

限定資料

PNC ZJ 1602 94-003

狭隘経路内における微粒子の移行に関する研究（Ⅱ）

（動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書）

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
ㄗ	J1602 94-003	1994, 7, 6
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1994年3月

東京大学工学部

田中 知

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないように特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。 注)

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

狭隘経路における微粒子の移行に関する研究 (II)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1994年3月

東京大学工学部システム量子工学科

田中 知

狭隘経路内における微粒子の移行に関する研究 (II)¹

田中 知

協力研究者
東京大学工学部
長崎 晋也

要旨

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価を実施するためには、地層中における核種移行挙動を解明する必要がある。近年、核種の移行挙動に及ぼすコロイド形成形成の影響の重要性が指摘されるようになってきた。しかし、コロイドを含めたイオン-コロイド-固相間での相互作用を考慮した核種移行解析の研究例はほとんどない。そこで、亀裂媒体中での核種移行について、イオン-コロイド-固相の3相を考慮にいたした移行解析を実施し、核種移行に重要な影響を及ぼす因子の抽出整理をおこなった。その結果、コロイドのFiltration効果とともに、核種のコロイドへの吸着量が重要な因子であることが明かとなった。Simple shear流れ場中でのコロイド粒子の拡散について、壁の効果ならびに壁とコロイド粒子が同じ符号に帯電していることによる効果を解析した。壁の存在により、コロイド粒子の拡散が抑制される一方、帯電を考慮した場合には電気2重層ポテンシャルによる効果で拡散が促進されることがわかった。

¹本報告書は、東京大学工学部が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

Transport of Fine Particle in Narrow Paths (II)²

Satoru Tanaka

Abstract

It is necessary to elucidate the migration behavior of radioactive species in the geosphere for the performance assessment of high level radioactive waste disposal. Recently, the influence of colloidal particles on the migration behavior has received much attention. However, few analytical studies on the migration of species, in which the interaction such as sorption and filtration in the ion – colloid – solid systems is taken into account, has been performed. In this study, we analysed the migration behavior in the fracture media by considering the interaction among ions, colloids and solids, and extracted the important factors which influence the migration behavior. It was found that the sorption of the ions on the colloids as well as the colloid filtration significantly impacts on the migration behavior.

We also investigated the colloid diffusion in simple shear flows. Especially, the effect of walls and that of charge of walls and colloids were analysed. It was found that the diffusion of the colloids is suppressed by the presence of walls and it is promoted in the electrostatic field.

²Work performed by the Faculty of Engineering, the University of Tokyo under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

目 次

第1章 緒言	1
1-1 序	1
1-2 研究の目的	2
1-3 研究内容	2
1-4 研究スケジュール	3
第2章 核種移行に及ぼすコロイドの影響	4
2-1 コロイド-固相2相間においてfiltrationを 考慮した移行モデル	4
2-2 イオン-コロイド-固相3相間における filtrationを考慮しない移行モデル	6
2-3 3相間の相互作用とfiltrationを考慮した移行モデル	10
2-4 結果と考察	14
第3章 流れのある場での粒子のブラウン運動	29
3-1 simple shear流れ場中での粒子のブラウン運動	29
3-2 壁の影響	33
3-3 電荷の影響	34
第4章 今後の検討方針	43
4-1 まとめ	43
4-2 今後の検討方針	44
4-2-1 擬似コロイドの影響	44
4-2-2 狭隘経路内の帯電粒子の移行	45

第1章 緒言

1-1 序

高レベル放射性廃棄物の地層処分の性能評価を実施する場合、PuやNpといったアクチニド元素や⁹⁹Tc、¹³⁵Cs、¹²⁹Iなどの核分裂生成物の人工バリア内および天然バリア内における移行挙動を解析する必要がある。今日までこの問題に関しては主に、人工バリア内の移行挙動については拡散方程式で、また天然バリア内の移行挙動については亀裂媒体中あるいは多孔質媒体中の移流拡散方程式により解析が行われてきている。しかしこれらの解析では、アクチニド元素や核分裂生成物はイオンとして液相中に溶存しているという前提のもとでの解析である。しかし、実際の地下水中には必ず地下水コロイドが存在し、その比表面積の大きさや表面活性の大きさゆえにアクチニド元素をその表面に吸着して擬似コロイドを形成する可能性が指摘されている。地下水中におけるコロイド粒子の移行挙動は地下水自体の移動現象とは異なることが考えられ、性能評価を実施するうえでは共存する地下水コロイドとの間の擬似コロイド形成までも考慮に入れて、イオン-コロイド-固相3相間での相互作用に基づいた解析が必要となる。特に、今後コロイド形成を考慮した研究を進めていくうえで、擬似コロイド形成が無視できないような系では、これまで見のがしてきた現象の中でどのような現象が核種移行挙動に重大な影響を与えるかについて明確にしておく必要がある。

また、岩石あるいは人工バリアに使用されるベントナイト中におけるコロイド移行経

路は、亀裂媒体モデルで想定されるような大きな亀裂幅ではなく、むしろコロイド粒径程度の広がりを持つ狭隘経路と考えられる。また実際の環境条件では、狭隘経路を構成する周辺岩石（あるいはベントナイト粒）の表面は帯電しており、またそのような静電気場中を移行するコロイドも表面は帯電している。このため、より詳細にかつ正確に地下水中でのコロイド粒子の移行挙動を理解するためには、帯電した壁付近での帯電粒子の移行挙動を検討する必要がある。

1-2 研究の目的

核種移行挙動に対する擬似コロイド形成の影響を検討し、移行挙動の重要な影響を与える因子の抽出と整理を行う。

流れ場中でのコロイド粒子の拡散挙動について、壁の効果ならびにコロイド粒子と壁がともに同じ符号に帯電しているときの帯電の効果を検査し、昨年度実施した石英充填カラム内におけるラテックス粒子の拡散現象やベントナイト中でのコロイドの移行挙動を検査するうえでの知見とする。

1-3 研究内容

本研究の内容は以下の通りである。

- (1) 亀裂媒体中での核種移行に及ぼす擬似コロイド形成の影響を検査する。
- (2) 流れ場中でのコロイド拡散への壁ならびに帯電の効果を検査する。
- (3) (2)を検査するための実験の準備。

1-4 研究スケジュール

本研究は、以下のスケジュールにて実施した。

(1) 平成5年6月 ～ 10月

核種移行への擬似コロイド形成の影響を解析し、重要な因子の抽出整理を行う。

(2) 平成5年11月 ～ 平成6年2月

流れ場中でのコロイド粒子の拡散について壁と帯電の効果を解析する。

(3) 平成6年1月 ～ 平成6年3月

帯電粒子の帯電媒体中での拡散に関する解析（上記（2）に相当）を検証するための実験の準備を行う。

(4) 平成6年3月

上記の研究成果をまとめ、報告書を作成する。

第2章 核種移行に及ぼすコロイドの影響

2-1 コロイド-固相2相間においてfiltrationを考慮した移行モデル

Saltelliらは、海緑石質砂充填カラム内のAmの移行がコロイド形成に大きく依存しており、コロイドの粒径が一定ではなく分布を持っていることを示した上で、filtration係数を導入することによりカラム内でコロイドが遅延されるメカニズムとしてのfiltration効果を考慮したコロイド移行モデルを提案した[4]。ただし、これはコロイド-固相間の2成分系のみを対象としている。コロイドの粒径の分布としては、log-uniform分布とlog-normal分布が適用されている。また、Langmuir型の吸着等温曲線を用いることにより吸着の飽和メカニズムも含めて実験結果の説明に成功している。

海緑石質砂を充填したカラム内の液相中コロイド濃度を $c(x,t)$ 、カラム内でfiltrationの効果によって遅延されているコロイド濃度を $\sigma(x,t)$ とし、filtration係数として $\lambda[\text{cm}^{-1}]$ を導入すると、コロイドの移行に関する支配方程式は

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - V \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda V c \quad (2.1.1)$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial t} = \epsilon \lambda V c \quad (2.1.2)$$

で表され、初期条件・境界条件は

$$\begin{aligned} c(0,t) &= c^0 \\ c(x,0) &= 0 \\ \sigma(x,0) &= 0 \end{aligned} \quad (2.1.3)$$

で表される。

ここでペクレ数を考慮するとこの系では拡散の影響が無視できることがわかるので、(2.1.1)は次のように書き換えることが出来る。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -V \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda V c \quad (2.1.4)$$

すると次の解を得る。

$$c = c^0 \exp(-\lambda x) U(t - \frac{x}{V}) \quad (2.1.5)$$

$$\sigma = \lambda \varepsilon V c^0 \exp(-\lambda x) S(t - \frac{x}{V}) \quad (2.1.6)$$

ただし、 $U(t - x/V)$ はHeavside関数

$$U(y) = 1, y \geq 0$$

$$U(y) = 0, y < 0$$

であり、また、 $S(t - x/V)$ は鋸歯関数

$$S(y) = y, y \geq 0$$

$$S(y) = 0, y < 0$$

である。

コロイド粒径がlog-uniform分布を有するとすると、 $f(\ln \lambda) d(\ln \lambda)$ はカラム入り口でのfiltration係数が λ と $\lambda + d\lambda$ の間にあるコロイドの微小フラクションを表すことになる。

ここで

$$\int_{\lambda_m}^{\lambda_M} f[\ln(\lambda)] \frac{d\lambda}{\lambda} = c^0 \quad (2.1.7)$$

と仮定する。ただし λ_m と λ_M はそれぞれコロイドのfiltration係数の最小値と最大値を意味している。

すると式(2.1.5), (2.1.6)は次のようになる。

$$c = \frac{c^0}{\ln\left(\frac{\lambda_M}{\lambda_m}\right)} \int_{\lambda_m}^{\lambda_M} \frac{\exp(-\lambda x)}{\lambda} d\lambda U\left(t - \frac{x}{V}\right) \quad (2.1.8)$$

$$\sigma = \frac{c^0 \varepsilon V}{\ln\left(\frac{\lambda_M}{\lambda_m}\right)} \int_{\lambda_m}^{\lambda_M} \exp(-\lambda x) d\lambda S\left(t - \frac{x}{V}\right) \quad (2.1.9)$$

2-2 イオン-コロイド-固相 3 相間におけるfiltrationを考慮しない移行モデル

Hwangらは、亀裂媒体中において放射性のコロイドとイオンが共存する系でのコロイドの移動の数値解析モデルを提唱した[5]。コロイドとしての放射性核種とイオンとしての放射性核種との相互作用として、(1) 擬似コロイド系の場合には放射性のイオンが非放射性のコロイドに吸着することによる擬似コロイドの形成、(2) 真性コロイド系の場合にはコロイドの溶解、の2つが考慮されている。このモデルにおける亀裂媒体中の核種移行を図2.1に示す。ここでは擬似コロイドを対象とした(1)についてのみ考察する。一般に、コロイドは固相との間の吸着などの相互作用がイオンに比べて小さいためイオンより速く移動する。このため、擬似コロイド形成により核

種の移行は促進される。しかし、このモデルではコロイドのfiltrationは考慮されていない。

パラメーターを以下のようにとる。

擬似コロイド中の放射性核種の濃度	$C_1(x,t)$
溶液中の放射性イオンの濃度	$C_2(x,t)$
岩石中の放射性イオンの濃度	$N(x,y,t)$
壁に吸着した放射性イオンの濃度	$C_3(x,t)$
亀裂中の液体の体積比	ε_1
液体中の擬似コロイドの体積比	ξ_1
壁に吸着した擬似コロイドの体積比	ξ_2
岩石中の空隙率	ε_p
擬似コロイドの流速	v_1
放射性イオンの流速	v_2
擬似コロイドの分散係数	D_1
放射性イオンの分散係数	D_2
岩石マトリックス中の放射性イオンの拡散係数	D_p
擬似コロイドが壁に吸着する割合	$\varepsilon_1 S_1(x,t)$
擬似コロイドから放射性イオンが脱着する割合	$\varepsilon_1 S_2(x,t)$
放射性イオンが壁に吸着する割合	$\varepsilon_1 S_3(x,t)$
崩壊定数	a

擬似コロイドの移行を支配する方程式は

$$\varepsilon_1 \xi_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 \xi_1 v_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} + \varepsilon_1 S_1(x,t) + \varepsilon_1 S_2(x,t) - \varepsilon_1 \xi_1 D_1 \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 \xi_1 a C_1 = 0 \quad (2.2.1)$$

であり、溶液中の放射性イオンの移行を支配する方程式は

$$\varepsilon_1 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 v_2 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} - \varepsilon_1 S_2(x,t) + \varepsilon_1 S_3(x,t) - \varepsilon_1 D_2 \frac{\partial^2 C_2(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 a C_2 + \frac{q(x,t)}{b} = 0 \quad (2.2.2)$$

