

亀裂岩石中におけるコロイドに助長された  
核種移行の評価  
(研究報告)

1999年5月

核燃料サイクル開発機構  
東海事業所

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。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33  
核燃料サイクル開発機構 東海事業所  
運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Information Section,  
Administration Division,  
Tokai Works,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1194  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
1999

## 亀裂岩石中におけるコロイドに助長された核種移行の評価

### (研究報告)

報告者：久野義夫<sup>1)</sup>，油井三和<sup>1)</sup>

黒澤進<sup>2)</sup>，加藤博康<sup>2)</sup>，上田真三<sup>2)</sup>

#### 要旨

放射性廃棄物の処分場において、コロイド粒子は地下水中の放射性核種の移行を助長させることが懸念されている。岩石亀裂中の核種移行にコロイド粒子が与える影響を評価するために、平行平板モデルを用いて移行解析を実施した。この解析モデルでは、コロイドと核種は亀裂中を移流・分散現象に支配されて移行する。核種は岩石マトリクスへ無限に拡散するものとする。その際に、岩石マトリクスでの核種の収着（分配係数 $Kd_2$ ）を仮定する。また、地下水中に存在するコロイドへの核種の収着（分配係数 $Kd_3$ ）によって、疑似コロイドを形成するものとした。一方、コロイドの岩石マトリクスへの拡散や亀裂表面でのフィルトレーションは、保守的に想定しない。また、亀裂充填鉱物へのコロイドや核種の収着についても、十分な知見が得られていないので考慮しないものとする。

評価の対象として、核種のインベントリや放射線学的影響の観点から、性能評価上重要な18元素(Se, Zr, Nb, Tc, Pd, Sn, Cs, Sm, Pb, Ra, Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am 及び Cm)を、核種の収着性( $Kd_2$ 及び $Kd_3$ )を見積もる上で考慮した。地下水中に存在するコロイドとしてはベントナイトコロイドを、地質媒体としては亀裂性の花崗岩をそれぞれ想定した。ベントナイトコロイドは処分場の人工バリアの浸食によって生成することが懸念され、また天然に含まれる粘土コロイドとしても想定される。

解析に必要な入力データは、

- 岩石マトリクスでの核種の収着（分配係数 $Kd_2$ ）
- コロイドへの核種の収着（分配係数 $Kd_3$ ）
- 亀裂中でのコロイドと核種の分散係数や流速
- 核種のマトリクス間隙水中の拡散係数（ $D_p$ ）
- 単一平行平板亀裂における亀裂開口幅
- 岩石マトリクスでの間隙率

- 地下水中でのコロイド濃度

である。コロイドによる核種移行の助長を安全側に評価するために、入力データとしては保守的な値を設定した。また、核種の分配係数 ( $Kd_2$  及び  $Kd_3$ ) とコロイド濃度は、感度解析におけるパラメータとして用いた。

解析の結果は、以下のようであった。

- コロイドへの分配係数( $Kd_3$ ) が小さい核種の移行は、ほとんどコロイドによって助長されない。(例えば、Se, Pd, Ra 及び Nb) 一方、大きな $Kd_3$  を有する核種の移行は、疑似コロイドの形成によって助長が増大する。しかし、本解析で用いたモデル及びデータ設定に基づけば、亀裂中にコロイドが存在することによる核種の移行速度の助長は、コロイドが存在しない場合に比較して、オーダーで増大するほど顕著ではないことが予想された。
- 岩石への核種の分配係数( $Kd_2$ ) が大きいとき、亀裂中での核種移行は遅延される。
- 地下水中のコロイド濃度は、核種移行の助長に影響を及ぼす。

- 
- 1) 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部
  - 2) 三菱マテリアル株式会社

## **Estimation of colloid-facilitated radionuclide transport within a fractured rock**

Yoshio KUNO<sup>1)</sup>, Mikazu YUI<sup>1)</sup>

Susumu KUROSAWA<sup>2)</sup>, Hiroyasu KATO<sup>2)</sup>, Sinzo UETA<sup>2)</sup>

### **ABSTRACT**

Colloids may enhance the transport of radionuclides in groundwater in the radioactive waste repository. To evaluate the effect of colloids on the radionuclide transport through a fracture in a rock, radionuclide transport was simulated by applying the parallel plane model. In this model, colloid and radionuclide transport is influenced by the advection/dispersion within the fracture flow. Radionuclides diffuse into the rock matrix infinitely. Radionuclide sorption on the pore surfaces of the matrix (distribution coefficient  $Kd_2$ ) is assumed. Pseudocolloids are generated by radionuclide sorption on the colloids existing in the groundwater (distribution coefficient  $Kd_3$ ). However, matrix diffusion of colloid and colloidal filtration on the fracture surface are not taken into account conservatively. Colloids and radionuclides sorption onto the fracture fillings is also conservatively neglected because of the lack of data.

From the viewpoint of the radionuclide inventory and the radiological impact, eighteen important radionuclides (Se, Zr, Nb, Tc, Pd, Sn, Cs, Sm, Pb, Ra, Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am and Cm) were considered for the estimation of radionuclide sorption ( $Kd_2$  and  $Kd_3$ ). Bentonite colloids and a fractured granite were assumed as the colloids existing in the groundwater and geological media respectively. Bentonite colloid might be generated by erosion/extrusion from engineered barrier of repository and simulates natural clay colloids.

Some data were needed to carry out the simulation.

- radionuclide sorption on the pore surfaces of the rock matrix (distribution coefficient  $Kd_2$ )
- radionuclide sorption on the colloids existing in the groundwater (distribution coefficient  $Kd_3$ )
- colloid and radionuclide dispersion coefficients and flow velocity within a fracture

- diffusion coefficient of radionuclide in the porewater of the rock ( $D_p$ )
- fracture aperture in a single plane fracture
- porosity of rock matrix
- colloid concentration in the groundwater

To estimate colloid-facilitated radionuclide transport, the conservative values were adopted for the input data. Distribution coefficients of radionuclide ( $K_{d2}$  and  $K_{d3}$ ) and colloid concentration were used for the parameters of sensitivity analysis.

The conclusions from simulated results are as follows.

- The transport of radionuclides, which have low distribution coefficient on the colloids ( $K_{d3}$ ), are almost not enhanced by the colloid presence. (e.g., Se, Pd, Ra and Nb) On the other hand, the transport of radionuclides, which have high  $K_{d3}$ , are accelerated by the pseudocolloid formation. Based on the results and data setting, however, the velocity of colloid-facilitated radionuclide transport may not be one order of magnitude faster than that of radionuclide transport without colloids.
- When the radionuclide distribution coefficient on the pore surfaces of the rock ( $K_{d2}$ ) is high, radionuclide transport is retarded through the fracture.
- Colloid concentration in the groundwater increases radionuclide transport.

- 
- 1) Tokai Works, Japan Nuclear Cycle Development Institute
  - 2) Mitsubishi Materials Corporation

## 目次

1. はじめに	1
2. コロイドが核種移行に与える影響を評価するモデル	2
2-1. モデルの概念	2
2-2. 解析解の導出	2
2-3. 破過曲線の図示	6
3. 影響の評価に用いたデータ	10
3-1. 解析対象にする核種と岩種	10
3-2. 解析対象にするコロイドとその濃度	10
3-3. 核種の収着性の設定	11
3-4. ベントナイトコロイドの粒径測定及び分散係数の推測	12
3-5. 岩石中の亀裂及び地下水の流れの条件の設定	13
4. 核種移行に与える影響の評価結果	20
5. まとめ	26
参考文献	27

図表目次

表 1	評価対象 18 核種の岩石への分配係数 $Kd_2$ の設定値	14
表 2	評価対象 18 核種のベントナイトコロイドへの分配係数 $Kd_3$ の設定値及び設定根拠となる実験値	15
表 3	評価対象 18 核種の分配係数 $Kd_2$ 及び $Kd_3$ の設定値一覧	17
表 4	コロイドの影響評価のための解析設定値	18
Fig.1	Schematic figure of solute/colloid migration within a fractured rock	9
Fig.2	Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture (Dependence on $Kd_3$ , $Kd_2=0.05m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)	21
Fig.3	Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture (Dependence on $Kd_3$ , $Kd_2=5m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)	22
Fig.4	Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture (Dependence on $Kd_2$ , $Kd_3=5m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)	23
Fig.5	Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture (Dependence on $Kd_2$ , $Kd_3=500m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)	24
Fig.6	Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture (Dependence on colloid conc., $Kd_2=5m^3/kg$ , $Kd_3=500m^3/kg$ )	25



## 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムにおいて、ガラス固化体から漏洩した核種はイオン形態として移行するほかに、一部はコロイド粒子に収着したり、あるいは自らコロイドを形成して移行することが懸念されている [1]。しかし、処分システムの緩衝材として用いられることが検討されているベントナイトは微細な間隙構造を有するので、コロイド領域の大きさの粒子をろ過することが期待されている [2]。したがって、ガラス固化体やオーバーパックに起因して生成するコロイドに漏洩核種が収着して疑似コロイドを形成したり、あるいは漏洩核種自体が凝集して真性コロイドを形成しても、人工バリアから外部へは移行しないものと考えられる。

一方、天然の地下水中にはコロイド粒子が含まれることが予想され [3]、また地下水の流れが速ければ緩衝材が浸食されてベントナイト粒子が流出することが懸念されている [4]。地下水中に存在するコロイドが核種を収着して疑似コロイドを形成し、この疑似コロイドの岩石への収着性が弱いときには、コロイドは核種の移行を助長する媒体として作用することが予想される。このように、コロイドが地下水中共存することによって、天然バリア中での漏洩核種の移行挙動に影響を与えることが懸念される [5]。

