研究論文

1162. 核種-コロイド-岩盤間の分配収着平衡に基づく 核種移行モデルの適用性

黒澤 進^{1,*}, 上田 真三², 油井 三和¹, 加藤 博康²,
林 賢一², 久野 義夫², 吉川 英樹¹

Practical Availability of Radionuclide Transport Model based on the Interaction among Radionuclide, Colloid and Rock

Susumu KUROSAWA, Shinzo UETA, Mikazu YUI, Hiroyasu KATO, Kenichi HAYASHI,
Yoshio KUNO and Hideki YOSHIKAWA

It is necessary to evaluate the influence of the colloid on radionuclide migration under geological disposal environment for safety assessment of radioactive waste disposal. In this study, batch sorption experiments and column transport experiments were carried out to evaluate the availability of analytical model of radionuclide migration based on assumption of equilibrated sorption among radionuclide, colloid and rock. Granodiorite was used in the experiments. Bentonite colloid sorbed by strontium was injected into the parallel plate made by the granodiorite.

The comparison between the experimental and the calculated results of the column experiments showed the good agreements by using constant sorption ratio of tracer among the colloid, rock, and aqueous phase. This result indicates the availability of the model for the safety assessment. The flow rate of the column experiments was rather high compared with the natural groundwater flow rate, therefore the kinetic approach is still important to assess the colloidal transport and its effect on the radionuclide migration in the natural groundwater flow.

KEYWORDS: radioactive wastes, geological disposal, radionuclide, colloids, rock, strontium, bentonite, granodiorite, transport experiments, model, distribution coefficient

I. 緒 言

天然の地下水中にはコロイドが存在する。一般にコロイドは比表面積が大きく、その表面は活性であることから、表面錯体反応やイオン交換反応により、イオンを収着しやすいことが知られている。このため、放射性廃棄物の地層処分システムの安全性を検討する際、核種移行評価の観点からは地下水中に存在するコロイドの影響評価は重要な検討項目の一つである。実験室やフィールドにおける研究では、核種がコロイドに収着して擬似コロイドを形成した場合、核種の移行はイオンの場合の移行特性とは異なり、コロイドの移行特性に伴って促進されることが観測された例もある¹⁻⁴⁾。

したがって、地層中における物質移行には、地下水中的コロイドの存在が大きく関与すると考えられ、近年、核種移行評価に関しては、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を設定した核種移行解析モデルが多く提案されている⁵⁻⁸⁾。

そこで、本研究では、核種-コロイド-岩盤間の分配収着平衡に基づく核種移行モデルの実用利用について検討するため、移行過程における核種のコロイドからの脱離性、脱離した核種の岩盤への再収着性、すなわち可逆的な分配収着に着目し、コロイドが共存する場合の核種の移行特性について評価を行ったので報告する。

II. 実験方法

バッチ式収着試験法により、核種のコロイドへの収着および脱離性、脱離した核種の岩盤への再収着性を評価した。また、平行平板状の単一亀裂を加工した岩石をカラムに充填して核種とコロイドの移行試験を実施し、コロイド共存系での核種の移行特性について評価を行った。

1. 供試材

(1) 核 種

本研究では、比較的可逆的な収着性を示す核種であることを理由に、 Sr^{2+} を供することとした。 Sr^{2+} は市販の試薬 SrI_2 を用いて、濃度を $1.1 \times 10^{-3} \text{ Sr-mol/l}$ (約 100 Sr-ppm) に調整したものを後述の各試験のためのストック溶液として準備した。ただし、 Sr^{2+} は本研究の中で併せて用いるコロイド試料や岩盤試料中にもバックグラウンド成分として含まれる。このため、各試験では Sr^{2+} を識別して評価できるよう、トレーサとして ^{90}Sr を 2.1×10^{-9}

¹ 核燃料サイクル開発機構東海事業所環境保全・研究開発センター (Waste Manage. and Fuel Cycle Res. Center, Tokai Works, Japan Nucl. Cycle Develop. Inst.)

