大気・土壌連成数学モデルにもとづく
土壌汚染物質の予測解析システムの研究

課題番号　14550539

平成１４年度～１５年度科学研究費補助金

［基盤研究(C)(1)］

平成１６年３月

埼玉大学図書館
204800429

研究代表者　佐 藤　邦 明
(埼玉大学地圏科学研究センター教授)

はしがき

近年、半導体をはじめとする各種の製造工程で広く利用されている、トリクロロエチレンなどの揮発性有機塩素系化合物（VOC : Volatile Organic Compound）の発ガン性が大きな社会的問題となっている。これらの物質の使用は、80年代以降規制が強化されてきたものの、これまでの使用過程でもたらされた大気、土壌や地下水への汚染が顕在化し、その影響評価技術や除去対策のための技術開発は緊急の課題となっている。

地下水中に漏洩した溶質や拡散物質の挙動は、多孔媒体中の移行として扱うことができ、分散のプロセスは空隙流路の幾何的分散特性に多く依存する。VOC の場合はいわゆる通気帯（不飽和帯）における揮発性ガスの移行拡散と（飽和）地下水中の分散を同時に考える必要があり、VOC や油類のように地下水に溶けにくい、難溶解性液体（NAPL : Non Aqueous Phase Liquid）では、水、ガスおよび汚染液体を多相系として扱い、それぞれの移動則をもとに保存式を解くことになる。

一方、土壌中の熱と水分の挙動は、それぞれの輸送方程式で記述され、地表面における熱と水分の保存条件によって、大気における輸送過程と接続されている。低層大気境界層の輸送過程は、水分、熱、運動量、乱れの運動エネルギーという４つの量の輸送方程式として記述できる。土壌中のVOCなどの汚染物質は、一部は液状のまま土粒子の間隙にとどまり、一部は熱によりガス化して、地表から大気中へ拡散されるものもある。したがって、汚染物質の挙動を把握し、拡散状況を予測するには、大気・土壌中の熱、水分の輸送過程と連成した解析が不可欠となる。

本研究は、大気・土壌連成システム（SALSAモデル : Soil Atmosphere Linking Simulation Algorithm）と土壌・地下水中の汚染物質の挙動の研究をベースとして、土壌・地下水中の汚染物質の移行を予測・解析するシステムの構築を目的としており、VOCの中でも特に、水よりも密度の大きいトリクロロエチレンやテトラクロロエチレンなどの難溶解性液体（DNAPL: Dense NAPL）に注目して、次の４つのサブテーマごとに研究を実施したものである。

（１）大気・土壌中の熱、水分と汚染物質のカップリングモデルによるDNAPL移行解析の研究

（２）飽和多孔体中におけるDNAPL浸透の水理学的メカニズム（液滴の重力沈降、フィンガリング）の実験的研究

（３）帯水層におけるDNAPL移行解析シミュレーションモデルの構築

（４）緑化屋上における土壌汚染物質の水質分析と微気象・水文観測による水分収支の研究

サブテーマごとの研究成果は、収録の論文等に示されるが、以下に概要を述べる。

埼玉大学図書館 埼大コーナー
204800429

（1）は、大気・土壌・汚染物質の連成解析モデルにより、４つの異なる土地利用要素（裸地、草地、森林、透水性舗装）において、日射量や地表面水分量（降雨）を変化させた条件の下で、地表面が汚染された土壌から地下浅層への DNAPL の移行解析を検討したものである。その結果、気相、液相 DNAPL の移行は土壌水分と地温特性に依存しており、日中の大気・土壌間の相互作用が汚染物質の移行に重要な役割を演ずることを明らかにした。（論文 1)、4))

（2）は、飽和多孔体中の DNAPL 液滴の重力沈降による分散挙動について研究し、フィンガリング現象の浸透メカニズムを検討した結果である。フィンガリングにおける DNAPL の移動部分（コア）と不動部分（鞘）の比（有効径比）とフィンガー Re 数（Re=dw/ν、d:媒体粒径、w:フィンガー鉛直浸透速度、ν:DNAPL 動粘性係数）との関係式を求めた。フィンガーのコアは、媒体粒径の違いによらずほぼ同径であるが、不動部分は Re 数と透水係数に比例して大きくなることが明らかにされた。（論文 2)、3))

さらに、水中の懸濁物質のろ過の概念に準じて、フィンガリングに伴う残存量（不動部分）の定式化を行い、残存量を支配するパラメータ、空隙内拘束率係数 κ を実験から求めて、これにより多孔媒体中に捕捉され拘束される DNAPL 量の算定が可能であることを示した。（論文 5))

（3）は、液滴とフィンガリングによる飽和多孔体中の DNAPL 浸透実験の結果にもとづいて、帯水層における DNAPL 移行解析モデルを構築したものである。残存量算定モデルをもとに、重力沈降する DNAPL 液滴粒子の運動をランダムウォークにより表し、DNAPL 溶液移流分散方程式の高精度 TVD(Total Variation Diminishing) 差分スキームによる解法と組み合わせた、新しい DNAPL 移行解析モデル－差分連成ランダムウォーク法(coupled Finite Difference-Random Walk Method: FD-RWM)を構築した。

これにもとづき既往の２相流による解析結果と比較検討し、さらに、現地適用例としてトリクロロエチレンに汚染された実測結果と照合させ、帯水層中に浸入し残存する DNAPL 量の算定を試みた。（論文 8)、口頭発表 1)、2))

（4）は、近畿大学に屋上緑化区画および微気象・水文観測システムを構築して、屋上緑化における植生維持に必要な水量を蒸発散量の実測から算定し、同時に緑化区画からの排水の水質調査を試みたものである。夏季における屋上緑化区画からの日蒸発散量実測値を得るとともに、緑化区画からの排水には、除草剤・肥料、人工土壌や透水フィルターに起因すると思われる硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが含まれることを確認した。水質を水域類型 I の湖沼の水質環境基準値（全窒素 0.1mg/L 以下、全リン 0.005mg/L 以下）と比較すると、硝酸・亜硝酸態窒素濃度は 7 ～10 倍程度、リン酸態リン濃度は 800～1400 倍程度（それぞれ水道水の 3.5 ～7.5 倍、約 12,000～16,000 倍）であることが分かった。ここで得られた観測値は、

大気・土壌モデルと連成した汚染物質の移行予測システムのパラメータ整備に利用できる。(論文 6)、7)、口頭発表 3)、4))

以上のように、本研究は、大気・土壌連成システムにもとづき、地表面物理過程を考慮した土壌・地下水中の汚染物質の移行解析システムの構築を意図して、２ヵ年の研究を行ったもので、各サブテーマごとに興味深く、有用な成果が得られており、今後のこの方面の研究の発展に貢献できるものと確信する。

研究組織

研究代表者	：	佐藤　邦明	（埼玉大学地圏科学研究センター教授）
研究分担者	：	浅枝　隆	（埼玉大学大学院理工学研究科教授）
		和田　明	（日本大学生産工学部教授）
		高野　保英	（近畿大学理工学部助手）
		佐々木　孝	（株式会社アーク情報システム）

研究経費

平成１４年度	１，５００千円
平成１５年度	９００千円
合計	２，４００千円

研究発表

１．論文等

1) Rabindra Raj GIRI, Kuniaki SATO, Akira WADA, Yasuhide TAKANO, Takashi SASAKI : A simulation study of aqueous and gas phase DNAPL migration in shallow unsaturated land elements, Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering JSCE, Vol.20, No.2, pp.51-69, 2002.
…………(1)

2) Takayuki UENO, Rabindra Raj GIRI, Kenji NISHIDA and Kuniaki SATO : GRAVITATIONAL DISPERSION OF SOLID PARTICLES AND DNAPL DROPLETS IN SATURATED POROUS MEDIUM MODELS, *The 30th IAHR Congress*, Vol. "Theme B", pp.677-684, AUTh, Thessaloniki, Greece, 2003.
…………(21)

3) Takayuki UENO, Rabindra Raj GIRI, Kenji NISHIDA and Kuniaki SATO : An Experimental Study on DNAPL Fingering Mechanism in Saturated Porous Media, Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering JSCE, Vol.21,No.2, pp.47-59, 2003.
…………(29)

4)　佐々木孝、Rabindra Raj Giri、佐藤邦明、和田明、高野保英：土地利用を考慮した土壌中の液相・気相DNAPL汚染物質の移行解析、地下水技術、第45巻、第9号、pp.30-41, 2003.
…………(43)

5)　佐々木孝、佐藤邦明：飽和多孔媒体中のフィンガリングによるDNAPL 鉛直輸送に関する基礎的研究、水工学論文集、第48巻、2004年2月（登載予定）
…………(55)

6)　高野保英、江藤剛治、竹原幸生、福原輝幸：微気象・水文観測に基づく緑化屋上からの蒸発散量の算定および排水水質分析、土木学会論文集、No.748/VII-29、pp.57-65、2003.
…………(61)

7)　高野保英、江藤剛治、竹原幸生：屋上緑化区画における排水水質と水管理手法に関する検討、水工学論文集、第48巻、2004年2月（登載予定）
…………(71)

8)　佐々木孝、佐藤邦明、和田明：差分連成ランダムウォーク法による不圧帯水層のDNAPL移行解析と現地適用、土木学会論文集（投稿中）
…………(77)

2．口頭発表

1)　佐々木孝、佐藤邦明：大気・土壌・地下水連成モデルによる土壌中および地下水中DNAPLの移行解析－帯水層における空隙内拘束を考慮したDNAPLの移流分散解析－、地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第9回講演集、pp.192-195、2003.
…………(97)

2)　佐々木孝、佐藤邦明：帯水層における空隙内拘束を考慮したDNAPL移流分散解析手法の現地適用性の検討、日本地下水学会、2003年秋季講演会予稿集、pp.162-167、2003.
…………(101)

3)　高野保英、江藤剛治，竹原幸生，福原輝幸：緑化用水量算定を目的とした緑化屋上微気象・水文観測、土木学会第57回年次学術講演会、講演概要集、VII-11、2002.
…………(107)

4)　高野保英、江藤剛治、竹原幸生：緑化屋上区画からの排水水質の連続観測、土木学会第58回年次学術講演会、講演概要集、VII-213、2003.
…………(109)

Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering
Vol. 20, No.2 November, 2002, 51-69

A SIMULATION STUDY OF AQUEOUS AND GAS PHASE DNAPL MIGRATION IN SHALLOW UNSATURATED LAND ELEMENTS

By

RABINDRA RAJ GIRI

Geosphere Research Institute, Saitama University, 255 Shimo-okubo, Saitama-shi, 338-8570, Japan, E-mail: rabindrag@gris.saitama-u.ac.jp

KUNIAKI SATO

Geosphere Research Institute, Saitama University, 255 Shimo-okubo, Saitama-shi, 338-8570, Japan, E-mail: sato@post.saitama-u.ac.jp

AKIRA WADA

Nihon University, College of Industrial Technology, 1-2-1, Izumi, Narashino, Chiba, Japan, E-mail: wada@civil.cit.nihon-u.ac.jp

YASUHIDE TAKANO

Department of Civil Engineering, Kinki University, 3-4-1 Kowakae, Higashi-Osaka, Osaka 577-8502, Japan, E-mail: takano@civileng.kindai.ac.jp

and

TAKASHI SASAKI

Ark Information Systems, Inc., 4-2 Gobancho Chiyoda-ku, Tokyo, Japan, E-mail: sasaki@ark-info-sys.co.jp

SYNOPSIS

Knowledge of DNAPL migration behaviours in shallow unsaturated land elements might be useful in characterizing and deciding suitable remediation techniques for DNAPL contaminated sites. One-dimensional simulations of simultaneous heat, moisture, and gas and aqueous phases DNAPL transport in soil due to diurnal land-atmosphere interactions was carried out. The top 0.11-m soil was initially contaminated with uniform DNAPL concentrations in aqueous and gas phases. Two cases of moisture content scenario were presented in the simulations. The results indicated that vegetation cover played significant roles in soil heat and moisture budgets in addition to soil composition and their properties. Vegetation cover significantly reduced the incoming solar radiation to the ground surface resulting to smaller diurnal fluctuations in soil temperature and moisture contents in vegetated lands. The decrease in aqueous phase DNAPL concentrations in the contaminated soil layer and the downward migration depths were relatively bigger in vegetated lands. Rainfall percolation further reduced diurnal soil moisture fluctuations resulting to bigger aqueous phase DNAPL migration depths. Gas phase DNAPL exhibited bigger vertical spreading tendency. Further investigations including other process in the contaminant transport equations, and sensitivity analyses on their relative importance would provide more insight in the matter.

1. INTRODUCTION

Subsurface contamination by Dense Non-aqueous Phase liquids (DNAPLs) has more than half century's history in the industrialized countries. The production and use of some of the DNAPLs, such as trichloroethylene (TCE), were first reported in the United States, Germany and United Kingdom in the early 1900. Their production and use increased proportionately with the industrial development. At a time, the use of dense chlorinated solvents was considered as an indicator of industrial and economic growth. A close look into the history of DNAPL production and use reveals that the major subsurface contamination occurred in between 1950 and 1980. From early 1980s onwards, a huge flux of subsurface contamination reports were available resulting to active engagement of governments, policy makers, scientists and researchers to prevent further contamination and remediate the contaminated sites.

DNAPL's peculiar physical properties render them highly mobile as well persistent in the subsurface environment. Bigger densities, lower viscosity and smaller interfacial tension with liquid water enhance rapid migration. Most of the DNAPLs are highly volatile resulting to increased gas phase contamination. Lower degradability and smaller absolute solubility with water keep them in the subsurface as DNAPL pool for longer period. On the other hand, appreciable relative solubility, for example TCE, contaminates soil and groundwater many folds higher than the maximum contaminant level (MCL) specified in the environmental standards.

Many literatures are available on DNAPL subsurface contamination and remediation. Depending on subsurface moisture conditions, contamination cases can be broadly classified into two: (a) saturated and (b) unsaturated. Since the focus of this paper is on the second point, some of the relevant literatures on DNAPL subsurface contamination in unsaturated conditions are briefly discussed in this section. Sleep and Sykes (1989) carried out an extensive numerical analysis on TCE transport in variably saturated soils. Dissolution and volatilization of immobilized TCE mass transport in aqueous and gas phases and gas-liquid partitioning between aqueous and gas phases were taken into consideration for two different surface boundary conditions. The simulation results revealed that the consideration of gas-liquid partitioning between aqueous and gas phases resulted to greater horizontal and vertical spreading of aqueous phase plume. TCE dissolution rate increased and volatilization rate decreased by the inclusion of gas-liquid partitioning. The increase in mass transfer coefficients increased the gas and aqueous phase concentrations. More interestingly, the change in ground surface boundary conditions showed significant impact on lateral and vertical plume spreading in aqueous and gas phases. Impermeable boundary at surface enhanced such spreading of plumes.

Arands et al. (1997) used modeling and experimental approach to study the gas phase diffusion of volatile organic contaminants (VOCs) in unsaturated soil. The results indicated that the volume fraction of vapor phase in soil significantly influenced diffusive transport of VOCs in unsaturated conditions. As soil water content increased, the vapor filled volume fraction in soil became more tortuous resulting to reduction in vapor phase transport. Conant et al. (1996) carried out similar field and numerical modeling investigation on TCE vapor transport in unsaturated soil zone. The field experiments revealed that a vapor plume migrated several meters laterally and downward to the capillary fringe within only a few days. Comparisons between the results for winter and summer conditions indicated that seasonal temperature variations could have a strong effect on source concentrations, vapor transport rate and contaminant mass transport. Variability in organic carbon content showed significant control over the relative migration rates at different soil depths. Many authors mainly focused on volatilization and gas phase VOC migration in the subsurface (e.g. Wilkins et al., 1995).

Yates et al. (2000) developed and compared several analytical solutions to simulate one-dimensional VOC gas transport in unsaturated layered soil system. The experimental investigation of Maraqa et al. (1999) on the effect of water saturation on retardation of groundwater contaminants indicated that volatilization might have significant impact on retardation of organic compounds with higher values of Henry's constant in aquifer with low organic matter content.

In the recent past, some authors investigated the effects of vegetation on VOC and DNAPL migration in the subsurface. An experimental study of Zhang et al. (1998) reported that vegetation accelerated TCE upward movement due to root water uptake and plant transpiration. This process enhanced mass transfer and TCE dissolution resulting to increase in TCE concentration both in aqueous and gas phases. Narayanan et al. (1996) used experimental and modeling approach to examine the fate of TCE in a chamber with alfalfa plants. The results indicated that the moisture distribution in soil significantly affected TCE transport in the subsurface. The major TCE loss in soil was through the volatilization mechanism. Root water uptake and evapotranspiration phenomena associated with the actively growing alfalfa plants enhanced upward moisture movement resulting to increased volatilization. However, very little is known about the impact of vegetation on the fate of DNAPLs and other chlorinated solvents in the subsurface and hence more specific studies are needed to reach to the realities.

The change in heat and moisture budget is one of the most important factors in assessing the fate of dense chlorinated solvents in the shallow subsurface. Industrialization has enhanced the widespread use of DNAPLs, where as urbanization significantly changed the existing heat and moisture budgets in the topsoil. It is essentially important to understand the extent of contamination and local environmental situation before applying any remedial techniques to a DNAPL contaminated site.

Diurnal interactions between soil and atmosphere play vital role on the fate of volatile contaminants in shallow subsurface, and the degree of interaction varies with various surface and subsurface conditions. However, the fates and transport behaviors of these contaminants in shallow subsurface for different land-use conditions are not well investigated.

The objective of this paper is to compare aqueous and gas phase TCE (a typical DNAPL) migration into shallow subsurface from the top contaminated soil layer in four different land-use conditions. The four land elements, bare soil, short-grass covered land, forest covered land and porous pavement, are taken into account in this study, because they are typical surface coverings and land-use conditions. The knowledge of heat and mass budgets, including volatile contaminants, in these elements are expected to be of significant importance in land planning. Only the simplest aspect of vegetation is considered here to compare the fate of TCE in aqueous and gas phases. Two cases of vegetation are presented here (short grassland and densely forested land) to compare the impact of vegetation types. Soil composition and its hydraulic and thermal properties characterize the land-use conditions in addition to the vegetation parameter.

2. SIMULATION MODEL AND TRANSPORT EQUATIONS

2.1 Simulation Model

Soil-Atmosphere Linking Simulation Algorithm (SALSA) coupled with equations for simultaneous transport of heat, moisture and DNAPL in soil has been used in this simulation. ten Berge H.F.M (1990) first developed SALSA model to predict heat and moisture transfer between bare topsoil and lower atmosphere due to diurnal interaction between them. The accuracy of the model and the usefulness of the simulation results were evaluated in the earlier investigations (ten Berge, 1990 and Son et al., 1999). Later, Sato et al. (2001)

attempted to use the model for four different land-use conditions. In this paper, we have attempted to modify the existing SALSA model by introducing a system of equations for simultaneous transport of heat, moisture and dense volatile chlorinated solvent (DNAPL) in the subsurface and compare the migration behaviour in aqueous and gas phases among the four different land-use conditions. A conceptual diagram of land-atmosphere interaction with four types of land elements (land-use conditions) is presented in figure 1. The four land elements exhibited different surface and subsurface characteristics. The bare soil represents the land without any vegetation at the ground surface. The short-grass element denotes the land covered with sparse short-grasses. The forest element represents densely forested area. Similarly, the porous pavement element indicates compacted pavement materials that are intended for drainage or parking purposes in urban areas. Even though, all these four elements are shown together in figure 1, they are dealt with separately in simulation studies while investigating the fate and transport behaviours of the contaminant under the conditions set for each element.

