少の過程では,地下水中の Ca イオンの濃度もほとんど変化が見られず,炭酸塩鉱物の沈殿の析出やコロイドの生成は起こらないことが確認された。これは採水地下水の分析結果と同様に,Ca に対し過飽和の状態を維持していることが考えられる。炭酸分圧の減少程度にも依存すると思われるが,このことから炭酸の脱ガスが発生しても,必ずしも炭酸塩の析出は伴わないことが考えられる。

また,浮遊成分の構成元素である Si についても,炭酸分圧の変化に伴う顕著な濃度変化は確認されていない。これは図 3.6-3 に示したように,今回の試験における pH 変化

# JNC TJ8400 2003-024

の範囲 (7.3~8.5)では,石英を仮定した Si の溶解度はほぼ一定しており,炭酸分圧変化の影響は受けにくいことが考えられる。

表 3.6-4 炭酸分圧を補完処置した地下水試料の分析結果

	地下水成分(mg/l)	イオン状成分*1 (mg/l)	コロイド状成分*² (mg/l)	コロイド状成分の割 合*³(wt.%)
Na	5.6E+00	5.4E+00	2.8E-01	5
Mg	1.4E+01	1.3E+01	2.6E-01	2
Si	9.0E+00	8.4E+00	5.7E-01	6
K	4.2E+00	3.8E+00	3.8E-01	9
Ca	6.9E+01	6.7E+01	1.5E+00	2
pН	7.3	-	-	-

検出限界以下; Fe ( < 0.1 mg/l ), Al ( < 0.1 mg/l )

表 3.6-5 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l): 1%CO2 によるバブリング直後

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	1.9E-01	8.0E-02	N.D.	1.0E-02	N.D.
Mg	2.0E-02	2.0E-02	3.0E-02	2.0E-02	1.7E-01
Si	1.9E-01	1.2E-01	1.7E-01	N.D.	9.0E-02
K	1.0E-01	7.0E-02	1.1E-01	N.D.	1.0E-01
Ca	9.0E-01	N.D.	1.0E-01	5.0E-01	N.D.

N.D.: 検出限界以下

<sup>\*1: &</sup>lt; 1.5 nm の成分

<sup>\*2:</sup> コロイド状成分 = 地下水成分 - イオン状成分

<sup>\*3:</sup> コロイド状成分の割合=コロイド状成分/地下水成分

表 3.6-6 大気平衡に保持した地下水試料の分析結果

	地下水成分(mg/l)	イオン状成分*1 (mg/l)	コイト・状成分*2 (mg/l)	コロイド状成分の割 合*³(wt.%)
Na	5.6E+00	5.3E+00	2.5E-01	5
Mg	1.4E+01	1.3E+01	3.3E-01	2
Si	9.1E+00	8.4E+00	7.0E-01	8
K	4.1E+00	3.8E+00	2.8E-01	7
Ca	6.8E+01	6.7E+01	1.7E+00	3
pН	8.5	-	-	-

検出限界以下; Fe ( < 0.1 mg/l ), Al ( < 0.1 mg/l )

表 3.6-7 コロイド成分の各粒径範囲での濃度値(mg/l):大気バブリング後

	> 800 nm	800 ~ 450 nm	450 ~ 200 nm	200 ~ 10 nm	10 ~ 1.5 nm
Na	8.0E-02	6.0E-02	N.D.	6.0E-02	5.0E-02
Mg	8.0E-02	4.0E-02	6.0E-02	N.D.	1.5E-01
Si	3.5E-01	2.2E-01	3.0E-02	N.D.	1.0E-01
K	1.5E-01	N.D.	3.0E-02	1.0E-01	N.D.
Ca	8.0E-01	6.2E-01	N.D.	2.2E-01	6.0E-02

N.D.: 検出限界以下

<sup>\*1: &</sup>lt; 1.5 nm の成分

<sup>\*2:</sup> コロイド状成分 = 地下水成分 - イオン状成分

<sup>\*3:</sup> コロイド状成分の割合=コロイド状成分/地下水成分

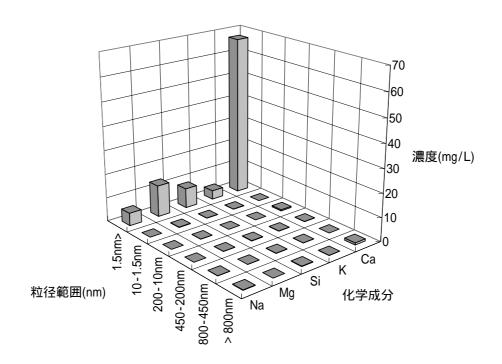


図 3.6-7 バブリング直後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

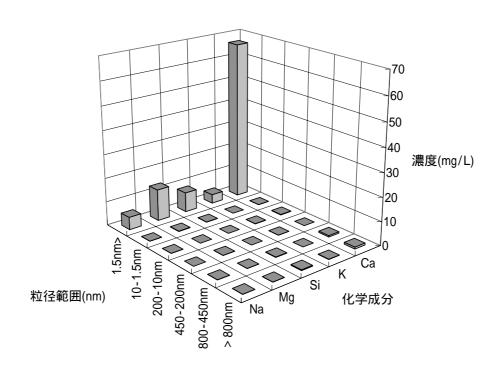


図 3.6-8 バブリング 1 週間後のコロイド成分の各粒径範囲での濃度分布

## 3.6.4 地下水の補完処置に関するまとめ

明延鉱山の坑道において大気下で採取した地下水試料に対して,原位置の環境を想定した条件に地下水試料を復元,補完する処置を試行した。また,原位置環境への補完処置やそれが大気開放されることに伴う,沈殿やコロイドの生成といった挙動についても,地下水組成に関する平衡計算による予測を交えて考察してみた。

本鉱山で採取された地下水中には,酸化・還元雰囲気に影響される Fe は感度上検出 されなかったが,その一方で炭酸分圧に依存する Ca および炭酸イオンは主要成分とし て含まれていることが確認され、Caの溶解および析出挙動は炭酸カルシウムとの平衡反 応に影響されていることが推測された。図 3.6-9 には炭酸カルシウムとの平衡を仮定し た場合での,地下水中で予測される Ca 濃度と,実際の試料の測定値との関係を示して いる。炭酸分圧の高い環境から順に,原位置環境を仮定した 1%CO2 雰囲気下での地下 水,現地で採水した地下水,大気でバブリングした地下水および雰囲気制御ボックス内 でバブリングし大気下よりもさらに炭酸を脱ガスした地下水について,各々の実測値を 示している。これから分かるように、1%CO2雰囲気下で炭酸カルシウムについて飽和し ていると想定された地下水は、採水時あるいは大気とバブリングを行って平衡を保つよ うな操作を行っても,予測から想定される濃度まで Ca 濃度は減少しなかった。炭酸カ ルシウムは条件によっては過飽和状態を保つことが指摘されており 8), 本地下水試料に ついても飽和状態までの速やかな濃度減少は起きなかったことが推察される。一方,嫌 気性雰囲気を復元するために実施した雰囲気制御ボックス内でのバブリング操作では、 酸素とともに炭酸についても大気濃度以下まで脱ガスされたと考えられる。その結果, 過飽和の状態は保っているものの , Ca 濃度の減少は確認された。この濃度減少分の Ca は容器壁に沈着していることが確認され、コロイドのような分散状態は形成しずらいこ とが推定された。炭酸カルシウムと推定される浮遊物の表面は、ゼータ電位が電気的に 中性に近いことが確認されており、コロイドとしての分散安定性は保ちにくいことが示 唆されている。このように、原位置地下水から炭酸の脱ガスが起こり、炭酸カルシウム が生成したとしても,コロイド形態として安定に分散することは起こりにくいと思われ る。

またこれらの操作の過程において、Si については浮遊物成分の量に顕著な変化は見られなかった。これはシリカに関しては酸化・還元雰囲気に影響されにくいこと、また本

# JNC TJ8400 2003-024

試験での炭酸分圧の変化に伴う pH 変化の範囲では、溶解性があまり変化しないことに起因しているものと思われる。

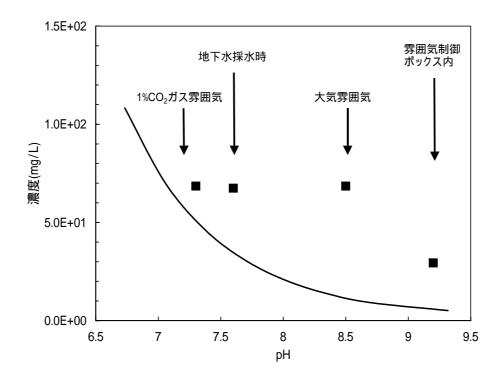


図 3.6-9 炭酸カルシウムを溶解度制限固相としたときの Ca 濃度の計算値と地下水試料の実測値の関係

## 3.7 地下水の採水手法に関する検討

地下水中に存在するコロイドは地下水の流れの変化や水質の化学的変化の影響によって 特性が変化することが考えられる。ここでは報告されている調査手法や,今回の研究で得 られた知見を参考にしながら,擾乱の影響を低減させる採水手法や特性評価において留意 すべき点について考察を加えた。

# 3.7.1 地下水流れの擾乱影響の低減

図 3.2-1 に示したように、大気と接触させずに地下水試料を採取するためには、一般的には試錐孔や試錐井を掘削し、採水管を設置することが行われている。しかしこのような人為的な処置を施すことによって、地下水の流れが擾乱し、岩盤の浸食や充填鉱物の再分散等の影響によってコロイド成分が増加することも考えられる。また掘削を実施する際には、ドリルの潤滑のためにスラリー等が用いられることがあり、これも地下水を汚染する要因となることが考えられる。採水管やケーシング等についても腐食生成物による汚染を防ぐために、ステンレス等の耐食性の高い材質や、あるいは強度が必要でなければテフロン等の有機材質を用いることが適当であるとされている。

これらの人為的な擾乱は,採水設備を設置した後,長期間静置することによって,自然回復することが期待される。海外での地下水コロイドの調査でも(Leuggern Site, Switzerland),3ヶ月程度経過させることによってコロイド濃度が減少したことが報告されている。地下水水質やコロイド濃度が安定化するまでの期間は,周辺地質や地下水流量,あるいは試錐孔や採水管の設置状況等にも依存すると考えられが,経時的に十分な地下水の湧出が得られる場合には,設備の設置後,数日間~数ヶ月程度の期間を経過させてから試料の採取を行うことが擾乱影響を低減するための処置として好ましいと考えられる。

また,試錐孔や試錐井から地下水をポンプで汲み出して採取する場合は,流量によっては地下水の滞留状態に影響を及ぼすことが考えられる。地下水を汲み出す流量が,例えば数 l/min をこえるようなケースでは,沈降成分が浮遊し懸濁成分の濃度を増加させるとの指摘も見られる。したがって,地下水を汲み出しによって採取する際には,低流量を確保する配慮が必要と考えられる。2)

# 3.7.2 地下水水質の変化が及ぼす影響

地下水のイオン強度の低下や主要イオンの組成変化(例えば、水質が深度とともに Ca²+ Na+に変化するような現象)、あるいは pH、Ehや炭酸分圧が変化することは、コロイドが生成したりあるいは地下水中でのコロイドの分散を容易にする要因になることが考えられる。このような地下水水質の変化によって化学種によっては過飽和の状態に達し、析出の過程でコロイドの生成を誘発することも考えられる。。 地下水採取の観点では、地質環境から大気環境へ開放されることに起因する接触気相の変化がコロイド特性に与える影響が想定される。大気開放に際し、地下水は酸化的条件に推移し、また炭酸ガスの脱ガス(およびそれに伴う pH の変化)が起きるものと考えられる。ここでは一般に地下水中に観察されている無機系のコロイドの数種(炭酸カルシウム、水酸化鉄()、石英、珪酸塩鉱物)について、地下水採取による環境変化に伴う挙動(主に溶解度変化の観点から)について考察してみた。

### 炭酸カルシウム

炭酸カルシウムは,今回調査を実施した地下水試料において主要なコロイド成分として確認された。Ca²+および HCO₃ に富む地下水では,本研究での検討のように炭酸ガスが脱ガスされることにより,以下の反応によって炭酸塩が生成することが考えられる。また,この反応では pH はアルカリ側に変化する。同様な挙動として,Ca²+や HCO₃を高濃度で含むかん水試料について,井戸による汲み出し後,採取容器内で経時的にCaCO₃ を沈殿する現象などが報告されている 90。

$$Ca^{2+} + 2HCO_{3} = CaCO_{3} + CO_{2} + H_{2}O$$

今回の検討では、強制的に脱ガスを行うことによって析出した Ca 成分はスケールとして容器壁に付着し、コロイド成分として安定に分散するような挙動は確認されなかった。コロイドに対する凝集能が高い 2 価カチオンに富む溶液であり、表面のゼータ電位も中性に近いので、水流等の物理的な擾乱により一時的にコロイドを形成したとしても、長期的な安定性は低いことが考えられる。原位置は炭酸分圧が高く、炭酸カルシウムの溶解度を増加させる方向に作用することを考慮すると、採取した地下水試料に確認される炭酸カルシウムのコロイドの量よりも、原位置ではより存在量が少ないことが推察される。

# 水酸化鉄()

原位置での酸素が少なく(還元雰囲気),炭酸ガスに富む(酸性側に影響)地下水環境では,溶存する Fe は  $Fe^{2+}$ の形態をとりやすいと考えられる。したがって,このような  $Fe^{2+}$ に富む地下水の場合も炭酸ガスが脱ガスすると,不溶性の水酸化鉄( )が生成することが考えられる  $^{10}$ 。(一般式としては, $Fe_2O_3 \cdot nH_2O$  で示すこともある。)このように Fe については,炭酸分圧,PH 及び PH 及び PH のいずれの要因についても影響を受けやすいと考えられ,また水酸化鉄( )はコロイドを形成しやすい性質を有している  $^{11}$ 0。

 $2Fe^{2+} + 4HCO_{3} + 1/2O_{2} + H_{2}O = 2Fe(OH)_{3} + 4CO_{2}$ 

今回の調査では Fe に関しては分析感度上で有意な量が検出されず,本事例での比較・検討は行えないが,上記の反応から推測すると,炭酸分圧が高く,酸素分圧が低い原位置での環境は,炭酸カルシウムの場合と類似して,水酸化鉄()の溶解度を増加させる方向に作用する。よって,大気開放下で採取した地下水試料に水酸化鉄のコロイドが確認されても,原位置でのコロイドとしての存在量はより少ない状況であることが推察される。

なお,地下水中に存在するコロイドの特性に関する事例調査の総論においても <sup>2, 12)</sup>, 上述の炭酸カルシウムおよび鉄水酸化物のコロイドが検出された事例については,地下 水採水時に人為的な影響で生成したことを示唆する記述が見られる。

# 石英, 珪酸塩鉱物

石英を仮定した場合の Si の溶解度は ,中性領域の水質ではほぼ一定していると考えられ(図 3.6-3 参照), 炭酸分圧や pH の変化の影響は受けにくいと思われる。よって溶解度変化の観点からは , 採水によるコロイドの生成は誘発されにくいことが推察される。また , 炭酸塩や鉄化合物は水質変化によって沈殿を生じやすい , 堆積性の鉱物に分類されるのに対し , 粘土鉱物等は長期的な反応によって生成する鉱物として考えられている(風化生成物)<sup>13)</sup>。短期間で終了する採水作業では , 上述した Ca や Fe を含むケースと比較して , 脱ガスによる溶解度変化の影響は受けにくいと思われる。ただし , 微細な粒子で構成される粘土等は , 地下水の流れによって懸濁しやすい性質があるので , 再分散を起こさないように留意する必要がある。