である。

ただし、 $q(x,t)$ は岩石マトリックスへの溶質の拡散フラックスを示し、

$$q(x,t) = -\varepsilon_p D_p \left. \frac{\partial N(x,y,t)}{\partial y} \right|_{y=b} \quad (2.2.3)$$

で表される。

岩石に吸着したイオンについて

$$(1 - \varepsilon_1) \frac{\partial C_3(x,t)}{\partial t} - \varepsilon_1 S_3(x,t) + (1 - \varepsilon_1) a C_3(x,t) = 0 \quad (2.2.4)$$

と表され、擬似コロイドに吸着したイオンについて

$$(1 - \varepsilon_1) \xi_2 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} - \varepsilon_1 S_1(x,t) + (1 - \varepsilon_1) \xi_2 a C_1(x,t) = 0 \quad (2.2.5)$$

と表され、岩石マトリックス中では

$$R_p \frac{\partial N(x,t)}{\partial t} - D_p \frac{\partial^2 N(x,t)}{\partial y^2} + R_p a N(x,t) = 0 \quad (2.2.6)$$

ここで、各濃度 C_1 、 C_2 、 C_3 および体積率 ξ_1 、 ξ_2 が次のような平衡定数を用いて表せると仮定する。

$$K_{d1} = \frac{\xi_2}{\xi_1}, K_{d2} = \frac{C_3(x,t)}{C_2(x,t)}, K_{d3} = \frac{C_1(x,t)}{C_2(x,t)} \quad (2.2.7)$$

(2.2.7)を用いて(2.2.1)から(2.2.5)までを加えると、遅延係数 R 、分散係数 D 、流速 v を導入した C_1 に対する式を得る。

$$R \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + v \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} - D \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + RaC_1(x,t) + \frac{q(x,t)}{\varepsilon_1 b} = 0 \quad (2.2.8)$$

ただし

$$R = \xi_1 \left(1 + \frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} K_{d1}\right) + \left(1 + \frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} K_{d2}\right) \frac{1}{K_{d3}}$$

$$v = v_1 \left(\xi_1 + \frac{v_2}{K_{d3} v_1}\right)$$

$$D = D_1 \left(\xi_1 + \frac{D_2}{D_1 K_{d3}}\right) \quad (2.2.9)$$

初期条件及び境界条件は

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

$$N(x, b, t) = \frac{1}{K_{d3}} C_1(x, t)$$

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

$$C_1(0, t) = K_{d3} C_0, \quad t > 0$$

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

$$C_1(x, 0) = 0, \quad x > 0 \quad (2.2.10)$$

で表される。ただし、 C_0 は入り口でのイオン濃度である。

すると C_1 は以下のように書ける。

$$C_1 = \frac{2K_{d3}C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{RDt}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4RaD} - v}{2D}x\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} K_{d3}}{8Db\varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{1 - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right] d\eta \quad (2.2.11)$$

今、核種の崩壊を考えないとする。すなわち、 $a=0$ とすると

$$\exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4RaD} - v}{2D}x\right) = 1$$

となるので

$$\frac{C_1}{C_0} = \frac{2K_{d3}}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{RDt}}^{\infty} \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} K_{d3}}{8Db\varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{1 - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right] d\eta \quad (2.2.12)$$

と書ける。

2-3 3相間の相互作用と filtration を考慮した移行モデル

filtration を考慮しているがコロイド-固相の2相間の相互作用のみを対象とした移行モデル(2-1)と、イオン-コロイド-固相の3相間の相互作用を考慮しているが filtration を考慮していない移行モデル(2-2)を参考とし、3相間の相互作用と filtration 効果の両方を考慮して亀裂媒体中での核種移行モデルを検討する。

変数は2-2と同じものを用い、filtration 係数を λ [m^{-1}] とする。

(1) コロイドが存在しない場合の核種移行

溶液中の放射性イオンの移行を支配する方程式は

$$\varepsilon_1 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 v_2 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} - \varepsilon_1 S_3(x,t) - \varepsilon_1 D_2 \frac{\partial^2 C_2(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 a C_2 + \frac{q(x,t)}{b} = 0 \quad (2.3.1)$$

であり、 $q(x,t)$ は、(2.2.3)で表される。

岩石に吸着したイオンについては (2.2.4)、岩石マトリックス中では (2.2.6) が成り立つ。

ここで、各濃度 C_2 、 C_3 が次のように平衡定数を用いて表せると仮定する。

$$K_{a2} = \frac{C_3(x,t)}{C_2(x,t)} \quad (2.3.2)$$

(2.3.2)を用いて(2.3.1)と(2.2.4)を加えると、遅延係数 R を用いて C_2 についての式は次のようになる。

$$R \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} + v_2 \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} - D_2 \frac{\partial^2 C_2(x,t)}{\partial x^2} + R a C_2(x,t) + \frac{q(x,t)}{\varepsilon_1 b} = 0 \quad (2.3.3)$$

ただし、この場合遅延係数 R は

$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} K_{a2} \quad (2.3.4)$$

であり、初期条件及び境界条件は

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

$$N(x, b, t) = C_2(x, t)$$

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

$$C_2(\infty, t) = 0, t > 0$$

$$C_2(x, 0) = 0, x > 0 \quad (2.3.5)$$

と書ける。すると C_2 は

$$C_2 = \frac{2C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{RD_2t}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v_2^2 + 4RaD_2} - v_2}{2D_2} x\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D_2 b \varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D_2 \eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv_2}{4D_2 \eta}\right)^2\right] d\eta \quad (2.3.6)$$

と表せる。

核種の崩壊を考えない場合($a=0$)、

$$C_2 = \frac{2C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{RD_2t}}^{\infty} \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D_2 b \varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D_2 \eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv_2}{4D_2 \eta}\right)^2\right] d\eta \quad (2.3.7)$$

と書き直すことができる。

(2) コロイドのfiltrationを考慮した核種の移行

このモデルにおける亀裂媒体中の核種移行を図 2.2 に示す。

擬似コロイドの移行を支配する方程式は

$$\varepsilon_1 \xi_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + \varepsilon_1 \xi_1 v_1 \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} + \varepsilon_1 S_1(x,t) + \varepsilon_1 S_2(x,t) - \varepsilon_1 \xi_1 D_1 \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + \varepsilon_1 \xi_1 a C_1 + \varepsilon_1 \xi_1 \lambda v_1 C_1 = 0 \quad (2.3.8)$$

溶液中の放射性イオンの輸送を支配する方程式は(2.2.2)で表され、岩石に

吸着したイオンについては(2.2.4)、擬似コロイドに吸着したイオンについては(2.2.5)、岩石マトリックス中では(2.2.6)式がそれぞれ成り立つ。

(2.2.7)を用いて(2.3.1)と(2.2.2)から(2.2.5)までを加えると、遅延係数 R 、分散係数 D 、流速 v を導入した C_1 に対する次式を得る。

$$R \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} + v \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} - D \frac{\partial^2 C_1(x,t)}{\partial x^2} + R(a + \lambda v_1) C_1(x,t) + \frac{q(x,t)}{\varepsilon_1 b} = 0 \quad (2.3.9)$$

初期条件及び境界条件は、(2.2.10)である。

すると C_1 は

$$C_1 = \frac{2K_{d3} C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{x}{2\sqrt{RDt}}}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R(a + \lambda v_1)D} - v}{2D} x\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} K_{d3}}{8Db\varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right] d\eta \quad (2.3.10)$$

で表される。核種の崩壊を考えないとし($a = 0$)、filtration係数の分布としてlog-normal分布を考える。filtration係数が λ と $\lambda + d\lambda$ の間にあるコロイドの微小フラクションは

$$\frac{C_0}{\sqrt{2\pi} \beta_d} \exp\left[-\left(\frac{\beta - \beta_m}{\sqrt{2} \beta_d}\right)^2\right] d\beta$$

で表される。ここで、 $\beta = \ln(\lambda)$ 、 β_m は分布の期待値、 β_d は標準偏差である。

すると、 C_1 は、

$$\frac{C_1}{C_0} = \frac{\sqrt{2} K_{d3}}{\pi \beta_d} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/Dt}}^{\infty} \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} K_{d3}}{8Db\varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right] d\eta$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4Rv_1 D \exp\beta} - v}{2D} x\right) \exp\left\{-\left(\frac{\beta - \beta_m}{\sqrt{2} \beta_d}\right)^2\right\} d\beta \quad (2.3.11)$$

で表される。

filtrationの効果によって濾過されているコロイドに含まれる核種濃度 σ は

$$\frac{\sigma}{C_0} = \frac{\sqrt{2} K_{d3}}{\pi \beta_d} \int_{\frac{x}{2}\sqrt{R/Dt}}^{\infty} \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p} K_{d3}}{8Db\varepsilon_1 \eta^2 \sqrt{t - \frac{Rx^2}{4D\eta^2}}}\right] \exp\left[-\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta}\right)^2\right] d\eta$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4Rv_1 D \exp\beta} - v}{2D} x\right) \exp \beta \exp\left\{-\left(\frac{\beta - \beta_m}{\sqrt{2} \beta_d}\right)^2\right\} d\beta$$

(2.3.12)

となる。

2-4 結果と考察

コロイドの粒径の分布としてlog-normal分布を仮定する。すべてのコロイドに含まれる核種濃度 C_t は、 $C_t = \sigma + \varepsilon_1 C_1$ と表される。亀裂の入り口からの距

離 x における遅延量を各時間 $t = 0.1, 1, 10, 100$ 年後について調べた。但し、イオンは含まれていないので全核種濃度とは一致しないが、イオン濃度は平衡定数から求めることができる。パラメーターの値は、次のようにとる。

$$K_{d1} = 10^{-3}, K_{d2} = 10^{-1}, K_{d3} = 10^{-2}, D_1 = D_2 = 0.1 \text{ [m}^2\text{/year]}, \varepsilon_1 = 0.9,$$

$$2b = 1 \text{ [cm]}, \varepsilon_p = 10^{-2}, D_p = 10^{-3} \text{ [m}^2\text{/year]}, R_p = 10^2,$$

$$v_1 = 1.0 \text{ [m/year]}, v_2 = 0.5 \text{ [m/year]}$$

コロイドはイオンよりも速く移行するとした。このプロセスは、実験的に確認されており、コロイドが優先的な経路を選択的に移行すること、壁との間の吸着等の相互作用がイオンに比べて小さいことなどがその原因と考えられている[13]。結果を図 2.3 に示す。経過時間が短いほど、また距離が遠いほど全コロイドに含まれる核種濃度は小さい。

また、同じパラメーター値のもとで、10 年後における液相中核種濃度 C_1 の成分と、filtrationによって遅延されたコロイドに吸着している核種濃度 σ の成分とに分けて示したものが図 2.4 である。特に、入り口に近い領域では、 σ は C_1 よりかなり大きく、核種は入り口付近でfiltrationによって強く遅延されることが期待される。

次に、入り口から10 [m]での核種濃度について、その時間依存性を、イオンだけが存在する場合、イオンとコロイドがともに存在するがfiltrationは無視できる場合、イオンとコロイドがともに存在してかつfiltrationが有意な場合、の3つの場合について調べた。ただし、簡単のため、コロイドの粒径は一定であるとし、filtration係数は分布を持たず定数であるとした。結果を図 2.5 に示す。また、経過時間が10 [year]での入り口からの距離に対する依存性を図

2.6 に示す。コロイドが存在し、filtrationが無視できる系ではコロイドへ核種が吸着し擬似コロイドが形成されるためイオンだけの時に比べ速く移行するが、filtrationが有意な系においては、核種はfiltrationにより強く遅延されることがわかる。

これまで多くの研究者によって亀裂媒体中あるいは多孔質媒体中における核種移行解析が行われてきた。しかし、そのほとんどすべてが、核種はイオンでありそのイオンは媒体中を地下水と同じ流速で流れるという前提のもとで行われたものである。その一方で、アクチニド元素及び主要な核分裂生成物の一部は加水分解を通し真性コロイドを形成したり、あるいは共存する地下水コロイドに吸着して擬似コロイドを形成しやすいことが指摘されている。