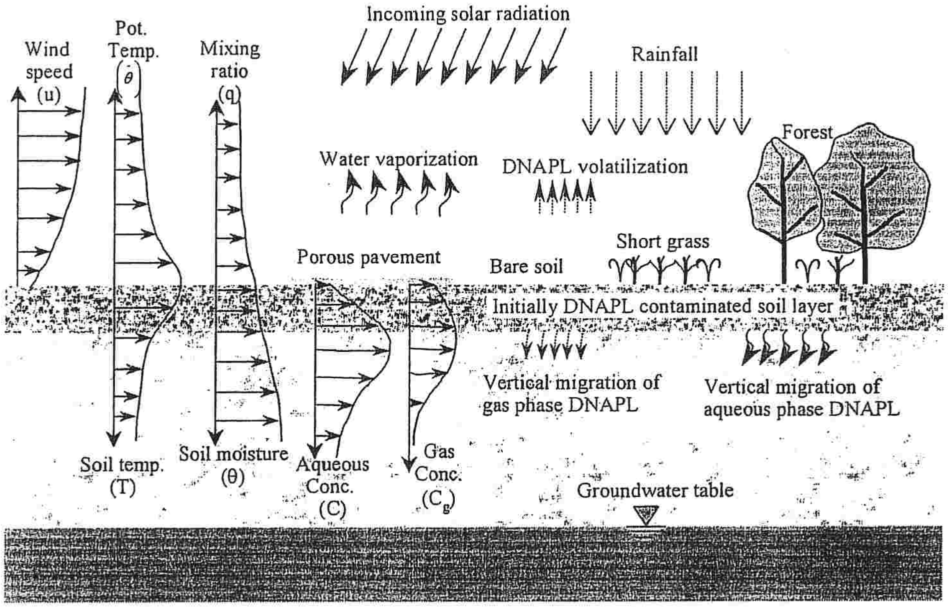


Fig. 1 Conceptual diagram for land-atmosphere interaction

2.2 Transports in the Atmosphere

A detailed description of the transport equations in the atmosphere is presented in ten Berge (1990) and other similar literatures. We have outlined only the main equations in this section.

Momentum, heat, moisture and turbulent kinetic energy (TKE) transport in vertical direction in the atmosphere are expressed by the following equations:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = f(v - v_g) - \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\tau_x}{\rho_a}\right); \ \frac{\partial v}{\partial t} = -f(u - u_g) - \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\tau_y}{\rho_a}\right) \tag{1}$$

$$\frac{\partial \bar{\theta}}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{H}{\rho C_p}\right); \ \frac{\partial q}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{E}{\rho_a}\right) \tag{2}$$

$$\frac{\partial e}{\partial t}=\frac{\tau_x}{\rho_a}\left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)+\frac{\tau_y}{\rho_a}\left(\frac{\partial v}{\partial z}\right)+\left(\frac{gH}{T_a\rho_a C_p}\right)+\frac{\partial(K_M)}{\partial z}\left(\frac{\partial e}{\partial z}\right)-\frac{(ce)^{3/2}}{\lambda_M} \qquad (3)$$

where, u and v = wind velocities, τ = momentum flux, $\bar{\theta}$ = air potential temperature, E = water vapor flux density, H = sensible heat flux, f = coriolis parameter, q = moisture mixing ratio, ρ_a = air density, C_p = specific heat of air at constant pressure, e = TKE, λ_M = length scale, c = empirical parameter, T_a = air temperature and K_M = transport coefficient for momentum.

The following equations express the fluxes of momentum, sensible heat and water vapor near the ground surface:

$$\tau_x=\rho_a\frac{\{u(z_m)-u(z_0)\}}{r_{aM}};\ \tau_y=\rho_a\frac{\{v(z_m)-v(z_0)\}}{r_{aM}} \qquad (4)$$

$$H=\rho_a C_p\frac{\{T_a(z_m)-T_a(z_0)\}}{r_{aH}};\ E=\rho_a\frac{\{q(z_m)-q(z_0)\}}{(r_{aV}+r_c)} \qquad (5)$$

where, z_0 = surface roughness height, z_m = height at which the state variables are measured, r_a = aerodynamic resistance and r_c = vegetation resistance.

The subscripts M, H and V in equations (4) and (5) indicates momentum, heat and vapor respectively.

2.3 Transports in the Subsurface

Simultaneous transport of heat, moisture and DNAPL in aqueous and gas phases are considered in the subsurface migration (Takano et al., 2001). Moisture transport in unsaturated soils is considered to be in liquid and vapor phases, which includes vaporization and condensation. The following equation expresses liquid water transport in the unsaturated soil.

$$\frac{\partial(\rho_\lambda\theta_\lambda)}{\partial t}=kg\frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\frac{\rho_\lambda k_{r\lambda}}{\nu_\lambda}\right)\frac{\partial\psi_m}{\partial z}\right\}-\left(\frac{kR}{M}\right)\frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\frac{T_s k_{r\lambda}}{\nu_\lambda}\right)\frac{\partial C}{\partial z}\right\}+kg\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\rho_\lambda k_{r\lambda}}{\nu_\lambda}\right) \qquad (6)$$
$$-K_G(\varepsilon-\theta_\lambda)(\chi_w P_{vsat}-P_v)$$

where, θ_λ = volumetric liquid water content, k = saturated soil permeability, $k_{r\lambda}$ = relative soil permeability, M = DNAPL molar mass, T_s = soil temperature, R = universal gas constant, C = aqueous phase concentration, ε = soil porosity, ψ_m = matric potential head, K_G = coefficient of internal evaporation for water, P_v = water vapor pressure, P_{vsat} = saturated water vapor pressure and χ_w = mole fraction for liquid water.

Water vapor transport is governed by the following equation.

$$\frac{\partial}{\partial t}\left\{\frac{(\varepsilon-\theta_\lambda)P_v}{T_s}\right\}=(\xi\eta D_{atmv})\frac{\partial}{\partial z}\left[(\varepsilon-\theta_\lambda)\left\{\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{P_v}{T_s}\right)\right\}\right]+K_G R_v(\varepsilon-\theta_\lambda)(\chi_w P_{vsat}-P_v) \qquad (7)$$

where, ξ = correction factor for vaporizing area, η = tortuousity factor, D_{atmv} = water vapor diffusivity in atmosphere and R_v = gas constant for water vapor.

Two-phase DNAPL transport in the subsurface is taken into account in this simulation, which includes volatilization. The effect of immiscible phase on aqueous and gas phase transport is neglected. The aqueous phase DNAPL transport including adsorption on the solid matrix can be expressed by the following equation.

$$
\begin{aligned}
&(\theta_l + \rho_d K_d)\frac{\partial C}{\partial t} + C\frac{\partial \theta_l}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(\theta_l D_c \frac{\partial C}{\partial z} - V_l C\right) - K_v(\varepsilon - \theta_l)(H_v C - C_g) \\
&+ \frac{CK_G}{\rho_l}(\varepsilon - \theta_l)(\chi_w P_{vsat} - P_v)
\end{aligned} \tag{8}
$$

where, ρ_d = apparent density of soil, K_d = aqueous phase DNAPL adsorption coefficient, D_c = aqueous phase DNAPL diffusion coefficient, V_λ = liquid water Darcy velocity, K_v = DNAPL gas generation coefficient, H_v = dimensionless Henry's constant for DNAPL and C_g = gas phase DNAPL concentration.

Diffusion and convection are the two important mechanisms taken into account in equation (8). The first and the second terms in the right hand side of the equation represent these two processes respectively. The third term accounts for the volatilization of the dissolved phase DNAPL. The last term does indicate aqueous phase concentration change due to liquid water vaporization, which is an important term in contaminant transport (Takano et al., 2001). However, its relative significance in the case of DNAPL contaminants is yet to be investigated.

The following equation expresses gas phase DNAPL transport in the subsurface, which includes diffusion and adsorption on the solid matrix.

$$
\left(\varepsilon - \theta_l + \rho_d \bar{K}_d\right)\frac{\partial C_g}{\partial t} - C_g\frac{\partial \theta_l}{\partial t} = \eta\frac{\partial}{\partial z}\left\{D_{atmg}(\varepsilon - \theta_l)\frac{\partial C_g}{\partial z}\right\} + K_v(\varepsilon - \theta_l)(H_v C - C_g) \tag{9}
$$

where, D_{atmg} = DNAPL gas diffusion coefficient in the atmosphere and $\bar{K}_d$ = gas phase DNAPL adsorption coefficient.

Diffusion is assumed to be the dominant gas phase contaminant transport mechanism in the fine-grained unsaturated soil domain, and hence other transport processes, such as density-driven advection, are neglected in equation (9) at this stage.

Conduction, convection and latent heat of vaporization for liquid water and aqueous phase DNAPL are taken into account in developing heat transport equation in the soil domain. Finally, the heat transport equation can be expressed as follows.

$$
\begin{aligned}
&\frac{\partial\{T_s(\rho_s C_s)\}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\lambda\frac{\partial T_s}{\partial z}\right) - \rho_\lambda C_\lambda V_\lambda (T_s - T_0)\right\} - L_v K_G(\varepsilon - \theta_\lambda)(\chi_w P_{vsat} - P_v) \\
&- L_c K_v(\varepsilon - \theta_\lambda)(H_v C - C_g)
\end{aligned} \tag{10}
$$

where, λ = thermal conductivity of wetted porous matrix, C_λ = specific heat of liquid water, T_0 = reference temperature, L_v = latent heat of vaporization for liquid water, L_c = latent heat of vaporization for aqueous phase DNAPL and C_s = specific heat capacity of wetted porous matrix.

3. CHARACTERIZATION OF LAND-USE CONDITIONS

As mentioned in the previous section, four land elements were taken into account in the simulations to compare DNAPL migration behavior in aqueous and gas phases in unsaturated condition, which represent some of the typical land-use conditions in urban environment. From vegetation point of view, the land-use conditions can be classified into two: (a) vegetated and (b) non-vegetated. Two types of vegetations were considered. One was short and sparse grass (SG) and another was tall and dense forest (F). Two different vegetation resistance values to vapor transport at the ground surface differentiated these two cases in simulation. Since only simple vegetation aspect was included in the simulations, the simulated results provide general information about the influences of vegetation on shallow

subsurface contaminant migration. The non-vegetated surface included bare soil (BS) and compacted pavement material termed as "Porous Pavement" (PP). Soil composition, hydraulic, thermal and surface radiation properties characterized the four land-use conditions in addition to vegetation resistance.

The soil domains in the four land-use conditions were assumed to be homogeneous and isotropic for the simplicity. The two vegetated elements (SG and F) and bare soil element correspond to real field scenarios while the porous pavement element may be slightly different from the real problem. Nonetheless, the simulation results are expected to be valuable either directly or indirectly in understanding redistribution and vertical migration behaviors of DNAPL contaminants in different land-use conditions. Some of the parameters, which characterized the four land-use conditions, are given in table 1.

Table 1 Parameters that characterized the land-use conditions

Parameters		**Land-use Conditions**			
		BS	SG	F	PP
Surface roughness height (m)		0.005	0.05	1.0	0.001
Vegetation resistance (s/m)		0.0	15.0	100.0	0.0
Soil porosity (m^3/m^3)		0.40	0.42	0.45	0.25
Saturated soil permeability (m^2)		$1.256x10^{-14}$	$4.485x10^{-14}$	$8.97x10^{-14}$	$8.97x10^{-18}$
Surface albedo	Dry condition	0.20	0.23	0.26	0.10
	Wet condition	0.10	0.12	0.16	0.05
Surface emissivity	Dry condition	0.90	0.95	0.97	0.88
	Wet condition	0.95	0.97	0.99	0.95
Soil composition	Clay fraction	0.25	0.25	0.25	0.01
	Organic matter	0.01	0.07	0.10	0.0
	Quartz fraction	0.34	0.26	0.20	0.74

The unsaturated soil primarily consisted of five components: clay minerals, organic matter, quartz, liquid water and gases. The thermal, hydraulic and radiation properties depended on the proportions of these constituents. Porous pavement was assigned the smallest porosity value. The fraction of organic matter and porosity increased for vegetated land conditions as depicted in the table. The thermal heat conductivity in soil (λ) was calculated using the following relation.

$$\lambda = \alpha\left(\frac{\theta_\lambda}{\varepsilon}\right)^2 + \beta\left(\frac{\theta_\lambda}{\varepsilon}\right) + \gamma \qquad (11)$$

where, α, β and γ are constants that were computed based on soil composition. TCE was adopted as a representative DNAPL in the simulation.

The flow velocities in both phases were assumed to be smaller in the unsaturated soil domain. The dimensionless Henry's constant, latent heat of vaporization and diffusion coefficients in aqueous and gas phases were 0.236, 2.397×10^5 (J/kg), 1.515×10^{-9} (m^2/sec.) and 6.94×10^{-6} (m^2/sec.) respectively (Sleep et al., 1989). Most of the parameters used in the simulation were taken from literatures.

4. SIMULATION CONDITIONS AND COMPUTATION PROCESS

4.1Initial and Boundary Conditions

The atmospheric domain consisted of eleven uneven horizontally homogenous meshes. The mesh size near the ground surface was the smallest and it increased towards the upper atmospheric boundary. The upper boundary was fixed at 3069-m from the ground surface, at which $u = u_g = 10$ m/s, $v = v_g = 0$, $\tau_x = \tau_y = 0$, $H = E = 0$ and $\partial e/\partial z = 0$. Equations (4) and (5) governed for the surface boundary conditions. In addition to this, the summation of all the energy fluxes was equated to zero at the surface. Atmosphere was considered to be an infinite sink for DNAPL gas phase contaminant and its background concentration was assumed to be zero. The following relation was used for the transport of gas phase DNAPL at the ground surface.

$$E_{flux(g)} = \mu\{C_{g(1)} - C_{g(a)}\} \qquad (12)$$

where, $E_{flux(g)}$ = DNAPL gas flux at the ground surface (kg/m^2-sec.), $C_{g(1)}$ and $C_{g(a)}$ are gas phase concentrations in the top soil layer and lower atmosphere respectively (kg/m^3) and μ is a coefficient for which a value of 3.03×10^{-8} (m/sec.) was assumed in this simulation.

The soil domain was divided into twenty-five uneven horizontal meshes and the mesh thickness increased towards the depth. The meshes were taken to be homogenous and incompressible. The top of the water table was fixed at 1.62-m from the ground surface. Initially, a uniform concentration of 1.10 and 0.40 kg/m^3 DNAPL in aqueous and gas phases respectively contaminated the top 0.11-m soil. Two cases of initial moisture content were taken into account. The first case consisted of completely unsaturated condition above the water table. The moisture content varied linearly from the top to its saturation value at the lower boundary. The second case considered a rainfall condition, which was represented by saturated liquid water content for the top 5-cm soil. Below this depth, the moisture distribution profile was the same as in the no rainfall condition. The total heat and liquid water fluxes at the lower boundary were equated to zero. Similarly, the convective fluxes of aqueous and gas phase DNAPL were equated to zero at this level.

4.2 Computation Process

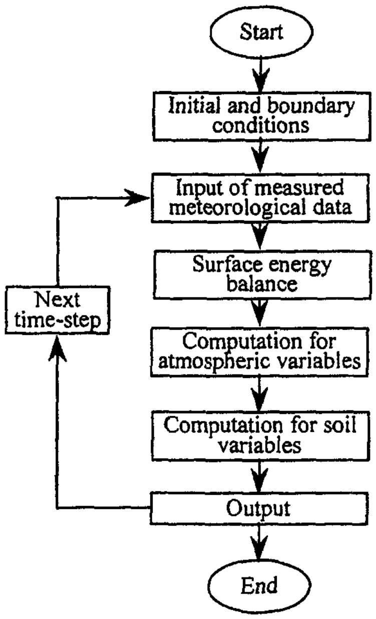


Fig. 2 Computation flow diagram in simulation

The computation procedure for the simulation is briefly outlined by the flow diagram in figure 2. After imposing initial and boundary conditions, measured solar radiation, and air temperature and pressure at screen height were given as input data. One-hour average of

these three parameters were obtained from a meteorological station in Hanno City, Saitama Prefecture. For every time step, the calculation started from surface energy balance, in which surface energy fluxes and surface temperatures were calculated. The computations for atmospheric and soil variables followed the surface energy balance. The computation process for a time step was repeated until a desired accuracy was obtained. The process ended when the designated simulation period was over.

5. RESULTS AND DISCUSSIONS

This simulation was carried out for five days duration. The input data (from July 5 to 9, 1998) of solar radiation, and air temperature and pressure at a screen height were the same for all the cases considered in this paper. Partitioning of the solar radiation into four different surface energy fluxes (sensible heat, latent heat of vaporization, net radiation and ground heat) was an important point in the simulation. Differences in the representative surface radiation properties for the land-use conditions mentioned in this paper resulted to variations in surface energy fluxes. Similarly, different soil compositions, porosity and soil hydraulic and thermal properties led to differences in heat, moisture and contaminant migration behaviors in unsaturated conditions in the shallow subsoil. The simulation results are discussed in the following sections for the four land-use cases in two different moisture saturation conditions in terms of surface energy fluxes, soil heat and moisture budgets and DNAPL transport behavior in the subsurface. Only the significant results are shown in figures.

5.1 Surface Energy Fluxes

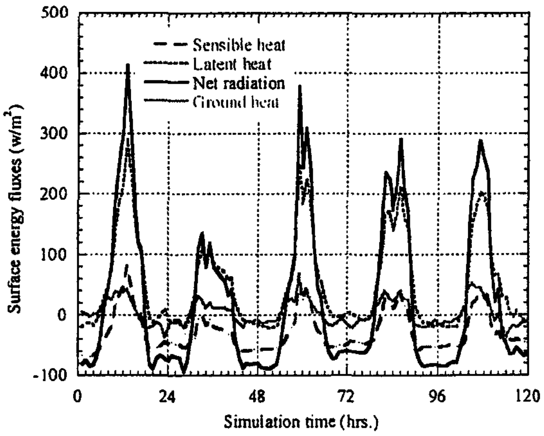


Fig. 3 Surface energy fluxes for porous pavement (no rain)

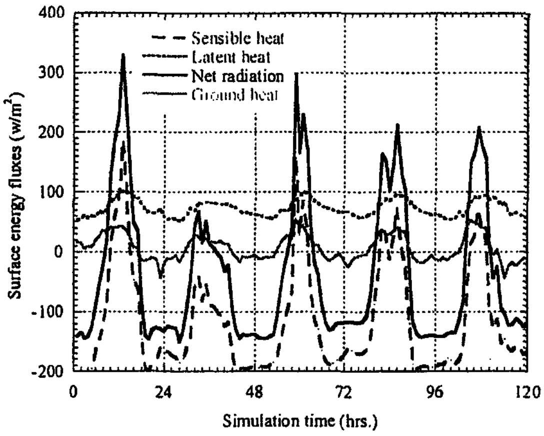


Fig. 4 Surface energy fluxes in forest (no rain)

Figure 3 and 4 respectively show surface energy fluxes for porous pavement and forest elements in no rainfall condition. The incoming solar radiation shown in figure 5 and the simulated energy fluxes indicated that the second simulation day was cloudy and the remaining four days were sunny. Porous pavement and forest respectively exhibited the highest and the lowest daytime maximum net radiation flux values. Bare soil and short grass respectively showed the second and the third highest values. The average daytime maximum values for bare soil, short grass and forest were respectively about 94%, 86% and 76% of the corresponding value for porous pavement case. But, the nighttime maximum values were just in the reverse order due to increasing emissivity coefficient. However, the order of fluctuation between day and nighttime net radiation values was the same as that of daytime maximum values. The daytime maximum values slightly decreased in rainfall condition

compared to the corresponding no rainfall cases. On the other hand, nighttime maximum values increased due to increasing emissivity in wet condition. However, the effect of rainfall seemed to decrease in the later part of the simulation.

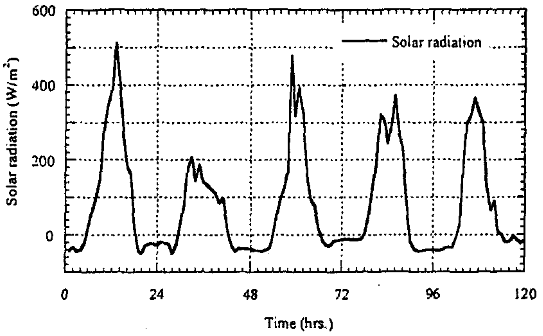


Fig. 5 Incoming solar radiation in the simulations

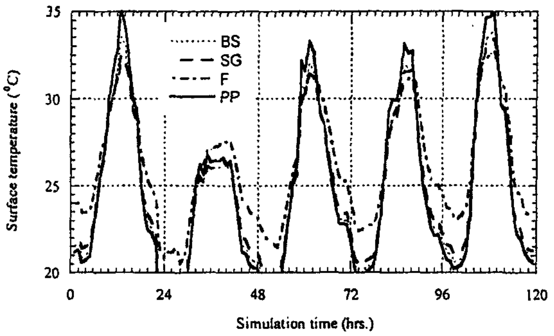


Fig. 6 Surface temperature profiles for the land elements

Porous pavement and bare soil showed bigger latent heat fluxes in daytime compared to vegetated surface probably due to direct influence of the incoming solar radiation resulting to increased evaporation. The average daytime maximum latent heat fluxes for bare soil, short grass and forest respectively were about 97%, 87% and 41% of the porous pavement case. At night, the non-vegetated surfaces exhibited very small latent heat fluxes compared to vegetated surfaces. This could be attributed to vegetation transpiration. Between the two vegetated surfaces, forest showed higher values compared to short grass case at night. In terms of fluctuations in latent heat during a day, porous pavement, bare soil, short grass and forest elements were in the decreasing order.