### 3.7.3 地下水採水手法に関する提案

地下水のサンプリングにおいては,現場において良好な状況で採水が行えるような場所の選定が重要であり,また現場の状況や調査目的によっても手法が変わってくることが考えられる。ここでは本研究のように,採水管程度の付帯設備を設置可能な状況にある坑道内での作業を想定して,コロイド特性評価のための地下水採水手法について考察を加えてまとめとする。

まず、坑道内部において地下水を大気と接触させず、しかも坑道の掘削による擾乱影響を極力低減して採水を行うためには、採水管等を坑道壁に設置することが望ましいと考えられる。掘削影響領域への配慮のため、可能であれば地層中における採水管の設置部分を大きくすることが望ましい。採水管の設置により、一時的に地下水に懸濁が生じる可能性があるので、設置後には静置期間をとってから採水を実施したほうがよい。今回の研究のように、予察的に地下水水質の経時変化等を把握しておけば、水質の定常性を判断できるものと思われる。

採水管からの地下水を大気と接触させずに回収するための配慮としては, $Ar + N_2$ といった不活性な気体で置換された容器にニードルやセプタムを介して採取したり,あるいはグローブボックス内で採水操作を実施する方法が一般に行われている。採水した地下水を用いて,別途,ろ過や収着試験等を実施する場合は,グローブボックス内で作業が行われるものと考えられる。しかし今回の調査で確認されたように,炭酸の脱ガスの影響を受けやすい地下水については,試料を $Ar + N_2$ 雰囲気に保つことにより炭酸塩等が析出し,かえって水質を変化させてしまう可能性があることが示唆された。このような水質の地下水に対して,極力,現地での化学的環境を復元して,採取地下水を用いた収着試験等を実施するためには,操作環境の炭酸濃度を制御することが重要であると考えられる。事前に地下水の分析を行い,今回の研究で検討したように炭酸塩鉱物等との平衡を想定した気相条件(主に炭酸分圧)について予測計算を行い,試験条件を設定するのも一法と考えられる。

また、地下水の水質やコロイドの特性は経時的に変化する可能性があるので、採水手法に留意するとともに、分析作業も極力早期に対処することが重要と思われる。特に酸化・還元条件は変化しやすいと考えられるので、現地でデータ取得を実施することが推奨されている。坑道内では作業上の制約があり、大がかりな分析作業は実施困難である

### JNC TJ8400 2003-024

と考えられるが,Eh 計による電位測定以外にも,例えば上述したように大気との接触影響を受けやすいと考えられる  $Fe^{2+}$ については,パックテスト(簡易水質検査器具)等を用いておおよその濃度を現地で確認することは可能であると考えられる(製品にもよるが,下限は  $0.1 \sim 2mg/l$  程度)。これらは,コロイドとしての寄与を考察する上で有用なデータとして活用できると思われる。

また,今回の研究では対象とされたコロイド(炭酸カルシウムと推定)が凝集しやすい性質を有していたが,経時的に粒径が増加する傾向が認められた。そのため分画操作等,粒径を確認するための試料の処置も早期に対処することが重要と考えられる。

### 4. コロイドを考慮した核種移行評価コードの整備

第2次取りまとめによると、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発におけるコロイドの影響を考慮した核種移行評価は、核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用を移流分散方程式中に組み込んだ Hwang らのモデル 14)に基づいて行われている。このモデルにおいては、核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用を瞬時平衡として取り扱っており、今後は信頼性向上を目的として速度論的影響を考慮する必要があるとしている。これに対して、近年、Hwang らのモデルを拡張し核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用について速度論を考慮して核種移行を計算する計算コード COLFRAC15)が、アメリカオハイオ州立大学において作成されている。

本研究においては、COLFRACを使用するためのガイダンスおよびトレーニングを実施しており、本章ではこれらの実施結果について取りまとめる。

# 4.1 多孔質媒体あるいは不連続亀裂-多孔質媒体におけるコロイドを考慮した核種移行 評価コードの位置付けについて

本研究では、地下水コロイドの核種移行への影響を検討するフローとコロイドを考慮した核種移行評価コードの位置付けは、図 4.1-1 のように表わされる。地下水系にコロイドが存在する場合、その安定性や可動性に関する評価が必要であるとともに、核種移行への影響評価を実施するために、これらのコロイドの特性が核種移行に及ぼす影響を定量的に取り扱う必要がある。

コロイドの安定性や可動性に関する研究においては,分配係数とコロイド粒径分布との 関連性や,得られた分配係数の濃度依存の傾向,その収着の可逆性や,コロイドの岩盤へ の収着性に関する情報は少ない。

また、Hwangのモデルのように、核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用を瞬時平衡として取り扱った場合は、比較的地下水の実流速が大きい亀裂中の核種移行において、核種イオンがコロイドに吸着し、ゆっくりと脱着する場合にみられるような、コロイドによる核種移行の促進を表わすことができない。

以上のように,コロイドの安定性,分配係数等の特性に関する知見が限られている現段階においては,Hwangのモデルのみならず,コロイドによる核種移行の促進の可能性を幅広く研究・評価することが重要である。具体的には,亀裂を含む媒体において,核種-

マトリクス,核種-亀裂表面,核種-コロイド,コロイド-亀裂表面相互作用について,瞬時平衡,速度論反応の両方を考慮できる物質移行評価を取り扱う計算コードを整備することが重要である。

本項では、上記のような地下水コロイドの核種移行に対する影響の定量的な評価に資するため核種イオン-コロイド-岩盤壁間の相互作用について速度論を取り扱うことができる物質輸送計算コードとして、COLFRACを取りあげる。

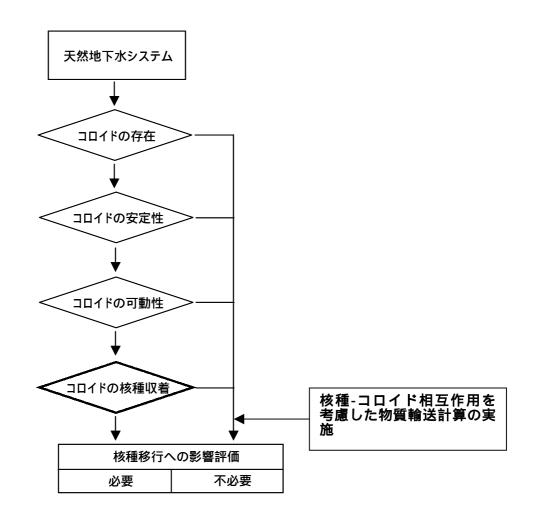


図 4.1-1 地下水コロイドの核種移行への影響に関する検討フロー

4.2 COLFRAC 導入のガイダンスについて

COLFRAC 導入のガイダンスでは,添付資料1に基づく概要説明の後,添付資料2によるトレーニングが実施された(当該資料の公開可能)。

4.2.1 ガイダンスの日時および場所

日時 平成14年9月18日

場所 核燃料サイクル開発機構東海事業所ENTRY施設 301 会議室

4.2.2 スケジュール

10:00 ~ 12:00 COLFRAC に関するガイダンス

13:00 ~ 17:00 COLFRAC のトレーニング

# 4.2.3 ガイダンスおよびトレーニングに用いた資料

- (1) COLFRAC に関するガイダンス OHP 資料 ガイダンスにおいて用いられた OHP 資料を添付資料 1 として示す。
- (2) COLFRAC Short Course Exercise

  COLFRAC のトレーニングにおいて用いられた練習問題および解答例を添付資料 2 に示す。
- (3) COLFRAC ユーザーズガイド(仮訳版)参考のため, COLFRAC のユーザーズガイド(Ver.0.1)の日本語仮訳版を添付資料3 に示す。

# 5. おわりに

本研究から得られた結果を,以下にまとめる。

# 5.1 核種移行に与える地下水中の天然コロイドの特性評価方法の整備

休鉱山の管理坑道を採水場所として,地下水試料中に含まれるコロイド成分の確認を行った。地下水の採取は,岩盤亀裂部に採水管を設置して実施した。採水管設置による一時的な懸濁の発生の影響を排除するため,設置の約 50 日後に採水を行った。また,採水管にチューブと採水容器を接続することにより,地下水が大気と接触しなような配慮を行った。

地下水試料については,種々の孔径のフィルタを用いて分画し,それぞれのろ液について成分濃度を測定した。測定対象元素のなかで,最もコロイド領域での溶存量が多かったのは Ca であり,またコロイド領域での無機炭素も確認されたので,炭酸塩の形態での溶存が考えられる。TEM/EDX による状態観察でも,主に Ca を含む数 100nm の粒子が観察され,この考察を支持するものであった。ただし,この粒子のゼータ電位は-9mV 程度の電気的に中性に近い値であるので,凝集は起こりやすいものと考えられる。(炭酸カルシウムのゼータ電位としも,5mV や-10mV 程度の報告値が見られる 5)。)

今回採水を行った地点は、鉱山における輝緑凝灰岩層に属する。この岩種は一般に方解石を含んでおり、採取地下水についても Ca-HCO3 が支配的な溶存種であった。このように母岩を構成する岩種は地下水組成だけでなく、そこに存在するコロイドの種類にも影響を与えることが考えられる。

本研究で採取した地下水中には,主要なコロイド成分として炭酸カルシウムが想定されたが,このような炭酸塩は炭酸分圧の変化によって,溶解・析出挙動に影響が生じることが考えられる。原位置環境を復元するための補完処置の一環として,炭酸分圧を変化させたときの地下水組成の確認を行った。採水における脱ガスの過程を模擬するために,炭酸カルシウムに対してほぼ飽和する条件に炭酸分圧を調整し,その後,これを大気平衡まで低下させる操作を行ったが、溶液は過飽和の状態を維持した。雰囲気制御ボックス内での,さらに脱ガスされた環境では Ca の容器壁への析出が生じ,相当する溶液中での Ca 濃度の減少が認められた。コロイド成分の安定な生成は起こりにくかったと考えられ,これは上述したように,炭酸カルシウムはゼータ電位が中性に近く,コロイドとしての分散性が低いことに起因していると推測される。一方,これらの雰囲気の変化に依存しない Si に関

### JNC TJ8400 2003-024

しては、上述の操作において、顕著な濃度変化は見られなかった。

このように対象となるコロイドの種類によって,地下水の処置方法も異なることが考えられるので,種々の組成の地下水に対して適正な補完処置を講じられるよう,手法を整備しておくことが,今後の課題と考えられる。

# 5.2 コロイドを考慮した核種移行評価コードの整備

地下水コロイドが核種移行に与える影響を定量的に評価するため,核種イオン-コロイド -岩盤壁間の相互作用について速度論を取り扱うことができる物質輸送計算コードとして, COLFRAC を取りあげた。COLFRAC 導入のためのガイダンスの実施や,ユーザーズガイドの整備などを行った。

# 6. 参考文献

- 1) 上田真三,黒澤進: "地下水中に存在するコロイドの特性評価に関する研究", JNC TJ8400 2001-052, (2002)
- 2) J. McCarty, C. Degueldre: Sampling and Characterization of Colloids and Particles in Groundwater for studying their Role in Contaminant Transport, Lewis Publishers, (1993)
  - 3) 福岡正巳 他:地下水ハンドブック,建設産業調査会,p.136(1983)
- 4) C. Degueldre et al.: "Colloid Properties in Granitic Groundwater Systems. I: Sampling and Characterization", Appl. Geochem., Vol.11, pp.677-695 (1996)
- 5) 赤峰賢一 ,樫木勇:"海水中における石灰質膜の電着機構",石川島播磨技報, Vol.43, No.1, pp.27-33 (2003)
- 6) Rheological and Electrokinetic Properties of Sodium Montmorillonite Suspensions", J. Colloid Interface Sci., Vol.229, pp.107-117 (2000)
- 7) M. Yui et al.: "JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System", JNC TN8400 99-070, (1999)
  - 8) K. Krauskopf, D. Bird: Introduction to Geochemistry, McGraw-Hill, Inc., (1995)
  - 9) 本島公司 他:地下水・温泉の分析,講談社サイエンティフィック, p.100(1975)
  - 10) 福岡正巳 他:地下水ハンドブック,建設産業調査会,p.142(1983)
  - 11) 足立泰久,岩田進午:土のコロイド現象,学会出版センター,p.51(2003)
- 12) C. Degueldre et al.: "Groundwater Colloid Properties: A Global Approach", Appl. Geochem., Vol.15, pp.1043-1051 (2000)
  - 13) 例えば, 岸本 文夫 訳:地球化学原論, 現代工学社, p.272 (1983)
- 14) Y. Hwang et al.: "Analytical Studies of Colloid Transport in Fractured Porous Media", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.176, pp.599-605 (1990)
- 15) M. Ibaraki and E. Sudicky: "Colloid-facilitated Contaminant Transport in Discretely Fractured Porous Media", Water Resour. Res., Vol.31, No.12, pp.2945-2960 (1995)

# 添付資料-1

COLFRAC のガイダンスにおいて用いられた OHP

# COLFRAC: An Efficient Numerical Model to Simulate Colloid-Facilitated Solute Transport in DiscretelyFractured Porous Media

Motomu Ibaraki
Department of Geological Sciences
The Ohio State University



# Yucca Mountain Project

- The U.S. DOE is studying Yucca Mountain, Nevada
- To determine if it's a suitable place to build a geologic repository for the spent nuclear fuel and high-level radioactive waste

2

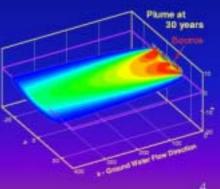
# Yucca Mountain Project

- · The project involves extensive scientific study on Yucca Mountain's geology, hydrology, biology, and climate
- · Numerical studies on potential migration of contaminant from the repository



# Traditional Approach for **Contaminant Migration**

· Reactive contaminant migration is retarded because contaminant will be sorbed on solids



# Two-Phase Approach for Contaminant Migration

- Contaminant partition between an immobile solid phase and a mobile aqueous phase
  - Reactive contaminant migration is retarded because sorbed solid phase is immobile
  - What will happen if solid phase is mobile?

