

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 鎮守浩史

放射性廃棄物地層処分システムにおいて、放射性核種の地層中での移行挙動は、地下水中に存在するコロイドの影響を受けることが指摘されている。核種はコロイドに吸着することで、熱力学的平衡から予測される以上の濃度で液相中に存在し、その移行が促進される可能性がある一方、コロイドが固相媒体に捕捉されるフィルトレーション効果により、その移行は遅延することも考えられている。一般にコロイドのフィルトレーション現象は、コロイドの固相表面での付着現象として捉えることができ、流れ場中のコロイドが固相表面近傍まで輸送される過程と、DLVO 相互作用（ファンデルワールス相互作用と電気二重層相互作用）を受けて付着に至る過程の二つの過程に分けて考えられてきているが、定量的な現象の解明には至っていない。本論文は、付着現象におよぼす固相表面の不均質性に着目し、カラム実験や電子顕微鏡観察、DLVO 理論などを通して、付着効率の流速依存性という観点から付着現象を明らかにしようとしたものであり、全体で5章から構成されている。

第1章は緒言であり、地下水中におけるコロイド粒子の移行現象に関する既往の研究がまとめられるとともに、とくにフィルトレーション現象に関しての知見が整理されている。

第2章では、多孔質媒体カラムを用いたカラム実験について述べられている。カラム実験としては、固相としてガラスビーズ（粒径 0.35-0.40mm）ならびに単一亀裂を有する花崗岩が用いられ、コロイドにはポリスチレンラテックス（粒径 102nm、表面基-SO<sub>4</sub><sup>-</sup>）が使用されている。カラム実験によって得られた破過曲線の特徴として、破過濃度比の増加率によって、流出液のコロイド濃度がある値まで上昇する流出初期の第一段階、続いて濃度比が徐々に増加する第二段階、その後の濃度比の増加率が第一、二段階に比べずっと小さくなる第三段階に分けて考えることができることを見出している。本論文では、このコロイドの付着挙動を、固相表面が付着性の強いサイトと弱いサイトから構成されていると考えることで説明できるとしている。つまり、第一段階において、コロイドの破過曲線はトレーサの破過曲線と同様の挙動を示したことから、固相表面に付着しなかったコロイドはバルクの流れと同様に流出したと考えている。しかしある割合のコロイドは、主に付着性の強いサイトへ付着することによってカラム内に保持されるため、それぞれのコロイドの破過曲線はトレーサの破過曲線から離れる「屈曲点」を持つ。第二段階では、付着性の強いサイトがコロイドに占有されていく過程、第三段階は、固相表面上の大部分を占める付着性の弱いサイトがコロイドに占有されていく過程としている。さらに本論文では、付着現象を定量的に取り扱うために、単一固相粒子の付着効率  $\eta$  を導入し、 $\eta$  の流速依存性を評価している。既往の理論的研究に比較して、 $\eta$  の流速依存性が弱いことを指摘するとともに、その理由を表面の不均質性に求めている。

第3章では、表面の不均質性により付着性の強いサイトと弱いサイトが存在することを、

バッチ式およびフローティング式コロイド付着実験後の固相表面の SEM 観察を行うことで示している。バッチ式では、表面の一部に微小な凹凸を設けたガラスプレパラートをコロイド溶液に浸漬することで、またフローティング式では、ガラスビーズをコロイド溶液の上昇流中に浮遊させることでコロイドを付着させている。この結果、付着コロイドが表面形状の凹凸のある部分に比較的偏在していることを明らかにしている。

第 4 章では、不均質な固相表面へのコロイドの付着を記述するために、コロイド-固相間の DLVO 相互作用ポテンシャルを考慮した移流拡散方程式の近似的解析解から、 $\eta$  の流速依存性の評価が行われている。とくに本論文では、コロイド粒子のブラウン運動に与える流速の勾配の影響を近似的に評価することで、 $\eta$  の流速依存性が定性的に実験結果と整合することを示している。さらに、固相表面の形状に凹凸のある場合や電位に不均質性がある場合についての DLVO 相互作用ポテンシャルが、均質な場合に比べてポテンシャル障壁が小さくなることを見出し、この効果を考慮して  $\eta$  を評価したところ、 $\eta$  の絶対値も実験結果に近くなる可能性があることを示している。

第 5 章は、結論であり、本論文をまとめている。

以上要約すれば、本論文は、表面が不均質な固相中を微粒子が移動する場合の微粒子の付着機構を、実験と理論から明らかにしたものであり、システム量子工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。