With respect to daytime maximum sensible heat flux, the four land elements were in the reverse order as in the case of net radiation flux. The sensible heat flux increased for vegetated surface due to increase in surface albedo values. These fluxes slightly decreased in rainfall condition since albedo values in wet condition were smaller than in dry condition. However, this effect disappeared in the later part of the simulations.

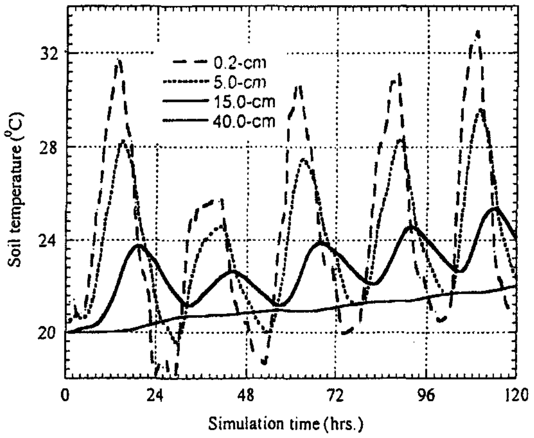
Between the two non-vegetated surfaces, bare soil showed bigger values of daytime maximum ground heat flux. It slightly decreased in vegetated surfaces. The results indicated that the ground heat flux decreased for increasing vegetation density. The effect of rainfall was to increase this heat flux. However, this effect was more distinct in vegetated surfaces than in non-vegetated one.

5.2 Soil Heat and Moisture Budgets

Figures 7 and 8 show soil temperature profiles at four different depths from the ground surface in porous pavement and forest elements respectively for the total simulation period in no rainfall condition. The effect of cloudy weather on the second simulation day resulted to smaller temperature values compared to that in other days. It is first attempted here to discuss the simulation results for soil temperature distribution in terms of surface temperature variations. The surface temperature variations for the four land-use conditions are shown in figure 6.

During the simulation period, the maximum surface temperature fluctuations for all the land-use conditions remained between 17^{0}C and 35^{0}C. Porous pavement, bare soil, short grass and forest elements were in decreasing order with respect to daytime maximum surface temperature. The last three elements in this case exhibited about 96%, 95% and 93% maximum surface temperature of the values for porous pavement case respectively. Nighttime minimum surface temperatures were in the reverse order. For all the four

conditions, the minimum surface temperature in a day increased as simulation progressed. The daytime maximum values seemed to decrease in rainfall condition, but it was not significant.



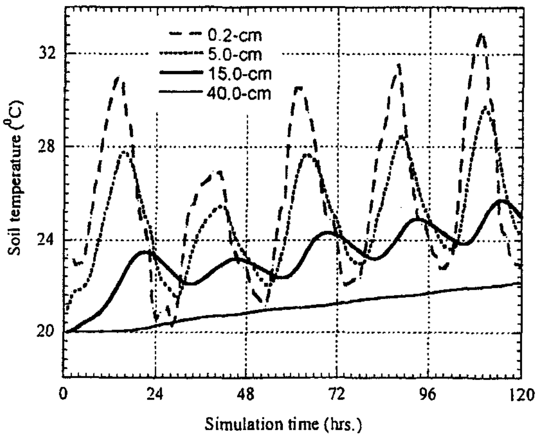


Fig. 7 Soil temperature profiles in porous pavement (no rain) **Fig. 8** Soil temperature profiles in forest (no rain)

As depicted in figures 7 and 8, the top 5-cm soil was the most affected by diurnal fluctuations in solar radiation. However, the effect reached up to 40 to 50 cm depth during the simulation. There were successive time lags for the same events (for example: maximum or minimum temperatures) at different soil depths due to the time lapsed for heat transport from one layer to the underlying layers. Even though the surface temperatures were relatively smaller for vegetated land-use conditions in the afternoon, a close observation on these figures indicated that vegetated subsurface exhibited relatively bigger temperature. For example: the soil temperatures at 15-cm soil depth at the end of the five-day simulation for forest and porous pavement were about 25^{0}C and 24^{0}C respectively. Similar behavior could be observed at other depths and times. Relatively bigger initial moisture content and higher percentage of organic matter content for the vegetated subsurface might have resulted to bigger thermal heat capacity, ultimately giving rise to bigger subsurface temperature. This behavior of vegetated subsurface could have significant impact on aqueous phase DNAPL migration, which will be discussed little later. In case of rainfall condition, not any significant changes in subsurface temperature were observed due to its short duration.

The liquid water content profiles at four different soil depths for no rainfall condition in bare soil and forest cases are depicted in figures 9 and 10 respectively. The soil moisture content in the topsoil sharply increased during the first simulation day for all the four cases probably due to small initial moisture contents. This trend remained unchanged till later in bare soil case although the rate of increase was less sharp compared to the earlier days. In case of short grass, the diurnal fluctuations dominated the continuous increasing trend from the second simulation day. For forest element, both of these trends disappeared and the moisture content gradually decreased till the end of the simulation from the second day. Porous pavement case showed similar trend with short grass, but the changes in moisture content were not smooth. They exhibited rather stepping nature. Smaller porosity value and other soil properties could have resulted to such a behavior. Similar to soil temperature, the effects of diurnal changes in solar radiation were reflected most significantly in soil moisture content in the top 5-cm depth. Bare soil and forest elements respectively exhibited the maximum and the minimum moisture fluctuations in the topsoil during a day. Short grass and porous pavement elements showed the second and the third highest fluctuations respectively. The results indicated that vegetation cover significantly affected the moisture distribution in

the top unsaturated zone. Decrease in moisture fluctuations were observed from bare soil to short grass and from short grass to forest cases. As the effect of vegetation increased (forest), the soil moisture continuously decreased in the later part of simulation most probably due to increased vegetation transpiration.

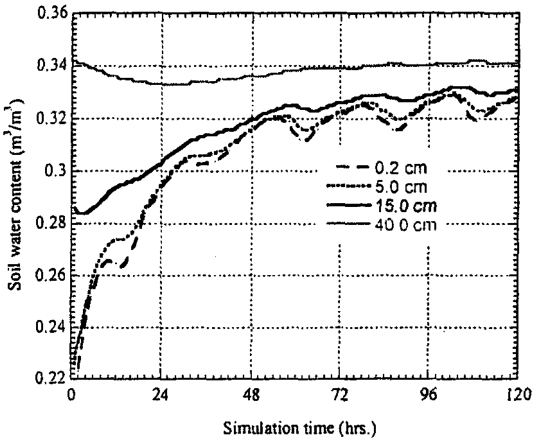


Fig. 9 Soil moisture profiles in bare soil (no rain)

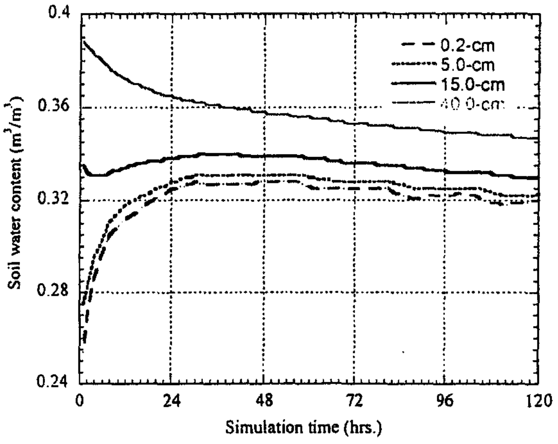


Fig. 10 Soil moisture profiles in forest (no rain)

The moisture content profiles in these two cases (bare soil and forest) in rainfall condition are shown in figures 11 and 12 respectively. The order of maximum moisture fluctuation in the topsoil during a day was the same as in no rainfall condition. But the fluctuations in this case were smaller than in no rainfall condition for all the elements. Since the top 5-cm soil was initially saturated with liquid water in representing rainfall condition, the moisture content in this area sharply decreased in the first 12-hrs simulation due to percolation. However, this trend was not observed in porous pavement case and that was similar to its no rainfall condition. As in no rainfall condition, moisture content below 15-cm depth gradually decreased in vegetated elements. But the decrease seemed to be faster compared to no rainfall condition in the later part of the simulation probably due to increased vegetation transpiration.

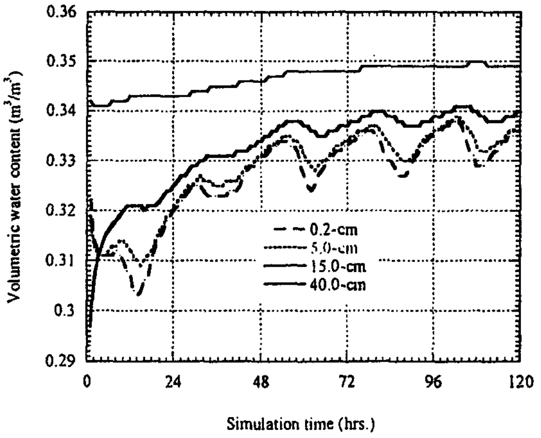


Fig. 11 Soil moisture profiles in bare soil (rain)

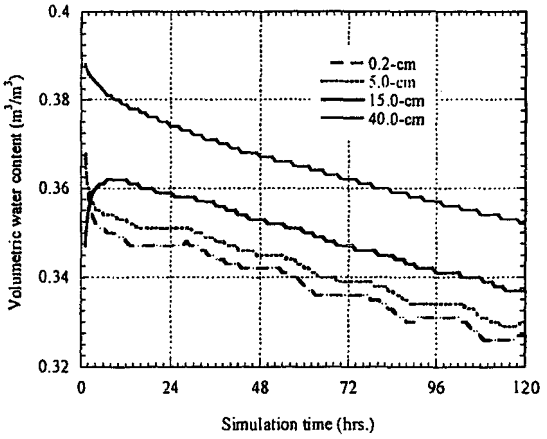
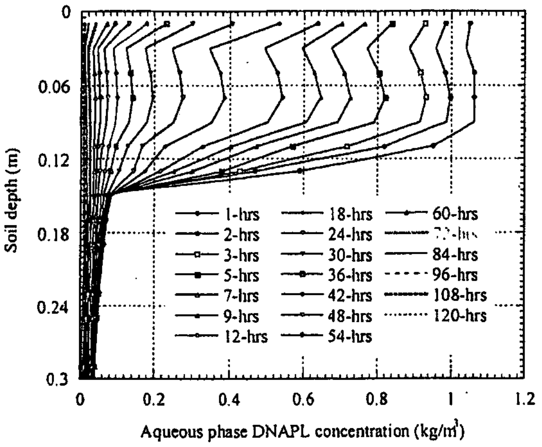


Fig. 12 Soil moisture profiles in forest (rain)

5.3 Aqueous Phase DNAPL Migration Behavior

The top 11-cm soil was initially contaminated with aqueous and gas phase DNAPL and the diurnal soil moisture and temperature fluctuations were significantly bigger in the top 15-

cm depth. Therefore, it would be relevant to discuss the simulation results in two stages: the concentration distribution behaviors in the contaminated soil layer and below it.



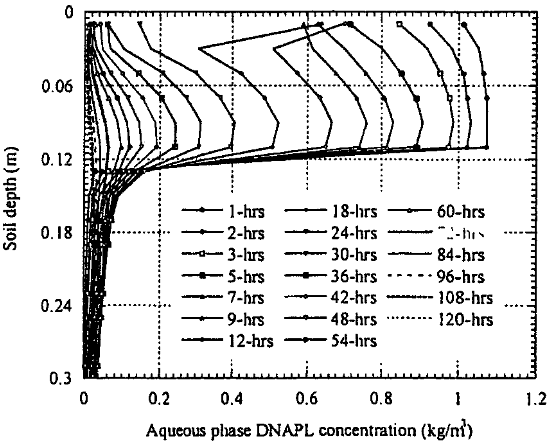


Fig. 13 Aqueous concentration in forest (no rain) **Fig. 14** Aqueous concentration in porous pavement (no rain)

Figures 13 and 14 show aqueous phase concentration profiles in the contaminated soil layer for forest and porous pavement elements respectively in no rainfall condition. The concentration decreases were relatively bigger in the first 12-hrs simulation in all the cases due to smaller initial moisture content resulting to rapid increase in this parameter during this period. Bare soil, short grass and porous pavement showed decreasing tendency in concentration towards the surface from the middle of the contaminated layer. But, it sharply increased from 12-hrs onwards, which might indicate the increased evaporation from the surface. During the simulation, the first afternoon exhibited the maximum solar radiation and the non-vegetated elements showed relatively sharp increase in aqueous phase DNAPL concentration, which might strengthen the idea of increased evaporation. In forest element, this concentration increase in the topsoil layer started right from the beginning probably due to increased transpiration compared to short grass case. The concentration profiles near the bottom of the contaminated layer smoothly decreased to their minimum values. The aqueous phase concentration decreases in this soil layer during the five days simulation were more than 95% in all the cases considered.

The overall concentration decrease in the contaminated soil layer in rainfall condition was relatively slower compared to the corresponding cases in no rainfall condition. Higher soil moisture content in the topsoil due to rainfall might have reduced DNAPL volatilization resulting to the slower decrease rate in aqueous phase concentration. However, the concentration decreases just below the contaminated layer were sharp in this case unlike the relatively smoother trend in no rainfall condition.

The aqueous phase concentration profiles in forest and porous pavement elements below the contaminated soil layer in no rainfall condition are depicted in figures 15 and 16 respectively. As simulation progressed, the concentration fronts moved to deeper soils in all the cases. Comparing all the four cases, the vertical migration depths of aqueous phase DNAPL were the highest and the lowest for forest and porous pavement respectively. The short grass and bare soil showed the second and the third highest values respectively. For instance, let us have a look of the maximum concentration depths below the contaminated layer at two different times of the simulation. At 96-hours, porous pavement, bare soil, short grass and forest elements showed maximum aqueous phase concentrations at 0.21, 0.25, 0.26 and 0.37-m depths from the surface respectively. Similarly, the migration depths for the elements in the same order at 120- hours were respectively 0.27, 0.35, 0.36 and 0.47-m. The

migration depths below the contaminated layer were less distinct among the elements in the beginning of the simulation. Bare soil and short grass showed similar vertical migration depths compared to other elements in spite of increase in soil porosity and initial moisture content for the latter. This behavior could be attributed mostly to the vegetation resistance to gas flow, which was smaller in short grass case compared to forest element.

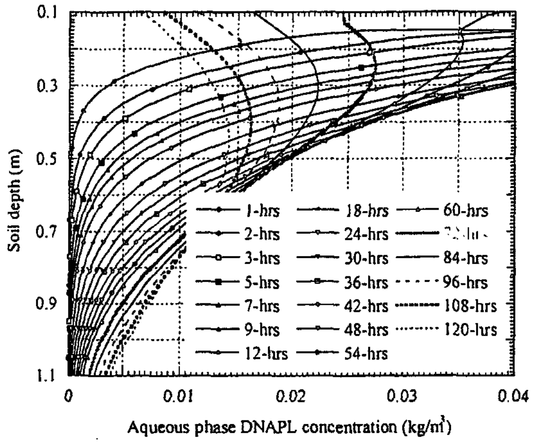


Fig. 15 Aqueous concentration in forest (no rain)

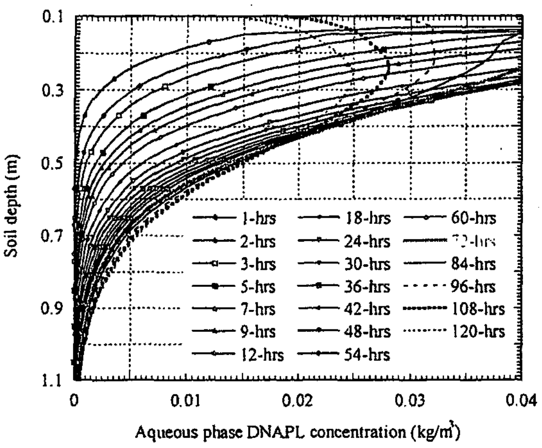


Fig. 16 Aqueous concentration in porous pavement (no rain)

The concentration profiles below the contaminated layer for forest and porous pavement in rainfall condition are shown in figures 17 and 18 respectively. The land elements were in the same order in terms of vertical DNAPL migration depths as in no rainfall case. The depths of maximum concentration at 96-hours of simulation for porous pavement, bare soil, short grass and forest were 0.12, 0.14, 0.21 and 0.32-m respectively. These depths at the end of the simulation were respectively 0.24, 0.28, 0.31 and 0.42 meters. This scenario indicated that the depths of maximum concentrations at any time along the vertical soil profile in rainfall condition were relatively smaller than in no rainfall condition. For instance, the depths of maximum concentration at the end of the simulation in forest element in rainfall and no rainfall conditions were respectively 0.42 and 0.47 meters. At the same time, the maximum concentrations at any time below the contaminated layer increased in rainfall condition than that of the corresponding cases in no rainfall condition. As for example, porous pavement and forest in no rainfall condition showed only 50% and 65% maximum concentrations of the corresponding rainfall cases at the end of the simulation. These results again might strengthen the idea of reduced volatilization in topsoil in rainfall condition as discussed in the earlier paragraph. On the other hand, the maximum depths of aqueous phase DNAPL migration increased in rainfall condition compared to no rainfall condition. For instance, the concentrations at 1.10-m depth for porous pavement, bare soil, short grass and forest elements in no rainfall condition were about 33%, 60%, 69% and 72% of their respective values in rainfall condition. The initially saturated topsoil in rainfall condition might have played dual roles in this context. It might have reduced the interaction between the surface and the subsurface in terms of soil temperature and moisture fluctuations, which might have resulted to reduced DNAPL volatilization. At the same time, it provided enough moisture for percolation resulting to deeper DNAPL migration in aqueous phase. The downward migration process might have been enhanced further in vegetated elements due to their bigger porosities, relatively bigger initial moisture contents and shielding effect for the incoming solar radiation.