5

# **Mobile Solid Phase?**

- Colloids exist in ground-water
- e.g., clay particles, humic substances, radionuclides
- Originate not only from contaminant sources, but also from geological and biological processes
- They sorb contaminants

é

# Colloid Migration from High-Level Nuclear Waste Glass

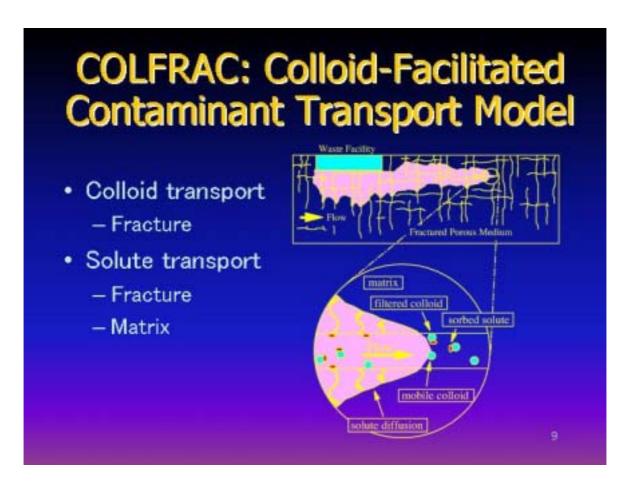
- Bates JK et al. (1992)
  - Insoluble plutonium- and americiumbearing colloidal particles formed during simulated weathering
  - Nearly 100 percent of the total plutonium and americium in test ground water was concentrated in these submicrometer particles

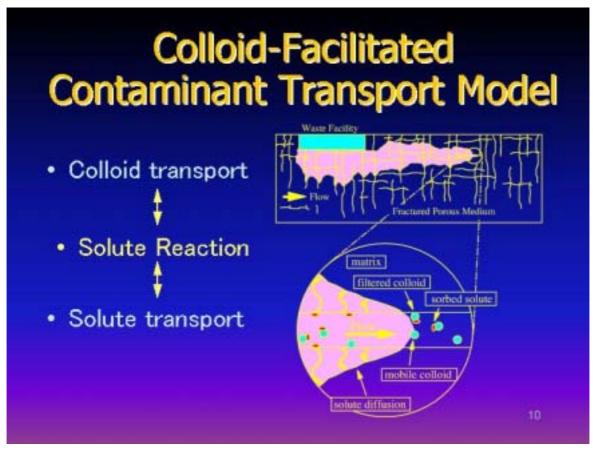
7

# Colloid Transport in Discretely-Fractured Porous Media

- JNC
- Supported by Department of Energy and Oakridge National Laboratory (Lockheed Martin Corp 19X-SX063V)
- Sandia National Lab

8





# Numerical Codes for Colloid-Facilitated Radionuclide Transport

- COLFRAC (Ibaraki and Sudicky, 1995)
- Yucca Mountain
- Hwang's model (Hwang, et al., 1990)

-11

# Feature Differences between Numerical Codes - Fracture

- COLFRAC (Ibaraki and Sudicky, 1995)
  - Discrete fracture networks
- Yucca Mountain
  - Single fracture
- Hwang's model (Hwang, et al., 1990)
  - Single fracture

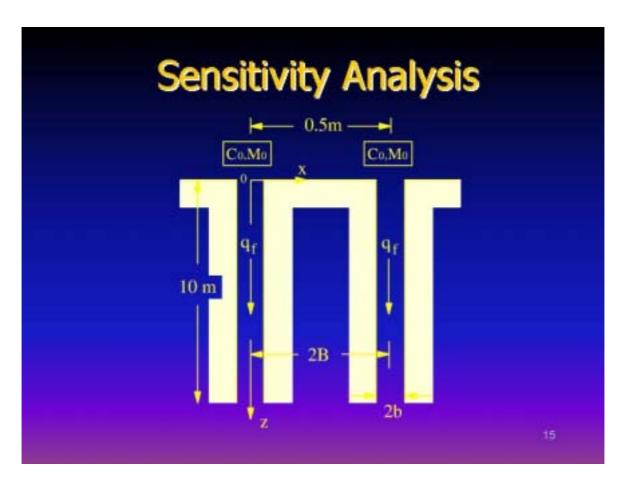
# Feature Differences between Numerical Codes - Sorption

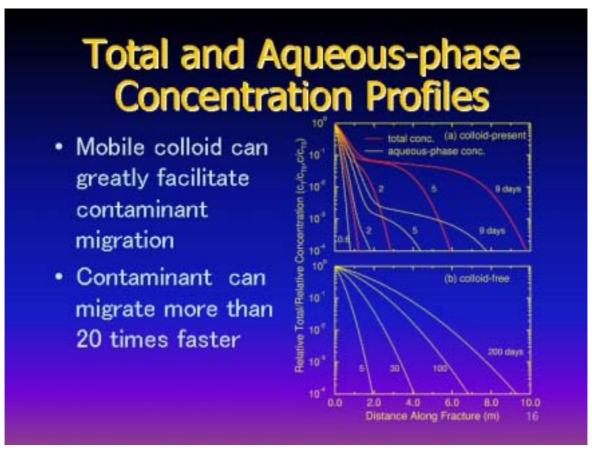
- COLFRAC
  - Both equilibrium and kinetic reactions with reversible/irreversible
- Yucca Mountain
  - Irreversible only -> can create a "extremely" conservative scenario
- · Hwang' Model
  - Equilibrium reaction only

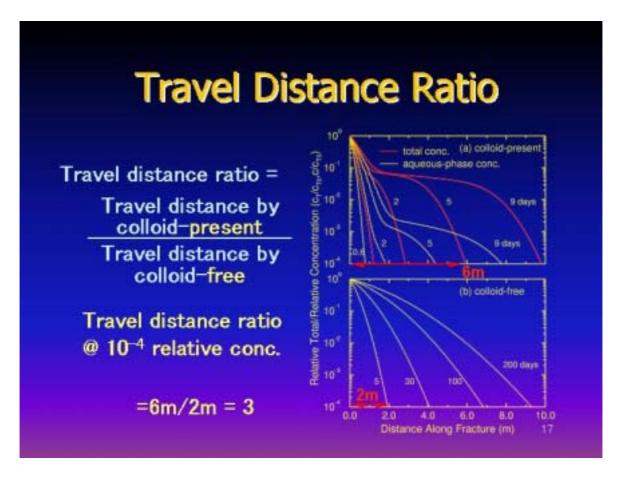
13

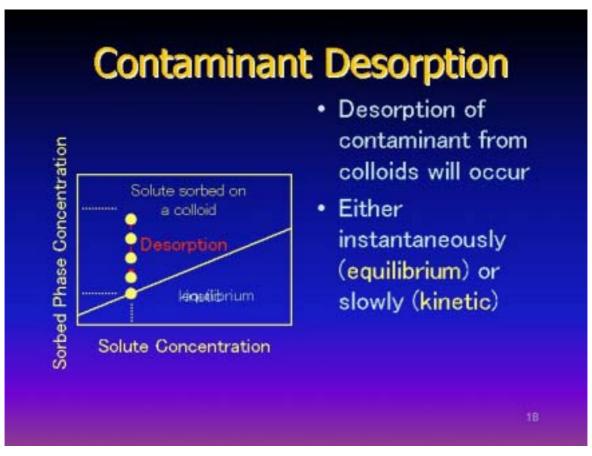
# Feature Differences between Numerical Codes – Colloid Transport

- COLFRAC
  - Kinetically-controlled filtration and remobilization of colloids
- Yucca Mountain
  - Instantaneous filtration/remobilization
  - May not be valid in a fracture
- · Hwang's Model
  - Colloid concentration is constant in the fracture



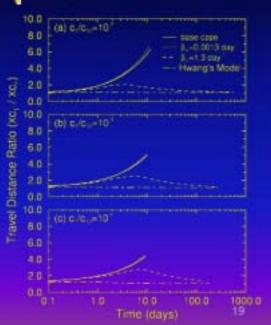






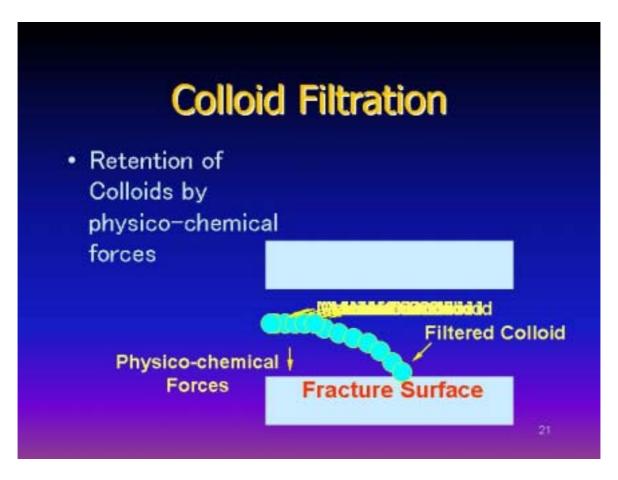
# Effect of Contaminant Desorption

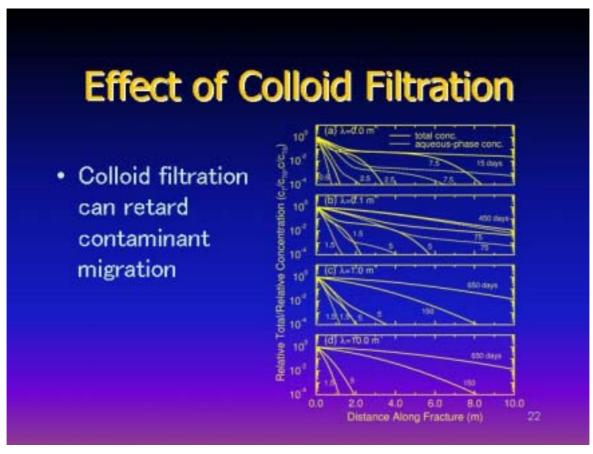
- Slow desorption (kinetic) tends to enhance contaminant migration
- Equilibrium case (Hwang's model) shows little enhancement

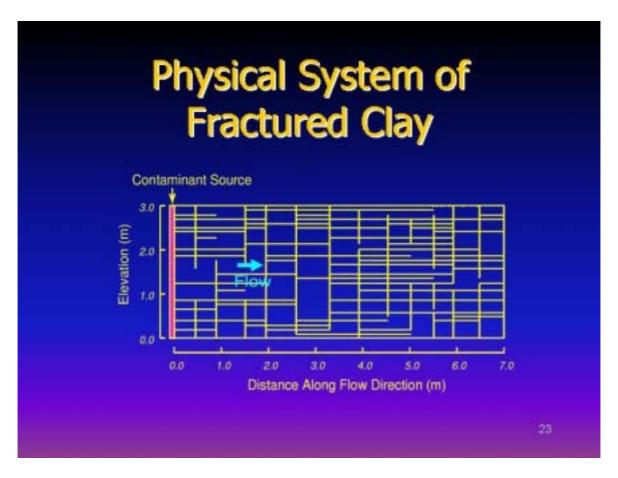


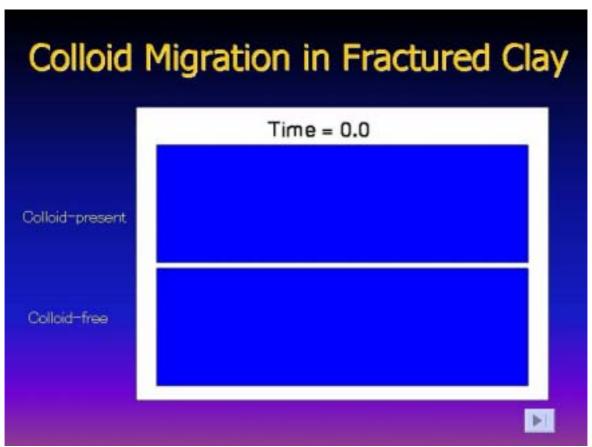
# Hwang's Models (Equilibrium)

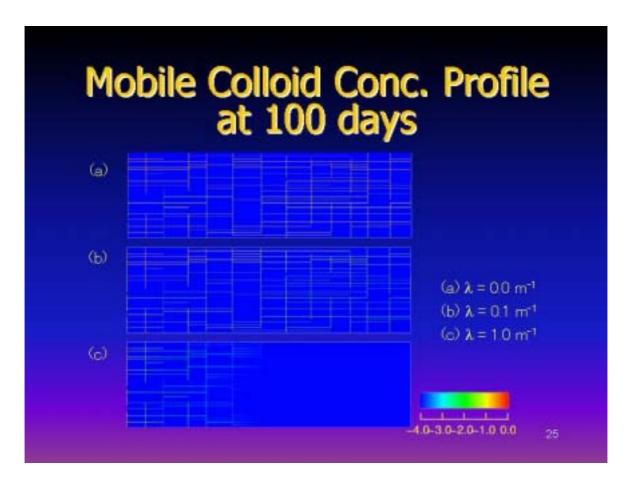
- If Kd is large then contaminant travels as sorbed phase increases
- Because of equilibrium sorption reaction enhancement caused by colloid particles is somehow limited

