

豊浦砂中のコロイド輸送：不飽和条件下での初期沈着挙動
Colloid transport in Toyoura sand: deposition behavior in water unsaturated
condition at initial stage

○藤田洋輔、小林幹佳

Yosuke Fujita, Motoyoshi Kobayashi

1. 背景

土壌汚染の原因物質が土壌中に存在するコロイド粒子（粘土鉱物、金属酸化物、微生物等）に付着し、移動する可能性が指摘されている。このため汚染物質の拡散の予測や制御を行う際には、土壌中のコロイド粒子の移動現象に対して注意を払うことが求められる。

土壌中のコロイド粒子の挙動は、移流・分散によるコロイド粒子の移動と粒子の土壌マトリックスへの沈着の2つの過程に分けることができる。このうち、沈着過程はコロイド粒子と土壌マトリックス間及びコロイド粒子同士の相互作用力の影響を受ける。代表的な相互作用力として、van der Waals 相互作用と静電的相互作用が挙げられる。コロイド粒子の沈着挙動はこれらの相互作用力の大小関係によって変化する。

沈着の初期過程では、土壌マトリックスへのコロイド粒子の被覆率が低く、コロイド粒子間の相互作用を無視できる。このため、沈着の初期過程には粒子と土壌マトリックス間の相互作用力の影響が端的に反映される。また、初期過程に着目したカラム実験を実施することで、沈着挙動に対する粒子と土壌マトリックス間の静電的相互作用力の影響を定量的に評価することができる。静電的相互作用は溶液の化学性（イオン強度や pH）によって容易に変化する。このため、飽和条件について静電的相互作用の沈着に対する影響を研究した例は多い。しかし、不飽和条件下においてそのような検討を実施した例は少ない。そこで本研究では沈着初期過程に着目し、不飽和条件下における静電的相互作用力の影響を実験的に検討した。

2. 実験試料及び方法

カラム充填材（コレクター粒子）として豊浦砂（平均直径 $274 \pm 49.8 \mu\text{m}$ ）を、コロイド粒子として日本触媒製のシリカ粒子（KEP-50）（平均直径 $490 \pm 23 \text{ nm}$ ）を用いた。両者とも主成分は二酸化ケイ素であり、シラノール基の解離反応による負電荷を持つ。実験に用いたシリカ懸濁液の初期濃度 C_0 を 30 mg/L とし、NaCl 及び NaHCO_3 を用いて、イオン強度を 1 mM から 500 mM に調整した。また、このときの懸濁液の pH は 6.8 ± 0.3 であった。高さ 3 cm 、内径 3.2 cm のカラムに、砂層の高さが 2 cm 、間隙率が 0.43 となるように水中落下で豊浦砂を充填した。間隙流速が $8.0 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ となるようにチューブポンプで流量を調整し、懸濁液をカラムに供給した。不飽和条件での実験は、カラム内の溶液条件を調整した後、供給フラックスとカラム下端に作用させるサクションを徐々に低下させ、カラム内の水分を目的とする値に調整した。このときカラム内の体積含水率 θ は 0.21 前後とした。カラム排出液は分光光度計（PD-303, APEL）内に取付けたフローセルに送液した。波長 340 nm で吸光度を測定し、検量線をもとに吸光度をカラム出口におけるシリカ粒子の濃度 C に換算した。各溶液条件について 2 回以上実験を行った。

3. 結果・考察

飽和条件の場合のシリカ懸濁液の破過曲線を図 1 に、不飽和条件の場合の破過曲線を図 2 に示す。縦軸はカラム出口でのシリカ懸濁液の濃度を流入口での初期濃度で除した相対濃度であり、横軸は時間である。

飽和条件の場合、イオン強度が高くなるにつれてブレイクスルーした際の相対濃度が低下した。イオン強度が増加すると、コロイド粒子及び土壌マトリックスが持つ電気二重層が圧縮され、静電斥力が減少する。このため、土壌マトリックスに対してシリカ粒子が沈着し、カラム出口における流出液の濃度が低下した。