² 三菱マテリアル㈱総合研究所那珂研究センター (Naka Res. Center, Central Res. Inst., Mitsubishi Materials Corp.)
(2003年 5月 1日 受理; 2003年 8月 4日 査読通過)

* 著者連絡先: Tel. 029-287-3695, Fax. 029-287-3258,
E-mail: kurosawa.susumu@jnc.go.jp

mol/l (1 MBq/l) の濃度になるように添加して試験溶液を調整した。

(2) コロイド

地下水中に存在するコロイド種として、シリカ、水酸化鉄、水酸化アルミニウム、粘土系のコロイド、このほか有機系のコロイドが考えられる。また、放射性廃棄物の地層処分環境下では、人工バリア材として用いられるベントナイト系緩衝材が地下水により浸食されて、粘土系コロイドが生成する可能性がある。本研究では、それらを勘案し、粘土系コロイドとしてベントナイトコロイドを供することとした。ベントナイトとしては、モンモリロナイト ($\text{Na,Ca}_{1/2})_{0.33}(\text{Al}_{1.67}\text{Mg}_{0.33})\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ を高純度 (>99%) で含有するクニミネ工業製クニピア F を用い、蒸留水に 0.01 g/l の割合で分散させたのち、孔径 0.8 μm のメンブランフィルタによりろ過したものを供試料とした。

(3) 岩石

岩石試料としては花崗閃緑岩を用いた。花崗閃緑岩は、後述の岩石充填カラムを用いた核種およびコロイドの移行試験では、亀裂を単純化して扱うためにその表面を平滑処理して用いた。したがって、亀裂表面への収着性を評価する試験でも、表面を同様に平滑処理した 2 cm 角のブロック状の花崗閃緑岩を用いた。平滑処理については、#200 の研磨紙を用いて行った。

2. バッチ式収着試験

上述の方法で調整したベントナイトコロイド分散溶液 500 ml に、 Sr^{2+} のストック溶液を 0.5 ml 添加して試験溶液 (1×10^{-6} Sr-mol/l) とした。この際、 ^{90}Sr も所定の濃度 2.1×10^{-9} mol/l (1 MBq/l) になるよう添加した。

Fig. 1 には、本バッチ式収着試験の概略図を示す。試験溶液は、振とうは行わずに静置して 1, 3, 5 および 7 日

後に採取し、 ^{90}Sr の放射能濃度を限外ろ過 (分画分子量 10,000, 孔径約 1.5 nm) の有無に分けて測定を行うことにより、 Sr^{2+} のコロイドへの収着量を評価した。放射能濃度の測定は、液体シンチレーションカウンタ PACKARD 社製 TRI-CARB2750TR/LL (シンチレータ: PACKARD 社製 PICO-FLOUR40) を用いた。また、本試験では、コロイドに収着した Sr^{2+} の脱離性および脱離後の岩石試料への再収着性をみるため、7 日を経過した試験試料には表面を平滑処理した 2 cm 角のブロック状の花崗閃緑岩を浸漬させた。浸漬後は、1, 3, 5 および 7 日後に試料溶液を採取して、上記同様に限外ろ過の有無に分けて ^{90}Sr の放射能濃度を測定し、 Sr^{2+} のコロイドおよび岩石試料に対する再分配収着について評価した。この際、放射能濃度の測定にはおのおの 1 ml を供した。また、測定は、 ^{90}Y (半減期 64 h) との放射平衡を考慮して、採取後 14 日以上を経過させたのち行った。

なお、本試験は、試験容器としてポリエチレン製容器を用いて実施した。 Sr^{2+} およびベントナイトコロイドの容器壁への収着量についてはブランク試験を実施し、除算して評価した。

3. 核種およびコロイド移行試験

Fig. 2 に、本試験の概略図を示す。本試験では、直径 3 cm × 長さ 4 cm の花崗閃緑岩のコア試料を半円柱状になるよう切断し、切断面の両端に幅 0.5 cm × 厚さ 0.05 cm のアクリル製スペーサを介し合わせることで単一亀裂 (長さ 4 cm × 幅 2 cm × 隙間 0.05 cm) を模擬して、核種およびコロイドの移行試験を実施した。本試験では、上記バッチ式収着試験と同様に、核種のトレーサとしては Sr^{2+} 、コロイドとしてはベントナイトコロイドを用い、それらは個別にまたは混合して試験に供した。

Fig. 1 Schematic view of strontium-bentonite colloids-granodiorite rock sorption test

Fig. 2 Schematic view of radionuclide and colloids transport test equipment

なお、岩石試料の切断面とスペーサはアクリル接着剤を塗布して接合し、カラム内に充填して固定した。また、切断面については、核種-岩石、コロイド-岩石間の収着性に及ぼす岩石表面の形状(粗さ)による影響を避けるため、#200の研磨紙を用いて平滑処理を施した。