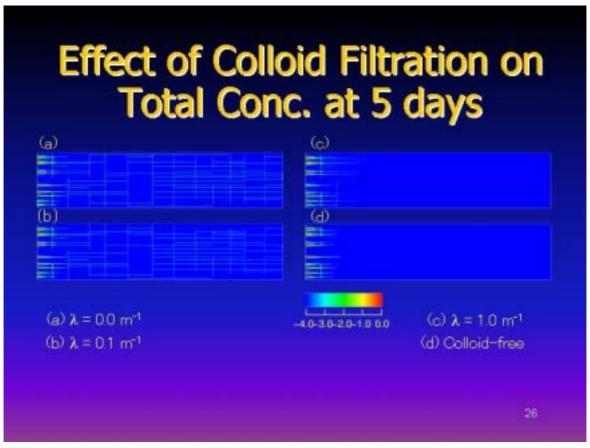


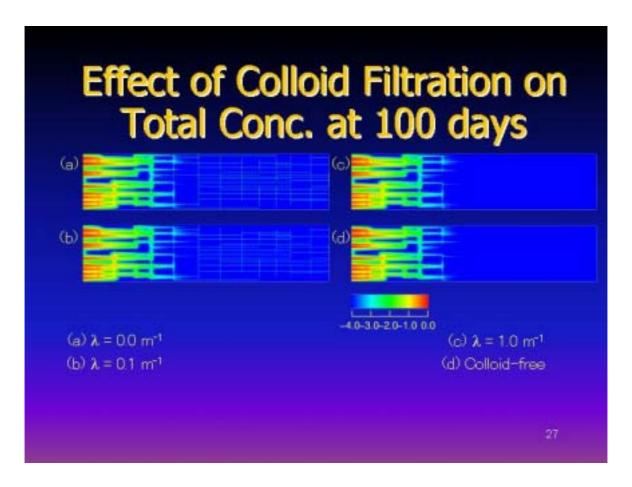


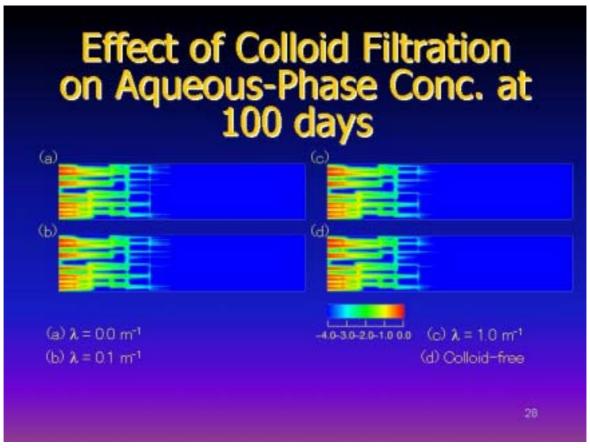


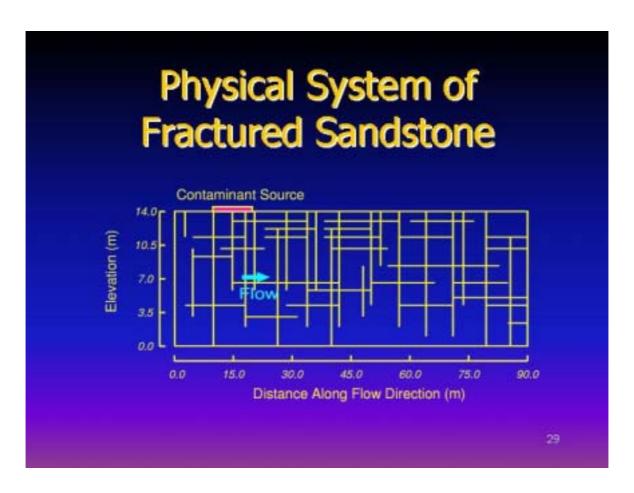


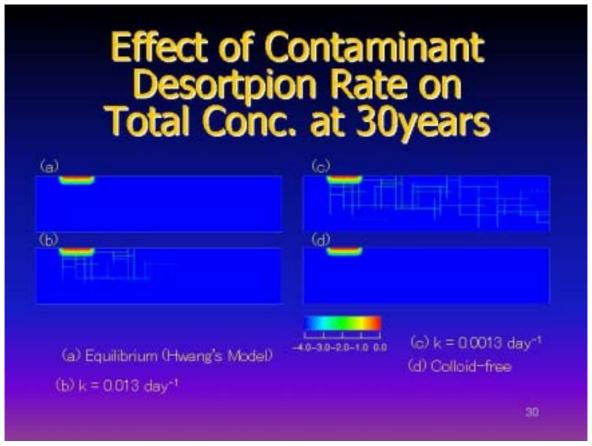


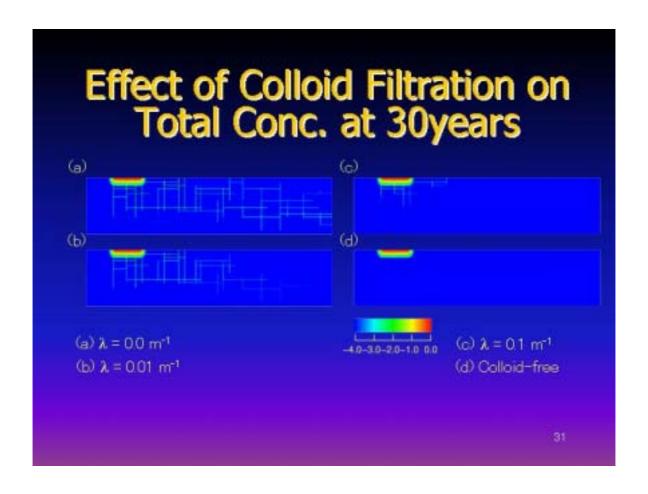












# Summary

- Adsorption and desorption of a solute onto mobile colloids can significantly enhance solute migration
- Solute migration may be further enhanced by slow kinetic reaction relative to equilibrium reaction (Hwang's model)
- Environmentally significant total concentration values advance much more rapidly at early time

# Summary

- When the colloids are vigorously filtered, contaminant migration is not significantly enhanced
- Environmentally significant total concentration values advance much more rapidly at early time
- Prediction uncertainty is likely to be higher compared to a colloid-free transport scenario

33

# Summary

- Yucca Mountain model can lead "extremely" conservative results
- Single fracture model (Yucca Mountain model) cannot describe the nature of colloid migration in a fracture network in field-scale

# 添付資料-2

COLFRAC のトレーニングにおいて用いられた練習問題及び解答例

# COLFRAC Short Course Exercise 1 September 18, 2002

			_
Name:			

- 1. List two main <u>transport</u> processes that COLFRAC considers.
  - コロイドの輸送 溶質の輸送
- 2. How are these two transport processes linked together?

溶質とコロイドの反応

- 3. For colloid transport, list all relevant processes occurring in:
  - (a) Fractures

移流 分散

フィルトレーション

- (b) Porous matrix なし
- 4. What assumption does COLFRAC use for colloid transport?

コロイドは、亀裂中を移動する。

コロイドは、分子量が大きいため、マトリクスへの拡散はない。

コロイドの速度は、地下水流速よりも速くなることがあり得る。

5. Explain how COLFRAC handles colloid filtration processes.

コロイドと亀裂表面とのフィルトレーションに対して、フィルトレーション係数を導入 し、以下のように反応を表わしている。

$$\frac{\partial \sigma}{\partial t} = \lambda q_m M b$$

:フィルトレーション係数[L-1]

M: 移行するコロイド濃度[ML-3]。 亀裂中の単位体積溶液あたりのコロイド量

q<sub>m</sub>: 亀裂中のコロイドの速度[LT-1]

b :亀裂の開口幅の 1/2[L]

6. Let's assume you would like to include the effects of PH and salt concentration on colloid filtration. How can you incorporate such effects in COLFRAC modeling?

COLFRAC によってモデリングの対象とする系について、溶液の pH や塩濃度に対するフィルトレーション速度のデータを取得し、フィルトレーション係数を実験的に取得する。

# COLFRAC Short Course Exercise 2 September 18, 2002

Name:	•	

- 1. For solute transport list all relevant processes occurring in.
  - (a) Fractures

移流・分散

マトリクス表面への吸着・脱着(平衡論的、速度論的)

マトリクス拡散

コロイドへの吸着・脱着

(b) Porous matrix

移流・分散

マトリクスへの吸着・脱着(平衡論的)

2. How are transport processes in the porous matrix and those in fractures linked together?

マトリクス拡散による亀裂と多孔質媒体間の物質の交換

3. What assumptions does COLFRAC use to describe solute transport? 溶質は、亀裂及び多孔質媒体を移動する。

亀裂中の移行(1 次元)は、移流・分散、吸着・脱着(反応速度も考慮)、マトリクス拡散を 考慮。

多孔質媒体中の移行(2 次元)は、移流・分散、吸着・脱着(平衡論)を考慮。

- 4. Solute transport and colloid transport are linked together by sorption of solute onto colloid particles. Describe what type of sorption / desorption reactions are considered by COLFRAC for:
  - (a) Mobile colloids solute 平衡論的反応あるいは速度論的反応として考慮できる。
  - (b) Immobile colloids solute 平衡論的反応あるいは速度論的反応として考慮できる。
  - (c) Porous matrix solute

平衡論的反応として考慮できる。一般に、多孔質媒体中の地下水流速は小さいため、 溶質の吸着を速度論的に取り扱う必要性は小さいと考えている。

(d) Fracture surface – solute

平衡論的反応あるいは速度論的反応として考慮できる。

# COLFRAC Short Course Exercise 3 September 18, 2002

Name:	

1. What type of reactions (solute-colloid) do you assume at the source. Explain your reasoning.

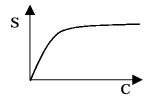
ソースにおける溶質-コロイド反応については、模擬対象とする時間スケールと反応速度を比較した上で、適切に設定する必要がある。例えば、溶質-コロイド反応が1日オーダーの反応速度であった場合、計算を行う時間スケールが数十分のオーダーであれば、反応速度を考慮する必要がある。計算を行う時間スケールが数十年である場合には、平衡論として取り扱うことが可能である。

放射性廃棄物の分野に適用する場合には、ソース項から物質の溶出が生じるまでに相当の時間が経過しているため、ソースに対して平衡論的な吸着を仮定することが妥当であると考えられる。

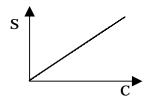
# 2.Describe Langmuir and Frendlich isotherms.

Langmuir 型の吸着等温式は、非線形吸着モデルである。これに対して、Freundlich 型は、線形吸着モデルである。各モデルは、以下の式で表わされる。

平衡論- Freundlich 型  $S = KC^{1/N}$  (COLFRAC では、線形吸着を仮定するため N=1) 平衡論- Langmuir 型  $S = S^{\max} \big[ KC / (1 + KC) \big]$ 



Langmuir 型



Freundlich 型(N=1 のケース)

# 3.Describe kinetic and equilibrium reactions.

平衡論的反応においては、吸着サイトを持った固相と溶質を含む液相の反応は瞬時に起こり、反応速度は考慮されない。一方、速度論的反応においては、液相中の溶質は、ある反応速度で固相の吸着サイトに吸着することを考慮する。ここで、 を反応速度定数として、上記の吸着モデルを速度論的に表わすと、以下のように表わすことができる。

速度論- Freundlich 型 
$$\frac{\partial S}{\partial t} = \beta(KC - S)$$

速度論- Langmuir 型 
$$S = S^{\max} \left[ \left( KC - \frac{1}{\beta} \frac{\partial S}{\partial t} \right) / (1 + KC) \right]$$

平衡論的な反応と比較すると、 の値が小さくなるにしたがって、吸着反応が進みにくくなり、平衡に達するのにより時間がかかることがわかる。

4. Write an equation to describe Frendlich/kinetic sorption between solute and colloid particles. Describe all terms.

$$\frac{\partial S}{\partial t} = \beta (KC - S)$$

なお、詳細は、3.で述べた通りである。

5. Which terms represent forward and backward rate constants?

反応の進行方向の係数 K 反応の逆方向の係数 である。 Name:

# COLFRAC Short Course Exercise 4 September 18, 2002

1.Can we use this equation to represent an equilibrium reaction? Explain your reasoning.

反応速度定数 が大きくなると、吸着反応の速度が大きくなることから、 の値を十分 に大きく取ることにより、平衡論的な反応と同等な結果を得ることができる。

- 2.Why do you see Kd in an equation representing kinetic reaction? Explain your reasoning. 吸着反応を速度論的に取り扱うことは、反応速度定数により反応がどの程度速く起こるのかを表現できるようにしたものであり、十分な時間が経過すれば、平衡論的な反応と等価となる。
- 3.Let's assume no colloid filtration occurs in a fracture and desorption of solute from colloid particles are instantaneous. Do you expect colloid-facilitated solute transport? Explain your reasoning.

コロイドに吸着した核種は、コロイドとともに移行するが、溶質の濃度が低下すると瞬時に脱着し、マトリクス拡散によって遅延されるため、コロイドによる移行の促進はほとんど起こらない。ただし、マトリクス拡散がほとんど起こらないような、緻密な結晶質岩での亀裂といった状況下では、コロイドから脱着した溶質が溶液中に存在し、結果として移行が促進されることになる。

4. Assuming colloid filtration vigorously occurs in a fracture and desorption of solute from colloid particles occur slowly. Do you expect colloid-facilitated solute transport? Explain your reasoning.

フィルトレーションされたコロイドに溶質が吸着し、脱着がゆっくり起こるため、溶質の移行は遅延される。 問 8 の sff10 ケースのように、溶質が十分に供給される系では、コロイドによる移行の遅延がない場合と同様の結果となった。

5.Let's assumes sorption reaction between solute and colloid is slow kinetic reaction. Do you expect colloid-facilitated solute transport? Explain your reasoning.

コロイドにゆっくりと吸着した核種は、コロイドとともに移行し、溶質の濃度が低下するとゆっくり脱着し、その時点でマトリクス拡散によって遅延されるため、ゆっくり脱着する効果によって、溶質の移行が促進される。

# COLFRAC Short Course Exercise 5 September 18, 2002

The objective of this exercise is to familiarize yourself with colloid-facilitated solute transport in discretely-fractured porous media. We are going to focus on a porous domain, which contains a fracture. Read data file "sfbase.pre" and write the following values (with unit)

- (a) Domain size
  - 0.5m×10.2m の長方形
- (b) Fracture
  - 1. Aperture and length

亀裂開口幅 1.0 × 10<sup>-4</sup> m、鉛直亀裂で 10.2m の長さ

2.Location

鉛直方向で、領域の中央(x=0.25m)に位置している。

- (c) Porous media
  - 1. Porosity and Permeability

0.05 ,  $8.64 \times 10^{-6} \text{m/d} (1 \times 10^{-10} \text{ m/s})$ 

2.Retardation factor

1.40 [-]

- 3. Transverse and longitudinal dispersivities
- 0.0 , 0.0
- 4. Effective diffusion coefficient

$$7.776 \times 10^{-5} \text{m}^2/\text{d}(9 \times 10^{-10} \text{ m/s})$$

(d) Maximum element size

- (e) Solute properties in fracture
  - 1.Dispersivity and Kf

$$0.1(m)$$
 ,  $K_f = x q \times 2b^2 / (12 \times \mu) = 706.02 (m/d)$ 

2.Backward and forward kinetic rate constant (solute-fracture surface)

forward :  $0(D^{-1})$ , backward :  $1.0(D^{-1})$ 

- (f) Colloid properties in fracture
  - 1.Dispersivity and Kd

$$0.1(m)$$
, K=  $\sharp \mathcal{V}$ , K=0.1105/0.13=0.85 (m<sup>3</sup>/kg)

2.Backward and forward kinetic rate constant (solute-colloid)

forward:  $0.1105(D^{-1})$ , backward:  $0.13(D^{-1})$ 

3. Filtration coefficient

 $1.0 \times 10^{-5} (\text{m}^{-1})$ 

(g) Solute and flow boundary conditions

地下水流動に対しては、上下境界に水頭値が与えられている。(上:0.014484,下:0) 座標(0.25,10.2)の亀裂最上部において、溶質濃度  $1.0\times10^{-2}$ (mol/m³)、コロイド濃度  $1.0\times10^{-1}$ (mol/m³)の連続ソースが設定されている。

# 添付資料-3

COLFRAC ユーザーズガイド

# COLFRAC ユーザーズガイド(仮訳版)

多孔質媒体あるいは不連続亀裂-多孔質媒体における 2 次元、 飽和地下水流れ及びコロイドにより促進された溶質の移行

# に対する数学的モデル

A Numerical Model for
Two-Dimensional, Saturated
Groundwater Flow and Colloid-Facilitated Solute
Transport in Porous or
Discretely-Fractured Porous Media

バージョン 0.1

M. Ibaraki

E.A. Sudicky

M. Ibaraki
Department of Geological Sciences
The Ohio State University
275 Mendenhall Laboratory
125 South Oval Mall
Columbus, Ohio 43210

September 4, 2002

# 使用上の注意(Disclaimer)

COLFRAC のルーチン及びドキュメント作成にあたっては、細心の注意を払っているものの、著者は、どのような誤りや省略についても責任を持つことはできない。このコードは、ユーザーに対して、有限要素法及び有限差分法、preconditioned iterative solver techniques、FORTRAN に慣れ親しんでいることを期待して提供されている。著者は、いかなる種類の保証も行っていない。著者は、ユーザーが望んだやり方で操作したことにより、これらのサブルーチンの誤りに起因して生じたいかなる損害に対しても責任を持つことはできない。著者は、これらのサブルーチンを直接あるいは間接的に利用することに起因して生じるかもしれない、データあるいは財産に対するいかなる損害に対しても責任を持つことはできない。いかなる事態においても、著者は、以下の事項を含み、制限されることなく、これらのサブルーチンの使用あるいは使用できないことに起因して失った利益、失った貯蓄金、あるいはほかの 2 次的あるいは結果として生じる損害に対して責任は生じない。本プログラムの使用、使用の規格、及び/又は、インストールは、以上の条件に対する暗黙の同意である。

全てのコードは、著者による書面の同意なしにその全てあるいは一部をコピーしたり、ユーザーが作成したほかのコードに組み込んだりしてはならない。認証ユーザーが、コードに関して問題に遭遇した場合には、あるいは、このバージョンでサポートされていない特定の実行が必要な場合には、可能な限り助言を行うので、以下の著者の住所にコンタクトしていただきたい。

Department of Geological Sciences
The Ohio State University
275 Mendenhall Laboratory
125 South Oval Mall
Columbus, Ohio
43210