本研究ですでに明らかにしたように、地下水コロイドが共存し、核種がそのコロイドに吸着することで擬似コロイドを形成するとその移行速度や固相との相互作用の違いにより、イオンだけを対象とした解析からだけでは核種の移行挙動を正確に予測できない可能性がある。そして、コロイド共存系での核種移行がイオンのみを対象とした場合と比べてどれだけ差異が生じるかは、対象とする地層中での重要パラメータに依存すると考えられる。そこで、本研究で提案したfiltrationも含めた3相間相互作用を考慮した核種移行モデルを用い、擬似コロイドが形成される場合核種移行に対してどのパラメータが重要な影響を与えるかを明らかにするため、filtrationがない場合とある場合のそれぞれについて各種のパラメータの値を変えてその影響を調べた。ただし、以下のようにパラメータの値を決め直した。

$$D_1 = D_2 = 1.0 \text{ [m}^2\text{/year]}, D_p = 10^{-2} \text{ [m}^2\text{/year]}, R_p = 1 + \frac{(1 - \varepsilon_p)\rho K_{82}}{\varepsilon_p}, \rho = 2.6,$$

$v_1 = 1.3$ [m/year], $v_2 = 1.0$ [m/year]

filtrationを考慮しない場合、 $x = 100$ [m]において濃度が入り口での濃度の半分になるまでの時間を指標とした。 K_{d2}, K_{d3} の依存性及び v_1, K_{d3} の依存性を計算し結果を表 2.1 に示した。擬似コロイドの速度 v_1 およびイオンの固相への吸着のしやすさ K_{d2} の影響は小さく、擬似コロイドの形成のしやすさ K_{d3} に大きく依存することがわかる。 K_{d3} の影響を図 2.7 に示した。 K_{d3} が大きくなるほど、つまりイオン-コロイド間の吸着平衡において、イオンを強く吸着するコロイドが増加するほど破過は速くなる。

filtrationを考慮した場合、 $x = 10$ [m]での核種の濃度比（出口濃度/入口濃度）を指標とし、 K_{d3} の依存性及び v_1, K_{d3} の依存性を計算した。結果を表 2.2 に示した。擬似コロイドの速度 v_1 の影響は小さいことがわかる。filtration係数 λ と擬似コロイド形成のしやすさ K_{d3} の依存性をグラフにし図 2.8 に示す。 K_{d3} が大きい領域ではfiltrationの強さを表す λ よりも擬似コロイド形成のしやすさ K_{d3} の影響が大きいことがわかる。また、 K_{d3} が小さい領域では、filtration係数の影響が大きくなることもわかる。

K_{d2} 、つまり、固相へのイオンの吸着挙動については吸着分配比の測定という形で数多くの研究報告がなされてきている。しかし、固相より比表面積が大きく表面活性なコロイド粒子への吸着挙動という観点からの研究はまだほとんど行われていない。本研究の後半は、核種のコロイドへの吸着、つまり擬似コロイドの形成、あるいは擬似コロイドの安定性という観点からの研究が今後不可欠であることを示している。すなわち、地下水中にどのような

コロイドが存在するかを正確に評価するサンプリング分析手法、そのコロイドの中でどのコロイドが核種と強く相互作用を起こし、どのような粒径分布を有しどのような条件のもとで安定に存在しうるかという、擬似コロイド形成と安定性のモデル化が重要な課題である。

また、本研究ではSaltelliらが報告したfiltrationモデルを使用しているがこれはあくまで一例でありかつ均質系のモデルである。地層中という不均質系におけるfiltrationモデルの構築も同時に重要な課題であると言える。

Kd2, Kd3依存性

Kd2 \ Kd3	0.1	0.5	1	5	10	50
0.1	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4
0.5	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4
1	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4
5	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4
10	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4
50	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4

v1, Kd3依存性

v1 \ Kd3	0.1	0.5	1	5	10	50
1.0	1.1e6	1.1e6	1.0e6	7.0e5	4.7e5	5.6e4
1.1	1.1e6	1.1e6	1.0e6	6.7e5	4.4e5	5.0e4
1.2	1.1e6	1.1e6	1.0e6	6.5e5	4.1e5	4.6e4
1.3	1.1e6	1.1e6	9.9e5	6.2e5	3.9e5	4.2e4
1.4	1.1e6	1.1e6	9.8e5	6.0e5	3.7e5	3.8e4

表 2.1 filtration を考慮しない場合に $x = 100$ [m] において濃度が入り口濃度の 1/2 になるまでの時間

filtration係数、Kd3依存性

λ \ Kd3	0.5	1	5	10	50
0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
0.1	2.8e-9	3.7e-7	1.1e-3	1.1e-2	2.6e-1
0.5	9.1e-16	1.8e-11	2.3e-5	9.2e-4	1.3e-1
1		4.3e-14	2.4e-6	2.2e-4	8.4e-2

v1、Kd3依存性

v1 \ Kd3	0.5	1	5	10	50
1	1.8e-14	1.2e-10	4.6e-5	1.4e-3	1.4e-1
1.1	6.2e-15	6.1e-11	3.6e-5	1.2e-3	1.4e-1
1.2	2.3e-15	3.2e-11	2.9e-5	1.1e-3	1.3e-1
1.3	9.1e-16	1.8e-11	2.3e-5	9.2e-4	1.3e-1
1.4	3.7e-16	1.0e-11	1.9e-5	8.1e-4	1.2e-1

表 2.2 filtrationを考慮した場合のx = 10 [m] における飽和時の濃度比(出口濃度/入口濃度)