そこで本研究では、岩石亀裂中を核種とコロイドが共存して移行するモデルを想定し、保守的な条件で核種の移行解析を実施することによって、コロイドが核種移行に与える影響を評価することを目的とする。

## 2. コロイドが核種移行に与える影響を評価するモデル

### 2-1. モデルの概念

亀裂岩石中での、核種とコロイドが共存する状態での移行挙動について、Hwangらのモデル [6] に基づき検討を行った。モデルの概念を図1に示す。

このモデルでは、コロイドが常に一定濃度存在する地下水の流れの中に、漏洩核種が混入して疑似コロイドを形成する状況を想定している。岩石中に開口幅 $2b$ で規定される平行平板状の単一亀裂を想定し、コロイドと外部から混入した核種とは移流・分散現象及びコロイド-核種-岩石の3相間での瞬時収着平衡の支配を受けながら移行する。

亀裂における地下水の占める割合は体積分率 $\epsilon_1$ で表され、一方、残りの $(1-\epsilon_1)$ は亀裂の両表面における収着の起こり得る固相領域を表す。したがって、この固相は間隙が比較的大きく、核種の収着性が高い充填鉱物のような媒体を想定している。この収着が作用する領域において、岩石へのコロイドの収着 $Kd_1$ 及び岩石への核種の収着 $Kd_2$ が起きる。

核種についてはマトリクス間隙水中の拡散係数 $D_p$ を考慮する。核種は岩石内の微細な間隙構造を、濃度勾配に依存して亀裂面とは垂直の方向に無限に拡散する。また、マトリクス拡散において、微細な間隙表面への核種の収着 $Kd_2$ が伴うものとする。岩石の間隙は、亀裂中の充填鉱物 $(1-\epsilon_1)$ 及びマトリクス内深部ともに、同一の間隙率 $\epsilon_p$ で規定する。

なおこのモデルでは、コロイドについてはマトリクス拡散による遅延は起こらないものとして、保守的な評価をする。また、コロイドの移行過程で発生する可能性のある、亀裂の形状に起因するコロイドの物理的なフィルトレーション [7] は考慮されていない。

Hwangらは核種の崩壊現象を考慮して解析解を導出しているが、本研究では、コロイドが与える影響を核種の収着性に基づき評価、比較することを目的とするので、崩壊定数を0とおき、崩壊は起こらないものとして解析した。また、亀裂中の充填鉱物については、核種やコロイドを収着して移行を遅延させることが期待されるが、現状では鉱物の種類や存在割合及び収着性などが詳細には把握されていない。よって、本解析では保守的に充填鉱物を考慮にいれず、収着固相領域 $(1-\epsilon_1) = 0$ において、解析を行った。

### 2-2. 解析解の導出

Hwangらの報告では、亀裂中をコロイドに収着して移行する核種の移行方程式として、以下の式が示されている。

$$\epsilon_1 \xi_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} - \epsilon_1 \xi_1 D_1 \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \epsilon_1 \xi_1 v_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} + \epsilon_1 S_1(x,t) + \epsilon_1 S_2(x,t) + \epsilon_1 \xi_1 \lambda C_1 = 0 \quad (1)$$

ここで、 $C_1(x,t)$ ; コロイドに収着された核種の濃度、 $x$ ; 亀裂入口からの距離、 $t$ ; 時間、 $\epsilon_1$ ;

亀裂中の地下水の体積分率、 $\xi_1$ ; 地下水中のコロイドの体積分率、 $D_1$ ; コロイドの分散係数、 $v_1$ ; コロイドの流速、 $\epsilon_1 S_1(x,t)$ ; コロイドが岩石へ収着する割合、 $\epsilon_1 S_2(x,t)$ ; コロイドから核種が脱離する割合、 $\lambda$ ; 崩壊定数である。

また、コロイドに収着されずに液相に存在する核種の移行方程式として、以下の式が示される。

$$\epsilon_1 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} - \epsilon_1 D_2 \frac{\partial^2 C_2(x,t)}{\partial x^2} + \epsilon_1 v_2 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} - \epsilon_1 S_2(x,t) + \epsilon_1 S_3(x,t) + \epsilon_1 \lambda C_2 + \frac{q(x,t)}{b} = 0 \quad (2)$$

$$q(x,t) = -\epsilon_p D_p \left. \frac{\partial N(x,y,t)}{\partial y} \right|_{y=b} \quad (3)$$

ここで、 $C_2(x,t)$ ; コロイドに収着されない核種の濃度（溶液中の核種の濃度）、 $D_2$ ; 核種の分散係数、 $v_2$ ; 核種の流速（地下水流速と等価と仮定）、 $\epsilon_1 S_3(x,t)$ ; 核種が岩石へ収着される割合、 $q(x,t)$ ; 岩石マトリクス中への核種の拡散フラックス、 $\epsilon_p$ ; 岩石中の間隙率、 $D_p$ ; 岩石間隙水中の核種の拡散係数、 $N(x,y,t)$ ; 岩石間隙中の核種濃度、 $b$ ; 亀裂の1/2幅である。

岩石に収着した核種の濃度 $C_3(x,t)$ については、

$$(1 - \epsilon_1) \frac{\partial C_3(x,t)}{\partial t} - \epsilon_1 S_3(x,t) + (1 - \epsilon_1) \lambda C_3(x,t) = 0 \quad (4)$$

で表され、また岩石に収着したコロイド中の核種については、

$$(1 - \epsilon_1) \xi_2 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} - \epsilon_1 S_1(x,t) + (1 - \epsilon_1) \xi_2 \lambda C_1(x,t) = 0 \quad (5)$$

として表される。ここで、 $\xi_2$ ; 岩石に収着したコロイドの体積比である。

また、岩石マトリクス中での核種の移行は以下の式で表される。

$$R_p \frac{\partial N(x,t)}{\partial t} - D_p \frac{\partial^2 N(x,t)}{\partial y^2} + R_p \lambda N(x,t) = 0 \quad (6)$$

ここで、 $R_p$ ; 岩石マトリクス中での核種の遅延係数である。

3相中での各核種濃度 $C_1$ 、 $C_2$ 、 $C_3$ 及び体積分率 $\xi_1$ 、 $\xi_2$ については、次のような線形の瞬時収着平衡が成立すると仮定する。

$$Kd_1 = \frac{\xi_2}{\xi_1}, \quad Kd_2 = \frac{C_3(x,t)}{C_2(x,t)}, \quad Kd_3 = \frac{C_1(x,t)}{C_2(x,t)} \quad (7)$$

(1)式に(2)～(5)式及び(7)式の関係代入し、さらに遅延係数 $R$ 、分散係数 $D$ 及び流速 $v$ を導入して整理すると、 $C_1$ に対して次式がまとめられる。

$$R \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + v \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} - D \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + R\lambda C_1(x,t) + \frac{q(x,t)}{\varepsilon_1 b} = 0 \quad (8)$$

ただし、

$$R = \xi_1 \left( 1 + \frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1} Kd_1 \right) + \left( 1 + \frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1} Kd_2 \right) \frac{1}{Kd_3}$$

$$v = v_1 \left( \xi_1 + \frac{v_2}{Kd_3 v_1} \right) \quad (9)$$

$$D = D_1 \left( \xi_1 + \frac{D_2}{D_1 Kd_3} \right)$$

初期条件及び境界条件は、

$$N(x, \infty, t) = 0, \quad x > 0, \quad t > 0$$

$$N(x, b, t) = \frac{1}{Kd_3} C_1(x, t), \quad x > 0, \quad t > 0$$

$$N(x, y, 0) = 0, \quad x > 0, \quad y > 0$$

(10)

$$C_1(0, t) = Kd_3 C_0, \quad t > 0$$

$$C_1(\infty, t) = 0, \quad t > 0$$

$$C_1(x, 0) = 0, \quad x > 0$$

とおくことにより、Hwangらは  $C_1$  について以下のような解析解を導出している。なお、 $C_0$  は亀裂入口での核種濃度である。

$$C_1 = \frac{2Kd_3 C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2\sqrt{D_1 t}}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R\lambda D} - v}{2D} x\right) \operatorname{erfc}\left\{\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} Kd_3}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)}}\right\}$$

$$\times \exp\left\{-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right\} d\eta \quad (11)$$

先に仮定したように、核種の崩壊の影響を考慮しないと  $\lambda = 0$  であるので、(11)式は以下のように簡略化される。

$$C_1 = \frac{2Kd_3C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/D_1}}^{\infty} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} Kd_3}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)}} \right\} \exp \left\{ - \left( \eta - \frac{xv}{4D\eta} \right)^2 \right\} d\eta \quad (12)$$

一方、単一亀裂中でのコロイドが存在しない核種単独での移行挙動をモデル的に解析した報告にTangらの研究 [8] がある。本研究ではHwangらの報告とは別に、Tangらの解析解の導出過程を参照することによって、(8)式から以下の解析解を導いた。

$$C_1 = \frac{Kd_3C_0}{\sqrt{\pi}} \exp(x\gamma) \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/D_1}}^{\infty} \exp \left( -\eta^2 - \frac{x^2\gamma^2}{4\eta^2} \right) \exp(-\alpha x^2) \\ \times \left\{ \exp(-\sqrt{\lambda}Y) \operatorname{erfc} \left( \frac{Y}{2T} - \sqrt{\lambda}T \right) + \exp(\sqrt{\lambda}Y) \operatorname{erfc} \left( \frac{Y}{2T} + \sqrt{\lambda}T \right) \right\} d\eta \quad (13)$$