Telephone: (614) 292-7528 fax: (614) 292-7688

e-mail: ibaraki.1@osu.edu

# 目次

1.はじめに	5
2.PRECLD	6
2.1 PRECLD の開始	6
2.2 PRECLD 入力ファイルの設定	6
2.3 シミュレーション制御パラメータ	8
2.3.1 全体の問題の大きさ及びグリッドの制限	13
2.3.2 Porous media zones	14
2.3.3 Fracture zones	14
2.3.3.1 Regular vertical fracture zones	15
2.3.3.2 Random vertical fracture zones	16
2.3.3.3 horizontal fracture zones	18
2.3.3.4 Random horizonal fracture zones	19
2.3.4 Flow boundary conditions	21
2.3.4.1 specified head fill segments	21
2.3.4.2 Specified head points	22
2.3.4.3 Specified fluid fill segments	22
2.3.4.4 Specified fluid flux points	23
2.3.5 Transport boundary condition (輸送の境界条件)	23
2.3.5.1 Decay constants	24
2.3.5.2 Specified concentration regions	24
2.3.5.3 Specified concentration points	25
2.3.5.4 Third-type concentration fill segments – Aqueous phase solut	e26
2.3.5.5 Third-type concentration fill segments - Colloid	26
2.3.5.6 Specified solute flux fill segments	27
2.3.5.7 Specified solute flux points	28
2.3.6 Initial conditions for transport	28
2.3.7 Slice data for flux calculation	30
2.3.8 Non-varying physical parameters	30
2.3.9 Solver parameters	31
2.4 PRECLD Output Files	34
3. COLFRAC	36
4. Postprocessung	37
4.1 Plotted output	37

#### 1.はじめに

COLFRAC は、非常に有効な数学的モデルである。本モデルは、多孔質媒体あるいは不連続亀裂-多孔質媒体における定常状態の地下水流動とトランジェントなコロイドに促進された汚染物質の流れをシミュレートする。これについては、通常、断面の問題として適用されるが、COLFRAC は、亀裂が完全に貫通していることに留意して、plan-view 問題に適用することも可能である。

多数のグリッドの問題に対する計算上の有効性は、事前条件として、ORTHOMIN-accelerated iterative solver を用いることで達成されている。地下水流動及び汚染物質の移行(マトリックス拡散及び多孔質媒体中の移流を含む)は、亀裂媒体及び多孔質マトリクスの両方に対して厳密に取り扱われる。1次崩壊、線形平衡及び速度論的な収着という形の化学反応にも対応している。

このプログラムを複雑な現実世界の問題に適用すると、しばしば詳細な空間の打切りが必要になるが、これはプリプロセッサ PRECLD によって円滑化がなされている。PRECLD は、該当する高レベルの記述的な情報を含んでいるファイルを読み込んで、この情報をCOLFRAC で読み込みできるインプットファイルへと変換する。ポストプロセスのルーチンは、プロットあるいはプリント出力の生成に使用可能である。

このガイドは、以下の構成となっている。第2章から第4章において、与えられた問題を解くために必要な種々のプログラムの機能及び操作について論じている。各章の概要は以下の通りである。

- 1. プリプロセッサファイル(.PRE)の生成あるいは変更、並びに COLFRAC インプットファイル生成のための PRECLD の実行(第2章)
- 2. 水頭及び濃度ファイルを生成するための COLFRAC の実行(第3章)
- 3. プロットされた出力の生成のために、TECPLOT といったポストプロセスプログラムの実行(第4章)

#### 2.PRECLD

PRECLD は、高レベルのユーザ定義データファイル(問題特有の情報を含む)及び COLFRAC プログラムのための全ての必要なファイルを構築するプリプロセッサである。

# 2.1 PRECLD の開始

実行可能なプログラム PRECLD を実行するための適切なコマンドを入力する。 以下の画面が表示される。

# "Give prefix of problem filename..."

このプロンプトは、COLFRAC データファイルを作成するために必要な問題特有の情報を含む".PRE"ファイルのプレフィックスをたずねている。プレフィックスを入力(7文字以下)して、リターンキーを入力する。プログラムは、自動的に".PRE"を追加した該当するファイルを検索する。プログラムは、システムに依存するバッチファイルで開始して、バッチファイルの中に、通常キーボードから入力すべき項目を提供しておかない限り、対話形式で実行されるように設計されている。

PRECLD は、".PRE"ファイルを読み込んで、異なる拡張子の出力ファイルを作成するために、そのプレフィックスを用いる。

# 2.2 PRECLD 入力ファイルの設定

PRECLD のための入力ファイルは、3 文字の拡張子".PRE"を持つファイルである。このファイルは、以下に示すデータグループに分割することができる。

- 問題のタイトルとシミュレーション制御スイッチ
- ・ 問題の全体のサイズ及びグリッドの制限
- ・ グリッドリファインゾーン
- 多孔質媒体領域
- ・ 亀裂領域(地質媒体が割れ目系であれば)
- 水頭の境界条件
- ・ 輸送の境界条件に適用される崩壊定数
- 輸送の境界条件
- ・ スライス(断面)のデータ(特定の断面を横切ってドメインへ流入する地下水と溶質 のフラックスを計算するため)
- 流体の密度や粘度といった不変の物理的パラメータ
- ・ マトリックスの方程式ソルバーのパラメータ

これらの細項目それぞれに含まれるインプットデータの詳細は以下に記述しているが、最初に言及しておくべき、データ入力に関するいくつかの一般的なポイントがある。

データアイテムは、入力データファイルに現れるような順番で並べられ、また記述

されている。例外はシミュレーション制御パラメータ(true / false スイッチ)であり、 次に示す約束ごと、あるいは命名法が全体を通して用いられる。

#### dataitem1

FORTRAN の変数名は、太字で示す。これが小文字の場合は、この行はデータファイル中に必ず存在しなければならない。例えば、流体の密度は、亀裂が存在する場合のみ使用されるデータであるが、全ての問題に対して必要なデータである。

# dataitem2

イタリックで表示したアイテムは、オプショナルなものである。データファイル中 に記述するか否かは、問題に依存する。例えば、垂直亀裂領域のデータは、特定の問 題の場合、あってもなくてもよい。

#### dataitem3(maxsize)

一つの変数の数列は、普通のカッコ()で示される。

カッコの中の変数、数列の最大サイズを定義するものである。空のカッコを持つデータアイテムに対しては、その直前に出てきた最大サイズが適用される。特別な問題へ適合するように数列のサイズを大きくするためには、ファイル COLFRAC.PRM のパラメータステートメントで定義されている変数の大きさを変更することが必要かもしれない。その変更を有効とするためには、プログラムを再びコンパイル、リンクする必要がある。

ここでは標準的な FORTRAN において用いられる変数の取り方を適用している。文字 I から N で表わされる変数は、整数であり、残りは実数であると仮定される。 CHARACTER\*80 のような明らかな例外や、論理値(.true., .false. あるいは、T, F)がある。

A80 のタイトルと、A32 のファイルネームを除いて、フリーフォーマットが用いられている。実数は、E あるいは F フォーマットで入力可能である(1.0e+3、1000.0 の両方が使える)し、必要な変数をブランク、あるいはコンマで区切ることができる。整数も、ブランクあるいはコンマで区切ることができる。

データファイルにおいては、長さ及び時間に対して首尾一貫した単位系を用いなければならない。これは、どんな単位であっても良い(例えば、長さの単位がメートルでもフィートでもよいし、時間の単位が秒、日、年でもよい)。拡散係数、重力加速度、流体の密度といった定数をチェックすることを忘れないように。例えば、問題において、長さが 200m であり、500 年後のプルームを見たいと考えたとする。この問題を準備する最も簡単な方法は、全てを統一された単位系(m,y,kg)とすることである。透水係数は m/y で表現されるし、重力加速度は m/y²、のようになる。

今のところ、ユーザによって入力された問題の単位系は正しいことを確認するチェックが行われているとする。全ての副領域は、全体の領域の中に収まっていること、

数値は正しい順序で配列されている(最小値は最大値よりも小さいなど)、コンパイルされたコードの数列は、取り扱う問題に対して十分なサイズであることを確認する。

様々な多孔質媒体、亀裂及び境界条件に対して与えるタイトルは、2 つの目的を有している。これは、タイトルが、そのデータ形式の入力の終わりを示すために用いられるからである。この場合、タイトルの最初の3文字"don"を認識することが、入力の終わりを意味する。例えば、問題の中で2 つの異なる多孔質媒体を用いたいとすると、データファイルは以下のように準備する。

Porous media zone 1 title (zone 1 data would go here) Porous media zone 2 title (zone 2 data would go here)

Done porous media zones

PRECLD は、文字のつながり"done"を現在の入力モード、この場合、多孔質媒体データの読み込みの終わりであると認識する。タイトルの最初の 3 文字が"done"ではないため、プログラム PRECLD は、2 つの多孔質媒体データを読み込むことを 2 回繰り返す。3 回目のタイトルは、"done"であるので、多孔質媒体読み込みループは終了する。大文字と小文字をどのように混ぜて用いても、この条件を満たすことになる。(Done = DONE = don など)

境界条件の入力データに対して与えられるタイトルは、4 つの 3 文字の連続の組として表わされる。この文字は、データが適用されるべき 4 種類の境界条件を示すために用いられる。その4つの文字列は、大文字、小文字の組み合わせにかかわらず、"top, bot, lef, rig " である。ここでは、このようなタイトルを、変数と関連させて、明確に確認する。

# 2.3 シミュレーション制御パラメータ

この項を検討する時には、ユーザは、ディスクに入っている".PRE"ファイルの一つを 実行してみることを強くお勧めする。

#### title

80 文字以内の問題タイトルの記述

#### ldiff (Diffusion only)

,true.: 地下水流動解析を実施しない。ダルシーフラックスをゼロとおいて、輸送問題を拡散のみとして扱う。

,false.: No action

#### lflow (Flow solution)

.true.: 節点毎の水頭、要素毎のダルシー流速を決定して、輸送問題に対してダル

シー流速を用いる(輸送問題であれば)。

,false.: ディスクに保管されている以前の流動解析結果を読み込む。そのファイルが作成された後に、物理体系に対する特性値が変更されている場合には、その変更は流動解析に反映されていないこと、あるいは不適当な結果が生じるかもしれないことを理解しておかねばならない。もし疑念があるのであれば、ディスク上のダルシー流速をアップデートするためにもう一度流れを解くべし。

# **ltrans** (Transport solution)

true.: 輸送問題を解いて、濃度をバイナリファイルへと書き出す。

.false.: 輸送問題を解かない

**lfrac** (Fractured/Porous media)

,true.: 系を不連続亀裂媒体として取り扱う。

,false.: 系を多孔質媒体として取り扱う。与えられた不連続亀裂媒体に関するデータは全て無視される。しかし、この場合でも、輸送問題に対して、dual-porosityの方法で媒体を取り扱うことはできる。

このことは、もしも亀裂が全く存在しない場合にその系がどのように振舞うのかを知りたい時に、不連続亀裂に関するデータを削除する必要はないということである。

# lkdfm (Finite element/finite difference)

,**true**.: 流れ場、多孔質媒体に対する輸送方程式を不連続化するために、有限要素 法(線形、長方形の要素)を用いる。

,false.: 多孔質媒体に対して、5点有限差分法を用いる。メモリを節約できる特徴を生かすためには、COLFRAC.PRM内の適切なディメンションパラメータを変更して、ソースコードを再コンパイルする必要がある。

# ipmsh (Print mesh data)

,true.: 節点の関連、長方形及び(オプションの)亀裂要素の範囲を、ascii ファイル(.lst) にプリントする。

.false.:メッシュデータをプリントしない。

# **Ipvel (Print Darcy flux data)**

**.true.**: Darcy flux データ を ascii (.lst) file にプリントする。

.false. Darcy flux data をプリントしない。

# Iphed (Print head data)

.true. 水頭データを ascii (.lst) file にプリントする。

.false. 水頭データをプリントしない。

# Idvel (Write Darcy flux data)

.true. Darcy flux データを binary (.vel) file.に書き込む。流動解析(スイッチ lflow)をオフ にする場合には、移流-分散輸送解析を実施する前に最低 1 回は、ディスクにダルシー流速を書き込まねばならない。

.false. Darcy flux データを書き込まない。

### Idhed (Write head data)

**.true.** 水頭データを binary (.h01) file に書き込む。このファイルは、結果をプロットしたり、後処理する場合のみ使用する。

.false. No action.

# Iperm (Element/zoned hydraulic conductivity)

.true.: 多孔質媒体の透水係数を、長方形の要素の特性として取り扱う。この透水係数は、要素ごとに定義される。COLFRAC は、要素毎の透水係数を REFIX.REK ファイルから読み込む。この値は、領域に対して定義されていたどの値も上書きすることになる。透水係数を含むファイルが、以下に示す FORTRAN の命令文によって作成されるべきである。

open(iunit, file=ifile, status='unknown', form='unformatted')

write(iunit) ne

write(iunit) (ckxx(i), ckzz(i), i=1, ne)

ここで、iunit は FORTRAN の出力ユニットの番号、ifile はファイル名、ne は長方形(多孔質媒体の場合)の要素数、ckxx(i)、ckzz(i)はそれぞれ、I 番目の要素における x、z 方向の透水係数(REAL\*8)である。以下の点に注意が必要である。

- 1. open ステートメントでは、UNFORMATTED あるいは binary ファイルにアクセス する。
- 2. 中間的に保管される整数は、INTEGER\*4か INTEGER\*2なのか、明確に宣言されていない。これは、コンパイラのデフォルトのオプションとして設定されている。 COLFRAC により読み込まれるファイルを書き出す全てのプログラムにおいて、コンパイルする時にフォーマットの設定を合致させるため、整数のフォーマットを明確に宣言する必要があるかも知れない。
- 3. COLFRAC.PRM の数列サイズを増加させて、再コンパイルする必要が生じるかもしれない。(.lst ファイルによって、再コンパイルが必要であれば知ることができる。)

.false:多孔質媒体の透水係数を、領域の特性として取り扱う。要素のグループに対する透水係数の定義された値は、以下の 2.2.2 項に定義された領域に従って割り当てられる。

# lap (Element/zoned fracture aperture)

.true.: 亀裂の開口幅を、線要素の特性として取り扱う。この開口幅は、要素ごとに定義される。COLFRAC は、その値をファイル PREFIX.FAP から読み込むことになる。この値は、領域に対して定義されていたどの値も上書きすることになる。透水係数を含むファイルが、以下に示す FORTRAN の命令文によって作成されるべきである。 open(iunit,file=ifile,status='unknown',form='unformatted')

write(iunit) nfeh, nfev

write(iunit) (aph(i),i=1,nfeh)

write(iunit) (apv(i),i=1,nfev)

ここで、iunit は FORTRAN の出力ユニットの番号、ifile はファイル名、nfeh、nfev はそれぞれ、垂直及び水平な線(亀裂の場合)の要素数、aph(i) と apv(i)はそれぞれ、I 番目の要素における垂直及び水平方向の亀裂開口幅である。以下の点に注意が必要である。

- 1. open ステートメントでは、UNFORMATTED あるいは binary ファイルにアクセス する。
- 2. 中間的に保管される整数は、INTEGER\*4か INTEGER\*2なのか、明確に宣言されていない。これは、コンパイラのデフォルトのオプションとして設定されている。 COLFRAC により読み込まれるファイルを書き出す全てのプログラムにおいて、コンパイルする時にフォーマットの設定を合致させるため、整数のフォーマットを明確に宣言する必要があるかも知れない。
- 3. COLFRAC.PRM の数列サイズを増加させて、再コンパイルする必要が生じるかもしれない。(.lst ファイルによって、再コンパイルが必要であれば知ることができる。)