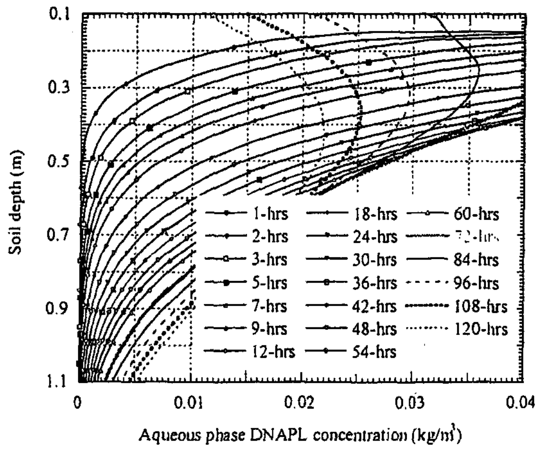


Fig. 17 Aqueous concentration in forest (rain)

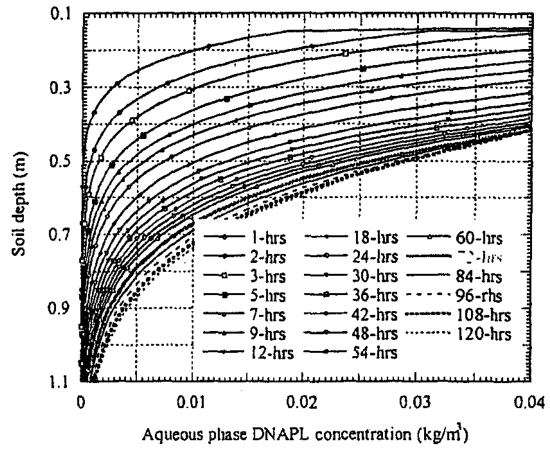


Fig. 18 Aqueous concentration in porous pavement (rain)

5.4 Gas Phase DNAPL Migration Behavior

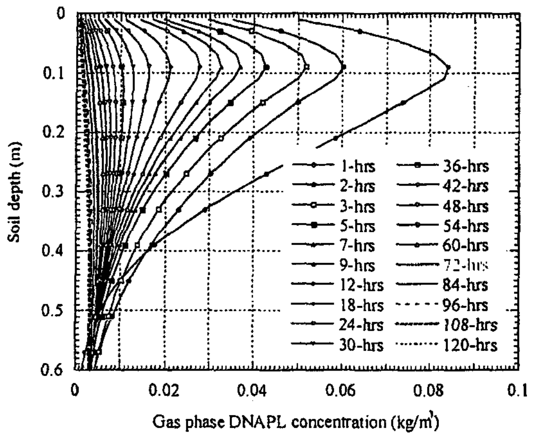


Fig. 19 Gas concentration in forest (no rain)

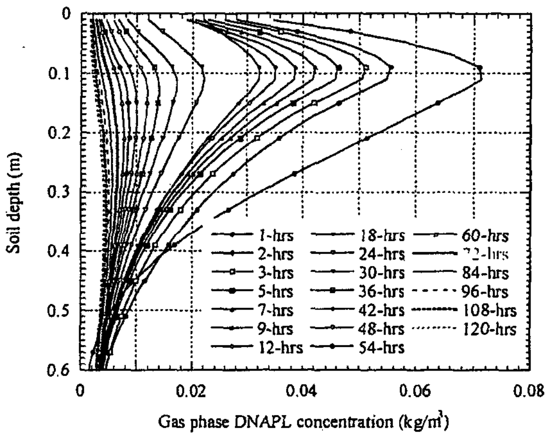


Fig. 20 Gas concentration in porous pavement (no rain)

Figures 19 and 20 show DNAPL gas concentration profiles for forest and porous pavement elements respectively in no rainfall condition. The gas concentration gradually decreased towards both the vertical directions from the bottom of the contaminated layer in all the elements. More than 90% gas phase contaminant decreased within the first 12-hours simulation probably due to the contaminant being present at the top of the soil domain. Another important reason for such drastic changes in gas phase concentrations could be the initial low moisture content and its quick redistribution in the first twelve hours period, as was discussed in the earlier section. The maximum concentrations at 12-hrs were observed at 0.09-m depth in all elements unlike the case in aqueous phase concentration. Not any such distinct trend in terms of gas phase concentration decrease was observed in the contaminated layer among the land-use conditions like in aqueous phase concentration distributions. However, the results indicated that the decreases were relatively bigger in vegetated elements.

There could be two possible ways of gas phase contaminant decrease in the contaminated layer. The first one was to escape to the atmosphere and the second was to migrate to deeper soils. In vegetated elements, the vegetation resistance could impose some restriction to gas phase contaminant movement to the atmosphere compared to non-vegetated cases in addition to their relatively bigger porosity. This might indicate that relatively higher fraction of gas

phase contaminant migrated to deeper soils in vegetated soils. On the other hand, DNAPL volatilization might have contributed to more gas phase contaminant in the contaminated layer of the non-vegetated elements since they exhibited bigger temperatures. This could have resulted to the relatively smaller concentration decreases in these elements.

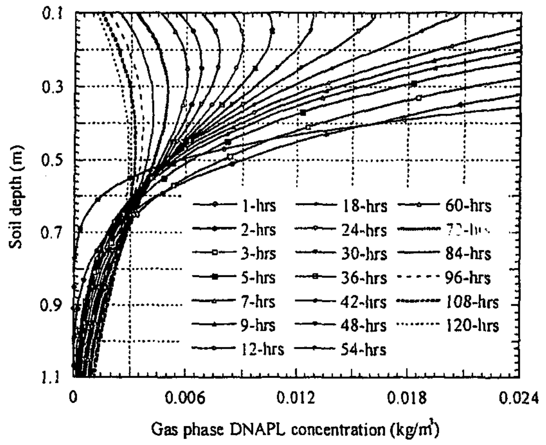


Fig. 21 Gas concentration in forest (no rain)

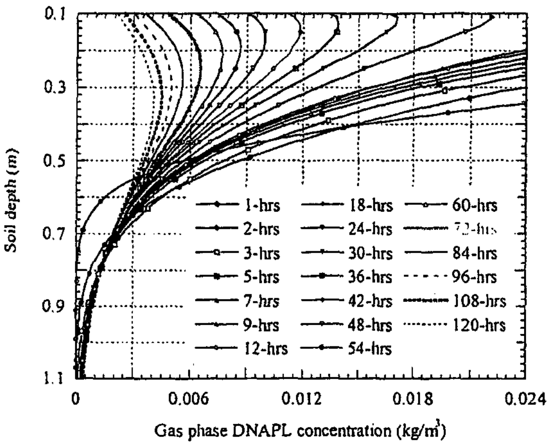


Fig. 22 Gas concentration in porous pavement (no rain)

The gas phase concentration profiles below the contaminated soil layer in no rainfall condition for forest and porous pavement are depicted in figures 21 and 22 respectively. From these figures, it is more clear that the concentration decreases were faster in vegetated element. For instance, the maximum gas phase concentration for forest at 72-hours was about 77% of the corresponding maximum value for porous pavement. Similarly at the end of the simulation, the maximum concentration for the former was about 70% of the latter. In terms of vertical migration depth in gas phase, forest and porous pavement showed the maximum and the minimum values respectively similar to the trend in aqueous phase. Short grass and bare soil were in the second the third places even though there was no such clear distinction between these two elements. As for example, porous pavement, bare soil, short grass and forest elements showed the maximum gas phase concentrations at 0.34, 0.40, 0.41 and 0.49-m soil depths respectively at the end of the simulation. Thus, the gas phase contaminant vertical spreading was significantly bigger than in dissolved phase.

In rainfall condition, the four land-use conditions exhibited similar tendencies as were in no rainfall condition with respect to gas phase contaminant transport. The concentration profiles below the contaminated soil layer in rainfall condition for forest and porous pavement are shown in figures 23 and 24 respectively. Similar with aqueous phase, the depths of maximum DNAPL gas concentrations decreased in rainfall condition compared to the corresponding no rainfall cases. For instance, the depths of maximum concentration for forest at 72-hours in no rainfall and rainfall conditions were 0.32 and 0.29 meters respectively. Similarly, these values at the end of the simulation were 0.49 and 0.47 meters. On the other hand, the maximum gas concentrations in rainfall condition increased. These values at 120-hours in no rainfall condition for porous pavement, bare soil, short grass and forest were about 47%, 58%, 64% and 66% of the corresponding values in rainfall condition. These scenarios of gas phase concentrations might imply that the initially saturated topsoil layer played a vital role in two ways. In one hand, it might have reduced the interaction between atmosphere and soil resulting to smaller depths of maximum concentrations. On the other hand, the saturated soil cap reduced the escape of gas phase contaminant into the atmosphere resulting to the increase in the maximum concentration values in the soil domain.

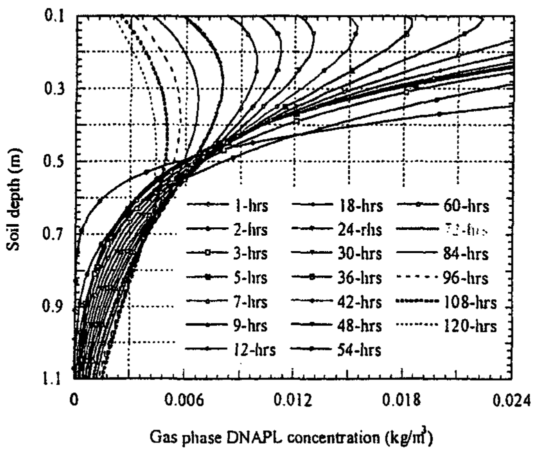


Fig. 23 Gas concentration in forest (rain)

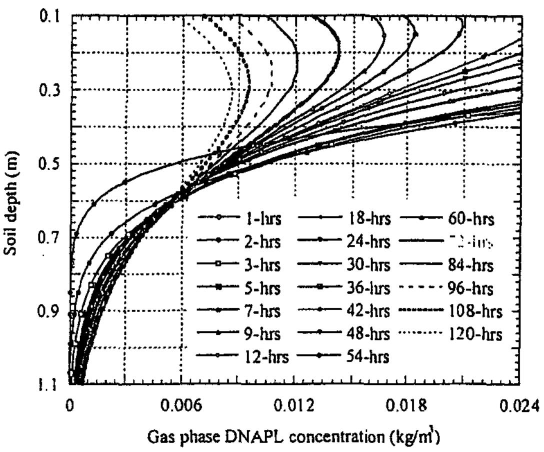


Fig. 24 Gas concentration in porous pavement (rain)

6. CONCLUSION

The simulation results indicated that the downward contaminant migration in both gas and aqueous phases largely depended on the diurnal soil moisture and temperature characteristics. On the other hand, the subsurface heat and moisture budgets were functions of vegetation, and soil hydraulic, thermal and radiation properties. Vegetated lands exhibited smaller diurnal soil moisture and temperature fluctuations compared to bare soil and compacted pavement materials in the urban area. The soil moisture fluctuations further decreased in rainfall condition.

The aqueous phase DNAPL concentration in the top contaminated soil layer decreased relatively faster and migrated down to the subsoil in vegetated lands. Reduced soil-atmosphere interaction as well as increased soil porosity and moisture content might have enhanced downward diffusion and convection resulting to deeper migration depths of aqueous phase DNAPL contaminant in vegetated lands. Rainfall percolation further enhanced the downward contaminant migration in aqueous phase. The gas phase DNAPL contaminant also showed the similar tendency. However, most of it escaped to the atmosphere from the top contaminated layer under no rainfall condition. The gas phase contaminant migrated relatively to deeper soils in rainfall condition. The top saturated soil layer reduced the escape of the gas into the atmosphere in the beginning resulting to deeper migration depths. In spite of the big losses of the gas phase contaminant into the atmosphere due to the position of the initially contaminated soil layer, the depths of vertical spreading were significantly bigger than in aqueous phase.

Since these simulated results provided basic information on the redistribution and vertical migration behaviors of DNAPL contaminants, further detail investigations including various transport processes for gas and dissolved phase contaminant in the equations, and sensitivity analyses on their relative importance are expected to enhance more insight in the matter.

Acknowledgement:

This study was financially supported by the Grants-in-Aid for Scientific Research (C- (1), theme no. 14550539) from the Japan Society for the Promotion of Sciences (JSPS) to Professor Dr. Kuniaki Sato (a representative of the research project) under the research title "Mathematical modeling and predictive analyses of soil contamination with coupled soil-atmosphere system". The authors express their sincere and profound gratitude for the support.

The authors also express their sincere gratitude to Professor T. Komatsu (the Editor-in-Chief, the Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering, JHHE) for his significantly important cooperation, and the three anonymous reviewers for their valuable comments and suggestions in improving this manuscript.

REFERENCES

1. Abriola, L. M. and Pinder, G. F. (1985): A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds: 1. Equation development. Water Resources Research, Vol. 21, No. 1, pp. 11-18.

2. Abriola, L. M. and Pinder, G. F. (1985): A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds: 2 Numerical simulation. Water Resources Research, Vol. 21, No. 1, pp. 19-26.

3. Arands, R., Lam T., Massary, I., Berler, D. H., Muzzio, F. J. and Kosson D. S. (1997): Modeling and experimental validation of volatile organic contaminant diffusion through an unsaturated soil. Water Resources Research, Vol. 33, No. 4, pp. 599-609.

4. Brubaker, K. L. and Entekhabi, D. (1995): An analytic approach to modeling land-atmosphere interaction: 1. Construct and equilibrium behavior. Water Resources Research, Vol. 31, No. 3, pp. 619-632.

5. Conant, B.H., Gillham, R.W. and Mendoza, C.A. (1996): Vapor transport of trichloroethylene in the unsaturated zone: Field and numerical modeling investigations. Water Resources Research, Vol. 32, No. 1, pp. 9-22.

6. Davis, L. C., Vanderhoof, S. L. and Lupher, D. (1998): Sorption of trichloroethylene (TCE) and other halogenated aliphatic on plant materials. Proceeding of the Conference on Hazardous Waste Research, pp. 319-325.

7. Garratt, J. R. (1994): The atmospheric boundary layer. Cambridge University Press, Great Britain.

8. Maraqa, M. A., Wallace, R. B. and Voice, T. C. (1999): Effect of water saturation on retardation of groundwater contaminants. Journal of Environmental Engineering (ASCE), Vol. 125, No. 8, pp. 697-704.

9. Nayaranan, M., Russell, N. K., Davis, L. C. and Erickson, L. E. (1996): Experimental and modeling studies of the fate of trichloroethylene in a chamber with Alfalfa plants. www. Engg.ksu.edu/HSRC, pp. 477-481.

10. Oke, T. R. (1972): Boundary Layer Climates, second edition. Cambridge University Press, Great Britain.

11. Padilla, I. Y., Yeh, T. C. J. and Conklin, M. H. (1999): The effect of water content on solute transport in unsaturated porous media. Water Resources Research, Vol. 35, No. 11, pp. 3303-3313.

12. Pankow, J. F. and Cherry, J. A. (1996): Dense chlorinated solvents and other DNAPLs in groundwater. Waterloo Press, Ontario Canada.

13. Sato, K., Wada, A., Sasaki, T. and Giri, R. R. (2001): A numerical approach to simulate heat and mass budgets in the topsoil and lower atmosphere for different land-use conditions. Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering (JSCE), Vol. 19, No. 2, pp. 31-46.

14. Siebert, J., Sievers, U. and Zdunkowski, W. (1992): A one-dimensional simulation of the interaction between land surface processes and the atmosphere. Boundary Layer Meteorology, Vol. 59, pp. 1-34.

15. Sleep, B. E. and Sykes, J. F. (1989): Modeling the transport of volatile organics in variably saturated media. Water Resources Research, Vol. 25, No. 1, pp. 81-92.

16. Son, P.H. and Sato, K. (1999): Heat and mass transfer between soil and atmosphere: Hanno case study. Annual Journal of Hydraulic Engineering, JSCE, Vol. 43, pp.61-66.

17. Takano, Y., Sato, K., Nishibayashi, K., Kubo, H. and Furuhara, T. (2001): Mathematical modeling of coupled DNAPL, heat and mass transport in unsaturated porous medium. Proceeding of the 29th IAHR Congress, Theme A, pp. 450-456, Beijing, China.

18. ten Berge, H. F. M. (1990): Heat and water transfer in bare topsoil and the lower atmosphere. Center for Agricultural Publishing and Documentation (Pudoc.), Wageningen, the Netherlands.

19. Wilkins, M. D., Abriola, L. M. and Pennell, K. D. (1995): An experimental investigation of rate-limited non-aqueous phase liquid volatilization in unsaturated porous media: Steady state mass transfer. Water Resources Research, Vol. 31, No. 9, pp. 2159-2172.

20. Yates, S. R., Papiernik, S. K., Gao, F. and Gan, J. (2000): Analytical solutions for the transport of volatile organic chemicals in unsaturated layered systems. Water Resources Research, Vol. 36, No. 8, pp. 1993-2000.

21. Zhang, Q., Davis, L. C. and Erickson, L. E. (1998): Effect of vegetation on transport of groundwater and non-aqueous phase liquid contaminants. Journal of Hazardous Substance Research, Vol. 1, pp. 1-20.

(Received February 12, 2002 ; revised September 18, 2002)

Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering
Vol. 21, No.2 November, 2003, 47-59

AN EXPERIMENTAL STUDY ON DNAPL FINGERING MECHANISM IN SATURATED POROUS MEDIA

By

Takayuki Ueno
Technical Research Institute, Obayashi Corporation,
640, Shimokiyoto 4-chome, Kiyose-shi, 204-8558, Tokyo, Japan

Rabindra Raj Giri
Geosphere Research Institute, Saitama University,
255 Shimo-okubo, Sakura-ku, Saitama-shi, 338-8570, Japan

Kenji Nishida
Technical Research Institute, Obayashi Corporation,
640, Shimokiyoto 4-chome, Kiyose-shi, 204-8558, Tokyo, Japan

and

Kuniaki Sato
Geosphere Research Institute, Saitama University,
255 Shimo-okubo, Sakura-ku, Saitama-shi, 338-8570, Japan

SYNOPSIS

Knowledge of dense non-aqueous phase liquid (DNAPL) fingering phenomena in water-saturated porous media, which has not been investigated thoroughly, can be useful in gaining deeper insight into the contaminant transport and remediation. Laboratory experiments on fingering behaviors of trichloroethylene (TCE) through saturated porous media, randomly packed with uniform glass spheres in transparent glass box, were carried out. A basic mathematical model was developed and the experimental data on TCE fingering were interpreted based on it. The fingers grew almost linearly with time. The effective porosity of the media n_e with three kind sizes of glass sphere (d = 1, 2 and 3-mm) were between 4.0×10^{-2} and 5.0×10^{-2} irrespective of glass sphere size, while their invasion factor k_r increased with pore size. Numerical values of k_r varied from 5.0×10^{-4} to 5.0×10^{-2} in this study. TCE mobility and other fingering characteristics were evaluated by using Zhang and Smith's mobile-immobile-zone (MIZ) model. Findings showed that core diameter δ_c of the fingers were almost the same while size of immobile zone δ_f increased with finger Reynolds number Re and relative intrinsic permeability K_{rd}, which suggested that TCE with smaller mobility occupied wider pore space in the media. Values of Re in this study were in between 4.0 and 110.0. Thus, in this study we will deal with the difficulties of the fingering phenomenon.

INTRODUCTION

Dense non-aqueous phase liquids (DNAPLs), such as trichloroethylene (TCE) and perchloroethylene (PCE), are among the most frequently detected contaminants in the subsurface (Salah Jellali et al., 2001). Physical properties of DNAPLs are as follows: low viscosity, high density, low interfacial tension with liquid water, low absorbability to soil materials and low biodegradability. These properties make them highly mobile as well as persistent in the subsurface environment (Cohen and Mercer, 1993; Pankow and Cherry, 1996).

Once released into the saturated subsurface, DNAPL migrates downwards through the pores as a result of flow instabilities induced by viscosity and density differences between liquid water and DNAPL. The displacing instabilities at the interface produce finger like appearance of the migrating

DNAPL even in homogeneous saturated porous media (Held et al., 1995). This phenomenon is known as fingering. In real site contamination, remediation techniques and their efficiency are often limited by a lack of knowledge of DNAPL movement behavior (Salah Jellali et al., 2001). Fingering is one of the important transport mechanisms for non-aqueous phase transport in saturated subsurface. Therefore, it is essential to have thorough a knowledge of DNAPL fingering mechanism and its behavior for effective remediation of the contaminated sites.

Many researchers have been involved in clarifying DNAPL fingering mechanism in saturated porous media by both laboratory and field scale experiments. Most of the authors have pointed out the instability at the interface of the immiscible fluids as the primary reason for fingering (Kueper et al., 1988; Held et al., 1995; Zhang Yuyong et al., 2000; Oostrom et al., 1999). Held et al. (1988) investigated DNAPL migration in water saturated, homogeneous porous media using three-dimensional spill experiments. Their results showed that generation of finger pattern is sensitive to the porous medium grain size, DNAPL properties and spill conditions. Glass et al. (2000) experimentally demonstrated gravity-destabilized nonwetting phase invasion and existence of pulsation behind the invasion through a saturated heterogeneous porous medium. Zhang Yuyong et al. (2000) applied an approach based on invasion potential in pressure gradient to describe DNAPL displacement patterns under the influence of gravity. Oostrom et al. (1999) visualized non-aqueous phase TCE fingering through a saturated layered soil column using an intermediate-scale flow box experiment. The results showed that the fingers were relatively thin at fiest, and their movement and shape depended on porous media characteristics.

More specified investigations of DNAPL fingering have been conducted in the past few years. Smith and Zhang (2001) presented a modified method to determine effective interfacial tension of PCE penetration through a water-saturated porous medium and to predict finger wavelength (spacing). They observed another characteristic of fingering, which is termed as "tip-growing", in addition to tip-splitting, coalescing, and shielding. Zhang and Smith (2001) proposed a conceptual mobile-immobile-zone (MIZ) model to describe the structure of a DNAPL finger and velocity of finger propagation in the porous media, and experimentally verified the modeled prediction utilizing image analyses technique. The results showed that the fingers grow linearly with time, and that their lateral growth is insignificant once the tip of the finger passes a point of consideration. In another experimental investigation, Zhang and Smith (2002) concluded that use of classic equations on the basis of multiphase flow models without considering fingering phenomenon overestimates the averaged DNAPL content and underestimates the depth of DNAPL penetration.