ここで、

$$\gamma = \frac{v}{2D}, \quad \alpha = \frac{\lambda R}{4D\eta^2}, \quad Y = \frac{Rx^2}{4AD\eta^2}, \quad A = \frac{\varepsilon_1 b R Kd_3}{\varepsilon_p \sqrt{R_p D_p}}, \quad T = \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}$$

である。(12)式と同様に、核種の崩壊の影響を考慮しないものとする、 $\lambda = 0$  であるので以下のように簡略化される。

$$C_1 = \frac{2Kd_3C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/D_1}}^{\infty} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D\varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)} Kd_3} \right\} \exp \left\{ - \left( \eta - \frac{xv}{4D\eta} \right)^2 \right\} d\eta \quad (14)$$

Hwangらの報告の記載から引用した (12)式と、Tangらの報告に記載されている解析解の導出過程を参考に本研究で導出した(14)式とは、 $Kd_3$ の分子と分母の位置が異なる点を除き、同じ形態の数式となっている。両解析解の相違は、導出過程での数学的変換や近似が異なるためと考えられるが、Hwangらの報告には解析解の導出過程が記載されていないので、十分な比較や検討を行うことはできなかった。そこで、本研究ではTangらの報告を参考にして解析解の導出を行った(14)式の方が有用であると判断し、こちらの式を用いてコロイドが核種移行に与える影響を評価した。[注記参照]

なお、亀裂中での核種の移行を解析する際に、コロイドが存在しないケースでの評価も同時に実施した。この場合はコロイドの存在に関するパラメータである、地下水中のコロイドの体積分率  $\xi_1$ 、コロイドが岩石へ収着する影響  $Kd_1$ 、及び核種がコロイドへ収着する影響  $Kd_3$  を評価上考慮しない。(数学的な取り扱いとしては、 $\xi_1=0$ ,  $Kd_1=$

0,  $Kd_3=1$  と設定される。) コロイドが存在しない場合の核種移行は、本モデル評価では以下の解析解で表される。

$$C_2 = \frac{2C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2\sqrt{R_2/D_2t}}}^{\infty} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D_2 \varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - R_2 x^2 / (4D_2 \eta^2)}} \right\} \exp \left\{ - \left( \eta - \frac{xv_2}{4D_2 \eta} \right)^2 \right\} d\eta \quad (15)$$

ただし、この時の遅延係数 $R_2$ は

$$R_2 = 1 + \frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} Kd_2 \quad (16)$$

である。

### 2-3. 破過曲線の図示

ある評価距離における核種の破過挙動は、(14)式より疑似コロイドを形成して移行する核種については濃度比  $C_1/C_0$ 、また液相中に溶存して移行する核種については濃度比  $C_2/C_0 = (C_1/C_0)/Kd_3$  で表される。しかし、 $C_2$  及び  $C_0$  は液相基準の核種濃度であるのに対し、 $C_1$  はコロイド相基準の核種濃度であるので、直接両者を比較することはできない。そこで本解析では以下のような換算計算を実施した。

距離 $x$ 、時間 $t$ における地下水中の核種量は、  
 コロイド相中の核種量；  $C_1 \xi_1$   
 液相中の核種量；  $C_2 (1 - \xi_1)$   
 で配分されている。

一方、核種が評価距離を破過し、定常状態に達したときの両相への配分は、  
 コロイド相中の核種量；  $C_0 Kd_3 \xi_1$   
 液相中の核種量；  $C_0 (1 - \xi_1)$   
 となる。よって、

破過状態での核種の全量；  $C_0 Kd_3 \xi_1 + C_0 (1 - \xi_1)$

である。このように、 $C_0$ を用いて液相濃度に換算することができるので、コロイド相中の核種の存在割合及び液相中の核種の存在割合は、それぞれ以下の換算計算で算出される。

コロイド相中の核種の存在割合；

$$\frac{C_1 \xi_1}{C_0 Kd_3 \xi_1 + C_0 (1 - \xi_1)} = \frac{C_1}{C_0} \frac{\xi_1}{Kd_3 \xi_1 + (1 - \xi_1)} \quad (17)$$

換算係数

液相中の核種の存在割合；

$$\frac{C_2(1-\xi_1)}{C_0 Kd_3 \xi_1 + C_0(1-\xi_1)} = \frac{C_2}{C_0} \frac{(1-\xi_1)}{\text{換算係数}} \quad (18)$$

(17)及び(18)式に示す換算係数を乗じて得られる値を、改めて疑似コロイド中の核種の濃度 ( $C_1/C_0$ )、溶液中の核種の濃度 ( $C_2/C_0$ )として濃度比を規定する。また、コロイドが核種移行に与える影響は、コロイド相及び液相中の核種濃度の和で示されるので、評価結果である核種の破過曲線では、 $(C_1 + C_2)/C_0$  で表される濃度比の和を図示する (図2～6における Colloid-facilitated radionuclide transport の破過曲線が相当する)。この換算を行うことにより、核種が破過した状態では核種濃度の破過曲線は  $(C_1 + C_2)/C_0 = 1$  と表される。

以下に、解析に使用するパラメータを一覧する。

- $C_0$  [-]; 亀裂入口での核種濃度
- $C_1(x,t)$  [-]; 疑似コロイド中の核種の濃度
- $C_2(x,t)$  [-]; 溶液中の核種の濃度
- $C_3(x,t)$  [-]; 岩石に収着した核種濃度
- $x$ [m]; 移行距離
- $t$ [y]; 時間
- $\epsilon_1$  [-]; 亀裂中の地下水の体積分率
- $\epsilon_p$  [-]; 岩石の間隙率
- $\xi_1$  [-]; 地下水中的コロイドの体積比
- $\xi_2$  [-]; 岩石に収着したコロイドの体積比
- $v_1$ [m/y]; コロイドの流速
- $v_2$ [m/y]; 地下水流速
- $D_1$ [m<sup>2</sup>/y]; コロイドの分散係数
- $D_2$ [m<sup>2</sup>/y]; 核種の分散係数
- $D_p$ [m<sup>2</sup>/y]; 核種のマトリクス間隙水中の拡散係数
- $b$ [m]; 亀裂の1/2幅
- $Kd_1$  [-]; 岩石へのコロイドの収着
- $Kd_2$  [-]; 岩石への核種の収着
- $Kd_3$  [-]; コロイドへの核種の収着

[注記]

(3)式および(8)式より、疑似コロイド中の核種の濃度は、

$$\frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + \frac{v}{R} \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} - \frac{D}{R} \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \lambda C_1(x,t) - \frac{\varepsilon_p D_p}{\varepsilon_1 b R} \frac{\partial N(x,y,t)}{\partial y} \Big|_{y=b} = 0$$

と表され、また境界条件の(10)式より、

$$N(x,b,t) = \frac{1}{Kd_3} C_1(x,t)$$

の関係がある。よって、核種のマトリクス拡散を表す項の係数は、

$$-\frac{\varepsilon_p D_p}{\varepsilon_1 b R K d_3}$$

となるが、この係数における分母の関係が、(13)式における

$$A = \frac{\varepsilon_1 b R K d_3}{\varepsilon_p \sqrt{R_p D_p}}$$

での分子へ、式の展開のうえで継承されている。Hwangの解析解の数学的な正否は、論文に詳細な記述がないため現段階で断定することは困難であるが、本研究では上述のようにTangの解法に基づき式の展開の追跡が可能であるという点を考慮して、(14)式の方を適用することとした。