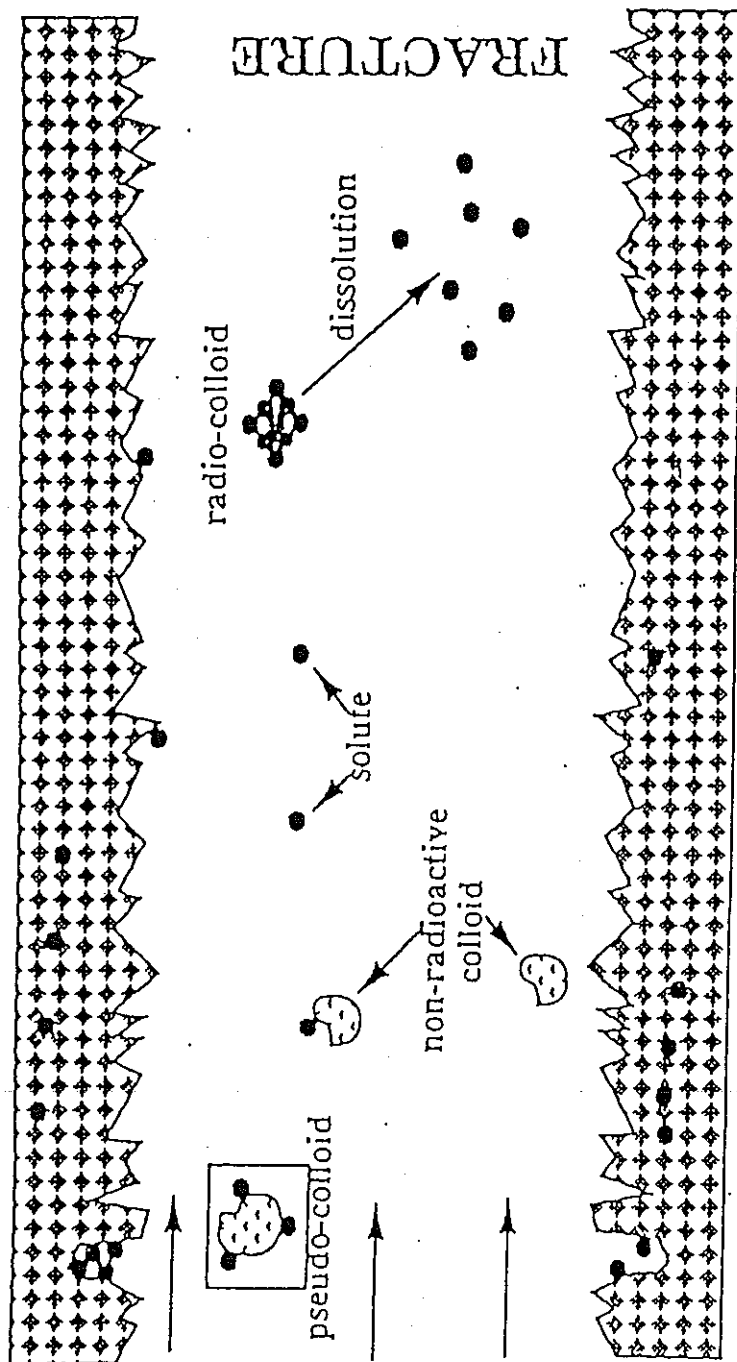


図 2.1 Hwangらのモデルにおける亀裂媒体中の核種移行

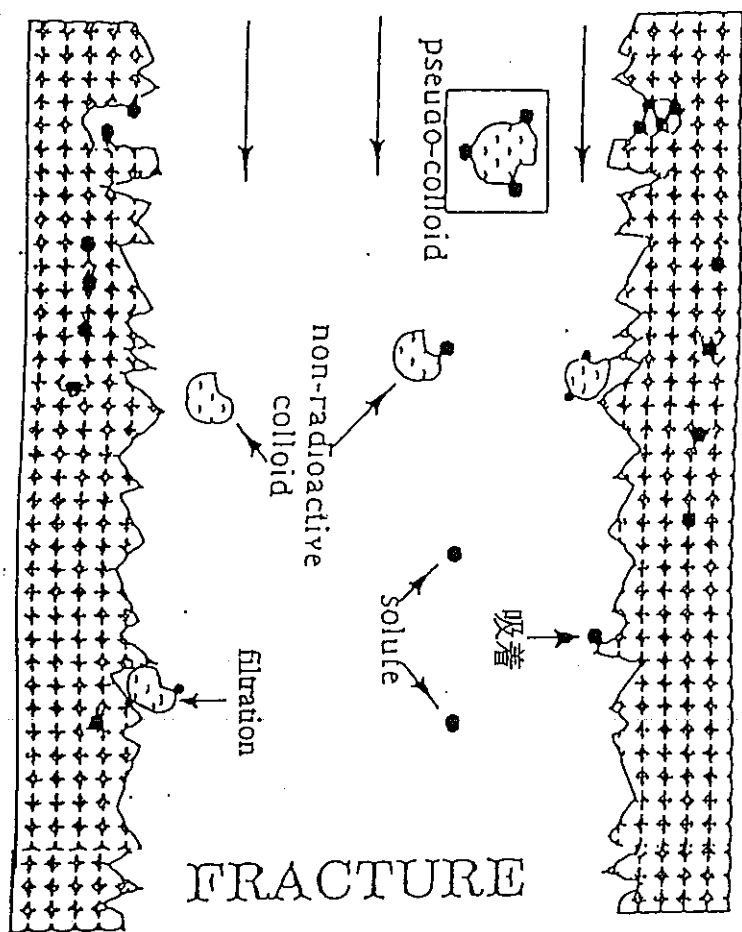


図 2.2 本研究で作成したモデルにおける亀裂媒体中の核種移行

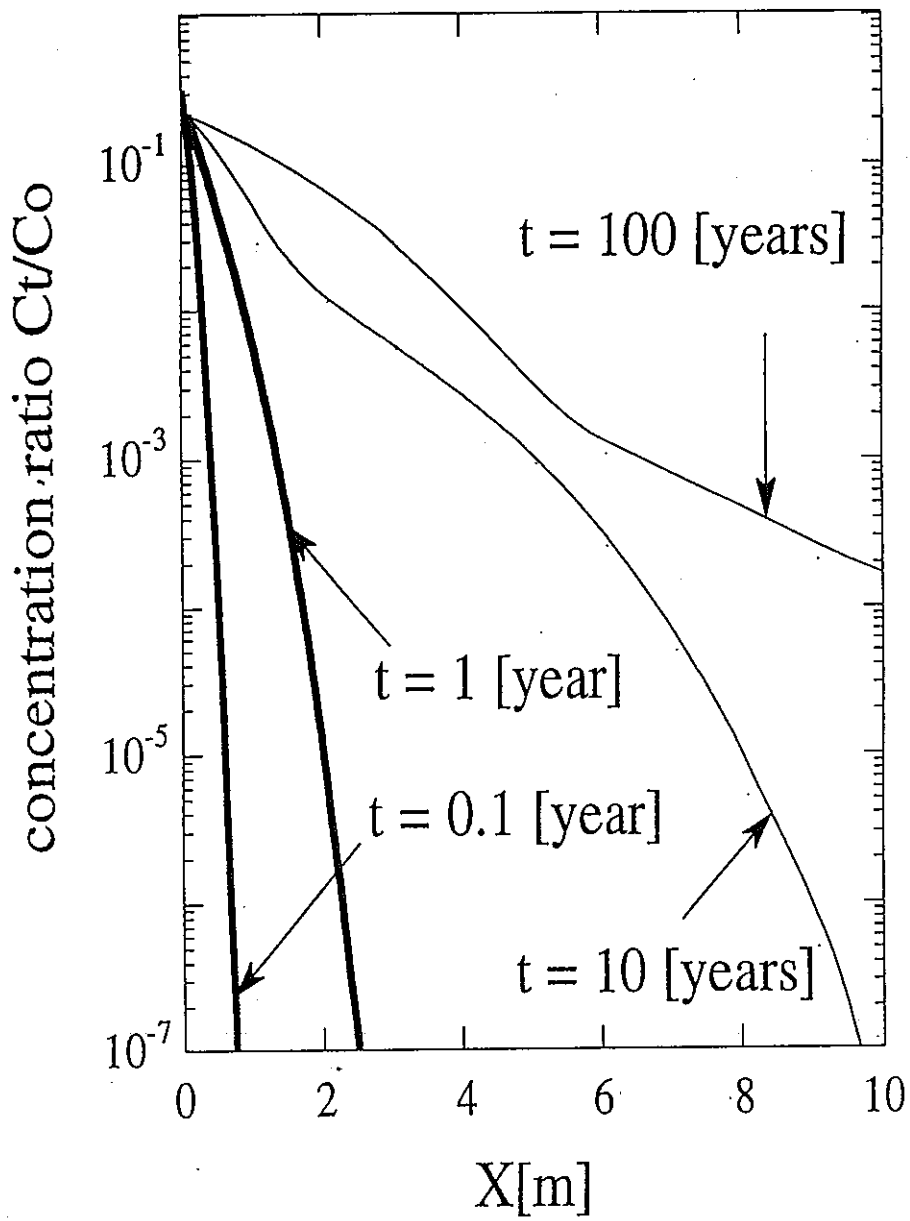


図 2.3 コロイドに吸着したイオン濃度

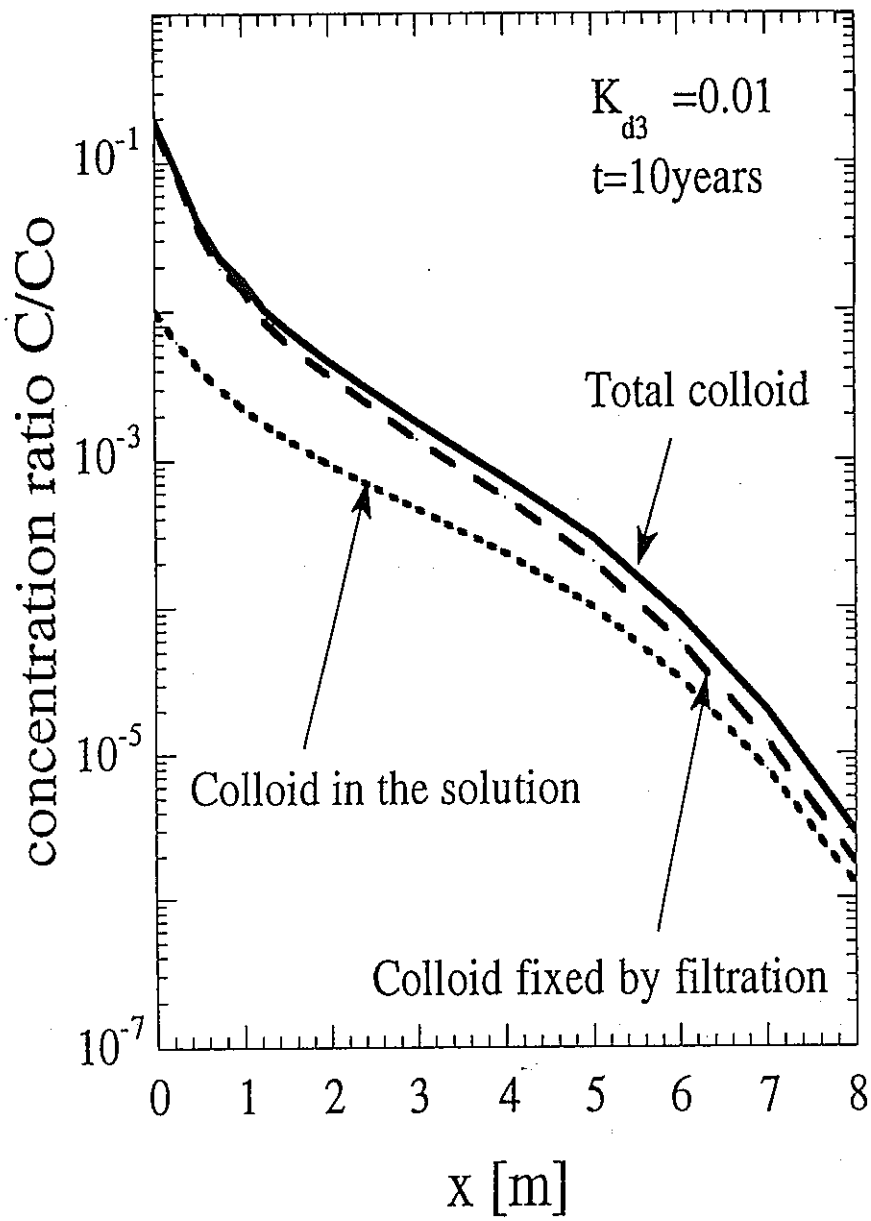


図 2.4 溶液中のコロイドと遅延されたコロイド

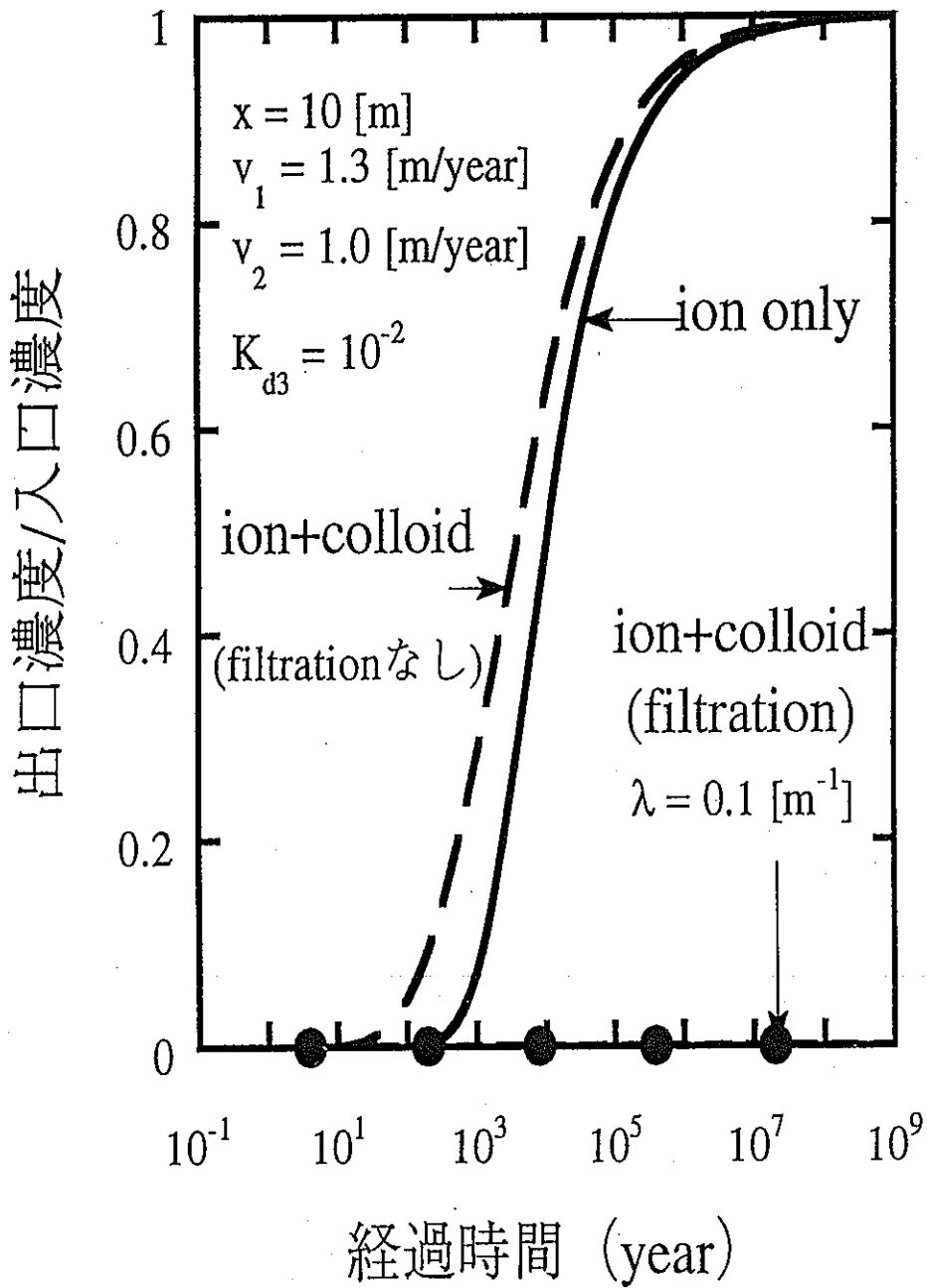


図 2.5 破過に及ぼすコロイドとfiltrationの影響

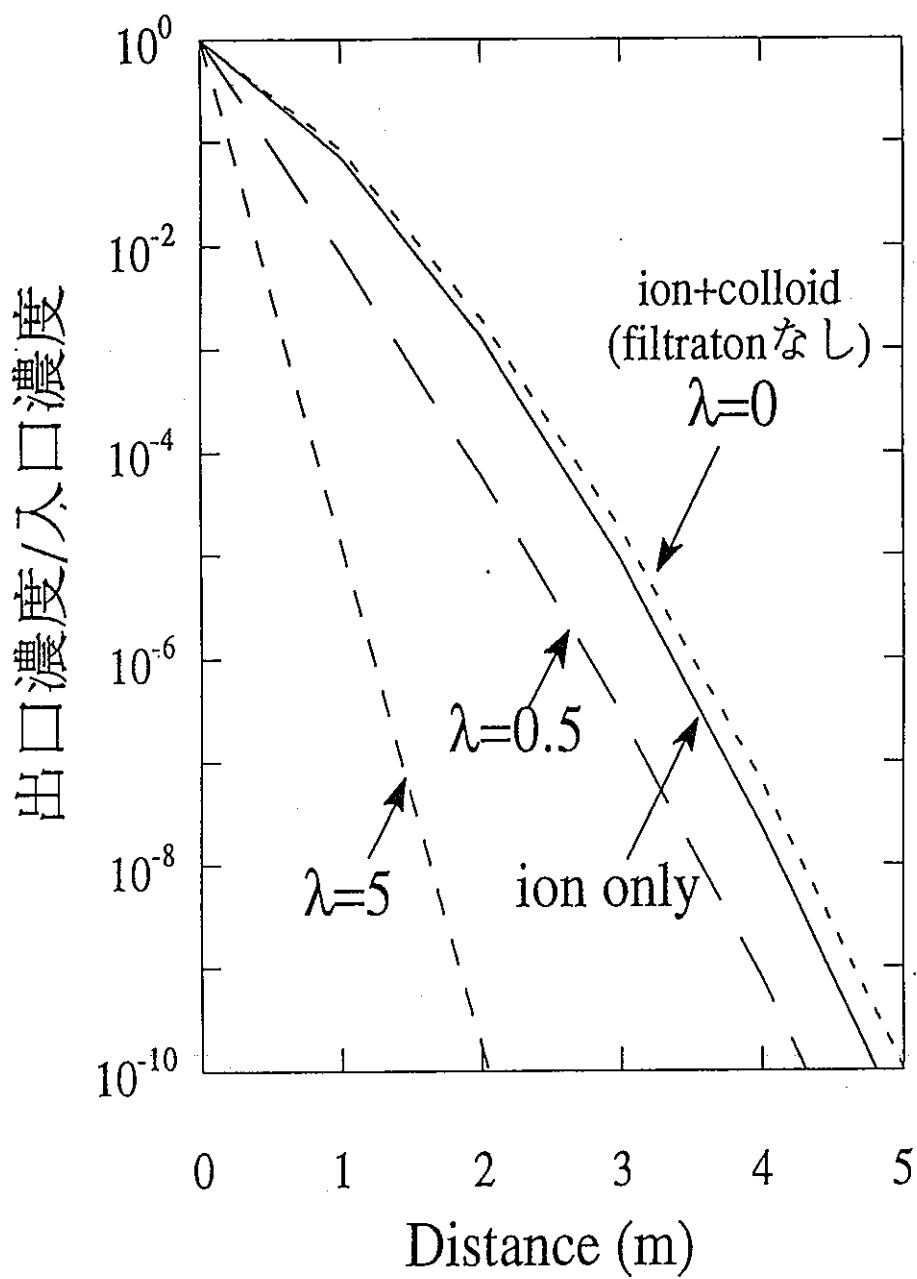


図 2.6 コロイドおよびfiltrationを考慮した場合の核種濃度の距離依存性

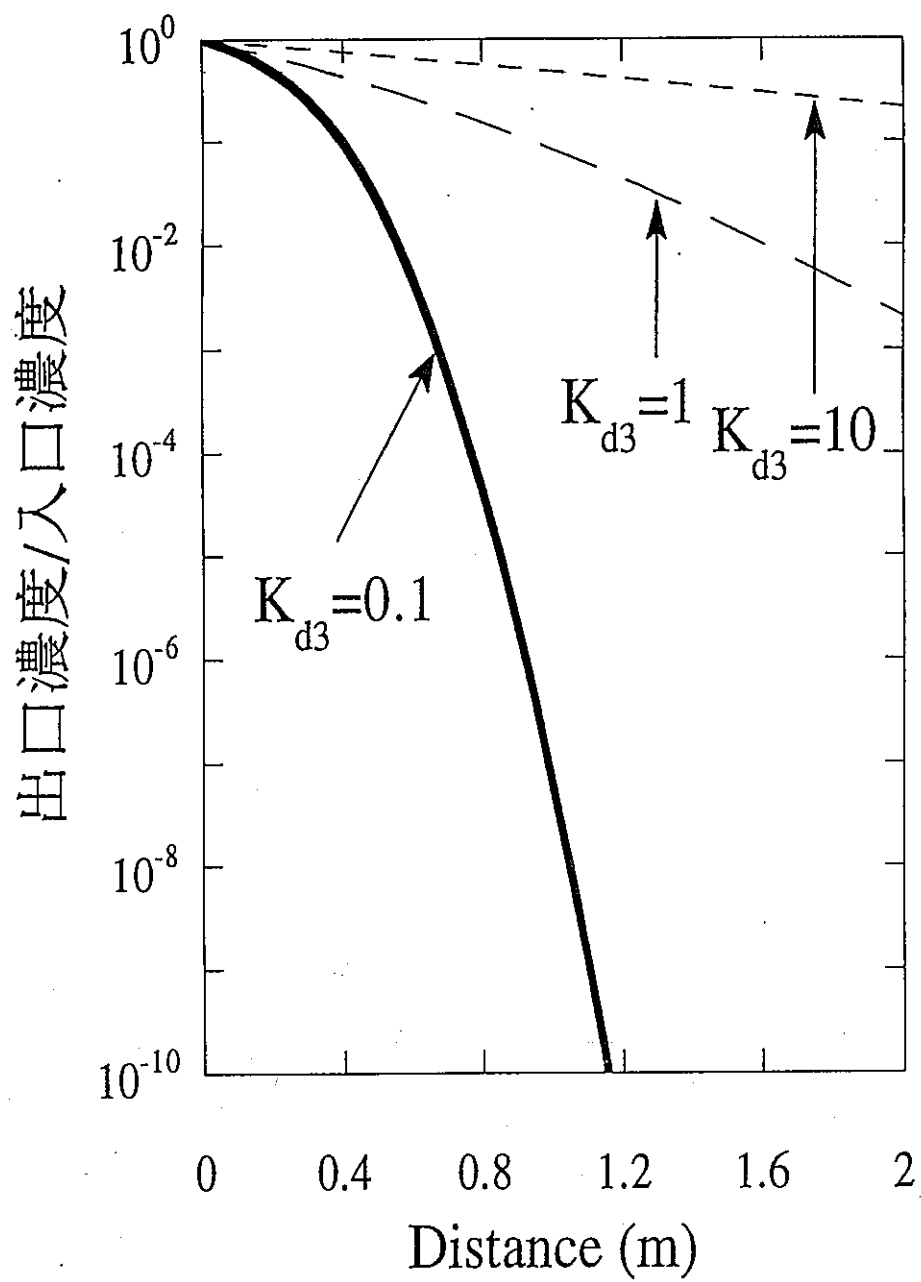


図 2.7 filtrationを考慮しない場合の核種濃度に及ぼす K_{d3} の影響

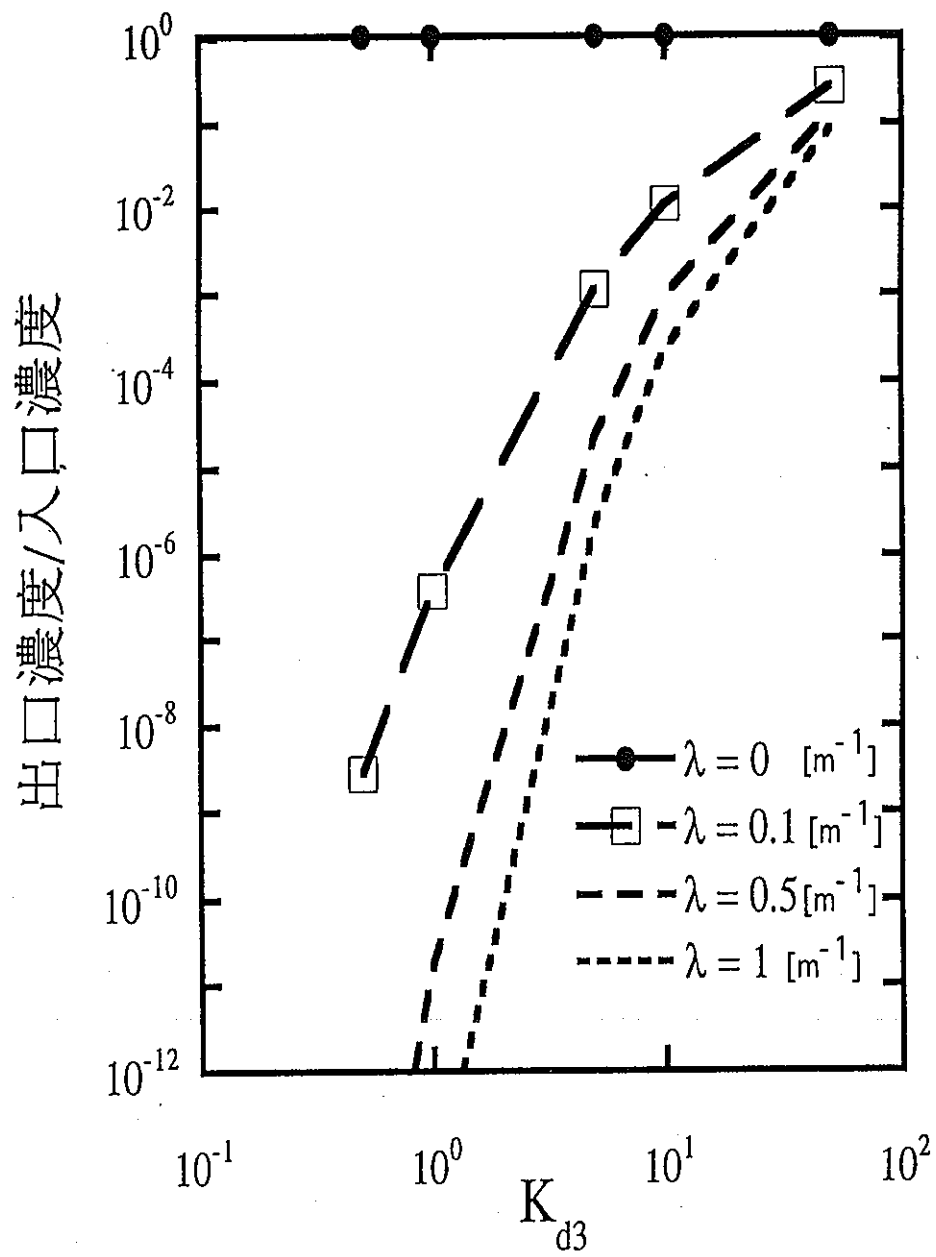


図 2.8 核種移行に与える filtration と K_{d3} の影響

第3章 流れのある場での粒子のブラウン運動

3-1 simple shear流れ場中での粒子のブラウン運動

(1) 解析解

simple shear 流れ場中の粒子の拡散は次のような移流拡散方程式で記述される。

$$\frac{\partial \rho(x_1, x_2, x_3, t)}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla \rho) - \nabla \cdot (v \rho) \quad (3.1.1)$$

ここで、 x_i はデカルト座標、 ρ は粒子の密度、あるいは粒子の存在確率、 D は拡散係数、 v は速度である。勾配 G の流れを考え、 $v_3 = Gx_2$ 、 $v_1 = v_2 = 0$ とする。すると、(3.1.1)は次のように書き直すことができる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = D \nabla^2 \rho - G x_2 \frac{\partial \rho}{\partial x_3} \quad (3.1.2)$$

原点に点源がある場合についての解がElrickによって以下のように与えられている。

$$\rho^*(x_1^*, x_2^*, x_3^*, t^*) = \frac{3^{1/2} M}{4(\pi t^*)^{3/2} (t^{*2} + 12)^{1/2}} \exp\left[-\left\{\frac{3(x_3^* - t^* x_2^*/2)^2}{t^*(t^{*2} + 12)} + \frac{x_2^{*2}}{4t^*} + \frac{x_1^{*2}}{4t^*}\right\}\right] \quad (3.1.3)$$

ただし、 $\rho^* = (G/D)^{-3/2} \rho$ 、 $x_i^* = (G/D)^{1/2} x_i$ 、 $t^* = Gt$ である。

M は全粒子量で

$$M = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \rho^* dx_1^* dx_2^* dx_3^* \quad (3.1.4)$$

で表される。

(3.1.3)と(3.1.4)から移動量の二乗平均は