(1) Sr^{2+} 単体の移行試験

試験に供する Sr^{2+} 溶液は、後述するベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の移行試験の結果と比較するため、同じ液性であることが必要である。このため、本試験では、II-1(2)項で既述のように、調整したベントナイトコロイドの分散溶液を限外濾過(分画分子量10,000)してコロイド粒子を除去した溶液を用意し、バッチ式収着試験と同様に、500 ml あたり Sr^{2+} のストック溶液を 0.5 ml および ^{90}Sr を所定の濃度になるよう添加して試験溶液 ($1 \times 10^{-6} \text{ Sr-mol/l}$) とした。この際、コロイド粒子を除去した溶液中の Sr^{2+} 濃度は $2.3 \times 10^{-9} \text{ mol/l}$ (約 0.2 ppb) であった。

試験溶液は、亀裂中を 0.6 cm/min の流速で流し、カラムを透過した溶液中の ^{90}Sr の放射能濃度を液体シンチレーションカウンタにより測定することにより、Sr の移行特性を評価した。

(2) ベントナイトコロイド単体の移行試験

II-1(2)項のように調整したベントナイトコロイドの分散溶液を試験溶液とした。試験溶液は、 Sr^{2+} のみの移行試験と同様に、亀裂中を 0.6 cm/min の流速で流した。この際のベントナイトコロイドの移行特性については、ベントナイトの成分である Al に着目して、カラムを透過した溶液中の Al 濃度を ICP 質量分析(横河アナリティカルシステムズ製 HP4500)により測定することにより評価した。

なお、測定では、ベントナイトの Al 成分と花崗岩閃緑岩から溶出する Al 成分を合わせて定量することになるため、測定に際しては、あらかじめ花崗閃緑岩から溶出する Al 成分濃度を測定し、バックグラウンド成分濃度として除算することとした。また、カラム透過液は限外濾過(分画分子量10,000)の有無に分けて Al の濃度測定を行い、ベントナイトコロイド成分としての Al 濃度を評価した。

(3) ベントナイトコロイド共存での Sr の移行試験

バッチ式収着試験と同様に、II-1(2)項のように調整したベントナイトコロイドの分散溶液 500 ml に、 Sr^{2+} のストック溶液を 0.5 ml および ^{90}Sr を所定の濃度になるよう添加して試験溶液 ($1 \times 10^{-6} \text{ Sr-mol/l}$) とした。

試験溶液は、上記(1)および(2)項の移行試験と同様に、亀裂中を 0.6 cm/min の流速で流し、カラムを透過した溶液中の ^{90}Sr の放射能濃度を液体シンチレーションカウンタにより測定することにより、Sr の移行特性を評価した。

なお、本試験では、核種-コロイド-岩盤間の分配収着平衡に基づく核種移行モデルによる解析時の初期条件を明確に設定するため、ベントナイトコロイドが共存する Sr^{2+} の試験溶液の通液に先立ち、まず上記(2)項のように、ベントナイトコロイドのみが分散する試験溶液をカラムに対して十分に通液させた。

III. 実験結果および考察

1. バッチ式収着試験

バッチ式収着試験でベントナイトコロイド分散液に Sr^{2+} を添加した試験溶液を採取し、限外濾過を行い、ろ液中の ^{90}Sr 濃度を分析した。その結果を限外濾過前の溶液中の ^{90}Sr 濃度と比較することにより、ベントナイトコロイドへ収着した ^{90}Sr の放射能比を求めて Fig. 3 に示す。それからわかるように、ベントナイトコロイドへの ^{90}Sr の収着は 7 日経過時点ではほぼ平衡に達している。

このときの試験溶液をさらに利用して、ここに花崗閃緑岩試料を浸漬させることにより、核種-コロイド-岩盤間の 3 元系の収着試験を実施した。岩石試料浸漬後の溶液は、上記同様に、限外濾過の有無に分けて ^{90}Sr の放射能濃度を測定し、両者の濃度を比較するとともに岩石試料浸漬前の濃度と比較して、ベントナイトコロイドおよび花崗閃緑岩へ収着する ^{90}Sr の放射能比を求めた。Fig. 4 にその結果を示す。