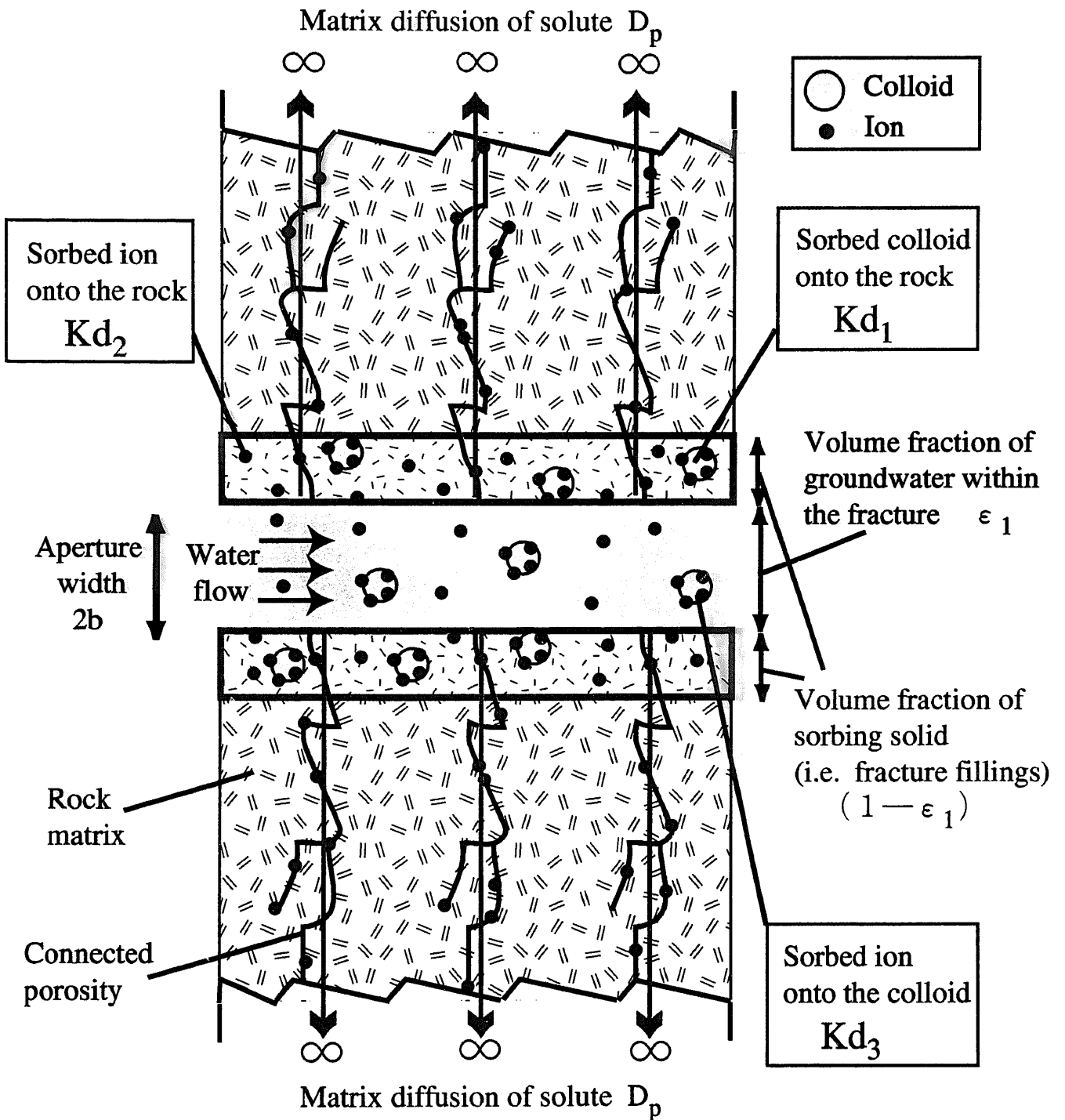


Fig.1 Schematic figure of solute/colloid migration within a fractured rock. The characteristics of fracture fillings are not clarified. They are not considered conservatively in this calculation. (i.e.,  $1 - \epsilon_1 = 0$ )

### 3. 影響の評価に用いたデータ

#### 3-1. 解析対象にする核種と岩種

評価核種として、インベントリや放射線的影响の観点から、既存の性能評価報告 [9] で取り上げられている 11 元素を含む、以下の 18 元素を対象とした。移行解析では、これらの核種の収着性を考慮した感度解析を実施した。

Se, Zr, Nb, Tc, Pd, Sn, Cs, Sm, Pb, Ra, Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm  
また結晶質岩の岩種として、亀裂性の花崗岩を想定した。

#### 3-2. 解析対象にするコロイドとその濃度

本解析では評価対象とするモデルコロイドを選定し、そのコロイドの特性に基づいて解析評価を行った。1. で記述したように、多重バリアシステムにおける緩衝材は、コロイドのろ過効果を有することが期待されている。したがって、天然バリアの安全性評価の観点からは、岩盤中の地下水に含まれるコロイドとして、地下水の浸食作用を受けることによって緩衝材外表面から生成する恐れのあるコロイドと、もともと地下水中に存在する天然コロイドとが考えられる。

前者については、ベントナイトコロイドの生成が予想されるが、コロイド粒子間の相互作用と水の流れによって粒子が受ける掃流力との大小関係より、緩衝材からベントナイトコロイドが生成する流速を見積もったところ、おおよそ  $10^5 \sim 10^4$  m/s (300~3000m/y 相当) 程度であることが報告されている [10]。同様に、ベントナイト緩衝材の流出特性の実験的研究でも、ベントナイトの浸食が確認される流速として、上記の値と同程度の結果が得られている [4]。これらの知見より、処分場の環境として地下水流速が極めて速い条件でない限り、緩衝材に発生起源を有するベントナイトコロイドは生成しにくいとの見通しが得られている。したがって、本解析では緩衝材から生成するコロイドについては考慮しないこととした。

一方、後者のもともと地下水中に存在する天然コロイドとしては、天然バリアを構成する母岩中の鉱物の変質や 2 次鉱物の浸食によって、コロイド粒子が生成し、地下水の組成によってはこれらの無機コロイドが安定に存在することが考えられる [3]。これらの地層起源の地下水コロイドについては、亀裂岩石中での核種移行に影響を与えることが懸念され、その濃度や構成粒子を検討する必要があると考えられる。

地下水中の天然コロイドの特性や濃度については、比較・検討が行える程、十分な知見が得られていない。国内の深地地下水のサンプリング事例として、東濃鉱山での試験では、堆積岩層からのサンプリングではあるが、およそ 1~5 ppm のコロイド濃度が確認されている [11]。

一般に地下水中のコロイドは、地下深部の安定な地質環境にあるほど、その濃度は低い傾向にある [3]。海外の原位置試験 (スイス/グリムゼル試験場) では、地下深部の結晶質岩 (花崗岩層) 中の地下水をサンプリングしたところ、地下水組成の変化などが生じなけれ

ば、コロイド濃度は0.1ppmを超えないものとして考察している [12]。本解析では、地層媒体として亀裂性花崗岩を想定しているため、コロイド濃度の基準として保守的に1ppmを設定した。また、コロイド濃度が核種移行に与える影響を検討するための感度解析では、0.1ppm及び10ppmを設定した。

上述のグリムゼル試験場でのサンプリング結果では、地下水中の天然コロイドとして、主に粘土やシリカが含まれるのが確認されており、粘土コロイド（ベントナイトコロイド）を天然コロイドのモデルコロイドとして扱った研究事例が見られる [13]。また、核種の収着性などの特性がベントナイトについては比較的明らかにされているので、これを本解析のモデルコロイドに想定して評価を行った。

### 3-3. 核種の収着性の設定

3-1. で選定した評価対象18核種の岩石及びベントナイトコロイドへの収着性は以下のように設定した。

亀裂から核種がマトリクス拡散したときに、花崗岩への分配係数は $Kd_2$ で与えられる。 $Kd_2$ が小さい程、岩石中の微細な間隙の表面において核種が保持されないため、核種の移行は遅延されない。よって保守的な性能評価を行うためには、 $Kd_2$ は小さい値を設定することが望ましい。この $Kd_2$ の設定方針は、天然バリアでの核種の移行評価と同様の考え方であり、本研究では既存のデータ [14] から引用した。

各核種の岩石への分配係数 $Kd_2$ を表1に示す。

一方、各核種のベントナイトコロイドへの分配係数は $Kd_3$ で与えられる。データの設定には以下の3点を留意する必要がある。

- (1) コロイドとしてのベントナイトへの収着性を評価するので、水中に分散した状態での分配係数を検討する必要がある。したがって、本評価では液固比の大きいバッチ試験で得られた分配係数を優先して検討するのが望ましい。この点は、ベントナイトが圧密されたカラム試験より得られた分配係数を優先させる、緩衝材の性能評価に用いるベントナイトの分配係数の設定と方針が異なる。
- (2) コロイドへの収着という観点からは、コロイドに収着しない核種をイオンとして扱うために、バッチ試験でのろ過は限外ろ過を手法として用いているのが望ましい。また一般に、限外ろ過はメンブランろ過や遠心分離よりも分配係数が大きく求まる傾向があるので、(3)に述べるように保守的な値を設定できると考えられる。
- (3) モデル上、コロイドはマトリクス拡散によって遅延しないと仮定しているため、コロイドへの分配係数が大きいほど、核種の移行が助長される。したがって、コロイドへの分配係数としては大きい側の設定が保守的となる。この点も、小さい側の設定の方が保守的である、緩衝材の性能評価としてのベントナイトの分配係数の設定と方針が異なる。

理想的には、(1)や(2)の条件を満たして取得された分配係数を本評価に用いるのが望ましい

が、分配係数はイオン強度やpHなどの液性にも依存するので、必ずしも(1)や(2)の条件を満たしたときに、大きな分配係数が取得されているとは限らない。そこで、ここでは性能評価の保守性を担保するために、(3)の条件を優先する。分配係数に関するデータベース [15] において、スメクタイトを含む物質を検索の対象とし、保守的な大きな値を優先して選択した。また、実験値については、 $1 \times 10^n$  及び  $5 \times 10^n$  ( $n$  は整数) となるように繰り上げて、 $Kd_3$  としての設定値とした。データの選択にあたっては、バッチ試験において沈殿を生じさせない試験条件の妥当性を考慮し、また、通常考えられる岩石-水反応で規定される地下水のpHを配慮して、およそpH5.7~10の範囲の値から分配係数を採用した [16]。一部の核種についてはアナログからデータを設定した。

各核種のベントナイトコロイドへの分配係数 $Kd_3$ を表2に示す。

表1、表2で設定した分配係数 $Kd_2$ 及び $Kd_3$ の一覧を表3に示す。ここで同一の $Kd_2$ 及び $Kd_3$ で規定される核種群は、本解析では同じ評価結果が得られる(例えば、Th, U, Npなど)。したがって、全核種の移行評価を行って結果を逐一比較するよりも、分配係数の分布を考慮しながら $Kd_2$ 及び $Kd_3$ をパラメータとして変化させ、それらが核種移行に与える影響を感度解析的に検討する方が、 $Kd_2$ 及び $Kd_3$ の依存性が明瞭に把握できる。

表3において、収着性が特に低いSeを除くと、核種の分配係数は、 $Kd_2 = 0.05 \sim 5 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、 $Kd_3 = 50 \sim 500 \text{ m}^3/\text{kg}$ の範囲に分布している。そこで各パラメータの設定として、 $Kd_2 = 0.05, 0.5, 5 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、 $Kd_3 = 5, 50, 500 \text{ m}^3/\text{kg}$ と10倍ずつ変化させて感度解析を行った。

### 3-4. ベントナイトコロイドの粒径測定及び分散係数の推測

亀裂中でのコロイドの分散係数 $D_1$ は、次式で定義される。

$$D_1 = D_c + \alpha_1 v_1 \quad (19)$$

ここで、 $D_c$  ; コロイドの拡散係数、 $\alpha_1$  ; コロイドの分散長である。したがって、モデル解析上、入力データとしてコロイドの拡散係数が必要とされる。本解析では、コロイドの粒径から拡散係数の推測を行い、(19)式でのコロイドの分散係数の算出に供した(表4参照)。