$$\overline{\Delta_i^* \Delta_j^*} = \frac{1}{M} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} x_i^* x_j^* \rho^* dx_1^* dx_2^* dx_3^* \quad (3.1.5)$$

で示される。

ただし、 $\Delta_k^* = Pe^{1/2} \Delta_k / b$ 、 b は粒子半径、 Pe はペクレ数で $Pe = Gb^2 / D$ と定義される。

(3.1.3)を(3.1.5)に代入して積分を行うと

$$\overline{\Delta^* \Delta^*} = \begin{bmatrix} 2t^* & 0 & 0 \\ 0 & 2t^* & 0 \\ 0 & 0 & 2t^* + \frac{2}{3}t^{*3} \end{bmatrix} \quad (3.1.6)$$

が得られる。

移動距離の二乗平均のスカラー $\overline{\Delta^{*2}} (= \overline{\sum_i x_i^{*2}})$ は(3.1.6)のトレースである

ため

$$\overline{\Delta^{*2}} = 6t^* + \frac{2}{3}t^{*3} \quad (3.1.7)$$

と表される。(3.1.7)を無次元形式で表すと次のようになる。

$$\overline{\Delta^2} = 6Dt + \frac{2}{3}DG^2t^3 \quad (3.1.8)$$

2次元流れの場合 ($x_1 = 0 = \text{一定}$)、上と同様にして移動距離の二乗平均を評価すると

$$\overline{\Delta^{*2}} = 4t^* + \frac{2}{3}t^{*3} \quad (3.1.9)$$

が得られる。

(3.1.9)式から、 t が小さい領域ではEinsteinの結果($\overline{\Delta^2}$ は t に比例)が成り立つ

が、 t が大きい領域では $\overline{\Delta^2}$ は t^3 に比例することがわかった。 $\overline{\Delta^2}$ が t に比例する領域から t^3 に比例する領域へ遷移する時間の指標として、図 3.1の 2 直線の交点の時間 t_{trans}^* を定義すると $t_{\text{trans}}^* = \sqrt{6}$ でありペクレ数に依存せず一定であった。また、3次元流れの場合には $t_{\text{trans}}^* = 3$ であった。

(3.1.3)式を極座標で表現すると次式を得る。

$$\rho^*(r^*, \theta, \phi, t^*) = \frac{3^{1/2} M}{4(\pi t^*)^{3/2} (t^{*2} + 12)^{1/2}} \exp[-r^{*2} \{f(\phi, t^*) \sin^2 \theta + \frac{1}{4t^*} \cos^2 \theta\}] \quad (3.1.10)$$

ここで

$$f(\phi, t^*) = \frac{3(\cos \phi - \frac{1}{2} t^* \sin \phi)^2}{t^*(t^{*2} + 12)} + \frac{\sin^2 \phi}{4t^*} \quad (3.1.11)$$

である。

ϕ と $\phi + d\phi$ の間に粒子が存在する確率 $p(\phi)d\phi$ は次式で与えられる。

$$p(\phi) = \frac{1}{M} \int_0^\infty \int_0^\pi r^{*2} \rho^* \sin \theta dr^* d\theta \quad (3.1.12)$$