Although many research works have been conducted on DNAPL fingering to date, the fingering mechanism has not yet been well understood and formulated. Therefore, there remains a challenge to scientists and researchers to thoroughly understand DNAPL fingering, which would be valuable in performing effective remediation of contaminated sites.

This paper aims to get gain a deeper insight into the DNAPL fingering mechanism in water-saturated porous media in two-dimensional laboratory scale experiments. The main objectives are: (a) to visualize DNAPL fingering process, (b) to describe and analyze the fingering mechanism, and (c) to predict finger dimension and velocity. The porous media in the experiments consisted of a two-dimensional box packed with uniform-size glass spheres, and dyed TCE was used as a typical DNAPL.

EXPERIMENTAL SETUP AND METHOD

Experimental Setup

Figure 1 shows a photographic view of the experimental setup. The components of the setup are ①: porous medium model, ②: microscope camera, ③: microscope body, ④: video monitor, and ⑤: video recorder, as indicated in the figure. DNAPL fingering in water-saturated porous medium models is recorded by means of a microscopic camera with high accuracy. The recorded pictures are digitized with the microscope body. The DNAPL fingering is displayed on the video monitor, and it is simultaneously recorded with video recorder. All the data are processed by an analyzer and a computer.

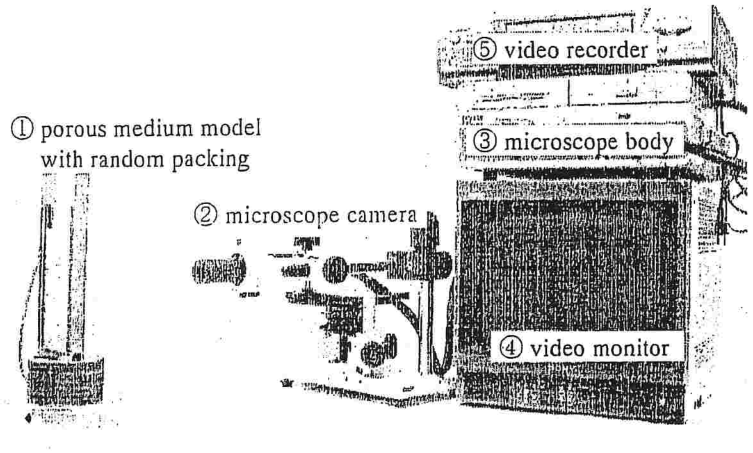


Fig. 1 A photographic view of experimental setup

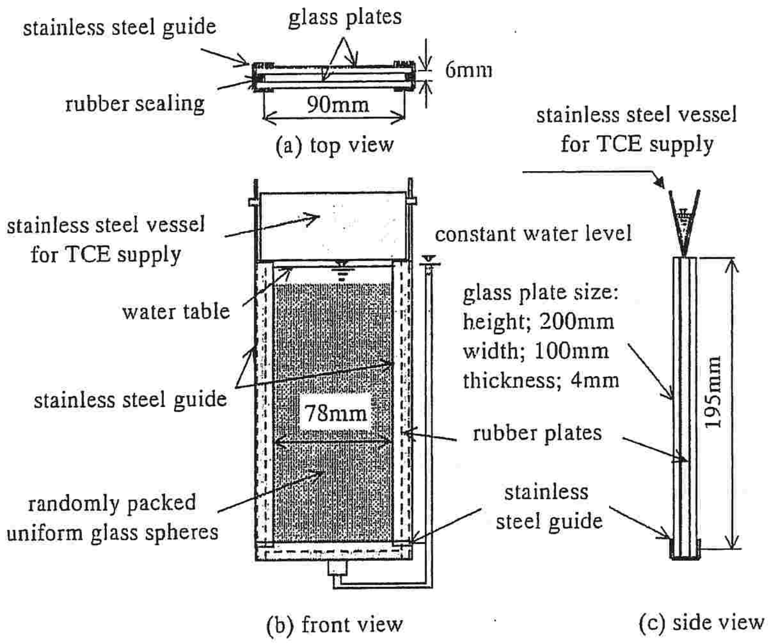


Fig. 2 A schematic diagram of porous medium

Porous Medium Models

A schematic diagram of the porous medium models used in the experiment is presented in **Fig. 2**. The models consist of a rectangular transparent glass box with 200-mm height, 100-mm width, and 6-mm thickness. The edge of the glass box is equipped with stainless steel guides and a completely seal for any leakage. The box is filled with uniform size glass spheres in random packing. Three kind sizes of glass sphere are employed in the experiments, as shown in **Table 1**. A constant head water pipe originates from the bottom of the box and extended up to its top, as shown in **Fig. 2**. A cone shaped stainless steel vessel is placed at the top of the box for non-aqueous phase TCE supply. TCE is dyed red with scarlet color for better visibility of finger images.

Experimental Procedure

The glass box is completely filled with water after clamping it vertical. Glass spheres are then placed into the box carefully in random packing, avoiding air bubbles within the box. About a 5-cm gap is maintained between the top surface of the glass spheres and water level, as shown in **Fig. 2**.

Table. 1 Experimental cases

glass sphere diameter (d) mm	porosity (n)	size of porous medium model (mm)			penetrating DNAPL
		width	height	thickness	
1.0	0.486	90	195	6	TCE
2.0	0.481				
3.0	0.537				

A known volume of dyed TCE is filled into the conical vessel and it is, then, placed over the box so that the tip of the vessel completely immerse into the water. The bottom valve of the conical vessel is gradually opened to pour TCE uniformly throughout the box cross-section. The cumulative volume of TCE poured into the box until the TCE just started to penetrate into the water-saturated pores is recorded. The recorded TCE volume divided by cross-sectional area of the box (90mm x 6mm) give an approximate pounding depth when TCE just started to penetrate. It is known as critical depth and denoted with h_{0c} (see **Fig. 3**). The TCE penetration is recorded using a video camera and video recorder set and are simultaneously displayed in the monitor. The process is continued until the finger reaches to the bottom of the box. The same procedure is repeated with other sets of porous media with three kind sizes of glass sphere. As shown in **Fig. 6**, the actual length of a finger ζ_s and its vertical projection ζ are measured from digitized pictures recorded in the experiments. The slopes of the lines obtained by plotting actual finger length and its vertical projection with time are taken as actual finger velocity w_s and vertical finger velocity w, respectively.

EXPERIMENTAL RESULTS

Transient TCE fingering at various points through a water-saturated porous medium model with 1-mm glass sphere size is presented as an example in **Fig. 3**. The critical pounding depth h_{0c} in this case is 2.1 cm, while the vertical distance traveled by the finger at 63 seconds is about 12.0 cm. The fingers for 2-mm and 3-mm glass sphere sizes are shown in **Fig. 4** (a) and (b). The critical pounding depths h_{0c} for 2mm is 1.8 cm, while the vertical distance ζ (t = 41sec) covered by fingers is about 14 cm. For 3mm glass sphere size, h_{0c} is 1.1cm and ζ (t = 17sec) is about 12cm. Our experiment for regularly packed porous media with same sized glass beads revealed that h_{0c} ranged from 0.1cm to o.42cm (Ueno, 2003). The finger patterns in all the three cases are almost similar. Although more than one finger appeared in the beginning of the experiments, only one finger reached the bottom of the box in each case. The other branched fingers were not as distinct and significant compared to the stem finger. Contrary to our observations, more than one finger appeared simultaneously and continued up to the bottom, as was observed by Zhang and Smith (2001, 2002). This difference in finger numbers can be attributed to wider lateral dimensions of the porous model itself in their experiment. Zhang and Smith used a wider transparent glass box in dimension (0.5H×0.6W×0.01D-m) than that of in our experiment (sees **Fig. 2**). Another important difference between these two studies is the finger propagation velocity. Finger travel time in Zhang and Smith is somewhat longer (4 to 10minutes in travel time) mainly due to smaller glass bead diameter (mean particle diameter varied between 0.32 and 1.36mm).

Experimental correlations between vertical finger length ζ and elapsed time t for the three cases are shown in **Fig. 5**. The vertical distance traversed by the fingers is almost linear for each porous medium type. The slopes of the fitted lines based on two runs data in those correlations represent average vertical velocities of the fingers. Progressive velocities corresponding to 1-mm, 2-mm and 3-mm glass sphere sizes are 0.19, 0.37, and 0.59 cm/s, respectively. As predicted, the average vertical finger velocity increased with the pore size. Thus, these observations disclosed functional relationships among average velocity of the fingers and pore space in the porous media.

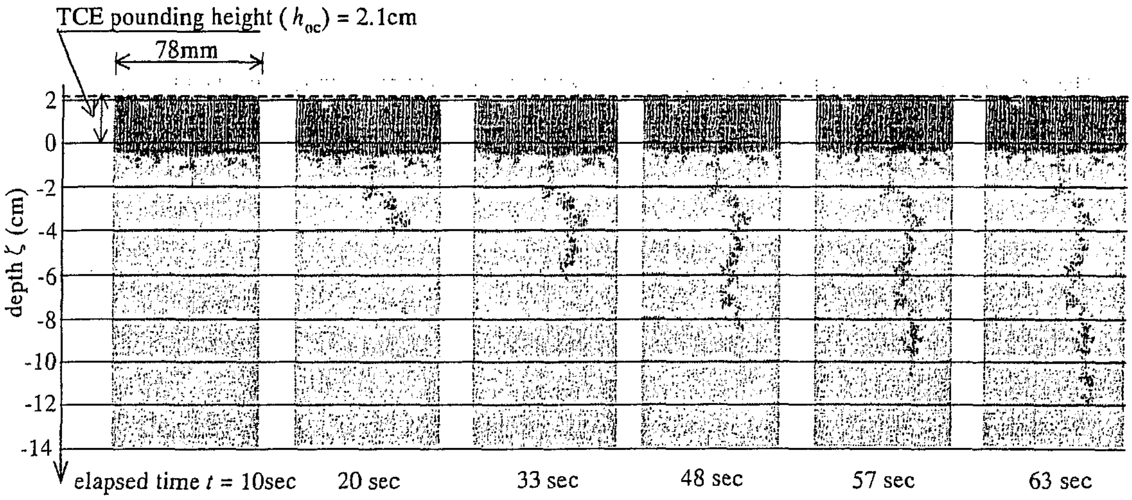


Fig. 3 TCE fingering through a water-saturated porous medium with 1-mm glass sphere size

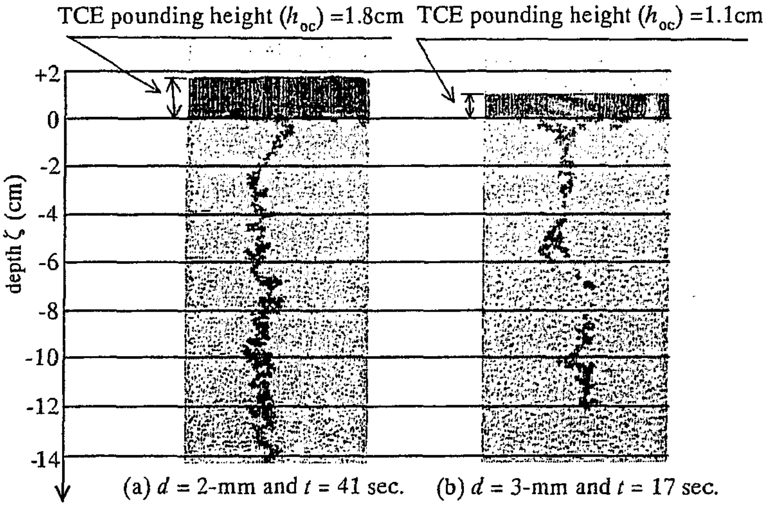


Fig. 4 TCE fingering through water-saturated porous medium with 2 and 3-mm glass sphere sizes

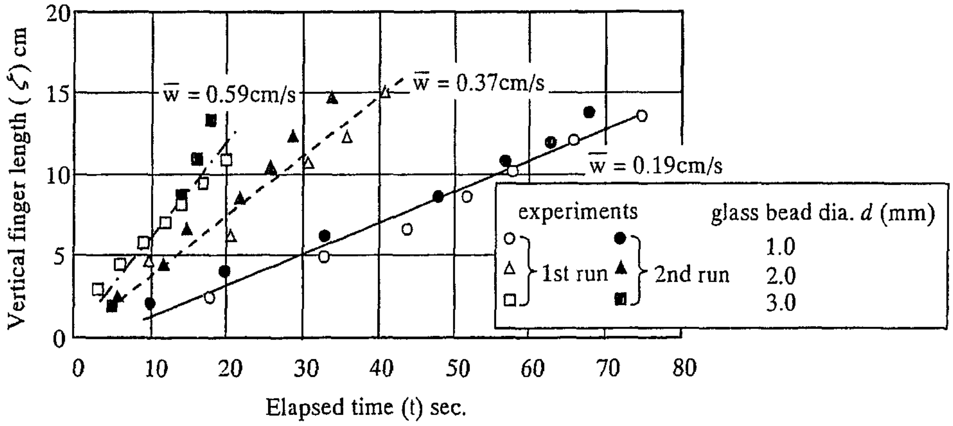


Fig. 5 Finger growth and its average velocity

RESULTS AND DISCUSSION

Formulation for DNAPL Finger Length

A conceptual schematic diagram of TCE fingering through a water-saturated box, as mentioned previously is shown in **Fig. 6**. The winding path is assumed to consist of small path elements, and let us consider an infinitesimal element $d\zeta_s$ of the finger propagating to downwards with intrinsic velocity w_s. Then, the vertical component of the finger velocity is given by $w = w_s \sin\theta_i$. Similarly, $\zeta = \zeta_s \sin\theta_i$ represents the vertical finger length, where ζ_s: the actual finger length at the time considered. TCE, in such a case, moves along a tortuous path through the pores with deviation angel θ_i, and the finger diameter δ_f on many travel path elements is considered to be constant throughout its length (Zhang and Smith, 2001).

By applying Darcy's law for an infinitesimal finger element $d\zeta$ within a small time interval Δt, vertical finger velocity w can be expressed by the following equation:

$$w = kk_r \frac{(\zeta + h_{oc} + \zeta_c)}{\zeta} \tag{1}$$

where, k: invasion permeability (Darcy's) of DNAPL, k_r: invasion factor related to density difference between DNAPL and pore water, and irregularity of finger, h_{oc}: DNAPL pounding depth at the top of the box, and ζ_c: capillary pressure head of water and DNAPL at the point of consideration in the finger. By applying one-dimensional mass balance for the infinitesimal DNAPL finger along vertical (**Fig. 6**), we get, $d\zeta \sin\theta_i \times 1 \times n_e = w \sin\theta_i \times dt$ for unit cross sectional area of finger. The vertical component of the finger propagation velocity is given by rearranging the mass balance equation as:

$$w = n_e \frac{d\zeta}{dt} \tag{2}$$

where, n_e: effective porosity occupied by DNAPL.
By combining equations (1) and (2), we can obtain a basic equation for DNAPL finger elongation as:

$$kk_r \frac{(\zeta + h_{oc} + \zeta_c)}{\zeta} = n_e \frac{d\zeta}{dt} \tag{3}$$

Integration of equation (3) gives the following:

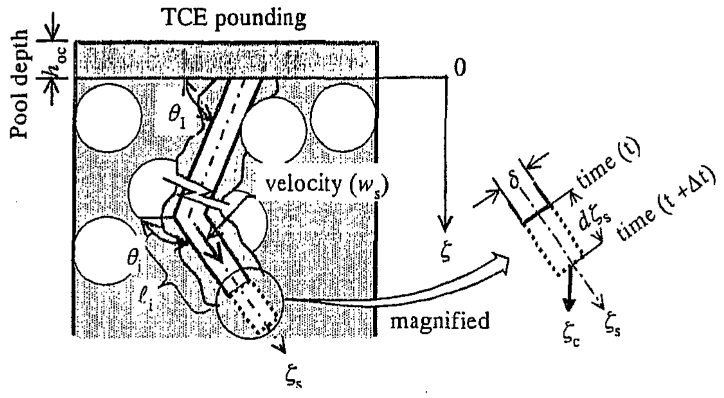
$$\int \left(\frac{\zeta}{\zeta + h_{oc} + \zeta_c} \right) d\zeta = \int \frac{kk_r}{n_e} dt + C$$

The constant of integration is evaluated with the condition $\zeta = 0$ for $t = 0$ as,

$$C = -(\zeta_c + h_{oc}) \ell og |\zeta_c + h_{oc}|$$

Then, the final equation for finger length is give by,

$$\zeta + (\zeta_c + h_{oc}) \ell og \frac{(\zeta_c + h_{oc})}{\{\zeta + (\zeta_c + h_{oc})\}} = \frac{kk_r}{n_e} t \tag{4}$$



F ig. 6 A conceptual diagram of TCE fingering through a water-saturated porous medium

Table. 2 Parameter values used in calculations

properties of porous medium		TCE ponding depth	effective porosity	invasion factor
glass sphere diameter d (mm)	permeability coefficient k (*cm/s*)	h_{oc} (*cm*)	n_e	k_r
1.0	6.1	2.1	0.04	0.001~0.002
			0.05	
2.0	23.4	1.8	0.04	0.0005 ~0.001
			0.05	
3.0	93.2	1.1	0.04	0.0002 ~0.0003
			0.05	

Porous Medium Characteristics and DNAPL Fingering

Equation (4) expresses a functional relationship between finger length and elapsed time. But, the calculation of $\zeta(t)$ is not possible unless the values of ζ_c and some parameters k, k_r and n_e are known. For example, values of permeability k, effective porosity n_e, and invasion factor k_r, and capillary pressure head ζ_c are required for evaluating the relationship. In this study, suitable values of these coefficients are estimated for the cases with three kind sizes of glass sphere (d = 1, 2 and 3-mm). Darcy's permeability of the porous media k is determined by using Kozeny-Carman's empirical equation as:

$$k = d_m^2 g n^3 / 180\nu \left(1 - n^2\right) \tag{5}$$

where, d_m: mean particle size, n: porosity of the medium, ν: kinematic viscosity of the fluid, and g: gravitational acceleration. Other coefficients are determined by comparing theoretical correlations with experimental ones. The values of the coefficients employed in the calculations are shown in **Table 2**.