.false: 亀裂の開口幅を、領域の特性として取り扱う。要素のグループに対する透水係数の定義された値は、以下の2.2.3 項に定義された領域に従って割り当てられる。これは、通常の操作モードであり、メモリを節約するために用いられる。

#### Islice (Flux crossing a plane)

.true.: 任意の垂直あるいは水平断面を横切る流体及び物質の流速を計算する。これは、帯水層/アクイタードのような内在する境界を横切る地下水流量の比及び汚染物質量を計算するときに有効である。内部の断面の法線上のフラックスに対して、正(流れ込み)、負(流れ出し)を与えるために、次の約束事を適用する。垂直断面に対する"内部"は、左側であるとする。水平断面に対する"内部"は、断面の上側であるとする。節点の流体の法線

方向の成分が正の値であれば、その数量は断面の"内部"の領域に向かって移動している。例えば、もし流れが左から右であり、垂直断面が指定されていれば、その法線方向の流体と物質の流束は負の値を持つ(断面の"内部"から離れていく流れ)。節点の地下水流動の結果は、.lst ファイルに格納されている。時間に支配された物質移行結果は、断面に沿って、節点ごとに PREFIX.FAC ファイルに出力される。実行毎に1つの断面のみが計算できる。

流体及び物質のマスバランスの計算の場合には、このスイッチが設定される時にいくつかの制限事項が適用される。流れ場の解析を再度行う必要がある場合には、COLFRACの出力のリスト(.lst)ファイルに警告が表示される。

.false:断面を横切るフラックスを計算しない。

#### Irstrt (Restart)

.true. 全ての節点に対する初期濃度を PREFIX.RST から COLFRAC に読み込む。 PREFIXO.RST というファイルが、COLFRAC によって自動的に作成される。このファイルは、リスタートファイルとしてリネームが可能である("O"を削除すればよい)。この特徴は、新しい定常状態の地下水流動解析を用いて輸送問題をリスタートさせるときに有効である。

.false. Section 2.2.6.で設定される初期条件を用いる。

### kinec (kinetic reaction between solute and colloid)

.true. 溶質とコロイドの反応を速度論反応として取り扱う。

.false. 溶質とコロイドの反応を平衡論反応として取り扱う。

# klangc (Langmuir reaction between solute and colloid)

.true. 溶質/コロイド反応を Langmuir 型として実行する。

.false. 溶質/コロイド反応を Freundlich 型として実行する。

# ksrbst (Sorption start time at source)

.true. ソースにおける収着は、亀裂中のコロイド移行の前に始まる。

.false. ソースにおける収着は、亀裂中のコロイド移行の後に始まる。

# ksrbaf (Sorption type at source)

.true. ソースにおける収着は、常に平衡論的反応である。

.false. ソースにおける収着は、亀裂中の溶質-コロイド反応に従う。

# kinef (kinetic reaction between solute and fracture surface)

.true. 溶質と亀裂表面との反応を速度論的反応として取り扱う。

.false. 溶質と亀裂表面との反応を平衡論的反応として取り扱う。

#### klangf (Langmuir reaction between solute and fracture surface)

.true. 溶質/亀裂表面に対して、Langmuir 型反応として実行する。

.false. 溶質/亀裂表面に対して、Freundlich 型反応として実行する。

# klist (Print concentration values)

.true. 濃度の値を ascii (.lst) ファイルにプリントする。

.false. 濃度の値を ascii (.lst)プリントしない。

# kmslmp (mass lumping formulation for matrix assembly)

.true. 非線形収着反応 (Langmuir)で必要な Mass lumping の形成

.false. マトリクスの集合に対する Consistence formulation。このオプションは、Freundlich 反応の時に使用する。

# 2.3.1 全体の問題の大きさ及びグリッドの制限

# xmin, xmax

長方形メッシュの最小及び最大のx値(L)。これは、完全に問題の境界を示す。一般に、xminは、常にゼロとすべきであり、xmaxは、設定可能な範囲内の正の実数とすることができる。慣例的に、グリッドの原点(0,0)が左下の角となるように配置する。その結果として、ユーザが設定した座標がxminからxmaxの範囲内に収まっていなければ、警告が画面に表示されるとともに、xminといった。これに出力され、プログラムの実行が停止される。

### zmin, zmax

長方形の最小及び最大の z 値(L)。これは、完全に問題の境界を示す。一般に、zmin は、常にゼロとすべきであり、zmax は、設定可能な範囲内の正の実数とすることができる。その結果として、ユーザが設定した座標が zmin から zmax の範囲内に収まっていなければ、警告が画面に表示されるとともに ".echo"ファイルに出力され、プログラムの実行が停止される。

#### dxmax, dzmax

これらのパラメータは、それぞれx方向及びz方向における最大許容要素長さを設定する。例えば、二つの近接する節点の列がdxmaxよりも大きかった場合には、その間に列が生成されて、列間の新しい節点間の距離はdxmaxの値よりも小さくなっている。結果

としてユーザが設定した座標が zmin と zmax の間の範囲に収まっていなかった場合には、警告が画面に表示されるとともに、".echo"ファイルに出力され、プログラムの実行が停止される。

#### nseed

ランダムな亀裂ネットワークの生成を実行するための乱数生成の元となる数。

#### 2.3.2 Porous media zones

できればまず最初に、大きさが全体の領域の大きさと合致しており、かつ、多孔質媒体のデフォルトの特性が割り当てらた、少なくとも1つの領域を読み込まねばならない。

#### btitle(mxzone)

多孔質媒体領域のタイトルであり、そのデータが以下に示される。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。 "Done"で入力を終了する。

### xbmin(),xbmax()

長方形要素の x-values (L) の最小値及び最大値であり、その要素は、以下に示す特性を 割り当てられる。

# zbmin(),zbmax()

z方向に対する長方形要素の x-values (L) の最小値及び最大値。

#### ckxx(),ckzz()

x 方向及び z 方向に対する透水係数(L/T)

# al(),at()

縦方向及び横方向の分散 (L)

# dstar(),por(),retard()

実効拡散係数、間隙率、遅延係数

### 2.3.3 Fracture zones

領域は、多孔質媒体を表わす長方形の要素及び亀裂を示す 1 次元の線要素からなる。PRECLD によってのみ、亀裂を生成することが可能であり、長方形の要素の側面に沿ってのみ生成されるため、亀裂は水平方向あるいは鉛直方向の配置に限定されている。対角線上の亀裂を生成することは可能であるが、このオプションはまだ現在に至るまでテストされていない。長方形の要素も、大きく精度を損なうことなく少し歪ませることは可能である。将来のバージョンでは、三角要素あるいは isoperimetric な要素を取り扱えるように拡張がなされるかもしれない。

亀裂領域は、入力を目的として、鉛直亀裂と水平亀裂型へと副分割されている。これらの2つの型は、さらに、通常(ユーザが位置と長さを定義したもの)と任意に配置された鉛

直及び/又は水平亀裂に分割されており、亀裂を定義するために、4 つの入力セクションからなっている。次に示す2つのシード(種)は、常に読み込まれるが、任意に配置された 亀裂の組み合わせを生成する場合のみ用いられる。

# 2.3.3.1 Regular vertical fracture zones

### vftitle(mxzonev)

亀裂媒体領域のタイトルであり、そのデータが以下に示される。80 文字以内のいかなる アルファベットの文字であっても良い。 "Done"で入力を終了する。

# xvfmin(),xvfmax()

以下に示される亀裂特性の線要素が内部に割り当てられる長方形要素における  $\mathbf{x}(\mathbf{L})$ の値の最小及び最大値

# zvfmin(),zvfmax()

以下に示される亀裂特性を有する線要素が内部に割り当てられる長方形要素における z(L) の値の最小及び最大値

# vspace()

亀裂と亀裂間の距離(L)。xvfmin()から始まる亀裂を含んで、xvfmax()を超えるまで、vspace()の距離ごとに亀裂が生成される。亀裂は、zvfmin()から zvfmax()に向かって垂直に拡張される。もしも vspase()が xvfmin()から xvfmax()の幅の領域よりも大きい場合には、zvfmin()の位置に1本だけ亀裂が生成される。

# alfracv()

領域内の亀裂に沿った縦方向の分散長(L)。

# alphafv()

溶質と亀裂表面の間の進行方向への速度論的反応速度定数(1/T)。

#### betafv()

溶質と亀裂表面間の逆向きの速度論的反応速度定数(1/T)。

#### smaxfv()

溶質と亀裂表面間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

# apv ()

領域内における亀裂の開口幅(L)。

# alfracmv()

コロイドに対する領域内の亀裂に沿った縦方向の分散長(L)。

# ftfracv()

コロイド粒子に対するフィルトレーション係数(1/L)。

#### alphacfv()

溶質とコロイド間の進行方向の速度論的反応速度定数。

### betacfv()

溶質とコロイド間の逆向きの速度論的反応速度定数。

# smaxcfv()

溶質とコロイド間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応).

#### 2.3.3.2 Random vertical fracture zones

#### fxmin

このパラメータは、鉛直亀裂の任意な配置のための最小要件を課す。fxmin は、任意に配置された2つの亀裂の間に許される最小距離である。説明の詳細さを犠牲にすれば、fxmin の値を大きくすると、生成される亀裂数が減少する。

#### nnxm

このパラメータは、任意に配置された鉛直亀裂間の不連続性に関する最小要件を課す。 nnxm は、任意に配置された2つの亀裂の間において、亀裂の水平方向に生成されなければならない節点数の最小値である。実際には、マトリックスブロックにおいて精確に地下水の流れ及びマトリクス拡散を考慮するために、2つの亀裂間にはいくつかの節点が存在しなければならない。nnxm の値を大きくすると、節点数の合計値が増大し、亀裂が密に配列されている場合には、使用可能なメモリをすぐに使い切ってしまうかもしれない。現在までの我々の経験によれば、nnmx は3とすることが適切であると提案するが、実験を行うことをお勧めする。

### rvftitle(mxzonev)

鉛直亀裂領域のタイトルであり、そのデータが以下に示される。80 文字以内のいかなる アルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

# xrvfmin(),xrvfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素のx座標(L) の最小及び最大値

### zrvfmin(),zrvfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素の z 座標(L)の最小及び最大値

#### rvdens()

このパラメータは、次の式によって生成される亀裂の数を決定するために用いられる。

亀裂の本数 = AREA<sub>zone</sub> \* rvdens()

rvdens() は、均一な確率密度関数(uniform probability density function)に基づいて描かれた配置を用いた、領域に対する平均鉛直亀裂密度として考えることができる。乱数発生は、それぞれの亀裂の中央に対する x 座標及び z 座標を生成するために用いられる。その座標は、上記のように定義した領域の制限に従う。

注意:領域の空間がゼロである場合には、亀裂は生成されない。

### rvlmin(),rvlmax()

任意の鉛直亀裂の最小及び最大目標長さ(L)。乱数発生は、この 2 つの値によって定義された範囲の長さを生成するために用いられる。これも均一な確率密度関数にしたがう。

### rvunder(),rvover()

任意の亀裂が、領域上下の境界を越えて存在できるかどうかを制御するために用いられる論理的な変数である。その境界とは、ここでは zrvfmin() と zrvfmax()である。rvunder()が".true"であった場合には、亀裂の終端が zrvfmin()よりも下となることができる。もしも".false"であった場合には、zrvfmin()で断ち切られたものとなる。rvover()は、同様の働きをするが、境界の上限に対して働く

#### alfracv()

領域内の亀裂に沿った縦方向分散長(L)。

### alphafv()

溶質と亀裂表面間の進行方向の速度論的反応速度定数。

#### betafv()

溶質と亀裂表面間の逆向きの速度論的反応速度定数(1/T)。

#### smaxfv()

溶質と亀裂表面間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

#### apv ()

領域内の亀裂の開口幅。

#### alfracmv()

領域中の亀裂に沿ったコロイドの縦方向分散長(L)。

## ftfracv()

コロイド粒子に対するフィルトレーション係数(1/L)。

### alphacfv()

溶質とコロイド間の進行方向の速度論的反応速度定数。

#### betacfv()

溶質とコロイド間の速度論的反応速度定数(1/L)。

# smaxcfv()

溶質とコロイド間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

### 2.3.3.3 horizontal fracture zones

## hftitle(mxzoneh)

水平亀裂領域のタイトルであり、そのデータが以下に示される。80 文字以内のいかなる アルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

## xhfmin(),xhfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素の x (L)の最小及び最大値

### zhfmin(),zhfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素の z(L)の最小 及び最大値

## hspace()

亀裂間の距離(L)。 zhfmin()を始めとして、zhmax()を超えるまで、亀裂が hspace()ごとに生成される。亀裂は、xhmin()から xhmax()まで、水平に拡張される。もしも hspace()が領域の高さ zhmax()から zhmin()よりも大きかった場合には、zhfmin()に 1 本の水平亀裂が生成される。

### alfrach()

領域内部における

亀裂に沿った縦方向分散長(L)。

### alphafh()

溶質と亀裂表面間の進行方向の速度論的反応速度定数。

## betafh()

溶質と亀裂表面間の逆方向の速度論的反応速度定数(1/L)。

## smaxfh()

溶質と亀裂表面間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

### aph ()

領域内における亀裂の開口幅。

### alfracmh()

領域内部における亀裂表面に沿った縦方向分散長(L)。

#### ftfrach()

コロイド粒子に対するフィルトレーション係数。

# alphacfh()

溶質とコロイド間の進行方向の反応速度定数。

## betacfh()

溶質とコロイド間の逆向きの反応速度定数(1/L)。

#### smaxcfh()

溶質とコロイド間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

#### 2.3.3.4 Random horizonal fracture zones

#### fzmin

このパラメータは、任意に配置された水平亀裂の間隔に関する最小の要件を課す。fzmin は、任意に配置された2つの亀裂の間に許される最小距離である。説明の詳細さを犠牲にすれば、fzmin の値を大きくすると、生成される亀裂数が減少する。

## nnzm

このパラメータは、任意に配置された水平亀裂間の不連続性に関する最小要件を課す。 nnzm は、任意に配置された2つの亀裂の間において、亀裂の鉛直方向に生成されなければならない節点数の最小値である。

実際には、マトリックスブロックにおいて精確に地下水の流れ及びマトリクス拡散を考慮するために、2つの亀裂間にはいくつかの節点が存在しなければならない。nnxmの値を大きくすると、節点数の合計値が増大し、亀裂が密に配列されている場合には、使用可能なメモリをすぐに使い切ってしまうかもしれない。現在までの我々の経験によれば、nnmx は3 とすることが適切であると提案するが、実験を行うことをお勧めする。

## rhftitle(mxzoneh)

水平亀裂領域のタイトルであり、そのデータが以下に示される。80 文字以内のいかなる アルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

### xrhfmin(),xrhfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素の x (L)の最小及び最大値

## zrhfmin(),zrhfmax()

以下に示される亀裂特性を持つ線要素が内部に割り当てられる長方形要素の z(L)の最小及び最大値。

## rhdens()

このパラメータは、次の式によって生成されるべき亀裂の数を決定するために用いられる。

亀裂の本数 = AREA<sub>zone</sub> \* rhdens()

rhdens() は、均一な確率密度関数(uniform probability density function)に基づいて描かれた配置を用いた、領域に対する平均水平亀裂密度として考えることができる。乱数発生は、それぞれの亀裂の中央に対するx及びz座標を生成するために用いられる。その座標は、上記のように定義した領域の制限に従う。注意:領域の空間がゼロである場合には、亀裂は生成されない。