(3.1.12)式の積分を実行すると次式を得る。

$$p(\phi) = \frac{3^{1/2}}{4\pi t^*(t^* + 12)^{1/2} f(\phi, t^*)} \quad (3.1.13)$$

(3.1.13)式から $p(\phi)$ は

$$\phi_{\text{max}} = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{3}{t^*} \right) \quad (3.1.14)$$

で最大値をとる。

$p(\phi)$ の時間依存性を図 3.2 に示す。

(2) モンテカルロ法

simple shear流れ場中でブラウン運動をする粒子の移動は、次の2つの式で記述される[10]。

$$\begin{aligned}d\tilde{x}_3 &= \tilde{x}_2 dt^* + R_1(t) \\ d\tilde{x}_2 &= R_2(t)\end{aligned}\tag{3.1.15}$$

ただし、 $\tilde{x}_i = x_i/b$ 、 $R_1(t), R_2(t)$ はランダム移動量である。

この式を用いてモンテカルロ法により平均二乗距離を計算した。 $R_1(t), R_2(t)$ は互いに独立であり、平均 0、標準偏差 $\sqrt{\frac{2\Delta t^*}{Pe}}$ の正規分布から Δt^* ごとにランダムに選んだ。この理由は以下により説明される。

$t = 0$ での粒子の位置を原点とし、拡散係数 D の拡散方程式

$$\frac{\partial p(x,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 p(x,t)}{\partial x^2}\tag{3.1.16}$$

を考える。 $p(x,t)$ は粒子の存在確率である。初期条件はデルタ関数とする。

$$p(x,t) = \delta(x)\tag{3.1.17}$$

このとき、解は

$$p(x,t) = \frac{1}{(4\pi Dt)^{1/2}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right)\tag{3.1.18}$$

であり、平均0、標準偏差 $\sqrt{2Dt}$ の正規確率密度関数 $N(0, 2Dt)$ となることがわかる。従って、(3.1.10)式のもとでは、 $R_1(t), R_2(t)$ は、平均 0、標準偏差

$\sqrt{\frac{2D\Delta t}{b^2}} = \sqrt{\frac{2\Delta t^*}{Pe}}$ の正規分布から選べばよいことがわかる。

$\tilde{x}_2 = \tilde{x}_3 = 0$ から計算を始め、100ステップごとに Δ^2 を決定し、100個の粒子

について平均をとり $\overline{\Delta^2}$ を計算した。結果を図 3.1に示す。計算結果は解析解と良く一致しており、本研究で作成したプログラムの有効性が確認された。

3-2 壁の影響

一般に、移流拡散方程式に対する壁での境界条件はno-flux条件である。この場合、粒子が壁に近づいても拡散係数が変化せず、壁は完全な反射体であるとしている。しかし、拡散係数は壁からの距離 h と粒子半径 a との比 h/a の関数であり、また粒子の流速は壁が存在することにより遅くなることがGoldmanらにより報告されている[11][12]。

本項では、simple shear流れ場中の壁の付近での粒子の拡散について検討した。壁の影響として次の3つを考慮に入れた。

- (1) 壁に平行な方向の拡散係数は $g_1(h/a)D$ に従い変化する。
- (2) 壁に垂直な方向の拡散係数は $g_2(h/a)D$ に従い変化する。
- (3) 粒子の流速は $g_3(h/a)v(d)$ に従い変化する。

ここで、 $d = h + a$ 、 g_1, g_2, g_3 は補正因子、 $D, v(d)$ はそれぞれ壁がない場合の拡散係数、流速である。 g_1, g_2, g_3 はGoldmanらによって報告された値を用いる。

壁の効果を考慮した場合、2次元のsimple shear流れ場中の粒子の移行は次の式で与えられる。

$$\begin{aligned} dx &= g_3(h/a) Gd + R_1(t) \\ dh &= R_2(t) \end{aligned} \tag{3.2.1}$$

ここで、 $R_1(t), R_2(t)$ はランダム移動量で平均0、標準偏差がそれぞれ

$\sqrt{2g_1(h/a)\Delta t}$ 、 $\sqrt{2g_2(h/a)\Delta t}$ の正規分布から Δt ごとにランダムに選ぶ。 $Pe = Ga^2/D = 100$ とし、壁に平行な方向及び壁に垂直な方向の平均二乗距離をモンテカルロ法で計算した。比較のため、no-flux境界条件についても同様の計算を行った。no-flux境界条件の場合、 $g_i = 1 (i = 1, 2, 3)$ とし、 $h + dh < 0$ となるときは h の符号を逆転させた。 $d_0/a = 1.05$ (d_0 は $t = 0$ における d) の結果を図 3.3 に示す。ここで $y = h - h_0$ (h_0 は $t = 0$ における壁からの距離) であり、 $t = 0$ において $x = 0$ とした。壁の効果を考慮に入れた場合、壁の効果が無い場合と比較して平均二乗距離は $Dt/a^2 > 1$ の範囲では 1 桁程度減少することがわかる。また、 $d_0/a = 2$ の場合についても計算を行った。結果を図 3.4 に示す。 $d_0/a = 1.05$ の場合に比べ補正因子の値が 1 に近づくため壁の影響は小さいことがわかった。

3-3 電荷の影響

粒子及び壁は実際には帯電している。このため、粒子の存在確率は壁方向に分布を持つ。この分布は粒子と壁との相互作用ポテンシャル(van der Waals 力と電気二重層力に基づく)から評価される。

粒子の存在確率は壁からの距離 h の関数として次のように表される。

$$c(h) = \exp[-W(h)/kT] \quad (3.3.1)$$

ここで、 $W(h)$ は粒子と壁の間の相互作用エネルギー、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度である。

全エネルギー W は電気二重層力に基づくポテンシャル W_{DL} と van der Waals

力に基づくポテンシャル W_{VDW} の和として表せる。

$$W = W_{DL} + W_{VDW} \quad (3.3.2)$$

ここでは、粒子と壁からなる体系を球と平板とみなせるとする。このとき、電気二重層力に基づくポテンシャル W_{DL} は次のように表される。

$$W_{DL}(h) = 16\epsilon a \left(\frac{kT}{e}\right)^2 \tanh\left(\frac{e\Phi_1}{4kT}\right) \cdot \tanh\left(\frac{e\Phi_2}{4kT}\right) e^{-\kappa h} \quad (3.3.3)$$

ここで、 e は電気素量、 ϵ は水の誘電率、 κ はデバイ長の逆数、 Φ_1, Φ_2 はそれぞれ粒子、壁の表面電位である。

また、粒子と壁の間の van der Waals力に基づくポテンシャル W_{VDW} は以下のように表される。

$$W_{VDW}(h) = -\frac{A}{12} \left(\frac{1}{x} + \frac{1}{x+1} + 2 \ln \frac{x}{x+1} \right) \quad (3.3.4)$$

ここで、 $x = h/2a$ であり、 A はHamaker定数である。

高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、ベントナイト空隙や、岩石中の狭隘水路中など、ポテンシャルの重なりが生じるような非常に狭い水路でのコロイド粒子の移行挙動を考える必要があるが、ここでは一方の壁によるポテンシャルのみを考え、もう一方の壁は無遠くにあるとする。

$d_0/a = 5$ の場合について x 方向の平均二乗距離を計算した。計算は3-2の計算方法に基づいた。ただし、電荷の影響を考慮するために、各ランダム移動 Δh ごとに計算した $c(h + \Delta h)/c(h)$ をランダム移動が有効となる確率と考え、無効となった場合は $\Delta h = 0$ とすることによりポテンシャルの壁を導入した。この計算では、パラメーター値として以下の値を用いた。

$$A = 4.6 \times 10^{-21} \text{ [J]}, T = 300 \text{ [K]}, \Phi_1 = -82.0 \text{ [mV]}, \Phi_2 = -46.0 \text{ [mV]}, \kappa a = 1,$$

$a = 85$ [nm]。

結果を図 3.5に示す。 x 方向の移動量は電荷のない場合よりも増加することがわかった。これは、壁に近づく方向、つまり、流速の遅い方向への移動が電気二重層ポテンシャルからの斥力により抑制されるためである。また、デバイ長の逆数 κ と粒子半径 a との積 κa についての依存性を $\kappa a = 0.01 \sim 100$ の範囲で調べた。 κa が小さいということは粒子の大きさに比べて厚い電気二重層を持っているということであり、 κa が大きいということは粒子の大きさに比べて薄い電気二重層を持っているということである。結果を図 3.6に示す。 κa が小さいほど移動量が大きくなることがわかった。これは、 κa が小さいほど壁との電気二重層ポテンシャルからの斥力がより大きいため流速の遅い方向への移動が抑制されるためであると考えられる。このような相互作用の影響により、周辺岩盤とコロイドとの間で電気二重層の重なりが起こるような狭隘水路中ではコロイドが地下水の流速のもっとも速い水路の中心付近に選択的（優越的）に存在することが安定となりコロイドの移行量が増加する可能性があると言える。また、 κa はイオン強度に依存する値であり、この結果はコロイドの安定性とも関連した現象と考えることが出来ると言える。

表面電位の依存性について $\Phi_1 = \Phi_2 = -80 \sim -210$ [mV] の範囲で調べた。平均二乗距離はほとんど変化せず、表面電位の影響は小さいことがわかった。これらのことから同じ符号に帯電した壁と粒子の相互作用では壁や粒子自体の表面電位よりイオン強度や粒径に依存する κa の影響が重要であることがわかった。