それらの結果から、ベントナイトコロイドに収着した Sr^{2+} は、花崗閃緑岩を浸漬させたことによりコロイドか

Fig. 3 Results of strontium-bentonite colloids sorption test

Fig. 4 Results of strontium-bentonite colloids-granodiorite rock sorption test

ら脱離して、岩石表面および液相中に再分配したことがわかる。ここで、ベントナイトコロイドへの Sr^{2+} の収着は主に Na^+ とのイオン交換であり、花崗閃緑岩への Sr^{2+} の収着は主に Ca^{2+} とのイオン交換であると考えられる。ただし、ベントナイトに関しては Ca^{2+} に対するイオン交換の選択性が高いことから、ベントナイトコロイドに収着した Sr^{2+} は上記 Ca^{2+} との交換反応により脱離して再分配したと考察される。

2. 核種およびコロイド移行試験

(1) Sr^{2+} 単体およびベントナイトコロイド単体の移行試験

平行平板状の単一亀裂を有する花崗閃緑岩を充填したコラムに対して、 Sr^{2+} 単体を通液した際の破過曲線を Fig. 5 に示す。また、ベントナイトコロイド単体を通液した際の破過曲線を Fig. 6 に示す。図中の C/C_0 において、 C_0 は亀裂入口濃度、 C は亀裂出口濃度であり、 Sr^{2+} 単体の移行試験では ^{90}Sr の放射能濃度、ベントナイトコロイド単体の移行試験ではベントナイトコロイド相としての Al 濃度を表している。

それらの結果を比較すると、亀裂中を Sr^{2+} は遅延されて、またベントナイトコロイドはほとんど遅延されことなく破過 ($C/C_0=1$) していることが認められる。両者の破過挙動の相違は、上述のバッチ式収着試験では Sr^{2+} は花崗閃緑岩へ収着し、またベントナイトコロイドはほとんど収着性を示さないことが確認されており、その収着性の相違によるものとして解釈される。

(2) ベントナイトコロイド共存下での Sr の移行試験

Fig. 7 には、ベントナイトコロイドを共存する Sr^{2+} の試験溶液を通液した際の破過曲線を示す。図中の C/C_0 は、 ^{90}Sr の放射能濃度について亀裂入口濃度を C_0 、亀裂出口濃度を C とした濃度比を示す。

その結果、 Sr^{2+} はベントナイトコロイドに有意に収着するにも関わらず (Fig. 3)、ベントナイトコロイドの移行性 (Fig. 6) に伴うことなく遅れて破過しており、 Sr^{2+} 単体での破過性 (Fig. 5) と差異がないことがわかる。このことは、Fig. 4 に示した結果に基づけば、 Sr^{2+} -ベントナイトコロイド-花崗閃緑岩の 3 相の系においては、コロイドに収着した Sr^{2+} は脱離して岩石に再分配収着することにより、 Sr^{2+} は遅延されて破過したものと考えられる。

3. 分配係数を用いた核種移行モデル

(1) 評価モデル

コロイド共存系での Sr^{2+} の移行試験の上記結果を例に取り、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を用いた核種移行モデルの適用性について検討した。

本研究では、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を用いた既往の核種移行解析モデルのうち、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発の第 2 次取りまとめ⁹⁾ のなかで核種移行解析におけるコロイド影響評価に用いた Hwang ら⁵⁾ のモデルを取り上げた。

Fig. 8 に、Hwang らのモデルの概念を示す。モデルでは、コロイドが一定濃度で存在する地下水の流れの中に、核種が混入してコロイドに収着して移行するものと想定する。岩盤中には開口幅 $2b$ の平行平板状の単一亀裂を規定して、核種およびコロイドは、移流・分散現象および核種-コロイド-岩盤の 3 相間での瞬時収着平衡の支配を受けながら移行する。亀裂中を地下水が占める割合を体積分率 ε_1 で表し、 $1-\varepsilon_1$ を亀裂の両表面における収着の起こり得る固相域とする。核種の岩盤への収着 Ka_2 およびコロイドの岩盤への収着 Ka_3 は、この固相域で起こる。また、核種は岩盤マトリクス間隙中に拡散するとともに、その間隙中で収着 Ka_2 を伴う。なお、Hwang らのモデルでは、コロイドは岩盤マトリクス間隙への拡散および亀裂形

状に起因する物理的フィルトレーションは考慮されていない。

上述の系で、コロイドに収着されて移行する核種の移行方程式は、Hwang らの報告では(1)式としてまとめられる。

$$R \frac{\partial C_1(x, t)}{\partial t} + v \frac{\partial C_1(x, t)}{\partial x} - D \frac{\partial^2 C_1(x, t)}{\partial x^2} + R\lambda C_1(x, t) + \frac{q(x, t)}{\varepsilon_1 b} = 0 \quad (1)$$