The correlations of vertical finger length and fingering path lengths ζ with elapsed time t in a water-saturated porous medium model consisting of 1-mm diameter glass spheres and using equation (4) are presented in **Figs. 7**. The experimental results are denoted with circles on theoretical ζ - t curves in different n_e and k_r values. TCE finger velocity ($d\zeta/dt$) increased with decreasing effective porosity, in general, for the same value of invasion factor, as seen in **Fig. 7**. The velocity increased with invasion factor k_r also, as observed in the figure. The experimental results show

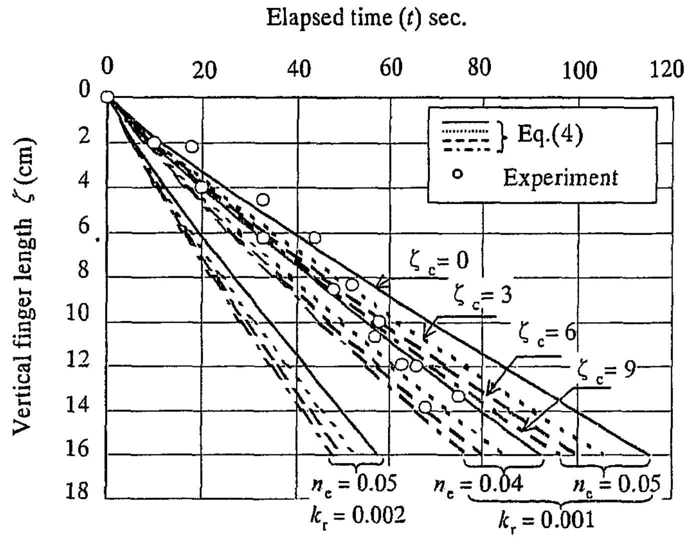


Fig. 7 Relationship between ζ and t for glass sphere diameter d = 1 mm

Table. 3 Inversely identified values of n_e and k_r

parameters	finger length along	glass sphere diameter (d)		
		1.0 mm	2.0 mm	3.0 mm
effective porosity(n_e)	vertical	0.04 ~ 0.05	0.04 ~ 0.05	0.04 ~ 0.05
invasion factor (k_r)	vertical	0.001	0.0005	0.0002 ~ 0.0003

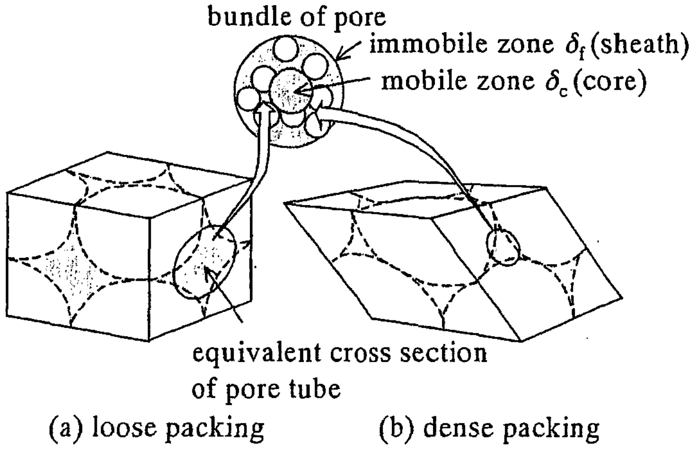


Fig. 8 Unit rhombohedron formed by passing planes through the centers of eight contiguous spheres

that effective porosity n_e varied from 0.04 to 0.05, and invasion factor k_r was 0.001 in the case of vertical finger length (see **Fig. 7**). Similar correlations of finger lengths with time are calculated and compared with the experimental data for two other glass sphere sizes (d = 2 and 3-mm) in the porous media. The theoretical correlations of finger length ζ and with elapsed time t are distinct for capillary pressure values ζ_c from 0 to 9cm. However, the unique value of capillary pressure head ζ_c was not

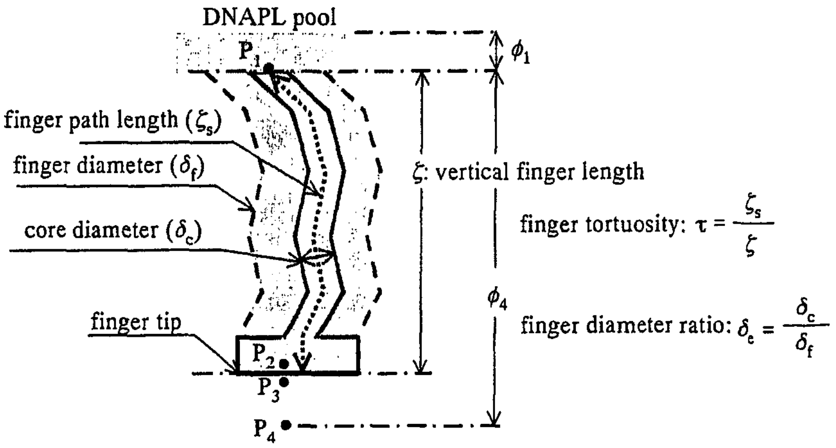


Fig. 9 Mobile-immobile-zone (MIZ) model for DNAPL fingering (Zhang and Smith, 2001)

determined, as can be seen in **Figs. 7**. The estimated values of effective porosity and invasion factor for the three experimental cases are summarized in **Table 3**.

There are two extreme packing structures of an ideal porous medium composed of spherical glass spheres. They are loose and dense packing, as shown in **Fig. 8** (a), (b) (Slichter, 1899). In random packing of spheres, the bulk (or geometrical) porosity n of the medium varies between 0.112 and 0.215. In general, an effective porosity n_e value is smaller than the corresponding bulk porosity. The effective porosity in the experiments discussed in the present study ranged from 0.04 to 0.05 for the three kind of glass sphere (d = 1, 2 and 3-mm). A TCE finger penetrating through a water-saturated porous medium is conceptualized as a tube with constant diameter δ (Zhang and Smith, 2001). The cross-sectional area of the tube is expected to be the same as that of the pore through which the finger passes in loosely and densely packed porous medium models. Then, the tube diameters in dense and loose packing cases are given by $\delta = \{(2\times3^{1/2}-\pi)d/2\}^{1/2}$ and $\delta = \{(4-\pi)d/\pi\}^{1/2}$ on a closed cut face, respectively (see **Fig. 9**). The values of δ in the present experiments with 1, 2 and 3-mm glass sphere sizes are varied from 0.127 to 0.165, 0.180 to 0.234 and 0.220 to 0.287 mm, respectively. Similarly, the diameter ratios of the TCE finger δ_e (= δ_c/δ_f, δ_c: finger core diameter, δ_f: finger diameter, see **Fig. 9**), which will be discussed in the next section corresponding to the three kinds of glass sphere are δ_e = 0.40, 0.30, and 0.20. It was observed that the finger core diameter δ_c had almost the same values for three kinds of glass media if the equivalent diameter of pore tube as a bundle of pore tubes would be assumed to be equal to those of Zhang and Smith's δ_c.

Mobile-Immobile-Zone (MIZ) Model

Zhang Z. F. and Smith J. E. (2001) proposed a mobile-immobile-zone (MIZ) model to describe DNAPL finger structure and motion in water-saturated porous media. A finger is conceptualized as two circular coaxial tubes. The space between the tubes represents the DNAPL immobile zone or sheath, and the mobile zone or core with tube shaped cross section. However, there is no distinction between these two regions at the tip of the finger since all the DNAPL is mobile. The schematic diagram of a finger and the notations used in the MIZ model are shown in **Fig. 9**. A detailed explanation of the model is available in Zhang and Smith (2001).

They proposed a mathematical equation to express vertical finger velocity based on the MIZ model as:

$$w = \left(\frac{\delta_e}{\tau}\right)^2 \frac{KK_{rd}}{\theta_d \mu_d}\left[g\left(\rho_d - \rho_w\right) + \frac{\left(\phi_1 - \phi_4 - p_c\right) - \varepsilon}{\zeta_s}\right], \rho_d > \rho_w \qquad (6)$$

Table. 4 Parameter values used in MIZ model

porous medium model		TCE		water	DNAPL content by volume within finger θ_d	relative intrinsic permeability of DNAPL K_{rd}
glass sphere diameter d (m)	intrinsic permeability K (m^2)	density ρ_d (kg/m^3)	viscosity μ_d (Pa.sec)	density ρ_w (kg/m^3)		
0.001	2.405×10^{-09}	1468.0	5.66E-04	1000.0	0.386	0.4 ~ 0.6
0.002	9.203×10^{-09}				0.381	
0.003	3.626×10^{-08}				0.437	

where, $\delta_e = \delta_c/\delta_f$: diameter ratio of the mobile core to that of the whole finger; K: intrinsic permeability of DNAPL; K_{rd}: relative intrinsic permeability of the DNAPL; τ: finger tortuosity θ_d: volumetric DNAPL content in the finger; μ_d: dynamic viscosity of DNAPL; ρ_d and ρ_w: densities of DNAPL and water, respectively; ϕ_1 and ϕ_4: hydraulic potentials at points P_1 and P_4, respectively, in **Fig. 9**; p_c: capillary pressure across DNAPL-water interface at the finger tip; ε: hydraulic potential difference between the points P_3 and P_4; ζ_s: actual finger length and ζ: vertical finger length. Point P_1 indicates a point at the top of a finger, point P_2, a tip point of finger, point P_3, outside of P_2, and point P_4, a point on boundary.

They defined finger tortuosity τ as the ratio of actual finger length ζ_s to vertical projection ζ or actual finger velocity w_s to its vertical component w. The term ε/ζ_s is very small and it further decreases with increasing finger length. Similarly, the effect of pounded DNAPL and finger induced flow approach to zero with increasing finger length. Therefore, they neglected the term $(\phi_1 - \phi_4 - p_c)/\zeta_s$ in equation (6). They finally obtained an expression for evaluating relative finger diameter size δ_e as:

$$\delta_e = \tau\left[\frac{w\theta_d\mu_d}{KK_{rd}g\left(\rho_d - \rho_w\right)}\right]^{1/2}, \rho_d > \rho_w \tag{7}$$

Identification of Relative Finger Diameter and DNAPL Mobility

The relative diameter of the mobile core of TCE fingers in the present experiments was evaluated using equation (7). The parameter values adopted in the calculations are shown in **Table 4.** The intrinsic permeability values for the three porous media in this study were obtained from Kozeny-Carman's empirical equation. TCE content θ_d was calculated using the relation: $\theta_d = n-\theta_{rw}$, where n: measured porosity of the medium (refer to **Table 1**) and θ_{rw}: residual water in the pores after TCE invasion. Zhang and Smith (2001) determined the value of θ_{rw} as 0.1 from moisture characteristic curve for PCE invasion through water-saturated media with glass sphere size varying from 0.32 to1.4mm. We used the same value in this study since the porous media characteristics were almost similar to those observed by Zhang and Smith. The relative intrinsic permeability value for TCE was identified to be between 0.4 and 0.5, which was also adopted from Zhang and Smith (2001). The averaged values of the relative core diameters were identified as 0.40, 0.30 and 0.20 for porous media with 1, 2 and 3-mm glass sphere sizes, respectively, in our study.

DNAPL finger Reynolds number Re is defined as dw/v_d here, where d: glass sphere diameter employed in the porous media, w: vertical component of finger velocity and v_d: kinematic viscosity of DNAPL. The finger Reynolds number is a ratio of inertial and viscous forces closely related to fingering. Thus, bigger Re value signifies increased flow instabilities and faster DNAPL movement. A correlation between δ_e and Re for TCE fingers for relative permeability value of K_{rd} = 0.5 is presented

in **Fig. 10**. This finding provides evidence that the diameter ratio decreased with increasing Reynolds number. Also, the finger Reynolds number increased with pore size of the porous media. Higher values

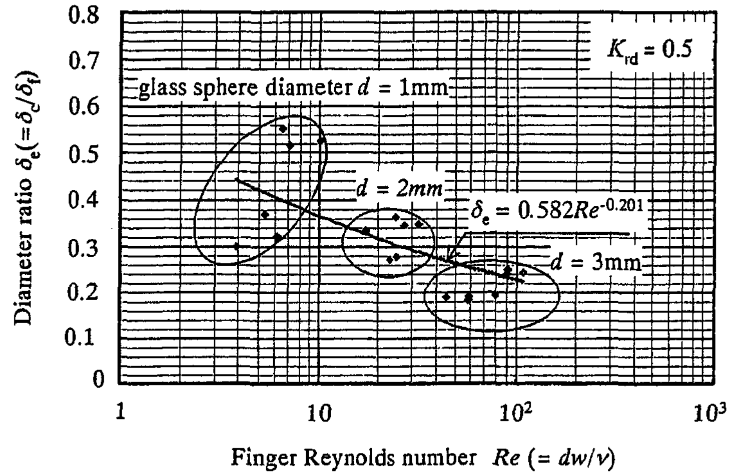


Fig. 10 Relationship between finger Reynolds number (Re) and diameter ratio (δ_e)

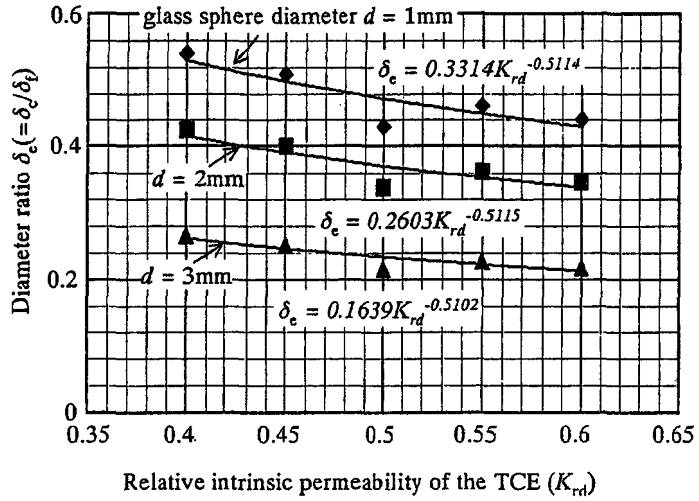


Fig. 11 Relationship between relative intrinsic permeability of TCE (K_{rd}) and finger diameter ratio (δ_e)

of Reynolds number means bigger pore size and vertical finger velocity. Thus, it appears that the diameter of the mobile core within a DNAPL finger decreases with increasing pore size and finger velocity. Conversely, a big fraction of DNAPL is mobile within a finger for smaller pore size and vertical finger velocity. However, as aforementioned, the core diameter δ_c remained almost unchanged in all the experiments. Therefore, this clearly suggests that the variation in finger diameter ratio $\delta_e = \delta_c / \delta_f$ is greatly affected by immobile diameter δ_f (sheath) rather than the pore size and finger Reynolds number. The immobile zone thickness δ_f increased with increasing finger velocity. An experimental correlation between δ_e and Re in this study is expressed as:

$$\delta_e = a\left(Re\right)^{-b} \qquad (8)$$

where, the constant "a" and exponent "b" have 0.582 and 0.201 values, respectively. The relative diameter of the mobile core δ_e and finger Reynolds number in this case varied from 0.44 to 0.23, and

from 4.0 to 110.0, respectively. It says that the DNAPL core size δ_c can not be determined if the pore size δ and effective porosity occupied by DNAPL n_e are estimated.

Referring to K_{rd} in Table 4, correlations between relative finger diameter δ_e and relative intrinsic permeability K_{rd}, using Eq. (7) proposed by Zhang and Smith, for the three kind sizes of glass sphere are shown in **Fig. 11.** The diameter ratio gradually decreased with increasing relative intrinsic permeability. The tendency of the relationship seemed similar to the three kinds of glass sphere. A clear difference among them is the decrease of diameter ratio with increasing pore size. Thus, a comparison of these three cases in **Fig. 11** also reveals that the overall finger diameter increased with pore size. Therefore, it is apparent that size of the immobile zone δ_f increased with finger Reynolds number *Re* and relative intrinsic permeability K_{rd}, which may suggest longer DNAPL persistence in the saturated pore space.

CONCLUSION

TCE fingering through water-saturated porous medium models, which were prepared with randomly packed uniform size glass spheres in a transparent glass box, was visualized in laboratory scale experiments. Once fingering was initiated, TCE fingers grew almost linearly with time, which was similar to the observations made by Zhang and Smith (2001 and 2002). A basic mathematical model relating finger length and properties of porous medium and TCE under constant pounding boundary condition was developed. TCE fingering characteristics were interpreted by using the experimental data and the basic equation. The values of effective porosity n_e varied from 4.0×10^{-2} to 5.0×10^{-2} irrespective of the glass sphere size in the porous media. However, invasion factor k_r increased with increasing pore size in the media, and the values were between 2.0×10^{-4} and 1.0×10^{-3}.

TCE mobility and other fingering characteristics through the water-saturated porous media were examined by means of the MIZ model proposed by Zhang and Smith (2001). The relative core diameters of the fingers δ_e for three kind sizes of glass sphere ranged between 0.20 and 0.40. The results showed that mobile core diameters δ_c of the fingers were almost the same while size of immobile zone δ_f increased with finger Reynolds number and relative intrinsic permeability. These findings suggested that less mobile TCE (within sheath) occupied wider pore space in the porous media. The finger Reynolds number in our experimental study covered between 4.0 and 110.0. The results obtained from this study will be useful in providing a new approach to deal with the fingering phenomenon.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been supported by Grants-in-Aid (Representative person: Dr. Kuniaki Sato, Professor of Geosphere Research Institute, Saitama University) for Scientific Research System, (C)-(1), No.14550539 on "development of integrated numerical method for predicting soil and groundwater pollution based on atmosphere linked model" in 2002 and 2003 fiscal years. The authors are grateful to president, Motoyuki Ono, of Japan Society for the Promotion of Science (JSPS).

REFERENCES

1. Bear J. (1972): *Dynamics of Fluids in Porous Media*, American Elsevier, pp.165-167.
2. Glass R.J., Conrad S.H. and Peplinski W. (2000): Gravity-destabilized phase invasion in macroheterogeneous porous media: Experimental observations of invasion dynamics and scale analysis. *Water Resources Research*, Vol. 36, No. 11, pp. 3121-3137.
3. Held R.J. and Illangasekare T.H. (1995): Fingering of dense non-aqueous phase liquids in porous media. 2: Analysis and classification. *Water Resources Research*, Vol. 31, No. 5, pp. 1223-1231.
4. Held, R.J. and Illangasekare, T.H. (1995): Fingering of dense non-aqueous phase liquids in porous media: 1. Experimental investigation, *Water Resources Research*, Vol.31, No. 5, pp.1213-1222.

5. Kueper, B.H. and Frind, E.O. (1988): An overview of immiscible fingering in porous media, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.2, pp. 95-110.
6. Mercer J.W. and Cohen R.M. (1990): A review of immiscible fluids in the subsurface: properties, models, characterization and remediation. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 6, pp. 107-163.
7. Oostrom M., Hofstee C., Walker R.C. and Dane J.H. (1999): Movement and remediation of trichloroethylene in a saturated heterogeneous porous medium. 1: Spill behavior and initial dissolution. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 37, pp. 159-178.
8. Pankow J.F. and Cherry J.A. (1996): *Dense Chlorinated Solvents and other DNAPLs in Groundwater*. Waterloo Press, Ontario, Canada.
9. Salah J., Paul M., Oliver R. and Gerhard S. (2001): Large scale experiment on transport of trichloroethylene in a controlled aquifer. *Transport in Porous Media*, Vol. 44, pp. 145-163.
10. Slichter C. (1899): Theoretical investigation of the motions of ground waters. *United State Geological Survey*, pp. 301-323.
11. Smith J.E. and Zhang Z.F. (2001): Determining effective interfacial tension and predicting finger spacing for DNAPL penetration into water-saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 48, pp. 167-183.
12. Ueno T. (2003): Dynamic mechanism on gravitational dispersion on dense non-aqueous phase liquids in porous medium model. *Doctor thesis of Saitama University*, pp. 23-47
13. Zhang Y., Shariati M. and Yortsos Y.C. (2000): The spreading of immiscible fluids in porous media under the influence of gravity. *Transport in Porous Media*, Vol. 38, pp. 117-140.
14. Zhang, Z.F. and Smith, J.E. (2001): The velocity of DNAPL fingering in water-saturated porous media: laboratory experiments and a mobile-immobile-zone model, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 49, pp. 335-353.
15. Zhang, Z.F. and Smith, J.E. (2002): Visualization of DNAPL fingering processes and mechanisms in water-saturated porous media, *Transport in Porous Media*, Vol. 48, pp. 41-59.