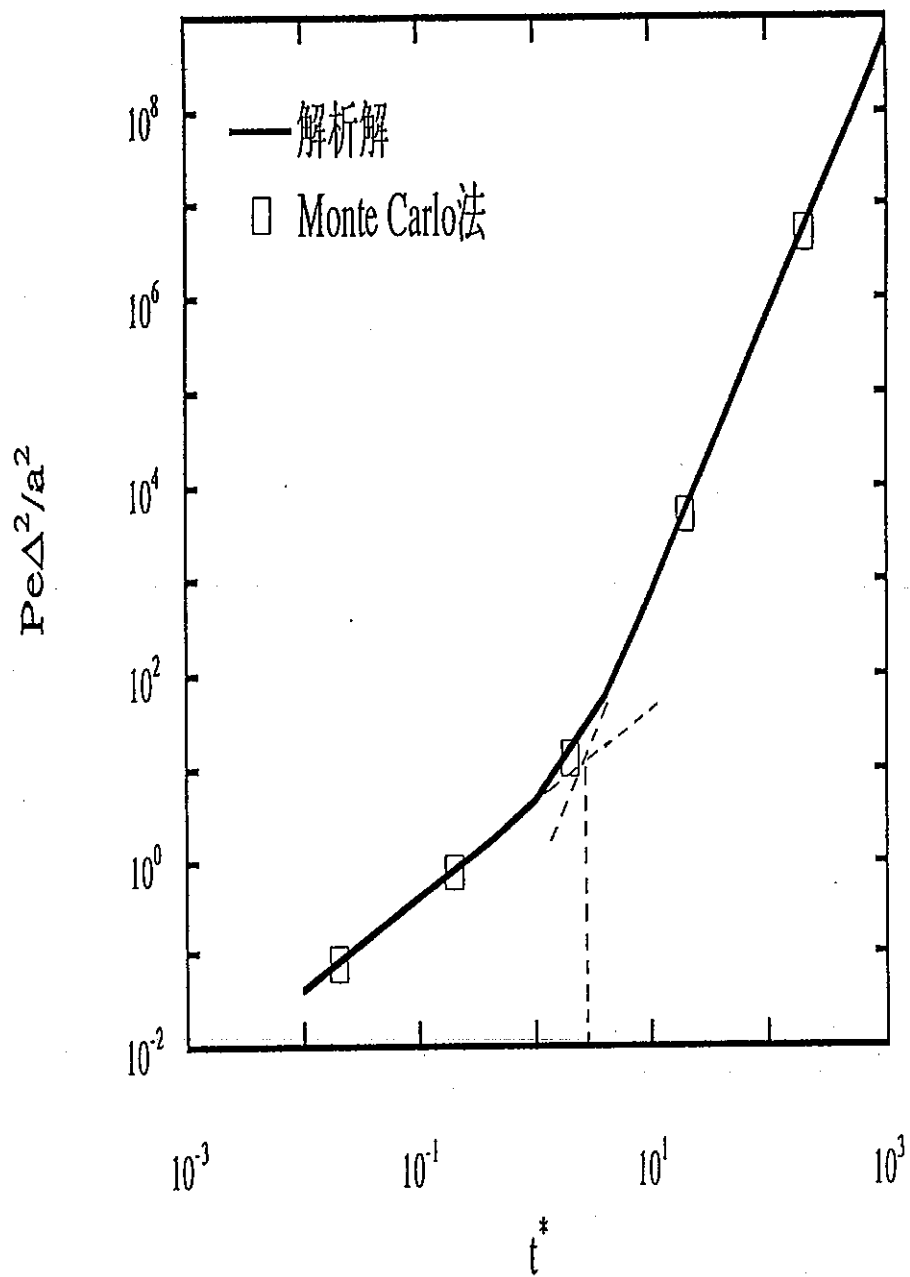


図 3.1 2次元simple shear流れ場における粒子の平均二乗距離の時間依存性

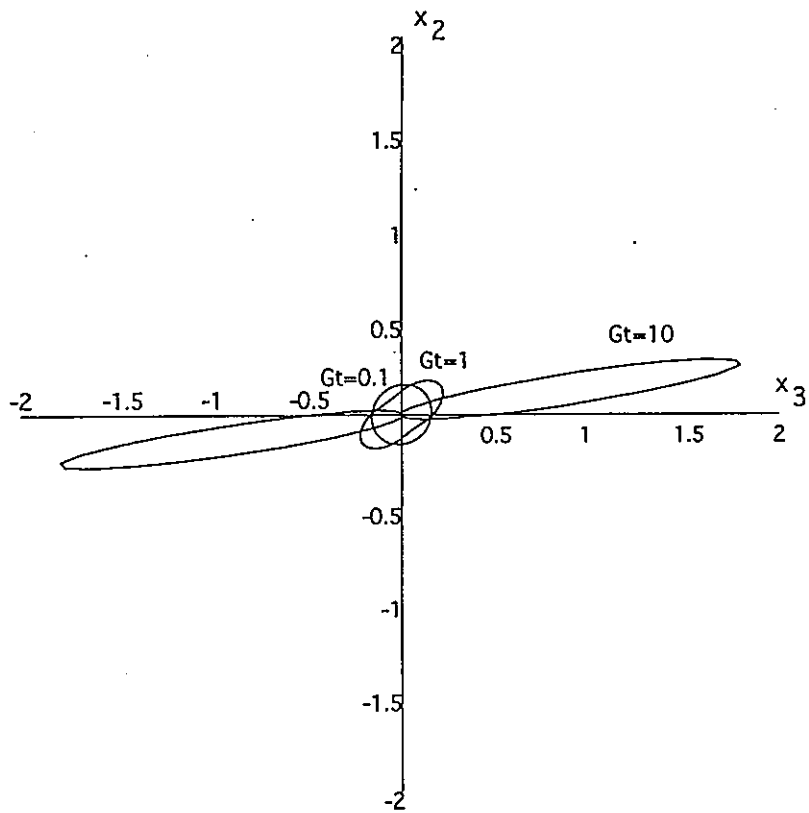


図 3.2 2次元simple shear流れ場における粒子の存在確率の時間依存性

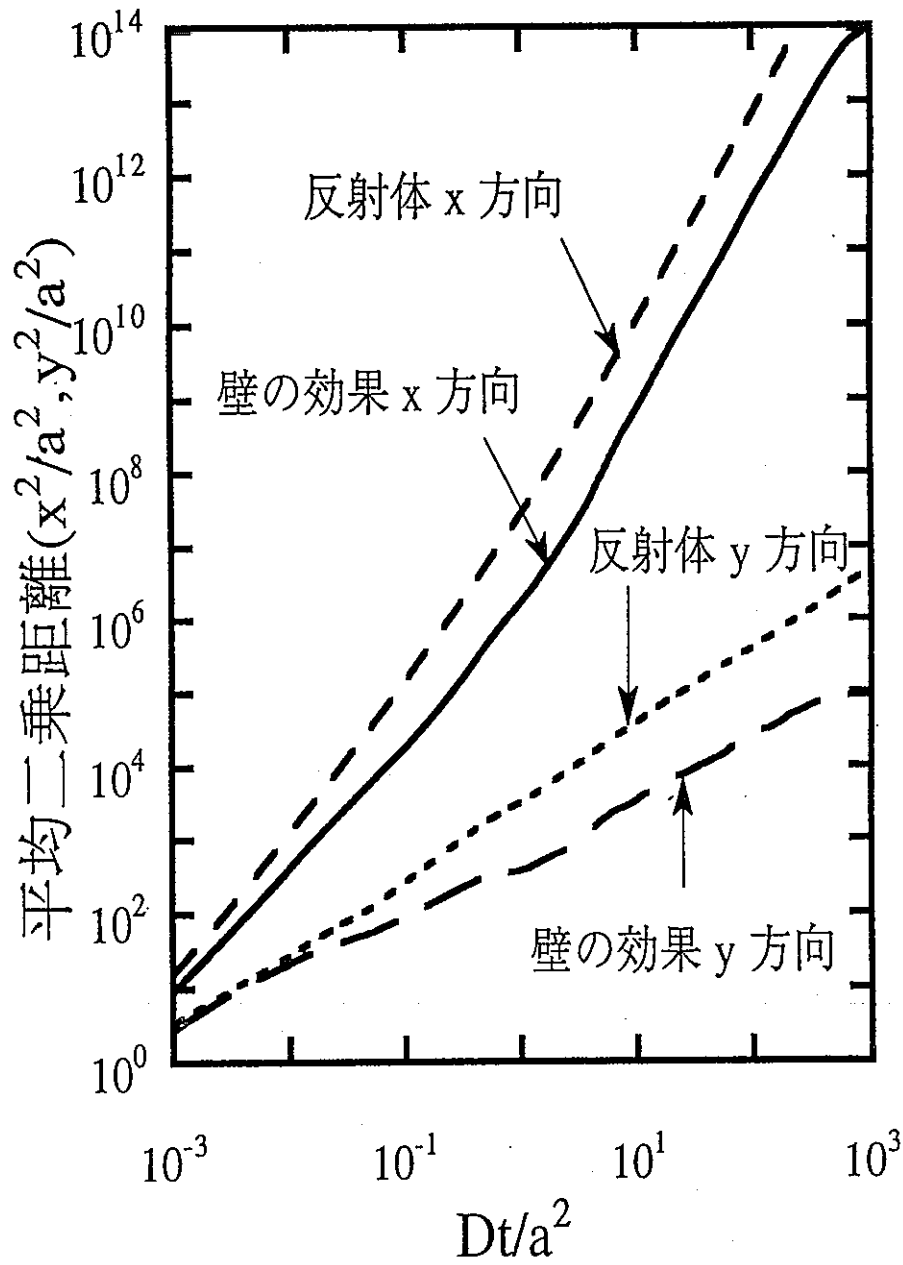


図 3.3 $d_0/a = 1.05$ の場合の平均二乗距離に及ぼす壁の効果

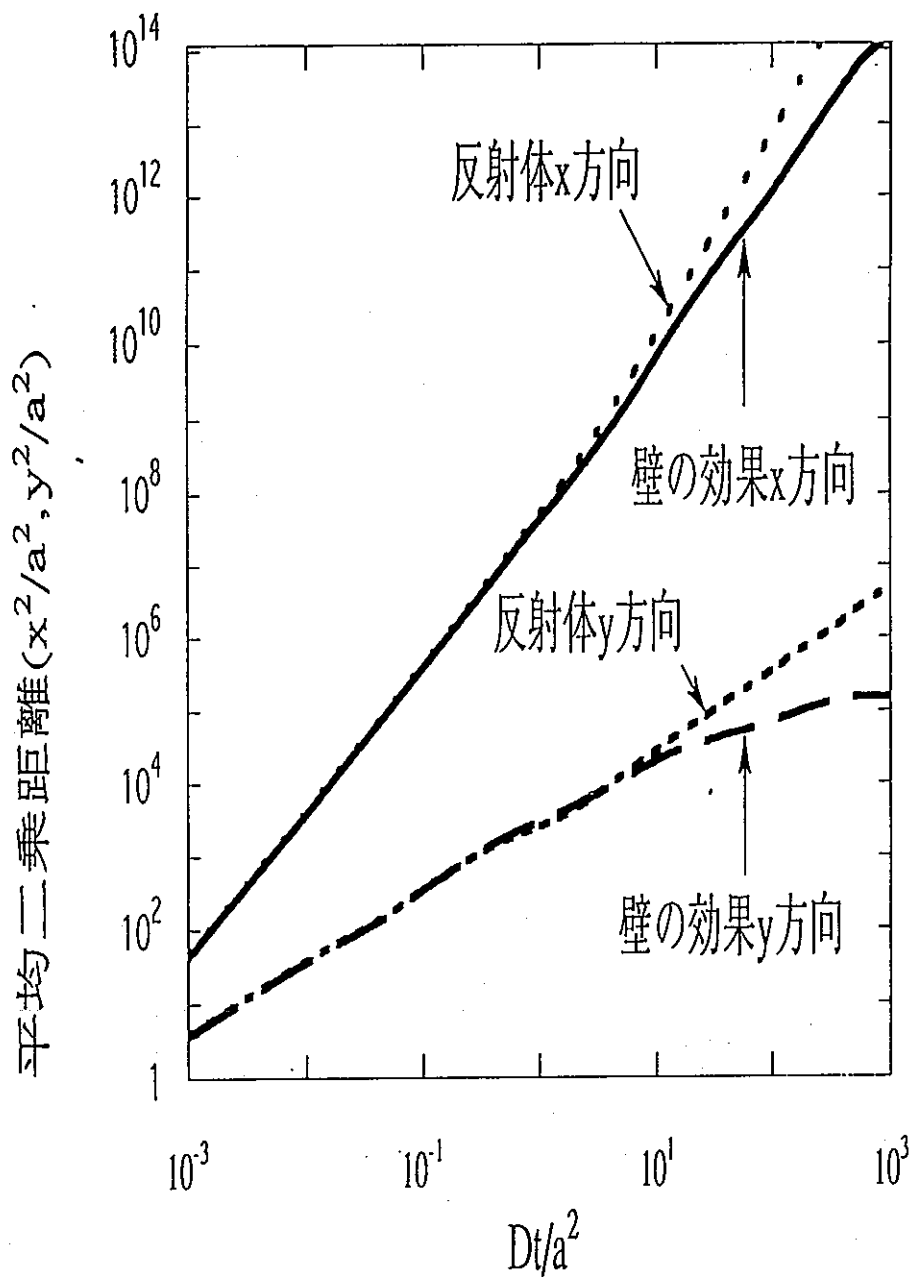


図 3.4 $d_0/a = 2$ の場合の平均二乗距離に及ぼす壁の効果

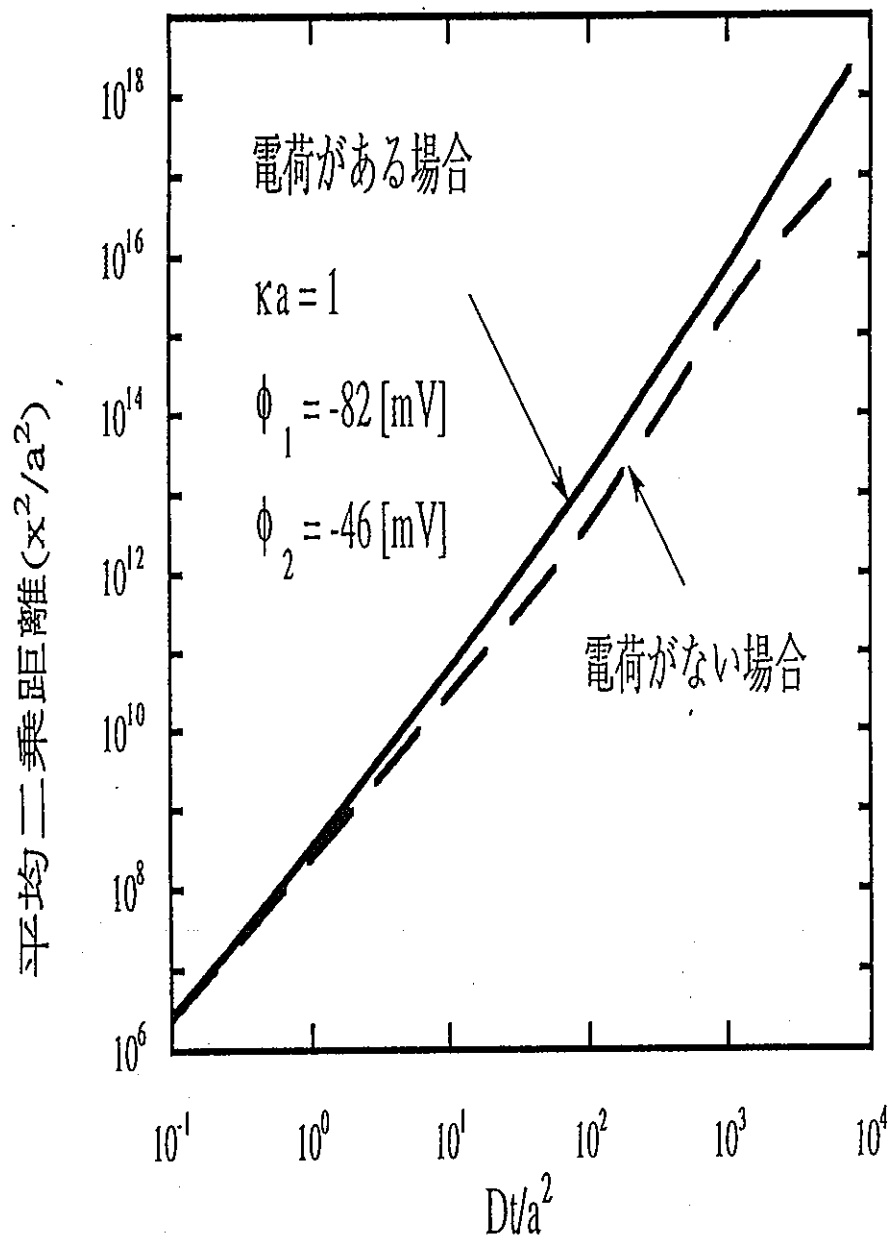


図 3.5 流れの方向の平均二乗距離に及ぼす電荷の影響

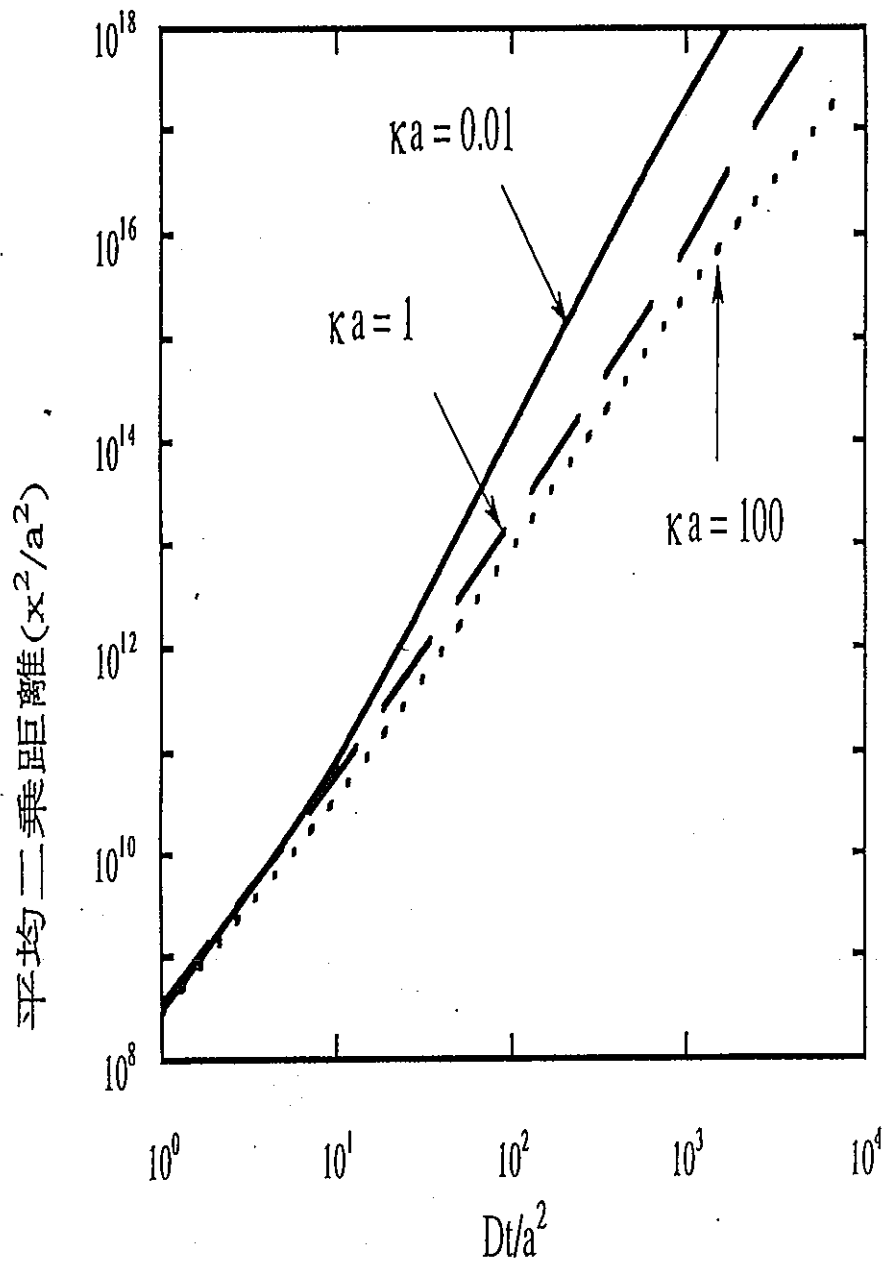


図 3.6 流れの方向の平均二乗距離の ka 依存性

第4章 今後の検討方針

4-1 まとめ

第2章においては、亀裂媒体中における核種移行挙動へおよぼす擬似コロイド形成の影響について、イオン-コロイド-固相3相間での相互作用やコロイドのFiltrationを考慮して解析的に検討した結果、コロイドはFiltrationによって有意に遅延されその大部分は亀裂入口に集中していること、ならびにコロイド共存系ではFiltration効果とともに擬似コロイドの形成のしやすさ、つまり擬似コロイドの安定性が重要な役割を果たすことを明かにした。

第3章では、実際の地下環境において想定される地下水コロイドも帯電していれば周辺岩盤も帯電しているという条件での、流れ場中におけるコロイドの移行挙動を解析した。本研究では、その第1ステップとして非常に大きい亀裂中をコロイドが移行する場合を検討し、電気2重層力とvan der Waals力に基づくポテンシャルによってコロイドが流速の遅い壁付近から排斥されて、流れ方向への移行が促進されることをモンテカルロ法による解析により示した。

4-2 今後の検討方針

本研究で明かにした擬似コロイドの影響と帯電粒子の移行挙動から、今後は以下の方針に従い重要な検討課題の解明を実施することとなる。

4-2-1 擬似コロイドの影響

本年度の研究結果から、コロイドのFiltrationと擬似コロイドの形成のしやすさの重要性が明かとなった。このことは、高レベル放射性廃棄物地層処分を実施するにあたり、対象となる地下環境における地下水中にどのような種類のコロイドがどの程度の濃度でどのような粒径分布を有しながら存在しているかを、正確に測定する手段の構築の必要性を示している。すなわち、地下水条件に有意な外乱や汚染を与えることなくサンプリングする方法を開発し、またその条件でコロイドの組成や濃度を測定する測定方法の確立が望まれる。

対象となる地下水中に存在するコロイドが把握された後は、その地下水から採取したコロイドを用いて、主要なアクチニド元素や核分裂生成物と擬似コロイドを形成するか否かを環境雰囲気制御の中で検討する必要がある。擬似コロイド形成に関しては、アクチニド元素の吸脱着が可逆的であるか不可逆的であるか、そのKineticsはどのようなものであるかを含めて明かにし、酸濃度やイオン強度に対する安定性を考慮した擬似コロイド形成モデルを作成しなければならない。つまり、いかなるpH条件あるいはイオン強度条件において擬似コロイドは形成され安定なのか、その擬似コロイド形成反応は可逆的なのか否か、Kineticsはいかなるものなのかが含まれたモデルを構築し、不均質媒体中を低流速で流れるときのFiltrationモデルへも適用し、最終的なイオン-コロイド-固相3相間での移行モデルとして性能評価に適用しなければならない。

要するに、核種移行へおよぼすコロイドの影響については、実験的にコロイドの安定性とFiltrationに関する知見を収集し、その結果に基づき擬似コロイド形成とFiltrationに関

するモデルを作成するとともに、それらを移行モデルへ組み込むことが今後の最重要課題である。

4-2-2 狭隘経路内の帯電粒子の移行

昨年度実施した石英粉末充填カラム内のラテックス拡散に関する予備的実験からは、ラテックス粒子の拡散係数が評価された。これは、マイナスに帯電した石英によって囲まれた狭隘経路内を同じくマイナスに帯電したラテックス粒子が拡散する場合の実効拡散係数である。表4-1に、昨年度測定した実効拡散係数の1例と、それぞれの粒径をStokes-Einstein式に代入して得られた理論的な拡散係数を表記する。