ここで、
 $C_1(x, t)$: コロイドに収着した核種の濃度
 x : 移行距離
 t : 時間
 R : コロイドに収着した核種の遅延係数
 v : コロイドに収着した核種の流速
 D : コロイドに収着した核種の分散係数
 λ : 崩壊定数
 $q(x, t)$: 岩盤マトリクス間隙中への核種の拡散フラックス
 ε_1 : 亀裂中の地下水の体積分率
 b : 亀裂の1/2幅

ただし、

$$R = \xi_1 \left(1 + \frac{Ka_3}{b} \right) + \left(1 + \frac{Ka_2}{b} \right) \frac{1}{Ka_1} \quad (2)$$

$$v = v_1 \left(\xi_1 + \frac{v_2}{Ka_1 v_1} \right) \quad (3)$$

$$D = D_1 \left(\xi_1 + \frac{D_2}{Ka_1 D_1} \right) \quad (4)$$

ここで、
 Ka_1 : コロイドへの核種の収着
 Ka_2 : 岩盤への核種の収着
 Ka_3 : 岩盤へのコロイドの収着
 ξ_1 : 地下水中的コロイドの体積分率
 v_1 : コロイドの流速
 v_2 : 核種の流速
 D_1 : コロイドの分散係数
 D_2 : 核種の分散係数

本研究では、Tang ら¹⁰⁾が報告する核種のみ移行モデルの解析解の導出過程を参照して、(1)式より以下の解析解を得た。

$$C_1 = \frac{2Ka_1 C_0}{\sqrt{\pi}} \int_{x/2\sqrt{R/D}}^{\infty} \exp \left(-\frac{\sqrt{v^2 + 4R\lambda D} - v}{2D} x \right) \times \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x^2 \varepsilon_p \sqrt{D_p R_p}}{8D \varepsilon_1 \eta^2 b \sqrt{t - Rx^2/(4D\eta^2)} Ka_1} \right\} \times \exp \left\{ -\left(\eta - \frac{xv}{4D\eta} \right)^2 \right\} d\eta \quad (5)$$

ここで、
 C_0 : 亀裂入口における核種濃度
 ε_p : 岩盤の間隙率
 D_p : 間隙水中の核種の拡散係数
 R_p : 岩盤マトリクス間隙における核種の遅延係数

Fig. 5 Elution profile of strontium through granodiorite fracture

Fig. 6 Elution profile of bentonite colloids through granodiorite fracture

Fig. 7 Elution profile of strontium with bentonite colloids through granodiorite fracture

なお、計算結果に関しては、実験結果と比較のため $(C_1 + C_2)/C_0$ で表すこととする。ここで、 C_1/C_0 はコロイド

に収着して移行する核種の濃度比, $C_2/C_0 (= (C_1/C_0)/Ka_1)$ は溶質として移行する核種の濃度比である。ただし, C_1 はコロイド相基準の核種濃度であり, C_2 および C_0 は液相基準の核種濃度であるため, 本計算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, コロイド相における核種量: $C_1\xi_1$, 液相における核種量: $C_2(1-\xi_1)$ で分配される。一方, 核種が移行距離を破過した際の両相への分配は, コロイド相における核種量: $C_0Ka_1\xi_1$, 液相における核種量: $C_0(1-\xi_1)$ となる。よって, 破過した際の核種総量: $C_0Ka_1\xi_1 + C_0(1-\xi_1)$ であり, C_0 を用いて液相濃度に換算することができることから, 本計算ではコロイドに収着して移行する核種の濃度比 (C_1/C_0) および溶質として移行する核種の濃度比 (C_2/C_0) は, 以下の換算計算で算出して濃度比として規定することとした。

コロイドに収着して移行する核種の濃度比:

$$\frac{C_1\xi_1}{C_0Ka_1\xi_1 + C_0(1-\xi_1)} = \frac{C_1}{C_0} \cdot \frac{\xi_1}{Ka_1\xi_1 + (1-\xi_1)} \quad (6)$$

溶質として移行する核種の濃度比:

$$\frac{C_2\xi_1}{C_0Ka_1\xi_1 + C_0(1-\xi_1)} = \frac{C_2}{C_0} \cdot \frac{\xi_1}{Ka_1\xi_1 + (1-\xi_1)} \quad (7)$$