(Received June 25, 2003 ; revised September 29, 2003)

微気象・水文観測に基づく緑化屋上からの蒸発散量の算定および排水水質分析

高野保英[1]・江藤剛治[2]・竹原幸生[3]・福原輝幸[4]

[1]正会員 博(工) 近畿大学助手 理工学部社会環境工学科 (〒577-8502 東大阪市小若江三丁目 4-1)
[2]正会員 工博 近畿大学教授 理工学部社会環境工学科 (〒577-8502 東大阪市小若江三丁目 4-1)
[3]正会員 博(工) 近畿大学助教授 理工学部社会環境工学科 (〒577-8502 東大阪市小若江三丁目 4-1)
[4]正会員 工博 福井大学教授 工学部建築建設工学科 (〒910-8507 福井市文京三丁目9-1)

近畿大学に屋上緑化区画および微気象・水文観測システムを構築し，蒸発散量の実測による緑化屋上における植生維持に必要な水量の算定，および緑化区画からの排水の水質調査を試みた．その結果，以下のことが明らかとなった．(1) 今回の観測より得られた夏季における芝の屋上緑化区画からの日蒸発散量は，4.4 mm および 6.2 mm であった．(2) 緑化区画からの排水には，除草剤・肥料に起因するもののみならず，今回使用した人工土壌に起因すると思われる硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが含まれていた．(3) 屋上緑化区画からの排水水質を，最も厳しい基準である水域類型 I の湖沼の水質環境基準値と比較すると，硝酸・亜硝酸態窒素濃度は 7 ～ 10 倍程度，リン酸態リン濃度は 800 ～ 1400 倍程度であった．

Key Words : *rooftop planting, water use for planting, evapotranspiration, water quality of drainage*

1. はじめに

ヒートアイランドの緩和対策として都市における緑化が注目されており，東京都では 2001 年 4 月，条例により新改築のビルディングの屋上への緑化が義務付けられた．その背景としては，公園，緑地および建物屋上も対象とした，緑化による熱環境改善効果に関する研究の進展が挙げられる．これらの研究を通じて，夏季における緑化域の気温上昇緩和あるいは緑化域からの冷気の吹き出しなどが確認され，ヒートアイランド現象緩和の効果が定量的に実証されつつある[1]．

しかしながら既往の研究では，緑化あるいは植栽に必要不可欠となる，“水”に対する視点が不十分であると思われる．すなわち，数値解析により緑被率と気温低下量の関係を試算する事例[2]は多いが，その緑被を維持するために必要な水量，すなわち緑化用水量に関する試算や実測の例はあまりみられない．例えば筆者らは，屋上緑化施設の水使用量の現状を知るために，大阪市内およびその周辺に位置する 5 ヶ所の屋上緑化施設の管理者にヒアリング調査を行った．その結果，いずれの緑化施設においても植生への潅水量を定量的に把握していないことが判った．また，屋上緑化の施工・管理を行う企業においても，実測に基づいて緑化区画への散水量を決定しておらず，潅水時には水を多めに与えるよう指導していることが分かった．

屋上緑化施設の構築にあたって，その費用対効果を考える場合，植生維持のための水使用量は必須の原単位となる．また，国内の水資源利用の状況を踏まえると，緑化用水の量には制限がある．特に夏季の渇水期においては植生維持のために多量の水が必要となるが，都市用水・農業用水の確保が優先されるため，大規模な緑地・緑化屋上を長期に渡って維持することは困難になると考えられる．

もう一つ緑化に関わる“水”の問題としては，その排水水質の問題があげられる．すなわち，緑地の維持のために除草剤・肥料等を使用することになるが，地上・屋上を含めて緑化面積の拡大を図った場合に，もはやこれらの化学物質が排水を通じて水質に与える負荷を無視することはできない．

従って，緑化による気候緩和を有効に進めるためには，蒸発散量および排水量の実測に基づいた緑化用水量の算定，あるいは排水の水質を測定することが重要となる．

筆者らは，近畿大学構内に屋上緑化区画および微気象・水文観測システムを構築し，緑化屋上における植栽による気温上昇抑制効果の検討，蒸発散量の実測による

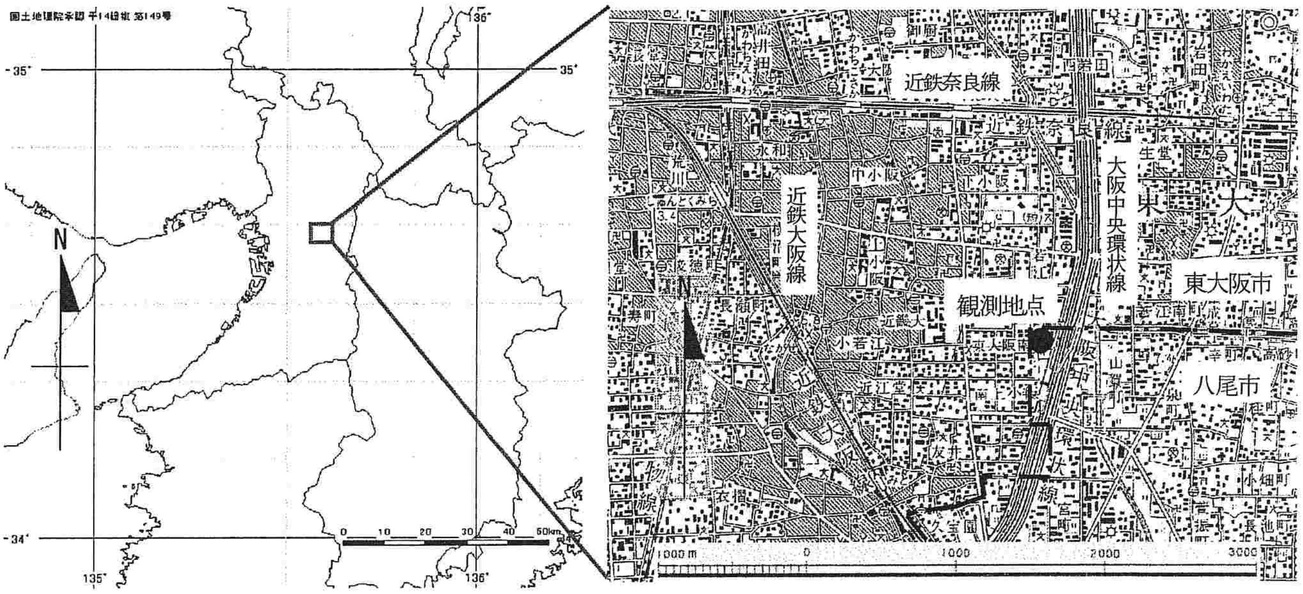


図-1 観測地点所在地
（ソフトウェア「白地図 KenMap」の地図画像および国土地理院発行 5 万分 1 地形図を基に作成）

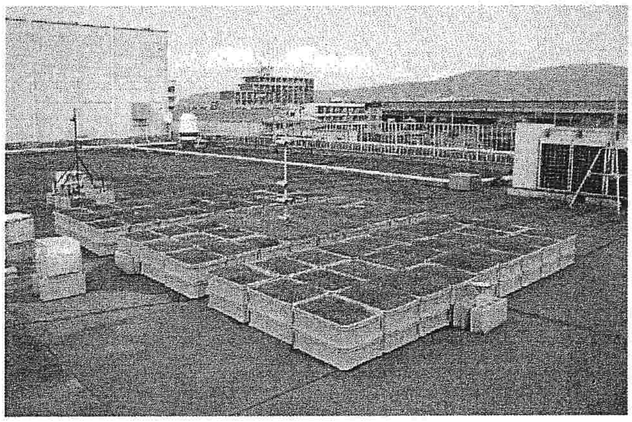


写真-1 屋上緑化区画

緑化屋上における植生維持に必要な水量の算定，さらに緑化区画からの排水の水質調査を試みている．その結果，夏季における屋上緑化区画からの日蒸発散量，あるいはその時間変化などの特性と緑化区画からの排水に含まれる硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リン濃度の時間変化を知ることができたので，報告する．

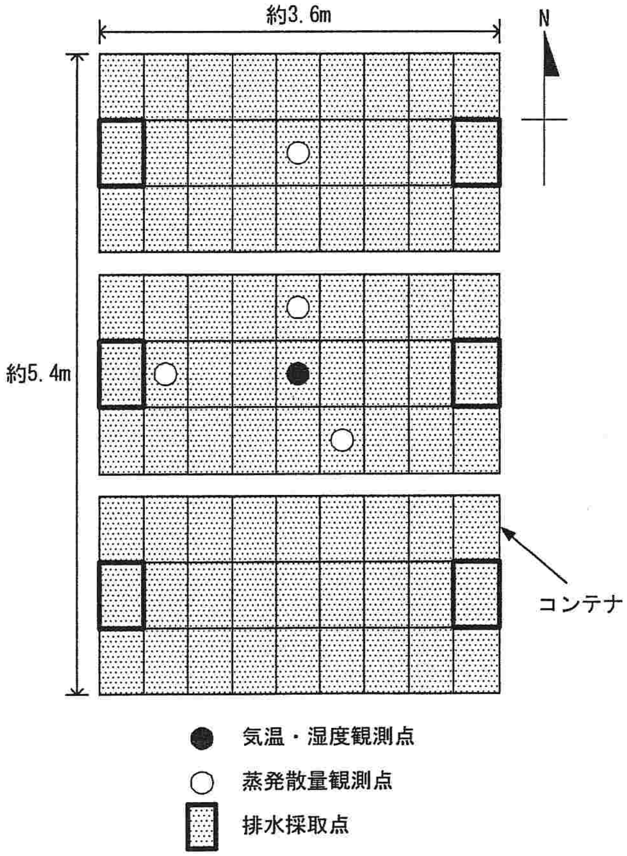


図-2 屋上緑化区画配置図

2．観測区画およびシステムの概要

屋上緑化区画および微気象・水文観測機器は，2001 年 6 月，近畿大学 34 号館（大阪府八尾市，北緯 34 度 38 分 45 秒，東経 135 度 35 分 51 秒，建物高さ約 8 m）屋上に設置され，それ以後，継続的に計測および緑化区画の拡張・増設が進められている（**図-1** および**写真-1** 参照）．近畿大学 34 号館は，大阪府の東部にある東大阪市と八尾市の境界付近に位置しており，両市とも大阪の都市域を形成する，住宅・工場が密集した地帯である．

緑化区画は**写真-1** および**図-2** に示すように，プラスチック製コンテナ（外形 567 ×399 × 166 mm）を上下二段に計 162 個並べたものである．上段の各コンテナの内部は**図-3** のように，排水フィルターとマットで構成された排水層，および人工軽量土壌（発泡スチロール混合土．以下，人工土壌と称す）層が設けられ，表面は

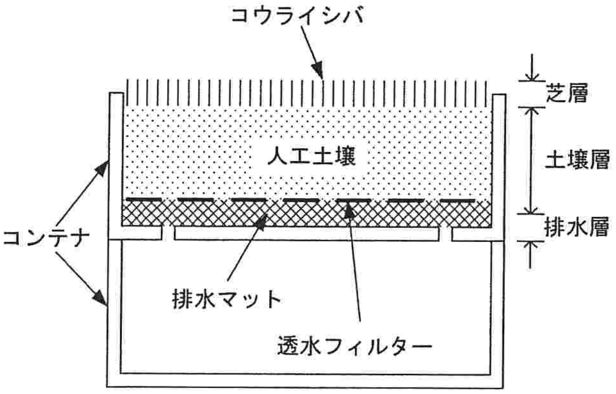


図-3　コンテナ断面図

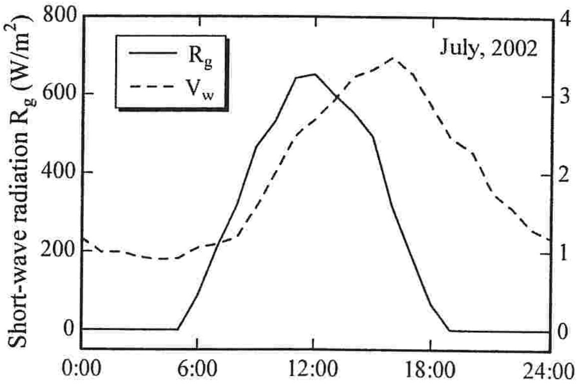


図-4　短波放射量および風速の月平均日変化
(2002 年 7 月)

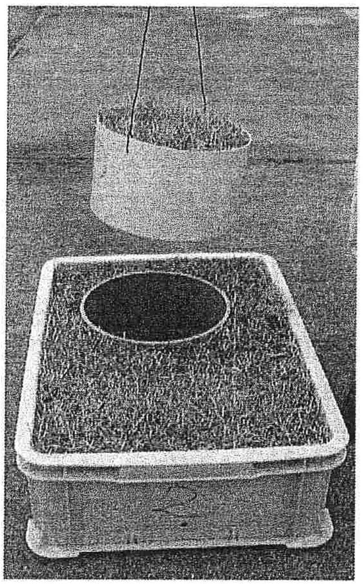


写真-2　蒸発散量測定用カラム

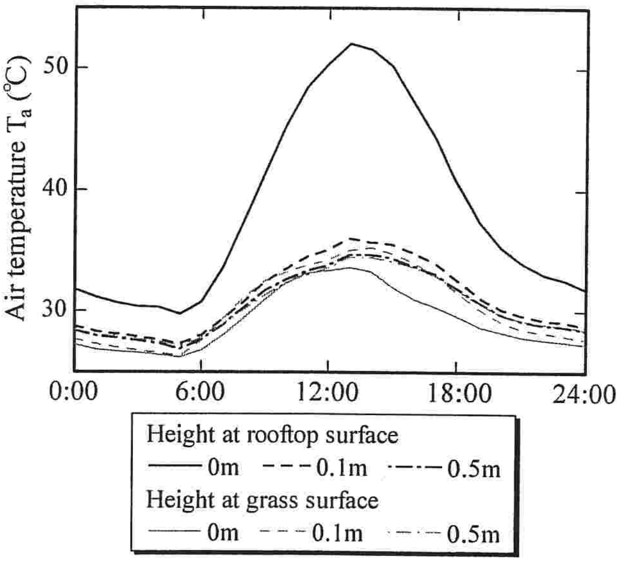


図-5　気温および表面温度の月平均日変化
(2002 年 7 月)

コウライシバ（学名 Zoysia tenuifolia Wild.）で覆われている．下段のコンテナは空であり，緑化区画からの排水の採取に使用する．正味の緑被面積は 14.9 ㎡ となる．なお潅水は，降水が確認された日を除いて毎日 1 個の緑化コンテナにつき 1 ℓ（水位換算で 5.45 mm，12 月 ～ 7 月）あるいは 2ℓ（水位換算で 10.89 mm，8 月～ 11 月）を与える．

緑化区画の芝面からの蒸発散量の測定には，**写真-2** に示すようなカラムを用いる．内径 200 mm，長さ 116 mm の塩ビ管を緑化コンテナ内の人工土壌に埋設し，その中にプラスチック容器（カラム）をはめ込む．カラム内には，コンテナと同様に人工土壌を詰め，その表面にコウライシバを敷設している．また，カラム底部には排水用の穴を設ける．このカラムを取り出し，その重量変化を電子天秤（エー・アンド・ディー製）で測定することにより，蒸発散量を求めることができる．また，排水量は，下段の排水コンテナに溜まった水の重量を測定することにより得られる．また，採取された水は水質分析にも使用される．なお，採水をしない排水コンテナの底には，穴を設けている．

散水量（および降雨量）から，カラムの重量変化量および排水量を差し引いたもの（散水，降水，排水いずれも無い場合には重量変化量そのもの）が蒸発散量となる．カラムを埋設するコンテナ（4 カ所）および採水するコンテナ（6 カ所）の位置については，**図-2** を参照されたい．

次に，微気象観測システムと計測方法について述べる．気温の計測には熱電対を使用し，芝面およびその上方 4 点に設置する．大気の相対湿度は，湿度センサー（TDK 製）により，芝面上方の 3 点で計測を行う．熱電対および湿度センサーは，直射日光や雨が当たらないように塩ビパイプ製のシェルターで覆われている．以上のセンサーは，**図-2** に示すように中央の緑化コンテナ上方に配置している．他の気象要素の計測機器として，屋上面より上方 1.7 m に風杯式風速計（英弘精機製），屋上面上に短波放射計（英弘精機製）および簡易雨量計 [3]（手製，2 台）を設置している．

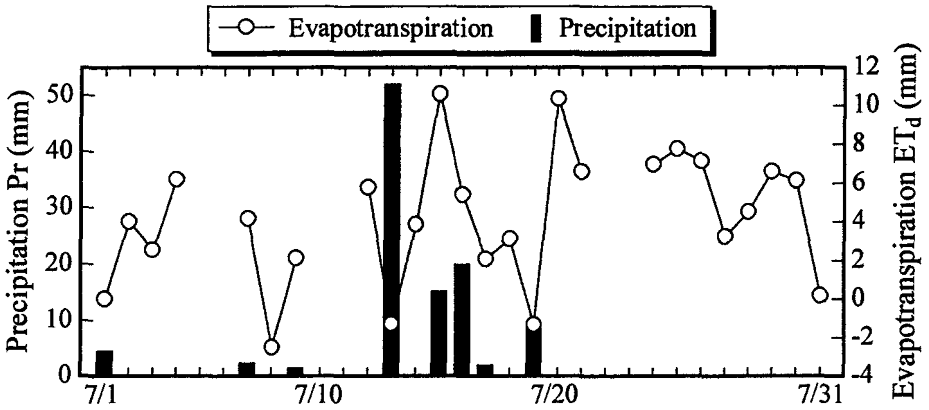


図-6 降水量および蒸発散量の日変化 (2002 年 7 月)

なお，植生の有無による微気象特性の違いを知るために，緑化区画に隣接する屋上面（コンクリート面）上でも，温度・湿度の観測を行う（使用機器および設置高度は緑化区画と同じ）．

蒸発散量，雨量および排水量は，毎日 1 回測定を行う．またそれ以外の機器による計測は，10 分～ 1 時間間隔で連続的に行い，データはデータロガーや AD 変換器を介して，パーソナルコンピュータに自動的に記録する．

3．長期連続観測結果の例

本章では，微気象・水文観測例として，2002 年 7 月の観測結果を紹介する．

図-4 に，短波放射量 R_g および風速 V_w の月平均日変化を示す．R_g は 5:00 から上昇し始め，正午に約 650 W/m² で最大となり，19:00 に 0 となる．風速 V_w は，深夜（0:00～6:00）には 1 m/s 前後でほぼ一定，6:00 から徐々に増加し，16:00 に 3.5 m/s で最大となる．

図-5 に，芝面上および屋上面上の気温 T_a の月平均日変化を示す．屋上面（0 m）の温度は，13：00 に約 52 ℃ で最大になるのに対して，芝面のそれは蒸発散および植生による遮光の影響により，33.6 ℃ に留まっている．また両者の 0.1 m 上における気温 T_a は，例えば 13:00 の屋上面上で 36 ℃，芝面上で 35.1 ℃であり，最大で 1 ℃ 程度の違いが見られ，植生による気温上昇の抑制効果は確認された．ただし屋上面積に対して緑化区画の面積が小さいため，0.5 m 上になると T_a の違いはほとんど観られない．

図-6 に，2002 年 7 月 1 日～ 7 月 31 日における芝面からの日蒸発散量 ET_d（水位換算，以下同じ）および日降雨量 Pr の経日変化を示す．なお，ET_d のプロットが無い期間は欠測日である．また ET_d が負の値になる場合は，降水等による重量の増加があった場合を示しており，蒸発散量には相当しない．

日蒸発散量は，主に降雨のあった日の前後に大きな変動が観られ，その値が 10 mm 以上になる日もあり，観測精度に疑問が残った．そこで原因を検討した結果，降雨後の排水量の測定については，観測を続けている過程で次のような問題点が浮上した．人工土壌を通過した水が排水層に残ったため，排水コンテナに溜まった排水量は正確な値ではないという可能性である．この問題への対策としてこれ以後，排水を採取する前に緑化コンテナを少し傾け，排水層に水が残らないように努めた．

以上のような問題点があったため，降雨の無い日の ET_d を観ると，その値は概ね 5 ～ 6 mm であり，散水量（5.45 mm）と同程度の蒸発散が確認された．

現在のところ，上述のような観測結果が得られているが，緑化屋上の熱収支あるいは水分収支を得るには至っていない．今後さらに，長波放射・熱伝導量などの観測項目を増やすとともに，長期観測を継続的に行い，熱・水分収支の定量的な把握に努める．

4．蒸発散量の集中観測

(1) 観測の目的

前章で緑化区画からの日蒸発散量の経日変化を示したが，このデータだけでは以下の点が不明である．

(a) 散水および降雨がまったく無い場合の蒸発散量

(b) 蒸発散が卓越する時間帯や蒸発散速度などの日変化特性

そこで，降雨・散水が無い場合の 24 時間に渡る屋上緑化区画からの蒸発散量の変化を知るために，2002 年 8 月に蒸発散量の集中観測を行った．

(2) 観測概要

集中観測は，2002 年 8 月 2 日～ 7 日（Series 1）および 8 月 20 日～ 23 日（Series 2）の2回行う．両観測期間中とも概ね快晴が続き，8 月 2 日の 15:00 ～

