

封入飽和状態の多孔質体中におけるコロイド移動に関する研究 Colloid transport in quasi-saturated porous media

○大古湧之 濱本昌一郎 杉本卓也 西村拓

○Yushi Ooko, Syoichiro Hamamoto, Takuya Sugimoto, Taku Nishimura

1. はじめに

土壌中には、無機物や有機物由来の nm~ μm スケールを有するコロイド粒子が存在する。コロイド粒子は土壌環境中において汚染物質の輸送担体となることが知られており、飽和帯(地下水面下)におけるコロイド粒子の移動特性は、コロイド担持汚染物質動態を考える上で重要である。実際の飽和帯は封入空気存在により、完全には水で満たされておらず、封入不飽和状態であることが予想される。しかしながら、封入不飽和状態の土壌におけるコロイド移動特性に関する研究例は少なく未解明な点が多い。そこで本研究では、封入空気存在下(封入不飽和状態)における多孔質体中におけるコロイド移動特性を明らかにすることを目的とした。封入不飽和条件における封入空気存在形態を定量的に把握するために、豊浦砂を充填した封入不飽和試料の X 線 CT 撮影およびその画像解析を行った。さらに、飽和状態と封入不飽和状態におけるコロイド移動特性の差異を調べるために、室内カラム通水実験を実施した。

2. 試料および試験方法

2. 1 封入不飽和試料の作成

X 線 CT 撮影用(A)とカラム通水実験用(B)に 2 種類の異なるアクリル製円筒カラム(A) 内径 0.9 cm 高さ 10 cm、(B)内径 5 cm 高さ 10 cm)を用いた。試料にはよく洗浄し不純物を除去した豊浦砂を用いた。各カラムに乾燥豊浦砂を所定の乾燥密度で充填し、真空状態で給水することで完全飽和試料を作成した。次に、カラムに 70 cm のサクシオンを与えて一日排水させた後、カラム下端から再飽和させることで封入不飽和試料を作成した。

2. 2 X 線 CT 撮影および画像解析

封入不飽和環境に調整した充填カラムの CT 画像を X 線 CT 撮影装置 (Metrotom 1500、Carl Zeiss) を用いて撮影した (空間解像度: 11.3 μm)。得られた CT 画像の輝度値から空気、水、砂粒子に三値化し、それぞれのボクセル数から飽和度を算出した。また、等価球を仮定し、封入空気を気泡径の大きさで分類し、全封入空気量に対する各気泡径クラスの割合を算出した。最後に三値化した三次元画像から、全間隙 (液相+気相) と間隙水 (液相のみ) のネットワーク経路 (中心軸) を抽出し、経路長を計算することで各経路ごとの屈曲度 (経路長 \div 高さ方向の直線距離) を算出した。これらの画像解析には ExFact VR および ExFact Analysis (日本ビジュアルサイエンス社) を用いた。

2. 3 カラム実験

コロイド粒子としてシリカ粒子 (粒径 100 nm) を用いた。コロイド濃度は 200 mg/L とし、NaBr を用いてイオン強度 1 mM に、HCl を用いて pH 5 に調製した。完全飽和または封入不飽和状態のカラムに対して次の通水手順で実験を実施した。カラム下端から上端へ pH 3 の NaCl 水溶液 (1 mM) を 15 PV (PV: 流出流量/液相体積) 通水した後、pH 5 の NaCl 水溶液 (1 mM) を 15 PV 通水した。その後、コロイド懸濁液を約 10 PV 通水した。通水フラックスは約 $1.3 \times 10^{-2} \text{ cm/s}$ とし、実験中一定のフラックスを維持した。コロイド懸濁液の通水開始後から約 0.3 PV 毎に流出液を採水し、pH、電気伝導度、Br イオン濃度、濁度を測定した。完全飽和試料については 2 反復、封入不飽和試料については 3 反復実験を行った。

東京大学大学院農学生命科学研究科 Graduated School of Agricultural and Life Science, The University of Tokyo