ベントナイトコロイドの粒径はレーザ回折式粒度分布測定装置(島津製作所 SALD-2000 J)を用いて測定した。ベントナイト(クニゲルV1)の粉末を蒸留水中に1g/200 mlの割合で分散させ、その後1ヶ月間静置した。静置後の上澄み液を採取し粒径を測定したところ、浮遊しているコロイド粒子の平均粒径は約300 nmであった。

コロイド粒子を剛体の球とし、粒子濃度が低くて粒子間に相互作用がなく、粒子の移動が遅くて周囲の媒体の流れは層流であると仮定する。このような条件のもとでは、Einsteinのブラウン運動の式及びStokesの式より、コロイド粒子の拡散係数 $D_c$ は、以下のように算出される [17]。

$$D_c = \frac{kT}{f} = \frac{kT}{6\pi\eta a} \quad (20)$$

ここで、 $k$ ; Boltzmann定数、 $T$ ; 絶対温度、 $f$ ; 粘性摩擦係数、 $\eta$ ; 水の粘度、及び $a$ ; 粒子半径である。

実際のベントナイトコロイドは板状の形状であり、また粒径も分布を持つと考えられるが、ここでは計算上粒径300nmの球形の単一粒子であると仮定し算出する。(20)式より算出される拡散係数は  $1.5E-12 \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もられる。

### 3-5. 岩石中の亀裂及び地下水の流れの条件の設定

岩石中の亀裂や地下水の流れの条件など、コロイドの影響評価を実施するための解析設定値を表4に示す。

表 1. 評価対象 18 核種の岩石への分配係数 $Kd_2$ の設定値

元素	$Kd_2$ ( $m^3/kg$ )
Se	0.01
Zr	1
Nb	1
Tc	1
Pd	0.1
Sn	1
Cs	0.05
Sm	5
Pb	0.1
Ra	0.5
Ac	5
Th	1
Pa	1
U	1
Np	1
Pu	1
Am	5
Cm	5

表2. 評価対象18核種のベントナイトコロイドへの分配係数 $K_d$ の設定値及び設定根拠となる実験値

元素	$K_d$ (m <sup>3</sup> /kg) 設定値	$K_d$ (m <sup>3</sup> /kg) 実験値	試料	液固比 (ml/g)	ろ過法	pH	Eh (mV) あるいは 雰囲気	溶液	備考
Se	0.5	0.11	Kunigel V1	50	10000MWCO	7.84	-477	0.1M NaCl	
Zr	500	150*1	bentonite	20	n.r.	10	大気雰囲気	花崗岩地下水	
Nb	50	23	bentonite	481	10000MWCO	8.1	非還元雰囲気	海水	
Tc	500	260	Kunigel V1	20	10000MWCO	8.1	-390	海水	
Pd	50	28	bentonite	1000	10000MWCO	8.1	大気雰囲気	0.1M NaCl	
Sn	500	(2700)*1	Kunigel V1	9800	10000MWCO	6.4	250	0.1M NaCl	Zrのアナログ
Cs	500	125	Smectite (secondary) *2	n.r.	n.r.	8.3	n.r.	合成地下水	
Sm	500	(500)*3	bentonite	20	n.r.	8~9	大気雰囲気	花崗岩地下水	
Pb	500	251	Na- montmorillonite	1000	遠心分離	7	大気雰囲気	0.01M buffer BES*4 0.05M NaClO <sub>4</sub>	
Ra	50	34	Smectite	500	10000MWCO	9	68	純水	
Ac	500	(160)*3	Kunigel V1	20	10000MWCO	9.4	-500	純水	
Th	100	(>17)*5	Kunigel V1	100	10000MWCO	8.6	大気雰囲気	0.1M NaHCO <sub>3</sub>	Npのアナログ
Pa	500	>350	Kunigel V1	20	10000MWCO	10.1	-330	純水	
U	100	(670)*5	Kunigel V1	100	10000MWCO	10.2	-440	純水	Npのアナログ
Np	100	(71)*5	Kunigel V1	100	遠心分離	9.4	-380	純水	
Pu	500	405	Kunigel V1	50	10000MWCO	8.1	-310	0.1M NaClO <sub>4</sub>	
Am	500	(411)*3	Smectite (SH1578)*6	n.r.	遠心分離	8.2	n.r.	海水	
Cm	500	(510)*3	Kunigel V1	20	10000MWCO	9.4	-350	純水	

## [表2の注記]

- \*1 : Zr, Snについては、いずれも中性液性で4価の水酸化物 ( $Zr(OH)_4^0$ ,  $Sn(OH)_4^0$ ) を形成する。Snの分配係数については、500 m<sup>3</sup>/kgよりも大きな値も見られるが、収着性に関し十分な知見が得られていないことと、他の核種との整合を考え、本解析ではZrのアナログとして扱う。
- \*2 : スメクタイトを主に含有する (98%) 2次鉱物
- \*3 : Sm, Ac, Am, Cmについては、アナログとして扱う。4核種の分配係数の平均値を繰り上げて設定値とする。
- \*4 : 0.01M N-N-Bis (2-Hydroxyethyl)-2-aminoethane-sulfonic acid (pK 7.2)
- \*5 : Th, U, Npについては、アナログとして扱う。Uについては初期濃度が溶解度よりも高く、沈殿を生じている恐れもあるので、ここではNpを代表させる。
- \*6 : 深海の堆積物：スメクタイト (30~40%) , 鉄酸水酸化物 (8~10%) , アモルファスシリカ



表 3. 評価対象 18 核種の分配係数 $Kd_2$ 及び $Kd_3$ の設定値一覧

	$Kd_3$ ( $m^3/kg$ )							
		0.5	1	5	10	50	100	500
$Kd_2$ ( $m^3/kg$ )	0.01	Se						
	0.05							Cs
	0.1					Pd		Pb
	0.5					Ra		
	1					Nb	Th,U,Np	Zr,Tc,Sn, Pa,Pu
	5							Sm,Ac, Am,Cm

表4. コロイドの影響評価のための解析設定値

表記	パラメータ	設定値	備考
Kd <sub>1</sub>	岩石へのコロイドの収着	—	亀裂充填鉱物を想定しないので、コロイドの岩石への収着は考慮しない。
Kd <sub>2</sub>	岩石への核種の収着 (岩石マトリクスでの収着)	0.05, 0.5, 5 m <sup>3</sup> /kg	3-3参照 (Kd <sub>2</sub> の値を変化させて感度解析を実施) 解析の際は、Kdをm <sup>3</sup> /m <sup>3</sup> の次元にするため、岩石比重 $\rho=2600$ kg/m <sup>3</sup> [9] を乗ずる。
Kd <sub>3</sub>	コロイドへの核種の収着	5, 50, 500 m <sup>3</sup> /kg	3-3参照 (Kd <sub>3</sub> の値を変化させて感度解析を実施) 解析の際は、Kdをm <sup>3</sup> /m <sup>3</sup> の次元にするため、コロイド比重 $\rho=2700$ kg/m <sup>3</sup> [9] を乗ずる。
D <sub>1</sub>	コロイドの分散係数	$D_1=D_c+\alpha_1 v_1$ より算出	
D <sub>c</sub>	コロイドの拡散係数	4.7E-5 m <sup>2</sup> /y	1.5E-12 m <sup>2</sup> /s 相当 (3-4参照) コロイドを粒径300nmの球形と仮定し、StokesとEinsteinの式からブラウン拡散係数を算出
$\alpha_1$	コロイドの分散長	0.1 × L	[14]
v <sub>1</sub>	コロイドの流速	$v_1=1.0 \times v_2$	Hydrodynamic chromatography現象により、コロイド流速は地下水流速よりも速くなる恐れはあるが、その影響は1.3倍よりも少なく顕著ではない [18]。
D <sub>2</sub>	核種の分散係数	$D_2=D_s+\alpha_2 v_2$ より算出	
D <sub>s</sub>	核種の拡散係数	6.6E-2 m <sup>2</sup> /y	2.1E-9 m <sup>2</sup> /s 相当 [19] 水の拡散係数で代用
$\alpha_2$	核種の分散長	0.1 × L	[14]
v <sub>2</sub>	核種の流速 (地下水の流速)	3.2E-1 m/y	1E-8 m/s 相当
L	評価距離	10 m	
$\epsilon_1$	亀裂中の地下水の体積分率	1	亀裂充填鉱物は保守的に考慮しない。(1- $\epsilon_1=0$ )

表4 (続き). コロイドの影響評価のための解析設定値

表記	パラメータ	設定値	備考
b	亀裂幅の半分	(1E-3)/2 m	亀裂幅1mm 相当 開口幅1mm以下の頻度が高い。 [14]
$\epsilon_p$	岩石の間隙率	0.02	[14]
$D_p$	岩石マトリクス間隙水中の核種の拡散係数	1.6E-3 m <sup>2</sup> /y	実効拡散係数 $D_e$ として、3.2E-5 m <sup>2</sup> /y (1E-12 m <sup>2</sup> /s) 相当 [14] $D_p=D_e/\epsilon_p$ より算出。
$R_p$	核種の岩石マトリクス中での遅延係数	$R_p=1+(1-\epsilon_p)\rho Kd_2/\epsilon_p$ より算出	岩石比重 $\rho=2600$ kg/m <sup>3</sup> [14]
$\xi_1$	地下水中の疑似コロイドの体積比	3.7E-7	1ppm相当 (3-2 参照) $Kd_2=5$ m <sup>3</sup> /kg, $Kd_3=500$ m <sup>3</sup> /kg のケースでは、0.1ppm及び10ppmについても、感度解析を実施