不飽和条件の場合も飽和の場合と同様に、イオン強度が高くなるにつれて破過した際の相対濃度が減少した。不飽和条件下では、土壌マトリックスだけでなく、気液界面も沈着サイトとしてコロイドの捕捉に寄与することが知られている。本実験での溶液条件において、気液界面はシリカ粒子や豊浦砂と同等の負電荷を持っている。そのため、イオン強度が低い条件では気液界面とコロイド粒子の間に静電的反発力が作用するため、砂の場合と同様にコロイド粒子の沈着が妨げられる。イオン強度が高くなるにつれて、静電的反発力が減少し相対濃度の低下が観測された。

一方、同一のイオン強度について、飽和の場合と不飽和の場合を比較すると、不飽和条件において相対濃度が小さくなることが観察された。不飽和条件下では気液界面もコロイド粒子の捕捉に寄与するため、相対濃度が小さくなったと考えられる。また、不飽和条件の実験結果では低イオン強度(1 mM, 5 mM, 10 mM)において測定結果のばらつきが大きかった。不飽和条件において、各実験の飽和度を完全にそろえることはできなかった。飽和度のばらつきが、測定結果のばらつきに反映された可能性がある。しかし、イオン強度が高い条件では、飽和度のばらつきによらず、ほぼ同一の結果が得られた。イオン強度が低く静電的反発力が卓越している条件では、飽和度のわずかな違いや、それに伴う間隙流速の違いなどが、初期のコロイド輸送挙動に影響を与える可能性が示唆された。

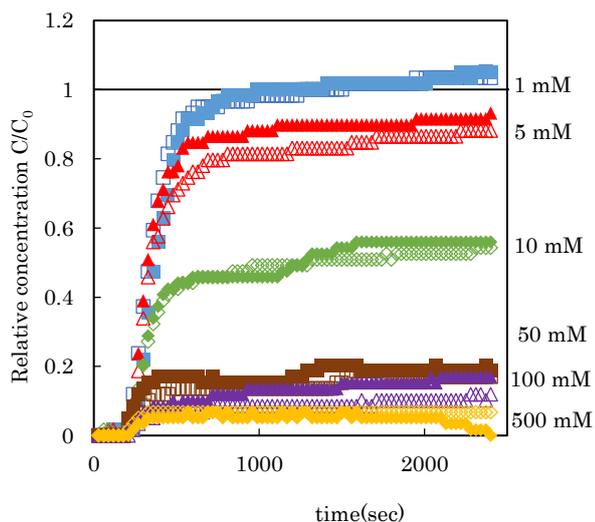


図 1 飽和条件下のシリカ懸濁液の破過曲線
Fig. 1 Breakthrough curves of colloidal silica suspension in water saturated condition

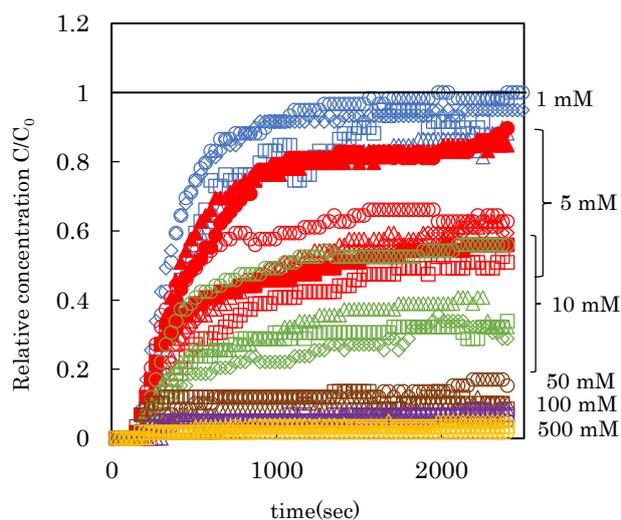


図 2 不飽和条件下のシリカ懸濁液の破過曲線
Fig. 2 Breakthrough curves of colloidal silica suspension in water unsaturated condition