キーワード: コロイド粒子 封入不飽和 多孔質体

3. 結果と考察

X線 CT 画像解析から得た飽和度は、カラム下部ほど増加した。またカラム全体の平均飽和度は、カラム質量から算出した飽和度と一致した。さらに画像解析の結果、226 μm から 565 μm の径を有する封入空気がカラム内部の全封入空気の 50%以上を占めることがわかった。また、カラム下部ほど飽和度は増加し、気泡径の小さな封入空気の存在割合が増加した。また屈曲度の解析結果から、封入空気存在下では屈曲度の大きい（屈曲性に富んだ）間隙経路が増加することがわかった。一方で、屈曲度分布（縦軸－確率密度、横軸－各経路の屈曲度）の最頻値をとる屈曲度には封入空気の有無による違いは見られなかった。（データ非掲載）

飽和条件と封入不飽和条件で Br^- イオンの流出特性はほぼ変わらなかった。この結果から、封入空気存在下で屈曲性の高い間隙経路の増加は、 Br^- イオンの移動動態に影響しないと考えられる。

コロイド粒子の流出濁度曲線と飽和条件における Br^- イオンの流出濃度曲線を図 1 に示す。 Br^- の流出と比較して、コロイド粒子の流出は遅延し、また最大相対濁度は 1 を下回った。飽和条件と封入不飽和条件のコロイド流出濁度曲線を比較すると、封入不飽和条件でコロイド粒子の流出が促進された。pH 5 条件では、豊浦砂、シリカ粒子、気泡（気液界面）は正味負に帯電しているものの、豊浦砂には正の荷電を有する金属酸化物が存在し、これが

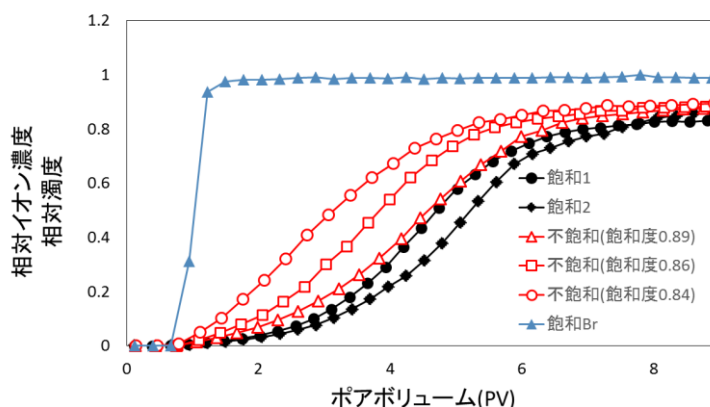


図1 Breakthrough curves for Br^- ions in saturated sand and colloids at various saturation conditions

シリカ粒子の豊浦砂表面の吸着サイ

トになると考えられる。CT 画像の解析結果から、封入空気はカラム内部で比較的均一に分布していたことから、封入空気によってシリカ粒子の吸着サイトへのアクセスが制限され、飽和条件よりもシリカ粒子の流出が早まったと考えられる。

4. まとめ

本研究は、封入空気の存在が飽和多孔質体中のコロイド移動特性に与える影響を調べた。X線 CT 画像解析から、封入空気はカラム内部に均一に存在し、排水時のサクションが小さいカラム下部ほど気泡径の小さい封入空気が増加することがわかった。また、封入空気が存在する場合、屈曲度の高い液相のネットワークが形成されたものの、屈曲度分布の最頻値をとる屈曲度は封入空気の有無に依らず変わらなかった。

カラム通水実験から、封入不飽和条件では飽和条件に比べコロイドの流出が促進されることがわかった。これは封入空気が豊浦砂表面の金属酸化物など、吸着サイトへのアクセスを制限したものと考えられる。

参考文献

- 1) Wan, J., and J. L. Wilson, Colloid transport in unsaturated porous media, Water Resources Research, 30, 4, 857-864, 1994
- 2) Fujita, Y., and M. Kobayashi, Transport of Colloidal silica in unsaturated sand: Effect of charging properties of sand and silica particles, Chemosphere, 154, 179-186, 2016

謝辞

本研究は文科省卓越研究員事業、JSPS 科学研究費助成（16H04411, 18H01530, 18J00823）の補助を受けた。ここに記してお礼申し上げます。