#### rhlmin(),rhlmax()

任意の水平亀裂の最小及び最大目標長さ(L)。乱数発生は、この 2 つの値によって定義された範囲の長さを生成するためにもちいられる。これも均一な確率密度関数にしたがう。

## rhunder(),rhover()

これらは、任意の亀裂が領域左右の境界を越えて存在できるかどうかを制御するために用いられる論理的な変数である。その境界とは、ここでは xrvfmin() と xrvfmax()である。rhunder()が".true"であった場合には、亀裂の終端が xrvfmin()よりも小さくなることができる。もしも".false"であった場合には、xrvfmin()で断ち切られたものとなる。rhover()は、同様の働きをするが、境界の上限に対して働く

#### alfrach()

領域内における亀裂に沿った縦方向分散長(L)。

#### alphafh()

溶質と亀裂表面間の進行方向の速度論的反応速度定数。

### betafh()

溶質と亀裂表面間の逆方向の速度論的反応速度定数。

## smaxfh()

溶質と亀裂表面間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

# aph ()

領域における亀裂の開口幅。

#### alfracmh()

領域内におけるコロイドに対する亀裂に沿った縦方向分散長(L)。

#### ftfrach()

コロイド粒子に対するフィルトレーション係数(1/L)。

#### alphacfh()

溶質とコロイド間の進行方向の速度論的反応速度定数。

### betacfh()

溶質とコロイド間の逆方向の速度論的反応速度定数(1/T)。

## smaxcfh()

溶質とコロイド間の最大収着濃度 (Langmuir 型反応)。

### 2.3.4 Flow boundary conditions

流れの境界条件は、2つの型に分けられる。

- 1. 水頭を特定すること(Dirichlet あるいは 第 1 型としても知られる)。この場合は、 流体の水頭は、既知の値として固定される。
- 2. 流体のフラックスを特定すること。(Neumann あるいは第2型としても知られる)。 慣習的には、正の流体フラックスが系に加えられる。

これらはさらに、3 つの形式の入力に分けられる。それは、point values, fill segments 及び regions である。これは、トータルで 6 つの入力となる。それぞれの入力は、最初の 3 文字が "done"となるタイトルで終了される。

### 2.3.4.1 specified head fill segments

"fill segments"は、境界条件、ここでは水頭、を設定したい外部境界の連続した要素である。

### hsside(maxbc)

設定された水頭の fill segments のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。その segments がどの方向にあるものなのかを特定するために、その最初の3 文字は'Rig', 'Lef', 'Top' あるいは'Bot' としなければならない。"Done" で入力を終了する。

#### hsmin(),hsmax()

hsmin() と hsmax()は選択された境界において水頭を設定した最初と最後の座標を定義する。上部あるいは下部の境界については、これらは x 座標で示されるであろうし、右側あるいは左側に対しては、z 座標となるであろう。

## hsstrt(),hsend()

hsstrt() と hsend() は、この fill segments に対する最初と最後の値を示す。hsmin() と hsmax()の間にある segments 内のいかなる節点に対しても、水頭値を満たすために線形の

直線による内挿が用いられる。全ての segments に対して一定の水頭を設定したい場合には、単純に、hsstrt()=hsend()=設定値とすればよい。

### 2.3.4.2 Specified head points

point value とは、系の内部あるいは境界上にある x 及び z 座標の組み合わせであり、この場合水頭の条件を設定したいと考えている場所である。これは、例えば、水頭が既知の値に保たれている吸い上げ井戸を表わすことが可能である。

### hplabel(maxbc)

設定された水頭の point value のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

## hpx(),hpz()

hpx() と hpz() では、水頭を設定する x 及び z 座標を定義する。

#### hpval()

hpval() は水頭の設定値である。

## 2.3.4.3 Specified fluid fill segments

ここでは、流体のフラックスを設定すること以外は、上記の fill segments で記述したものと同じデータ構造を用いる。これらのフラックスの値は、地下水のダルシーフラックスと対応したものである。

### fsside(maxbc)

設定された水頭の流体フラックスの fill segments のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。その segments がどの方向にあるものなのかを特定するために、その最初の3 文字は'Rig', 'Lef', 'Top' あるいは'Bot' としなければならない。"Done" で入力を終了する。

## fsmin(),fsmax()

fsmin() と fsmax()は、選択された境界に対する流体フラックス fill segments の最初と最後の値を示す。上部あるいは下部の境界に対して、これらは x 座標となるであろうし、右あるいは左の境界に対しては、z 座標になるであろう。

### fsstrt(),fsend()

fsstrt() と fsend() は、流体のフラックス(L/T))の fill segments に対する最初と最後の値を示す。fsmin() と fsmax()の間にある segments 内のいかなる節点に対しても、フラックスの値を満たすために線形の直線による内挿が用いられる。全ての segments に対して一定のフラックスを設定したい場合には、単純に、fsstrt()=fsend()=設定値とすればよい。

以下の点を留意しておくことは重要である。読み込まれるフラックスは Darcy フラッ

クス (q = - K dh/dx)であり、PRECLD において、全て節点フラックスへの換算処理を行う。

### 2.3.4.4 Specified fluid flux points

point value は、系の内部あるいは境界上にある x 及び z 座標の組み合わせであり、この場合、流体のフラックスの条件を設定したいと考えている場所である。これは、例えば、汲み上げ率が既知の値に保たれている井戸を表わすことができる。

#### fplabel(maxbc)

設定された水頭の流体フラックスの point value のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

## fpx(),fpz()

fpx() と fpz() では、流体のフラックスを設定する x 及び z 座標を定義する。

### fpval() Fpval()

流体のフラックスの設定値( $L^2/T$ )。

## 2.3.5 Transport boundary condition (輸送の境界条件)

輸送の境界条件は、3つの形式に分割される。

- 1. 濃度の設定(Dirichlet, 第1の型として知られる。)。溶質の濃度が既知の値として固定される。
- 2. 溶質濃度の設定(Neumann, 第2の型、あるいは source/sink として知られる。)。分散 する溶質のフラックスが既知の値として固定される。慣用的には、正の溶質フラックスが系に付加される。
- 3. 第3の型の濃度(Cauchy あるいは混合としても知られる。)。流体のフラックス及び系に入ってくる溶質の濃度が設定される。流体のフラックスは、ユーザによって溶質濃度が設定されている期間、流動の解から引き出される。

濃度の設定及び第3型の濃度境界型については、両方とも、時間によって変化するソースとして設定することができる。どちらの場合においても、ソース濃度を記述する関数は、いくつかのパネルに分割され、それぞれのパネルは、その開始時刻及び濃度の設定値を持っている。これに対して、溶質のフラックス境界条件では、より単純な入力によるオン/オフに限定されており、一回のシミュレーションあたり1つの設定しかできない。ソースの関数の時間変化に関しては、2つの仮定が導入されている。もしソース関数の第1のパネルがゼロよりも大きな時間に開始されたとしたら、その時間に至るまでは、濃度はゼロに保たれている。最後のパネルに与えられた濃度は、シミュレーションの最後まで割り当てられている。

# 2.3.5.1 Decay constants

時間とともにどのくらい早く境界条件の値が減少するかを記述する第1次減少定数が5つの分離した汚染物質の入力に対して設定できる。もしも汚染物質が全く減少しないようにしたいのであれば、適切なパラメータの値をゼロと設定する。

### decay\_s

設定された溶質のフラックス節点に対する第1次減少係数

### decay\_1

設定された溶液中濃度の節点に対する第1次減少係数

#### decay 3

長方形の要素において、第3の型の溶液中濃度に対する第1次減少係数。

#### decayv3

鉛直亀裂要素において、第3の型の溶液中濃度に対する第1次減少係数。

#### decayh3

水平亀裂要素において、第3の型の溶液中濃度に対する第1次減少係数。

### 2.3.5.2 Specified concentration regions

濃度は、グリッド内部に配置された面積ソースとして表わすために、領域として入力しなければならない。しかしながら、×あるいは z の範囲は、境界条件あるいは中間の線セグメントを表わすために、ゼロとすることができる。

## dctitle(maxsrc)

設定された濃度領域のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であって も良い。"Done"で入力を終了する。

### xcrmin(),xcrmax()

以下に示す濃度データを割り当てる節点のx方向の長方形の広がりの最小値及び最大値。 左側(X=0.0)における境界条件を設定するためには、両方の値をゼロとして読み込む。右側境界に対しては、xmax (系全体の長さ)として読み込む。

### zcrmin(),zcrmax()

以下に示す濃度データを割り当てる節点の z 方向の長方形の広がりの最小値及び最大値。 下部(z=0.0)における境界条件を設定するためには、両方の値をゼロとして読み込む。上 部境界に対しては、 z max (系全体の厚み) として読み込む。

## crval()

上記のように定義された長方形内部の節点からなるパネルの水相濃度 $(M/L^3)$ 。

#### crmval()

上記のように定義された長方形内部の節点からなるパネルのコロイド濃度(M/L<sup>3</sup>)。

### cron(), croff()

パネル(水相の溶質濃度)に対する開始時間及び終了時間。cpoff() = -1 とすれば、連続的なソースの入力となる。

## cronM(), croffM()

パネル(コロイド濃度)に対する開始時間及び終了時間。cpoffM() = -1 とすれば、連続的なソースの入力となる。

## 2.3.5.3 Specified concentration points

## cplabel(maxsrc)

設定された concentration points のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。"Done"で入力を終了する。

## cpx(), cpz()

濃度が設定される点のx及びz座標。

#### cppanel()

時間変化する濃度関数におけるパネルの数。シミュレーションの継続の間、一定のソース条件でシミュレートするためには、パネルの数は 1 に設定し、濃度の設定及び開始時間ゼロを以下に入力する。それぞれのパネルに対しては、以下のように入力する。

## cpval()

パネルに対して設定された液相濃度 $(M/L^3)$ 。これは、上記の部分で定義された点の節点に対して割り当てられる。

## cpmval()

パネルに対して設定されたコロイド濃度 $(M/L^3)$ 。これは、上記の部分で定義された点の節点に対して割り当てられる。

### cpon(), cpoff()

パネル(液相の溶質濃度)に対する開始及び終了時間(T)。 cpoff() = -1 は、連続的なソース入力であることを表わす。

### cponM(), cpoffM()

パネル(コロイド相の溶質濃度)に対する開始及び終了時間(T)。 cpoffM() = -1 は、連続的なソース入力であることを表わす。

2.3.5.4 Third-type concentration fill segments — Aqueous phase solute

#### c3sside(maxsrc)

第3型の濃度の fill segments のタイトル。80文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。その segments がどの方向にあるものなのかを特定するために、その最初の3文字は'Rig', 'Lef', 'Top' あるいは'Bot' としなければならない。"Done" で入力を終了する。

# c3smin(),c3smax()

c3smin()と c3max()は、選択された境界における第3型の濃度 segment の開始点及び終了点を定義する。上部あるいは下部の境界においては、これらは、x 座標で表わされるであろうし、右あるいは左側の境界に対しては、z 座標で表わされるであろう。

### c3sstrt(),c3send()

segment に対して設定された濃度 $(m/L^3)$ 。これは、上記で設定された segment 内部の要素に対して割り当てられる。c3sstrt() と c3send()は、それぞれ、この segment に対する開始及び終了時の濃度 $(m/L^3)$ を表わす。c3smin() と c3smax()の間にある segment 内部の要素については、直線での内挿によって濃度を決定する。第 3 の型の濃度値は segment 内部の長方形の要素(多孔質媒体)及び線要素(亀裂媒体)に対して生成される。長方形要素の場合、生成された値は、要素の境界端の中点を用いて内挿される。全ての segment に対して、一定の濃度を設定するためには、単純に、以下のようにする。

c3sstrt()=c3send()=設定値

### c3son(),c3soff()

segment に対して設定された濃度 $(M/L^3)$ が開始される時間及び終了する時間(T)。c3soff() = -1 の場合は、連続的なソース入力となる。

2.3.5.5 Third-type concentration fill segments - Colloid

## c3ssidec(maxsrc)

設定する第3型のコロイド濃度の fill segments のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。その segments がどの方向にあるものなのかを特定するために、その最初の3 文字は'Rig', 'Lef', 'Top' あるいは'Bot' としなければならない。"Done" で入力を終了する。

## c3sminc(),c3smaxc()

c3sminc() と c3maxc()は、選択された境界における第3型のコロイド濃度 segment の開始 点及び終了点を定義する。上部あるいは下部の境界においては、これらは、x 座標で表 わされるであろうし、右あるいは左側の境界に対しては、z 座標で表わされるであろう。

## c3sstrtc(),c3sendc()

segment に対して設定する濃度 $(m/L^3)$ 。これは、上記で設定された segment 内部の要素に対して割り当てられる。c3sstrtc() と c3sendc()は、それぞれ、この segment に対する開始及び終了時の濃度 $(m/L^3)$ を表す。c3sminc() と c3smaxc()の間にある segment 内部の要素については、直線での内挿によって濃度の値を決定する。第3の型の濃度値は segment 内部の長方形要素(多孔質媒体)及び線要素(亀裂媒体)に対して生成される。長方形要素の場合、生成された値は、要素の境界端の中点を用いて内挿される。全ての segment に対して、一定の濃度の値を設定するためには、単純に、以下のようにする。

c3sstrtc()=c3sendc()=設定値

## c3sonc(),c3soffc()

segment に対して設定された濃度の値 $(M/L^3)$ が開始される時間及び終了する時間(T)。 c3soffc() = -1 の場合は、連続的なソース入力となる。

### 2.3.5.6 Specified solute flux fill segments

ここでは、溶質のフラックス(分散フラックス)を設定するということを除いては、前述の 水頭の fill segment に対して述べたデータ構造と同じものを用いる。

## cssside(maxbc)

設定する溶質フラックスの fill segments のタイトル。80 文字以内のいかなるアルファベットの文字であっても良い。その segments がどの方向にあるものなのかを特定するために、その最初の3 文字は'Rig', 'Lef', 'Top' あるいは'Bot' としなければならない。"Done"で入力を終了する。

### cssmin(),cssmax()

Cssmin()と cssmax()は、選択された境界における溶質フラックスの segment の座標の開始及び終了点を定義する。上部あるいは下部の境界においては、x 座標で表わされるであるうし、右あるいは左側の境界に対しては z 座標で表わされるであるう。

## cssstrt(),cssend()

cssstrt() と cssend()は、この segment の開始及び終了時のフラックスの値を表わす。 cssminc() と cssmaxc()の間にある segment 内部の要素については、直線での内挿によって溶質フラックスの値を決定する。全ての segment に対して、一定の溶質フラックスの値を設定するためには、単純に、以下のようにする。

cssstrt()=cssend()=設定値

### csscst(),csscend()

csscst() と csscend()は、この segment に対する濃度の設定値の開始及び終了の時間を表わす。cssmin() と cssmax()の間にある segment 内部の節点についても、直線での内挿によって溶質のフラックスの値を決定する。全ての segment に対して、一定の溶質フラッ