したがって, (6) および (7) 式の換算計算を行うことにより, 核種が移行距離を破過した際は, $(C_1 + C_2)/C_0 = 1$ となる。

(2) 分配係数の設定

本研究では, (5) 式に基づき, 既述のベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の移行性を計算した。計算に際しては, バッチ式収着試験の結果に基づき, Sr^{2+} -ベントナイトコロイド-花崗閃緑岩の3相が相互に影響し合う系での Sr^{2+} -ベントナイトコロイドおよび Sr^{2+} -花崗閃緑岩の各2相間の分配係数 Ka を以下の関係より求めた。

まず, Sr^{2+} -ベントナイトコロイドおよび Sr^{2+} -花崗閃緑岩の分配係数 Ka_1 および Ka_2 は, (8) 式の関係が成り立つ。

$$Ka_1 = C_C/C_L, \quad Ka_2 = C_R/C_L \quad (8)$$

ここで, C_C : コロイド表面に収着した溶質濃度

C_R : 岩盤表面に収着した溶質濃度

C_L : 液相中の溶質濃度

次に, Fig. 4 に示した結果に基づけば, 試験系において Sr^{2+} の収脱着性が定常(平衡)状態にあると考えられる試験時間7日目の ^{90}Sr の分配比は, ベントナイトコロイド表面: 花崗閃緑岩表面: 液相中 = 0.054 : 0.481 : 0.465 である。したがって, C_C , C_R および C_L については (9) 式で表される。

$$C_C = \frac{C_0 \times 0.054}{S_C}, \quad C_R = \frac{C_0 \times 0.481}{S_R}, \quad C_L = \frac{C_0 \times 0.465}{V} \quad (9)$$

ここで, C_0 : 試験試料中 (Fig. 1 中の 2nd step) の ^{90}Sr の初期放射能濃度 (= 0.95 kBq/ml),

S_C : ベントナイトコロイド相の表面積 (= $2.17 \times 10^4 \text{ cm}^2$)

S_R : 花崗閃緑岩の表面積 (= 24 cm^2)

V : 液相の体積 (= 500 cm^3)

したがって, Sr^{2+} -ベントナイトコロイドおよび Sr^{2+} -花崗閃緑岩の分配係数 Ka_1 および Ka_2 については, $Ka_1 = 2.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ および $Ka_2 = 2.1 \times 10^1 \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ の値を得た。

なお, 上記分配係数を算出するにあたって, ベントナイトコロイドの表面積の値は, 本試験ではベントナイトコロイド相 ($\text{Na}, \text{Ca}_{1/2})_{0.33}(\text{Al}_{1.67}\text{Mg}_{0.33})\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ としての Al の成分濃度が $2.74 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ と測定されたことから, 次の (10) 式によりコロイド相の質量 M を $3.1 \times 10^{-3} \text{ g}$ と推算し, また EGME (ethyleneglycolmonoethylether) 法により測定されたベントナイト粒子の比表面積 $7 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{g}$ の値¹¹⁾ を乗じて求めた。

$$M = C_{Al}/1.67 \times V \times MW_B \quad (10)$$

ここで, C_{Al} : ベントナイトコロイド相としての Al の成分濃度

Fig. 8 Radionuclide ion and colloids transport processes through fractured media

MW_B : ベントナイト組成に基づく見かけ上の
分子量

また、花崗閃緑岩の表面積については、バッチ式収着試験では表面を平滑処理した 2 cm 角のブロック状試料を用いたことから、ここでは試料の幾何学的表面積の値を設定した。

(3) モデル計算結果と実験結果の比較

Table 1 には、上記分配係数の値と併せてモデル計算に必要な各パラメータの設定値を示す。ここで、ベントナイトコロイドは花崗閃緑岩にほとんど収着性を示さないこと確認していることから、 $Ka_3=0 \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ とした。コロイドの拡散係数 D_c は、ベントナイトコロイドの粒径分布をレーザー回折散乱法により測定し平均径が 680 nm であったことから、ここではベントナイトコロイドはその径を有する球状粒子と仮定して Stokes-Einstein 式から推算した。亀裂中を地下水が占める体積分率 ε_1 については 0.9 と仮定し、亀裂の両表面で収着の起こり得る固相域 $(1-\varepsilon_1)$ を 0.1 とした。また、本計算では、実施したベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の移行試験の試験時間内では、モデルで想定するような岩石マトリクス間隙への核種の拡散は顕著には起こり難いと判断し、マトリクス中での核種

の遅延係数を $R_p=1$ としてその影響を無視した。なお、核種の崩壊については ^{90}Sr の半減期(約 29 yr)が試験期間と比較してきわめて長いことから考慮しなかった。