#### 4. 核種移行に与える影響の評価結果

図2～6に感度解析を実施した結果を示す。

図2は分配係数  $Kd_2=0.05\text{m}^3/\text{kg}$ 、コロイド濃度  $=1\text{ppm}$ に、また図3は分配係数  $Kd_2=5\text{m}^3/\text{kg}$ 、コロイド濃度  $=1\text{ppm}$ に固定したときにおける、分配係数  $Kd_3=5, 50, 500\text{m}^3/\text{kg}$ と10倍ずつ変化させた感度解析の結果である。また、コロイドが存在しないケースでの核種の破過曲線も併せて示している。いずれの解析結果でも、コロイドの影響として、 $Kd_3$ が大きいほど、核種の移行が助長されることがわかる。これは核種がコロイドに収着するほど、マトリクス拡散による遅延が阻害されるので、核種移行が助長されることを示す。したがって、 $Kd_3$ の設定値が大きいほど、コロイドの影響の予測評価としては保守的な解析となる。ベントナイトコロイドへの核種の収着を想定した本解析では、 $Kd_3$ の最大値は $500\text{m}^3/\text{kg}$ に見積もられているが、核種の移行速度の助長をオーダーで変化させるほど影響していない。

図4は分配係数  $Kd_3=5\text{m}^3/\text{kg}$ 、コロイド濃度  $=1\text{ppm}$ に、また図5は分配係数  $Kd_3=500\text{m}^3/\text{kg}$ 、コロイド濃度  $=1\text{ppm}$ に固定したときにおける、分配係数  $Kd_2=0.05, 0.5, 5\text{m}^3/\text{kg}$ と10倍ずつ変化させた感度解析の結果である。またそれぞれのケースについて、コロイドが存在しないときの核種の破過曲線も併せて示している。いずれの解析結果でも、 $Kd_2$ が10倍大きくなることによって、核種の破過時間は10倍増加し、遅延効果が増加していることがわかる。これは岩石マトリクスの微細な間隙表面に核種が収着することによる保持の効果である。また、 $Kd_3$ の小さな図4の解析結果では、コロイドが存在しても核種移行はほとんど助長されないが、 $Kd_3$ の大きな図5の解析結果では、助長が大きい。

図6は、 $Kd_2=5\text{m}^3/\text{kg}$  及び  $Kd_3=500\text{m}^3/\text{kg}$  の値を与えたケースについて、コロイド濃度を0.1, 1, 10ppmに変化させた感度解析の結果である。また、コロイドが存在しないときの核種の破過曲線も併せて示している。コロイド濃度が増加するほど、核種の移行速度が助長されるのがわかる。コロイドの基準濃度として設定した1ppmでは、核種の移行速度はオーダーで変化するほどの影響は受けないが、10ppmになると助長は顕著になる。これら結果より、コロイド濃度も核種移行に影響を与える主要なパラメータの1つであると考えられる。

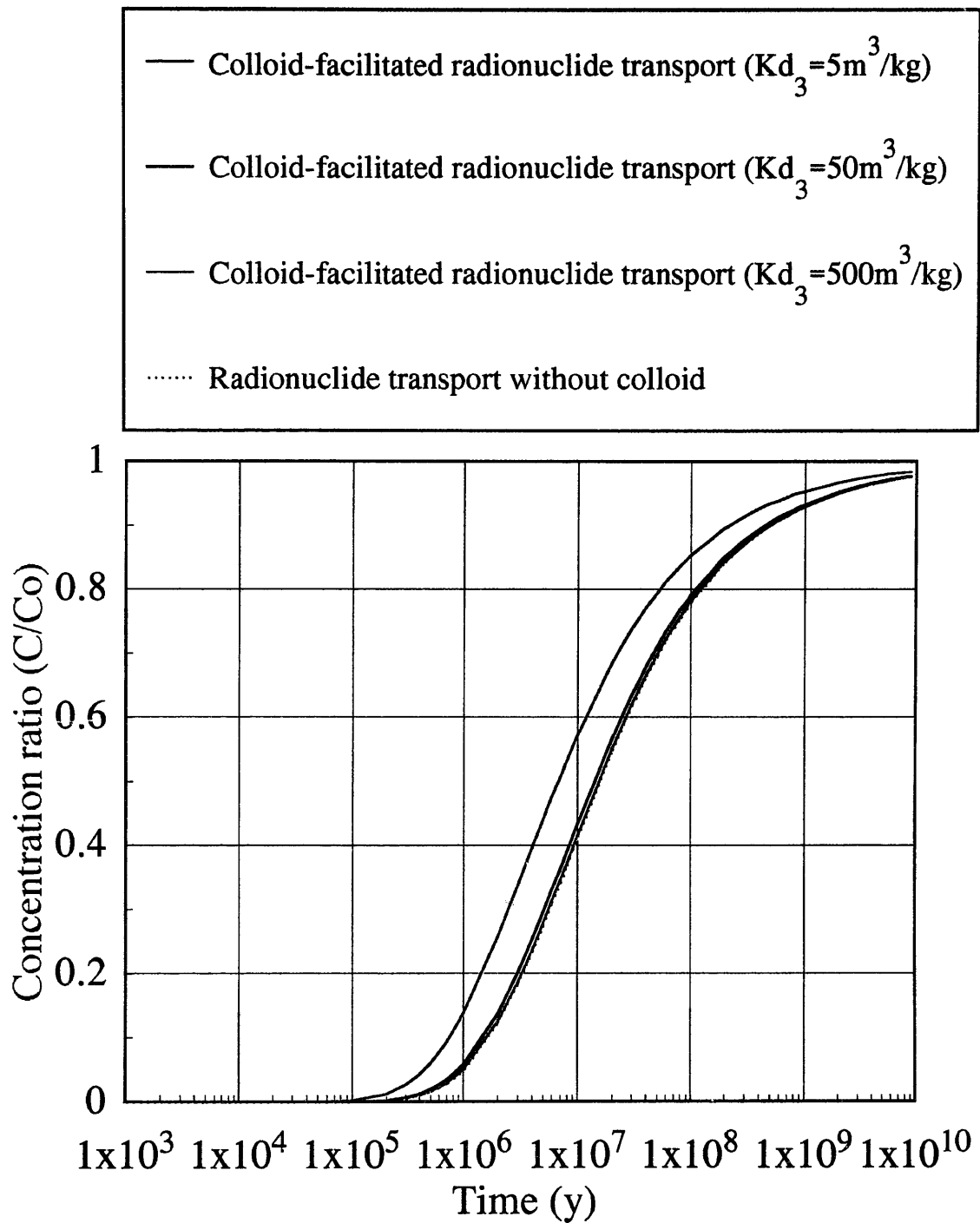


Fig.2 Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture  
 (Dependence on  $Kd_3$ ,  $Kd_2 = 0.05m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)

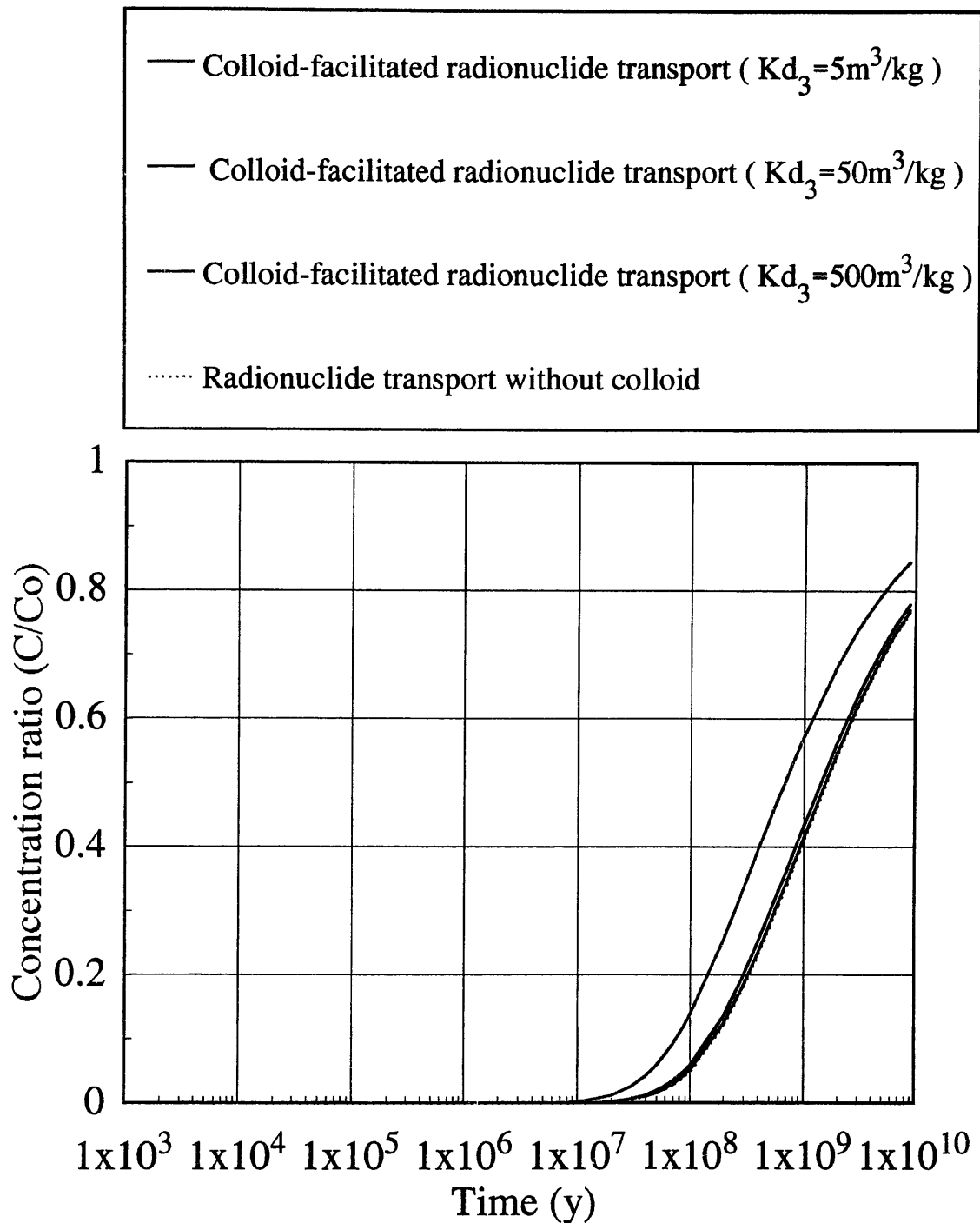


Fig.3 Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture  
 (Dependence on  $Kd_3$ ,  $Kd_2=5m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)