一般的に、Stokes-Einstein式より評価される自由水中の拡散係数に空隙率や屈曲率などの形状因子 (< 1) が掛け合わされて対象体系内の拡散係数が議論される。すなわち、自由水中の拡散係数が最も大きいことになり、それは粒径に反比例して粒径が大きいほど拡散係数は小さくなる。表4-1に示した実効拡散係数も定性的には粒径が大きいほど拡散係数も減少している。HTOなどによるトレーサの拡散挙動など重要かつ不可欠な実験項目がまだ実施されていないなど表4-1の結果は予備的なものではあるが、粒径依存性が小さく、特に粒径が大きい場合にその影響が重大であることが示されている。

本研究で明かにした帯電の影響は流れ場中での現象であって直接的に比較はできないが、同符号に帯電することによって理論的に予測される移行距離よりも大きな移行距離を示すことが予測され、また特に κa の影響を強く受ける可能性が示されており、定性的には本研究の延長線上にその現象解明の糸口があると思われる。

本研究の解析体系は極めて単純であり、壁は片側だけでコロイド粒子は壁の方向には壁-粒子相互作用ポテンシャルからの力を受けるが、その反対方向には無限体系が控えているというものであった。本研究の最終目標の1つは、狭隘経路にみられるように、壁が互いに自らが有する電気2重層ポテンシャルが重なり合うほどに接近しており、その中を壁間の距離に近い大きさを持つ帯電粒子が拡散あるいは移行する場合の影響を定

量化することにある。今後は、本年度の成果にさらに電気2重層の重なりや帯電粒子が移動することによるその電気2重層の歪などを取り入れて、さらに詳細で実環境条件に近い条件での解析を可能とするとともに、トレーサ実験の追加など昨年度実施した拡散実験の充実と信頼性の高いデータの取得ならびにその中へ流れ場を導入したときのラテックス粒子の移行挙動を実験的に解明し、解析と実験結果との整合性を計る必要がある。

このため特に実験に関しては、昨年度取得した拡散係数を、ラテックス粒子による追加実験やトレーサ実験によって確証を行うため、現在ラテックス実験を継続しており、またトレーサ実験の準備を行っている。

また、昨年度実施し今後も展開する予定のThrough Diffusion法による石英粉末充填カラム内の拡散実験は、石英粉末を使用するためその狭隘経路は μm のオーダーであり、中を移行する粒子径はサブ μm オーダーである。確かにこのような径の関係は天然バリア中の狭隘経路としては重要であるが、人工バリアを構成するベントナイトの場合、その水路としてはオングストロームの幅の可能性がある。我々は、コロイドはベントナイト粒間の $0.1\ \mu\text{m}$ 程度の狭隘経路内を拡散移行するのか、あるいは5～6オングストロームのベントナイト層間を拡散移行経路とするために移行できないのかという問題を解明したいと希望する。すでに nm オーダーのラテックス粒子は分光分析により濃度測定が可能であることは昨年度の研究で明かにしている。そこで、動力炉・核燃料開発事業団殿より頂いたベントナイトを用いたThrough Diffusion実験用セルを用い、ラテックス粒子の移行の有無を確認する。数 $10\ \text{nm}$ のラテックス粒子が拡散することが確認されると、コロイドはベントナイト粒間の経路を通り拡散移行できることが示されることとなり、一方、拡散が確認されない場合には層間が水路となっていることでコロイドはベントナイト中を拡散できないことが確認されることとなる。かかる観点から、現在動力炉・核燃料開発事業団殿より頂いたセルを用いて、Through Diffusion法による拡散実験実施のための準備を行っている。

表 4-1 石英充填カラム中の拡散係数 (D_{mea}) と Stokes-Einstein 方程式からの拡散係数 (D_{SE})

ラテックス粒子の直径 (nm)	40	170	820	1100
実測拡散係数 ($D_{\text{mea}} \text{ cm}^2/\text{s}$)	2.57×10^{-7}	2.86×10^{-7}	1.91×10^{-7}	0.948×10^{-7}
理論的拡散係数 ($D_{\text{SE}} \text{ cm}^2/\text{s}$)	1.25×10^{-7}	2.88×10^{-8}	6.00×10^{-9}	4.45×10^{-9}