Fig. 9 には、ベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の破過性について計算した結果を点線で示す。図中には、実験結果も併せて示した。この際、Fig. 9 は、 ^{90}Sr の移行性について C/C_0 が低い場合でも実験結果に対する計算結果の適合性を評価し得るように、 C/C_0 を対数表示とした。

その結果から、 Sr^{2+} が破過($C/C_0=1$)するに至るのに、実験とモデル計算の結果では、試験溶液の通液において両者の結果に 2 桁ほどの違いがあることがわかる。その理由として、移行試験では試験溶液を 0.6 cm/min の流速で亀裂中通液させていることから約 7 分で透過するが、モデルによる計算では Sr^{2+} -ベントナイトコロイドおよび Sr^{2+} -花崗閃緑岩の分配係数 Ka_1 および Ka_2 を、既述したようにバッチ式収着試験における 7 日目(定常状態)の分配比(ベントナイトコロイド表面:花崗閃緑岩表面:液相中=0.054:0.481:0.465)に基づき計算した値を設定している。このため、 Sr^{2+} -花崗閃緑岩の分配係数 Ka_2 については、試験溶液が亀裂中を透過するまでの時間において起こり得る再分配収着よりも大きく見積もっている。

Table 1 Transport and sorption parameters for analysis

Parameter	Symbol	Value	Remarks
Distribution coefficient for radionuclide ion sorbed on colloid (cm^3/cm^2)	Ka_1	2.6×10^{-3}	
Distribution coefficient for radionuclide ion sorbed on rock (cm^3/cm^2)	Ka_2	2.1×10^1	
Distribution coefficient for colloid sorbed on rock (cm^3/cm^2)	Ka_3	0	
Longitudinal dispersion coefficient for colloid (cm^2/min)	D_1	2.4×10^{-1}	$D_1 = D_c + \alpha_{L1} \times v_1$ D_c : Diffusion coefficient of colloid ($= 3.9 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{min}$) $\alpha_{L1} = \alpha_{L2}$
Longitudinal dispersion coefficient for radionuclide (cm^2/min)	D_2	2.4×10^{-1}	$D_2 = D_s + \alpha_{L2} \times v_2$ D_s : Diffusion coefficient of radionuclide ($= 7.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{min}$) ¹²⁾ α_{L2} : Longitudinal dispersivity for radionuclide in fracture ($= 0.1 \times L^9$), L : Distance (m)
Colloid velocity (cm/min)	v_1	0.6	$v = v_2$
Radionuclide velocity (cm/min)	v_2	0.6	
Proportion of groundwater volume to total volume in the fracture	ε_1	0.9	
Fracture half-aperture (cm)	b	0.025	
Rock porosity	ε_p	0.02 ⁹⁾	
Radionuclide diffusion coefficient in the porewater in the rock matrix (cm^2/min)	D_p	1.8×10^{-6} ⁹⁾	
Radionuclide retardation factor in the rock matrix	R_p	1	
Constant volume fraction of colloid in the fracture liquid	ζ_1	2.2×10^{-6}	$\zeta_1 = C_{t-col}/\rho$ C_{t-col} : Conc. of bentonite colloids ($= 6.2 \times 10^{-3} \text{ g/l}$) ρ : True specific gravity of bentonite ($= 2.7 \text{ g/cm}^3$) ¹³⁾
Decay constant	λ	—	

Fig. 9 Comparison of experiment and theoretical model for elution profile of strontium

る可能性があり、モデル計算の結果は実験結果と比較して Sr^{2+} の移行が遅延されていると考えられる。

そこで、移行試験における試験溶液の透過時間を考慮した ^{90}Sr のベントナイトコロイド表面、花崗閃緑岩表面、液相への分配比を設定するため、既述のバッチ式収着試験を再度実施することにより分配比を再設定し、分配係数 Ka_1 および Ka_2 を算出してモデル計算を再度行った。収着試験の結果、 ^{90}Sr のベントナイトコロイドへの収着が平衡に達したのち、花崗閃緑岩試料を浸漬させて7分後の分配比は、ベントナイトコロイド表面：花崗閃緑岩表面：液相中=0.855：0.001：0.144であった。その分配比から、 Sr^{2+} -ベントナイトコロイドおよび Sr^{2+} -花崗閃緑岩の分配係数 Ka_1 および Ka_2 について、 $Ka_1=1.3 \times 10^{-1} \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ および $Ka_2=1.4 \times 10^{-1} \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ の値を得た。