クスの値を設定するためには、単純に、以下のようにする。

csscst()=csscend()=設定値

### csson(),cssoff()

溶質フラックスがオン及びオフとなる時間 (T) 。シミュレーションを通じて持続的なソースとしてシミュレートするためには、csson() を 0.0 として、 cssoff() を -1.0 として 読み込めばよい。

### 2.3.5.7 Specified solute flux points

## sstlabel(maxsrc)

設定された溶質フラックス点のタイトル。`Done' で入力を終了する。

### sstx(),sstz()

溶質のフラックス率が設定される点の x 座標及び z 座標。

### sstval()

上記の通り設定された点で、節点に割り当てられるフラックス率(M/T)。

#### sstcval()

上記の通り定義された点で、節点に割り当てられる濃度(M/L<sup>3</sup>)。

# sson(),ssoff()

溶質フラックスソースがオン及びオフされる時間(T)。シミュレーションの間、持続的なソースとしてシミュレートするためには、sson() を 0.0 として、ssoff() を -1.0 として読み込めばよい。

## 2.3.6 Initial conditions for transport

以下に示すパラメータは、スイッチ "lrstrt"が"true"に設定されていない限り、溶液の輸送に関する初期条件(初期濃度)を定義する。スイッチ"lrstrt"が"true"に設定されている場合には、初期条件は PREFIX.RST ファイルから COLFRAC に読み込まれる。この場合、ここに書かれた値は上書きされてしまう。

#### cinit

系の全ての節点に対して割り当てられるデフォルトの初期濃度。

# ictitle(maxsrc)

cinit とは異なる値の初期濃度を持つ領域のタイトル。`Done' によって入力が終了する。

## xicmin(),xicmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する x 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

## zicmin(),zicmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する z 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

## diffic()

上記の通り定義された長方形の中の節点に対して割り当てられる濃度(M/L3)。

#### cminit

系の全ての節点に対して割り当てられるデフォルトの初期移動性コロイド濃度。

### icmtitle(maxsrc)

cminit とは異なる値の初期コロイド濃度を持つ領域のタイトル。`Done' によって入力が終了する。

## xicmmin(),xicmmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する x 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

### zicmmin(),zicmmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する z 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

## difficm()

上記の通り定義された長方形の中の節点に対して割り当てられるコロイド濃度(M/L3)。

#### csinit

系の全ての節点に対して割り当てられるデフォルトの初期フィルトレーションコロイド 濃度。

### icstitle(maxsrc)

csinit とは異なる値の初期フィルトレーションコロイド濃度を持つ領域のタイトル。
`Done' によって入力が終了する。

## xicsmin(),xicsmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する x 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

## zicsmin(),zicsmax()

節点に対して以下に示すような初期濃度データが割り当てられる長方形に対する z 方向の広がりの最小値及び最大値(L)。

## diffics()

上記の通り定義された長方形の中の節点に対して割り当てられるフィルトレーションコロイド濃度 $(M/L^3)$ 。

### 2.3.7 Slice data for flux calculation

## slice\_type

これを横切った節点に対して、地下水流動及び溶質の物質輸送が計算される断面のタイトル。水平方向の断面であることを認識するために `Row' の3文字がタイトルの最初に使われなければならない。また、鉛直方向の断面であることを認識するために `Col' の3文字がタイトルの最初に使われなければならない。それ以外は、80文字以内のいかなるアルファベット文字を用いても構わない。

#### xslice

x(列)、あるいは z(行)の断面の座標。流体及び溶質のマスバランス計算が要求された場合には、境界の値が記録されるため、この断面は境界上であってはならない。

### 2.3.8 Non-varying physical parameters

注意:もし媒体が亀裂性でない場合には、不変の物理的パラメータ(clamda は除く)は読み込まれるだけで使われない。

#### diffus

自由水中の拡散係数 (L<sup>2</sup>/T)

#### diffusm

コロイドに対する自由水中の拡散係数  $(L^2/T)$ 

#### velfac

コロイドと地下水の流速の比(-)

#### rho

流体の密度 (M/L3)

#### visc

流体の粘度 (M/LT)

#### clamda

溶質の第 1 次崩壊速度定数 (1/T).。この定数は、以下に示す式によって、汚染物質の半減期から算出することができる。

$$clamda = ln(2)t^{1/2}$$

崩壊が起こらない場合には、clamda をゼロと設定する。

#### grav

重力加速度 (L/T<sup>2</sup>)

### 2.3.9 Solver parameters

#### north

流動解析に用いる ORTHOMIN 加速法に対する直交化の数

#### maxitf

流動解析のための ORTHOMIN の繰り返し回数の最大許容回数

#### norderf

流動解析結果を得るためのマトリックス解析に対する前処理に用いるオーダリングの方法

. norderf =0 (natural ordering); norderf = 1 (RCM ordering); norderf = 2 (minimum degree ordering).

## levelf

流動解析結果を得るためのマトリックス解析に対する前処理に用いる不完全 L/U 分解レベル

## dptolf

流動解析結果を得るためのマトリックス解析に対してドロップトレランス (drop-tolerance)前処理を実施する。

### epsrnf

流動解析結果を得るためのマトリックス解析に対するドロップトレランス (drop-tolerance)値

## ctolf

流動問題に対するマトリックス方程式の ORTHMIN 反復解法に対する完全収束基準。解の収束は、節点の残差の絶対誤差の最大値がctolfの値よりも小さくなったときに生じる。

#### rrctolf

流動問題に対するマトリックス方程式の ORTHMIN 反復解法に対する相対収束基準。解の収束は、節点の残差の相対誤差の最大値が rrctolf の値よりも小さくなったときに生じる。

#### maxit

輸送問題に対するマトリックスの反復の最大許容回数

#### norder

物質輸送解析結果を得るためのマトリックス解析に対する前処理に用いるオーダリング の方法

norder =0 (natural ordering); norder = 1 (RCM ordering); norder = 2 (minimum degree ordering).

#### level

物質輸送解析結果を得るためのマトリックス解析に対して前処理に用いる不完全 L/U 分解レベル。

# dptol

物質輸送解析結果を得るためのマトリックス解析に対してドロップトレランス (drop-tolerance)前処理を実施する。

### epsrn

物質輸送解析結果を得るためのマトリックス解析に対するドロップトレランス (drop-tolerance)値

### ctol

物質輸送問題に対するマトリックス方程式の反復解法に対する完全収束基準。解の収束 は、節点の残差の絶対誤差の最大値が ctol の値よりも小さくなったときに生じる。

#### rrctol

物質輸送問題に対するマトリックス方程式の反復解法に対する相対収束基準。解の収束は、節点の残差の相対誤差の最大値が rrctolf の値よりも小さくなったときに生じる。

# isymstp

isymstp<sup>th</sup> ステップごとに、シンボリック分解(symbolic factorization)を実行する。 前処理におけるシンボリック分解は、" 高価な " プロセスであるが、全体の計算時間を低減することができる。

isymstp=5 とすることを推奨する。

#### iacl

マトリックスの加速方法の選択。

iacl = 0 (conjugate gradient); iacl = 1 (ORTHMIN); iacl = 2 (CGSTAB).

iacl = 1 とすることを推奨する。

#### dt

最初のタイムステップ (T).

#### dtmax

タイムステップの大きさの最大許容値 (T).

#### cstar

次のタイムステップを計算するための、タイムステップ内に許容される最大濃度変化。 COLFRAC は、全体の計算時間を速くするために、可変タイムステップを用いる。 COLFRAC は、タイムステップを dt として計算を開始し、次の式に基づいて、タイムスップを増加させる。

dt\_next = max (dtmax, cstar \* dt\_current / dcmax)

ここで、

dt\_current: 現在のタイムステップ

dt\_netx: 次のタイムステップ

dcmax: 領域中での前回と現在の濃度に対する最大変化

#### tw

物質輸送問題に対する Time weighting factor

tw = 0 (explicit); tw = 0.5 (Crank-Nicholson); tw = 1.0 (implicit)

tw=1 と設定することを推奨する。

#### nts

出力する時間の数

#### times

濃度ファイルを生成する時間間隔

### 2.4 PRECLD Output Files

PRECLD 出力ファイルは、プレフィックスに"O"を付加して構築される。もし、プレフィックスが既に8文字であった場合には、8番目の文字が、"O"に置換される。このファイルネーミングは、同じディレクトリ上において、入力ファイルと出力ファイルのグループの足跡を管理することや、ワイルドカードを用いて出力ファイルをグループとして消去することが容易である。PRECLD によって生成される完全なファイルのリストは、以下の通りである。

- PREFIXO.ECO: PRECLD の出力ファイルのエコー (ascii)。PRECKD が実行されている間に、このプリプロセスの入力ファイルから読み込まれた情報を含んだリストが作成される。このファイルは、デバッグのために有用であり、何か問題が起こった時には、まず最初にこのファイルをチェックすべきである。どのような場合であっても、COLFRAC を実行する前に、データが正確であるか、コードが適切なディメンジョンの大きさでコンパイルされているかを確認するために、チェックを行うべきである。大抵の場合、不十分なディメンジョンの大きさであることは、リストファイルの中に報告されており、画面上にも表示される。また、PRECLD は、その時点で終了される。
- PREFIXO.GEN COLFRAC : 全体の入力ファイル (ascii)
- PREFIXO.XYC : X, Z の節点の座標の組み合わせ (binary)。このファイルは、 以下に示す FORTRAN の命令文を用いて書き出されている。

```
open(11,file=dat_id(:flen)//'o.xyc',status='unknown', form='unformatted') write(11) nn write(11) (x(i),z(i),i=1,nn) close(11)
```

ここで、 DAT.ID(:FLEN) は、問題のプレフィックスを格納するための FORTRAN の変数 である。PRECLD は、必須となるサフィックス、この場合は "O.XYC"を付加する。

 PREFIXO.INC : 長方形要素の範囲 (binary)。このファイルは、以下に示す FORTRAN の命令文で書き出される。

```
open(12,file=dat.id(:flen)//'o.inc',status='unknown', form='unformatted') write(12) ne write(12) (in(1,i),in(2,i),in(3,i),in(4,i),i=1,ne) close(12)
```

ここで、このファイルと次に示すファイルに対する適切なファイル名は、プレフィック

スと上記のサフィックスを合成して作成される。

PREFIXO.REZ : 長方形要素の特性領域数 (binary)。このファイルは、以下に示す FORTRAN の命令文で書き出される。

```
open(13,file=dat.id(:flen)//'o.rez',status='unknown', form='unformatted')
write(13) ne
write(13) (izone(i),i=1,ne)
close(13)
```

PREFIXO.HFZ : 水平亀裂の線要素の範囲、特性領域数、及び亀裂開口幅 (binary)。
 このファイルは、以下に示す FORTRAN の命令文で書き出される。

```
open(15,file=dat.id(:flen)//o.hfz',status='unknown', form='unformatted')
write(15) nfeh
write(15) (ihzone(i),i=1,nfeh)
write(15) ((infh(j,i),j=1,2),i=1,nfeh)
write(15) (aph(i),i=1,nfeh)
close(15)
```

PREFIXO.VFZ : 鉛直亀裂の線要素の範囲、特性領域数、及び亀裂開口幅 (binary)。
 このファイルは、以下に示す FORTRAN の命令文で書き出される。

```
open(15,file=dat.id(:flen)//'o.vfz',status='unknown', form='unformatted')
write(15) nfev
write(15) (ivzone(i),i=1,nfev)
write(15) ((infv(j,i),j=1,2),i=1,nfev)
write(15) (apv(i),i=1,nfev)
close(15)
```

PREFIXO.ICD : デフォルトと異なる場合、その初期条件(binary)。このファイルは、以下に示す FORTRAN の命令文で書き出される。

```
open(15,file=dat.id(:flen)//'o.icd',status='unknown', form='unformatted')
write(15) nci
write(15) (nodi(i),conci(i),i=1,nci)
```

#### 3. COLFRAC

COLFRAC は、PRECLD によって生成された出力ファイルを読み込んで、プログラムの制御スイッチに依存して、様々な計算を実行する。その計算は、節点毎の水頭や、要素毎の Darcy フラックス、節点毎の移動性及び非移動性のコロイド、水相及びトータルの溶質の濃度に対する解を含んでいる。

COLFRAC を実行するためには、適切なコマンドを入力する。下記を一読のこと。

### 'Give prefix of problem filename...'

このプロンプトは、".GEN"ファイルに対するプレフィックスをたずねている。このファイルは PRECLD によって生成されており、PRECLD によって読み込まれた".PRE"ファイルのプレフィックスと同一のものである。

プレフィックスは、異なる拡張子をつけて出力ファイルを構築するために用いられる。 COLFRAC によって生成されるファイルの完全なリストを以下に示す。

- PREFIXO.CON, PREFIXO.COT は、それぞれ、水相及びトータルの溶質濃度である。
- PREFIXO.COC, PREFIXO.COF は、それぞれ、移動性及び非移動性のコロイド濃度である。
- PREFIXO.LST : COLFRAC のリストファイル (ascii)。このファイルは、COLFRAC の実行中に生成されるもので、デバッグの時や、問題が発生した時に入力ファイルが正しいことを確認するためにチェックすべきである。流体のバランスや領域の境界上の節点及び前述の断面に沿った地下水フラックスも、".PRE"ファイルで設定されていれば、この".LST"ファイルの中に報告される。
- PREFIXO.VEL : 長方形及び線要素の Darcy フラックス(binary)及び内部に設定した断面を横切るマスフラックスを計算するために必要な情報。このファイルは、スイッチ Idvel あるいは Islice が"true" とセットされた時には、開かれる。第 1の部分のファイルには、Darcy フラックスが含まれており、スイッチ Idvel が"true"とされた場合に、この部分は以下に示す FORTRAN の命令文によって生成される。

```
open(9,file=ofile,status='unknown',form='unformatted') write(9)
(vx(i),vz(i),i=1,ne)

if(nfev.gt.0) then
    write(9) (vfv(i),i=1,nfev)
endif
if(nfeh.gt.0) then
```

write(9) (vfh(i),i=1,nfeh) endif write(9) kmbal

ファイルの次の部分は、内部の断面を横切るマスフラックスを計算するために必要な情報を含んでおり、スイッチ Islice が"true" に設定された時に、以下に示す FORTRAN 命令文によって生成される。

write(9) kslice,islice,icut

write(9) (qslice(i),i=1,ip)

次の行は常に書き出される。

write(33) kslice

ファイルのこの部分は、スイッチ Islice が"true" に設定された時に、以下に示す FORTRAN の命令文によって生成される。

if(islice.eq.1) then

write(33) nx

write(33) (nodeslice(i),i=1,nx)

elseif(islice.eq.0) then

write(33) nz

write(33) (nodeslice(i),i=1,nz)

endif

# 4. Postprocessung

### 4.1 Plotted output

COLFRAC からの出力は、TECPLOT といったサードパーティーのビジュアリゼーションパッケージに取り込むことができる。

"OUT2TECPLOT" によって、COLFRAC の binary ファイルを、サードパーティーのパッケージである TECPLOT と互換性がある ascii フォーマットのファイルへ変換する。これらのファイルを TECPLOT で読み込む前には、TECPLOT のパッケージで、ascii フォーマットを binary フォーマットへ変換するプログラムである PREPLOT.EXE を行いたいと考えるかもしれない。

利用可能なプラットフォームやパッケージは数多くあるため、それら個々のシステムに対するプロットのためのルーチンの導入は、ユーザに任せることにする。