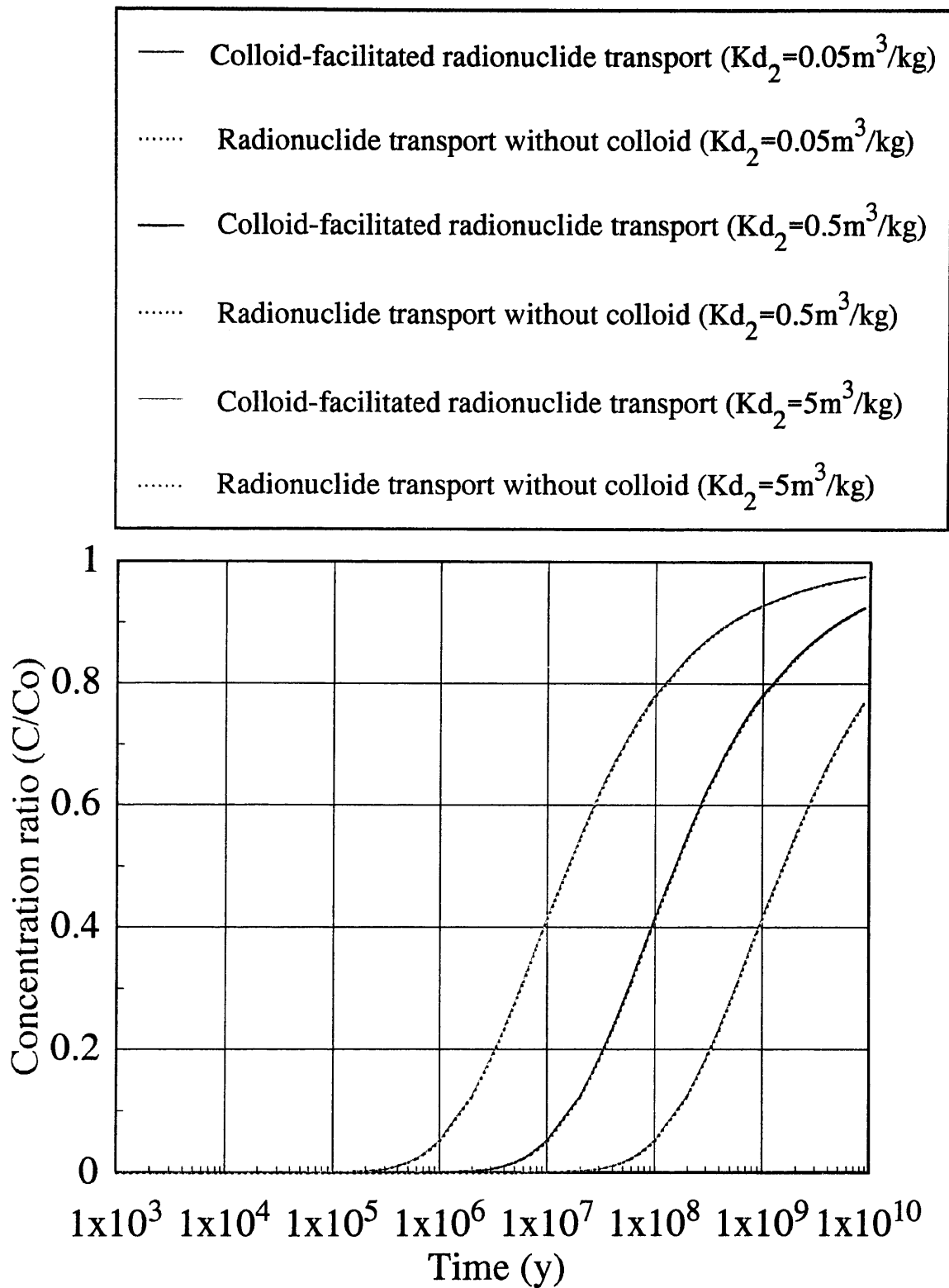


Fig.4 Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture  
 (Dependence on  $Kd_2$ ,  $Kd_3=5\text{m}^3/\text{kg}$ , colloid conc.=1ppm)

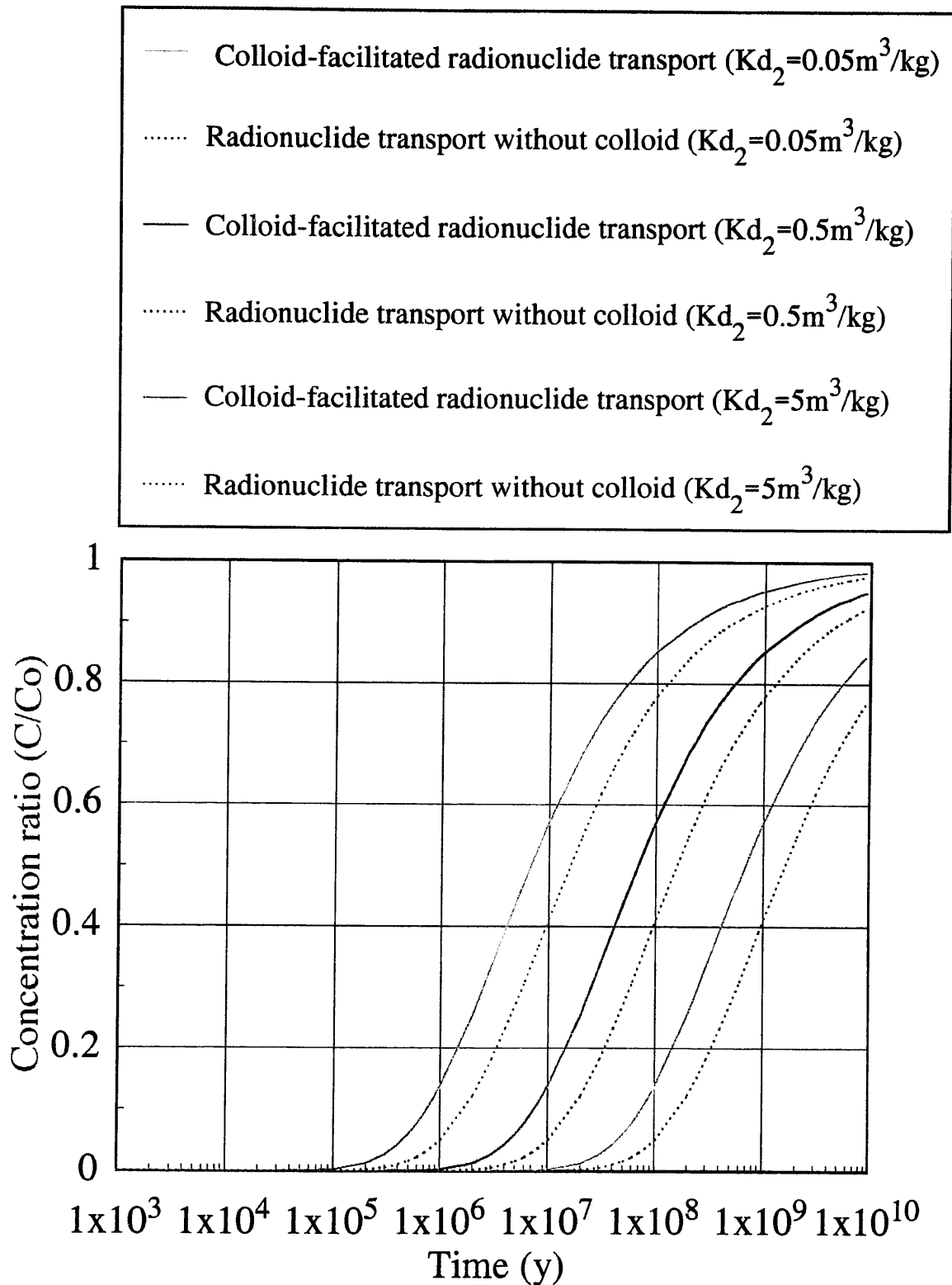


Fig.5 Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture  
 (Dependence on  $Kd_2$ ,  $Kd_3=500m^3/kg$ , colloid conc.=1ppm)