Fig. 9 中に、上記分配係数を設定して、ベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の移行性についてモデル計算した結果を実線で示す。その結果から、計算結果と実験結果は比較的一致し得ることが認められた。

したがって、Fig. 9 に示した結果に基づけば、比較的速やかに試験溶液が透過する試験系、すなわち核種-コロイド-岩盤間の収着反応が平衡に達するよりも速く核種およびコロイドが評価距離を破過するような系を評価する場合には、分配収着平衡に基づく核種移行解析モデルの利用は、核種移行が有意に遅延されることを示す。このことは、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を設定した核種移行モデルの実用利用に関しては、核種の収着反応について平衡論的評価だけでなく、地下水流速とのバランスも考慮

して、収着速度、脱離速度を扱うことの重要性を示している。

IV. 結 言

本研究では、バッチ式収着試験による Sr^{2+} のベントナイトコロイドへの収着および脱離性、脱離した Sr^{2+} の花崗閃緑岩への再収着性の評価、および平行平板状の単一亀裂を有する花崗閃緑岩を充填するカラムを用いてベントナイトコロイド共存系での Sr^{2+} の移行特性に関する評価を通して、核種-コロイド-岩盤間の分配収着平衡に基づく核種移行モデルの適用性についての検討を行った。得られた結果を以下にまとめる。

- (1) 本試験では、ベントナイトコロイドへの Sr^{2+} の収着性は可逆的であり、一たんベントナイトコロイドに収着した Sr^{2+} が花崗閃緑岩および液相に再分配することを確認した。このような収着挙動を示す核種の移行評価については、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を設定した核種移行解析モデルの利用が可能と考えられる。
- (2) 比較的速やかに核種およびコロイドが移行する系、すなわち分配収着が平衡に達することよりも速く核種およびコロイドが評価距離を移行する場合には、分配収着平衡に基づく核種移行解析モデルの利用は、核種移行が有意に遅延されることを実験結果により示した。
- (3) このことは、核種-コロイド-岩盤間の分配係数を設定した核種移行モデルの実用利用に関して、核種の収着反応について平衡論的評価だけでなく、地下水流速とのバランスも考慮して、収着速度、脱離速度を扱うことの重要性を示している。

— 参考文献 —

- 1) W. R. Penrose, W. L. Polzer, E. H. Essington, *et al.*, "Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region," *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 228 (1990).
- 2) J. K. Bates, J. P. Bradley, A. Teetsov, *et al.*, "Colloid formation during waste form reaction: implications for nuclear waste disposal," *Science*, **256**, 649 (1992).
- 3) P. Vilks, D. B. Bachinski, "Colloid and suspended particle migration experiments in a granite fracture," *J. Contam. Hydrol.*, **26**, 203 (1996).
- 4) A. B. Kersting, D. W. Efurud, D. L. Finnegan, *et al.*, "Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site," *Nature*, **397**, 56 (1999).
- 5) Y. Hwang, P. L. Chambre, W. W.-L. Lee, *et al.*, "Analytical studies of colloid transport in fractured porous media," *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **176**, 599 (1990).
- 6) P. A. Smith, C. Degueudre, "Colloid-facilitated transport of radionuclides through fractured media," *J. Contam. Hydrol.*, **13**, 143 (1993).
- 7) I. Baek, W. W. Pitt, Jr., "Colloid-facilitated radionuclide transport in fractured porous rock," *Waste Manage.*, **16**, 313 (1996).

- 8) M. H. Baik, P. S. Hahn, "Radionuclide transport facilitated by polydispersed pseudo-colloid in the fractured rock media," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **34**, 41 (1997).
  - 9) 核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—分冊3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, (1999).
  - 10) D. H. Tang, E. O. Frind, E. A. Sudicky, "Contaminant transport in fractured porous media—Analytical solution for a single fracture," *Water Resour. Res.*, **17**, 555 (1981).
  - 11) T. Kozaki, Y. Sato, M. Nakajima, *et al.*, "Effect of particle size on the diffusion behavior of some radionuclides in compacted bentonite," *J. Nucl. Mater.*, **270**, 265 (1999).
  - 12) 日本化学会編, 化学便覧基礎編II改訂4版, 丸善, 62 (1993).
  - 13) 鈴木英明, 柴田雅博, 山形順二, 他, 緩衝材の特性試験(I), PNC TN8410 92-057, (1992).
-