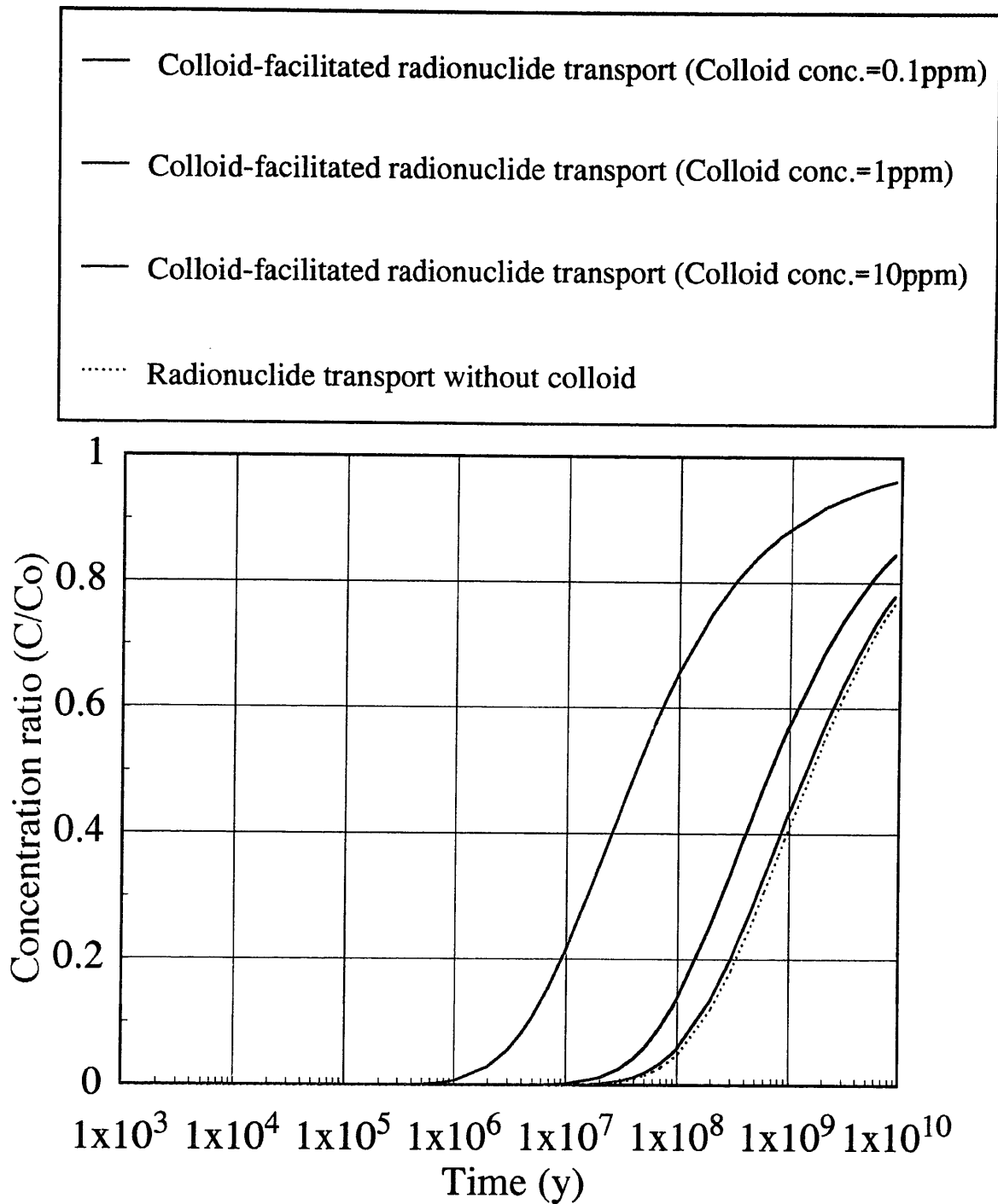


Fig.6 Breakthrough curves of radionuclide with colloid and without colloid in the fracture

(Dependence on colloid conc.,  $Kd_2=5m^3/kg$ ,

$Kd_3=500m^3/kg$ )

## 5. まとめ

本研究では、亀裂性の花崗岩を核種とコロイドが共存して移行する状態を想定し、ベントナイトコロイドの特性に基づいて、性能評価上重要な核種の収着性を考慮した、核種の移行解析を行った。また、その結果からコロイドが核種移行に与える影響を検討した。

コロイドへの核種の分配係数 $Kd_3$ は、疑似コロイドの形成のしやすさを表すパラメータである。 $Kd_3$ が小さい核種、例えば $Kd_3$ が $50\text{m}^3/\text{kg}$ よりも小さいSe, Pd, Ra, Nbでは、コロイドによる核種移行の助長はほとんど起こらないことが予想された。一方、 $Kd_3$ が大きくなるほど、コロイドへの収着による核種移行の助長は増大する傾向が認められた。しかし、本解析で想定したコロイドの基準濃度(1ppm)では、ベントナイトコロイドを想定した $Kd_3$ の最大値( $500\text{m}^3/\text{kg}$ )でも、核種の移行速度の助長をオーダーで増大させるほど影響しないことが予想された。

また、岩石への核種の分配係数 $Kd_2$ は、岩石マトリクスの微細な間隙表面への収着による、核種の保持効果を表す。 $Kd_2$ が大きくなることによって、核種の破過するまでの時間が増加し、遅延効果が増大することがわかった。

一方、コロイド濃度の増加に伴い、核種の移行速度の助長も増大することがわかった。これより、コロイド濃度も核種移行に影響を与える要因の1つであると判断された。

なお、地下水中に存在する天然コロイドが亀裂中の核種移行に与える影響について、より現実的な評価をするために、今後の課題として、以下の3点が挙げられる。

- 亀裂中の核種移行のコロイドによる助長は、地下水中の天然コロイドの核種収着性と、その濃度に依存する。いずれかの影響が小さければ、核種移行は助長されないと考えられる。現状では、これらの知見は十分に得られていないので、今後、天然地下水中のコロイドについて、特性データを蓄積することが重要である。
- 本解析モデルでは、コロイドの物理的なフィルトレーション及び亀裂充填鉱物や亀裂面への核種やコロイドの収着については、その挙動が詳細には把握されていないので、保守的に考慮していない。これらは核種移行の遅延効果として期待され、より現実的な移行モデルを構築する際には、考慮すべき現象であると考えられる。また、性能評価への反映のためには、核種の崩壊連鎖の影響も考慮する必要がある。
- 室内試験や原位置試験に基づき、解析モデルの信頼性を評価するための知見を得る。

参考文献

- [1] Avogadro, A., De Marsily, G. (1984): The role of colloids in nuclear waste disposal, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.26, Materials Research Society, pp.495-505.
- [2] Kurosawa, S., Yui, M. and Yoshikawa, H. (1997): Experimental study of colloid filtration by compacted bentonite, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.465, Materials Research Society, pp. 963-970.
- [3] McCarthy, J. and Degeldre, C. (1993) : Sampling and characterisation of colloids in ground-water for studying their role in contaminant transport , In characterisation of Environmental Particles, (eds J. Buffer and H. P. van Leeuwen) IUPAC Environmental Analytical Chemistry Series Vol.II (Chelsea, MI: Lewis Publishers, Inc.).
- [4] 菅野毅, 松本一浩 (1997) : ベントナイト緩衝材の流出特性の評価(I), PNC TN8410 97-313.
- [5] Kersting, A. B., Efurud, D. W., Finnegan, D. L., Rokop, D. J., Smith, D. K. and Thompson, J. L. (1999) : Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site , *Nature*, 397. 7 January , pp56-59.
- [6] Hwang, Y., Chambre, P. L., Lee, W. W.-L. and Pigford, T. H. (1990) : Analytic studies of colloid transport in fractured media, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.176, Materials Research Society, pp.599-605.
- [7] Nagasaki, S., Nakatsuka, T., Tanaka, S. and Suzuki, A. (1994) : Impact of pseudocolloid formation on migration of nuclides within fractures, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.31, No.6, pp. 623-625.
- [8] Tang, D. H., Frind, E. O. and Sudicky, E. A. (1981) : Contaminant transport in fractured porous media : Analytical solution for a single fracture, *Water Resour. Res.*, Vol.17, No.3, pp. 555-564.
- [9] 動燃事業団(1992): 高レベル放射性廃棄物地層処分開発の技術報告書, PNC TN1410 92-081.
- [10] 黒澤進, 久野義夫, 加藤博康, 上田真三, 油井三和 (1998) : ベントナイトコロイドの特性に基づくベントナイトの侵食に関する検討, 日本原子力学会「1998春の年会」要旨集, p. 598.

- [11] 動燃事業団(1996) : 地層処分研究情報交換会報告書, PNC TN1100 96-010
- [12] Degueldre, C. , Pfeiffer, H. R. , Alexander, W. , Wernli, B. and Bruetsch, R. (1996) : Colloid properties in granitic groundwater systems. I : Sampling and characterisation , Applied geochem., Vol.11, pp.677-695.
- [13] Degueldre, C., Grauer, R. and Laube, A. (1996) : Colloid properties in granitic groundwater systems. II : Stability and transport study, Applied geochem., Vol.11, pp.697-710.
- [14] 動燃事業団 (1998): 地層処分研究開発第2次取りまとめ第1次ドラフト, PNC TN1412 98-013
- [15] 澁谷朝紀, 柴田雅博, 油井三和 (1999) : JNC 収着データベース (仮題) , サイクル機構技術資料 (準備中)
- [16] Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R. C. (1999) : Groundwater evolution modeling for the second progress performance assessment (PA) report, サイクル機構技術資料 (準備中)
- [17] (例えば) 北原文雄, 古澤邦夫 (1991) : 分散・乳化系の化学, pp.4-5, 工学図書
- [18] Prieve, D. C. and Hoysan, P. M. (1978) : Role of colloidal forces in hydrodynamic chromatography, J. Colloid Interface Sci., Vol.64, No.2, pp.201-213..
- [19] 日本化学会編(1984): 化学便覧基礎編改訂3版, II-65, 丸善