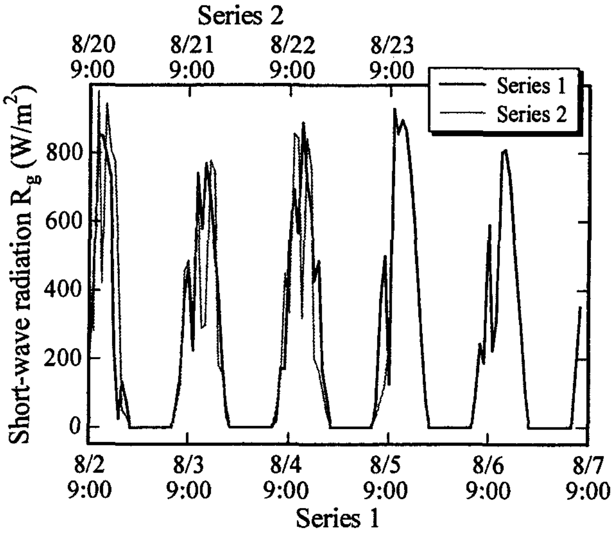


図-7　短波放射量の経時変化（Series 1 および Series 2）

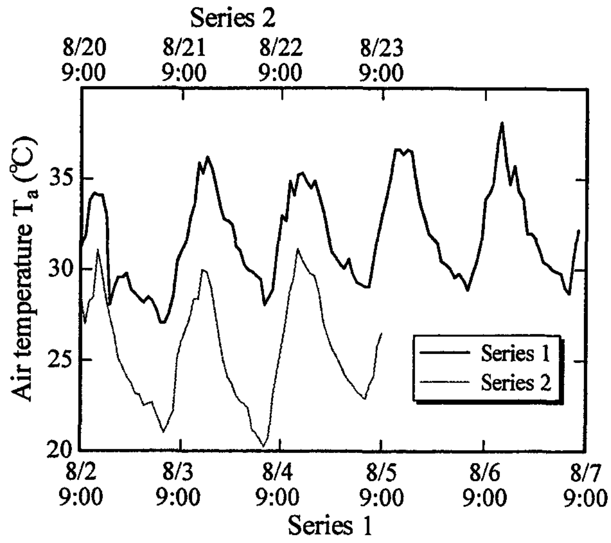


図-9　気温の経時変化（Series 1 および Series 2）

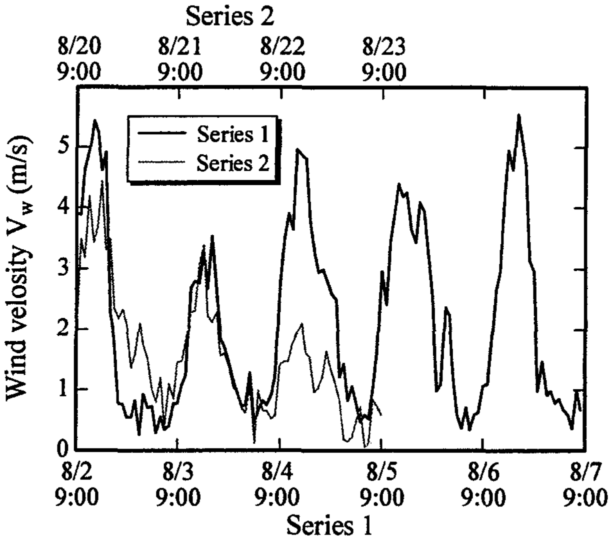


図-8　風速の経時変化（Series 1 および Series 2）

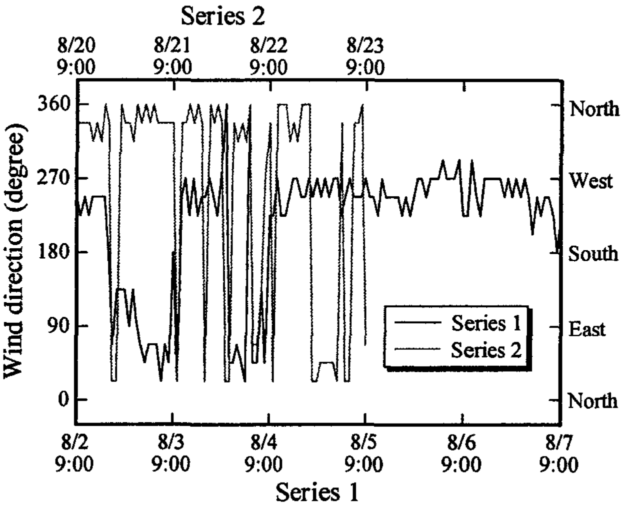


図-10　風向の経時変化（Series 1 および Series 2）

19:00 の間のみ約 3.4 mm の降雨があった（排水は無し）．

集中観測開始日（8 月 2 日および 8 月 20 日）の 9:00 に，各緑化コンテナに 2 ℓ（水位換算で 10.89 mm）の灌水を与え，以後観測終了時まで水を与えず（上述の 8 月 2 日の降雨を除く），蒸発散量測定カラムの重量変化量と排水量を 1 時間（昼間）～ 6 時間（夜間）毎に計測した．なお，灌水後の排水は 2 時間で終了した．あらかじめ行ったコンテナ内土壌の水分量の予備測定により，重力排水終了後の土壌は自重と同程度の水（約 5 kg）を保持していることが確認された．気温・湿度等の微気象観測は，**2.** で述べた方法と同様に計測された．

(3) 観測結果

図-7～図-9 に，屋上面上の短波放射量 R_g，風速 V_w および屋上面上 1 m の気温 T_a の経時変化を，それぞれ Series 1 および Series 2 について示す．

R_g は両期間とも大きな違いはないが，T_a は Series 2 の方が 5 ～ 8 ℃ 程度低く，風速も小さい．この違いは，後に示す蒸発散量の違いを生むと考えられる．

図-10 に，大阪管区気象台が観測した風向の経時変化を Series 1 および Series 2 について示す．同図では北を 360 度，東を 90 度，南を 180 度，西を 270 度として，風向を表している．Series 1 では，8 月 2 日および 3 日には海陸風の変化が観られるが，それ以降では概ね西よりの風が卓越している．また Series 2 では，全期間を通じて北～北東の風が吹いている．

両ケースの蒸発散量 ET の経時変化を**図-11** に，積算蒸発散量 Q_{ET} の経時変化を**図-12** に，それぞれ示す．

平均日蒸発散量は Series 1 では 6.2 mm，Series 2 では 4.4 mm であった．

加藤ら [4]は地上に設置されたプラスチックコンテナ内

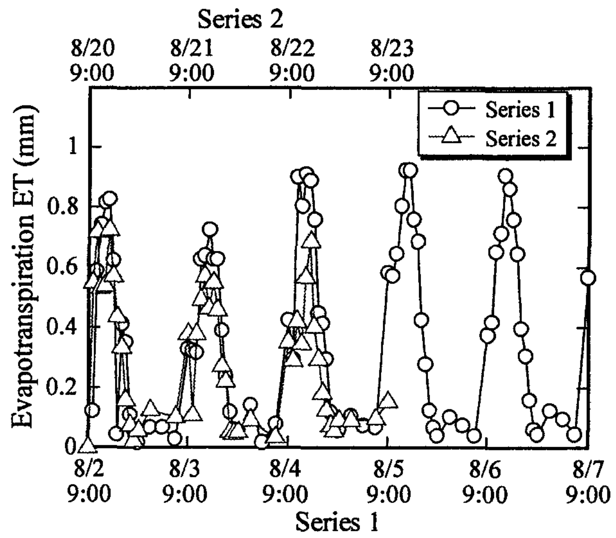


図-11　蒸発散量の経時変化（Series 1 および Series 2）

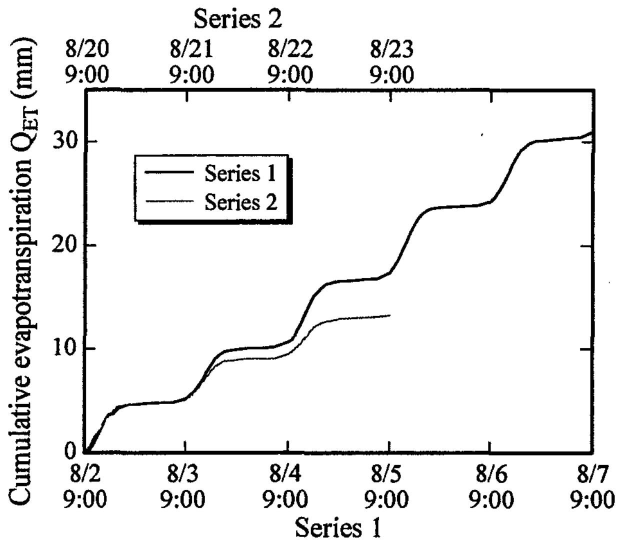


図-12　積算蒸発散量の経時変化（Series 1 および Series 2）

のティフトンシバからの蒸発散量を計測し，その結果に基づいて夏季（2000 年 8 月）における日平均蒸発散量を 6.5 mm 程度と推定している．今回行った屋上における観測結果は，これに比べて若干小さい．

また図-11 および図-12 から，緑化屋上からの蒸発散特性について興味深い点が幾つか観られる．

最初に Series 1 の日蒸発散量の変化に注目する．途中の降雨を除いて，水をまったく与えていないため，蒸発散の進行すなわち土壌水分量の減少とともに，日蒸発散量は徐々に低下すると思われたが，観測開始後，日蒸発散量は毎日ほぼ同じ値であり，5 日目になってもその低下が見られない．この現象は，人工土壌の保水特性あるいは透水特性に起因すると思われ，人工土壌を用いた緑化屋上の水収支を理解する上において，人工土壌の物性に関する知見が重要であることを示唆する．

次に，Series 1 および Series 2 とも積算蒸発散量の

表-1　各都市における緑化可能屋上を総て緑化した場合の蒸発散量試算結果

都市名	緑化可能屋上面積（㎡）[7]	蒸発散量	
		(㎥/day)	(㎥/s)
仙台	14,580,000	90,396	1.1
東京	29,610,000	183,582	1.8
名古屋	25,850,000	160,270	1.6
大阪	12,420,000	77,004	0.8
広島	11,410,000	70,742	0.7
福岡	12,290,000	76,198	0.8

時間勾配が大きい時間帯，すなわち蒸発散が卓越する時間帯は 9:00 から 16:00 であることが分かる．筆者らは，他の研究者による森林や草地からの蒸発散量の実測あるいは計算結果等[5,6]を踏まえて，蒸発散は日の出あるいはその直後に相当する 6:00 ～ 7:00 頃から増加し，日の入り後の 19:00 ～ 20:00 頃にほぼ 0 になると予想していたが，屋上緑化区画からの蒸発散はそれよりも遅く始まり，早く終わることが示された．

この原因としては，次のようなことが考えられる．

(a) 一般的に，風速の増大に伴い蒸発散量も増加する．今回の観測結果によれば，風速の増大が始まる時間は，短波放射量のそれよりも若干遅い．その結果，蒸発散量が増加し始める時間もまた遅くなる．

(b) 今回設置した緑化コンテナの下には空のコンテナがあり，コンテナ底面からのあるいはコンテナ底面への熱伝導は生じない．その結果，熱収支の構成要素の時間変化が，地上の緑地面と異なる可能性がある．

今後，土壌温度等の計測を実施し，熱収支を定量的に把握した上で，この原因を究明する．

(4) 主要都市における屋上緑化用水量の試算

今回の計測結果を基に，8 月期の屋上緑化面からの日蒸発散量を 6.2 mm と想定し，主要都市の緑化可能な屋上面積を総て緑化した場合の日および秒当たりの蒸発散量を試算した．その結果を表-1 に示す．

もとより今回の観測結果は，日本全国あるいは一年を通じて適用できる結果ではない．しかしながら，ここでは以下のような観点から試算を行った．屋上緑化施設の植生維持のためには，少なくとも蒸発散量以上の用水量が必要となるが，緑化面積の拡大に伴いその量もまた増大する．その結果，渇水時などにおいて緑化用水量の確保の問題が，国内の水資源利用の問題に関わる可能性も無視できない．ここで示す試算結果は，そのような状況の理解の一助になることを期待して，参考のために供するものである．なお，表中の緑化可能屋上面積は（財）都市緑化技術開発機構による推定値[7]である．

一人一日当りの生活用水使用量はおよそ 320 ℓ/ 人・

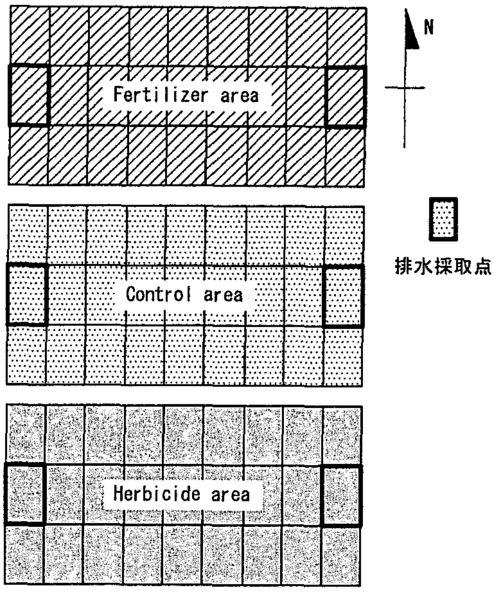


図-13　排水水質連続観測区画の概要

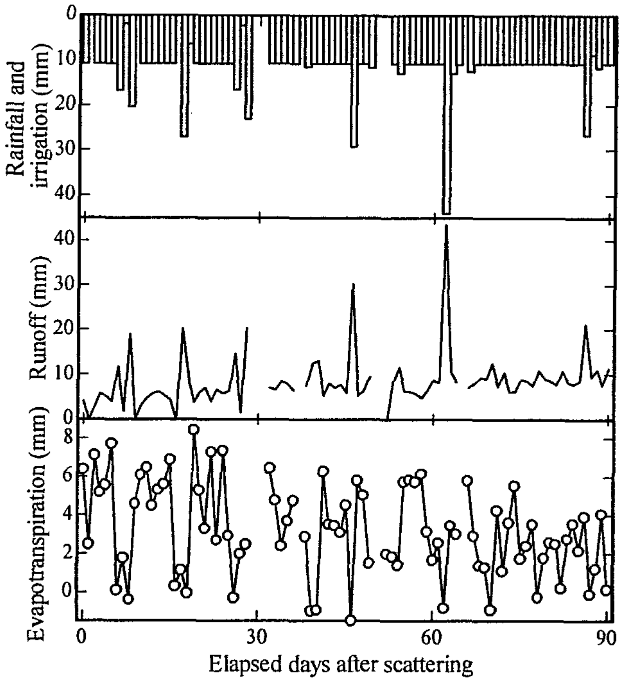


図-14　排水水質連続観測期間中における日毎の降水量と潅水量の和，排水量および蒸発散量の経時変化

日（平成 9 年度，全国平均）[8]である．表-1 から，緑化可能屋上を総て緑化した場合，例えば東京では約 55 万人分の生活用水使用量と同程度の緑化用水量が毎日必要となる．降雨や天候不良により，今回想定した蒸発散量よりも実際のそれはやや小さくなるであろうが，ここで示した数値は緑化屋上のみを対象とした試算結果であり，地上の緑地あるいは緑化壁面も考慮した場合，必要緑化用水量はさらに多くなることが予想される．

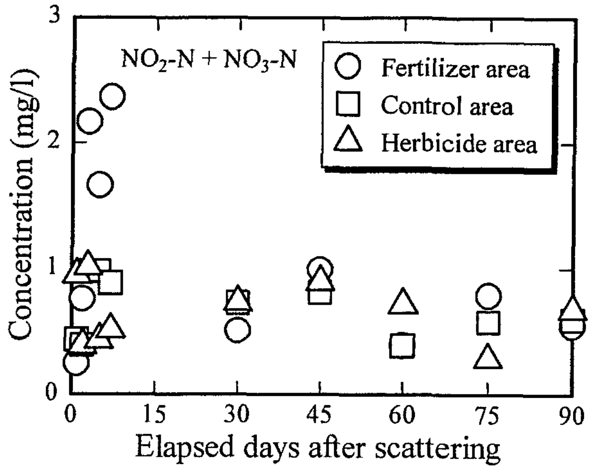


図-15　排水中の硝酸・亜硝酸態窒素濃度経時変化

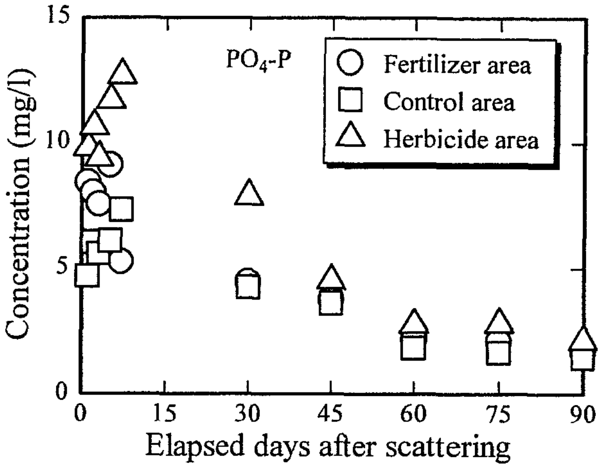


図-16　排水中のリン酸態リン濃度経時変化

5．排水水質連続観測

(1) 観測の目的

屋上緑化区画に，肥料および除草剤を与えた場合，排水にはそれらを起源とする物質が含まれることになり，水質に与える影響を考慮しなければならない．この問題に関する基礎的な知見を得るため，植栽に使用される化学物質に一般的に多く含まれる窒素およびリンに注目して，2002 年 8 月 31 日より 90 日間に亘って，屋上緑化区画からの排水水質の連続観測を行った．

(2) 観測概要

2002 年 8 月 31 日，上述の緑化区画内の北側に配置された 27 個の緑化コンテナに化成肥料（粒状，保証成分(%) N:8, P_2O_4:8, K_2O:8）を 60.6 g/m^2，また南側の 27 個の緑化コンテナに除草剤（DCBN 粒剤，2,6-ジクロロチオベンザミド 4.0 %）を 10 g/m^2，それぞれ散布する．中央の 27 個の緑化コンテナは，比較対照のための基準区画として，何も散布しない（図-13 参照）．肥料および除草剤の散布量は，それぞれの製品に記載されている使用

表-2 屋上緑化区画からの排水水質と水質環境基準値との比較

	観測結果の平均値(カッコ内は最大値)				生活環境の保全に関する水質環境基準(湖沼)	
	肥料区画	基準区画	除草剤区画		水域類型Ⅰ	水域類型Ⅴ
硝酸・亜硝酸態窒素(mg/l)	1.04(2.36)	0.67(0.98)	0.66(1.01)	全窒素	0.1mg/l以下	1mg/l以下
リン酸態リン(mg/l)	5.25(9.11)	4.24(7.31)	7.43(12.7)	全リン	0.005mg/l以下	0.1mg/l以下

方法に従って決定された.

散布後原則として，降水が確認された日を除いて，所定の潅水（10.89 mm）を毎日与え，総ての区画について2ヶ所の排水コンテナから排水を採取する．排水採取は散布翌日から開始し，散布2，3，5，7，30，45，60，75，90日後にそれぞれ採水する．吸光光度法により，排水内の硝酸・亜硝酸態窒素（NO_2-N，NO_3-N）およびリン酸態リン（PO_4-P）の濃度を測定する．なお，潅水する水および降水の分析も行ったが，上記の物質はほとんど含まれていないことが確認されている．

(3) 観測結果

図-14に，観測期間中における日毎の降雨量と潅水量の和，排水量および蒸発散量の経時変化を示す．また図-15および図-16に，各区画からの排水中の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンの濃度経時変化をそれぞれ示す．

まず硝酸・亜硝酸態窒素濃度に注目すると，基準区画（□）および除草剤区画（△）では，ほとんど濃度の変化が観られない．一方肥料区画（○）では，散布1週間後までは濃度が高く，散布30日後以降は他の2区画とほぼ同じ値を示す．従ってこの頃までに，肥料の成分として加えられた量に相当する硝酸・亜硝酸態窒素は，土壌中から失われていることが知れる．また，基準区画の排水からも常に0.5～1 mg/ℓ程度の硝酸・亜硝酸態窒素が検出されており，人工土壌から窒素が排出されていることが示唆される．

次にリン酸態リンの経時変化を観ると，総ての区画について，散布直後から高い濃度が検出されていることが判る．特に除草剤区画では散布1週間後までに濃度が急上昇し，その後指数関数的に減少する．散布45日後以降，総ての区画でリン酸態リン濃度はほぼ同じ値を示しながら漸減する．また硝酸・亜硝酸態窒素と同様に，基準区画の排水からも高濃度のリン酸態リンが検出されており，人工土壌にはリンも多量に含まれていることが予想される．

基準区画排水中の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが，人工土壌起源のものかどうかを検討するために，緑化基盤として使用した人工土壌0.1 gを100 mℓの水に加え，よく攪拌させた後，水の硝酸・亜硝酸態窒素濃度とリン酸態リン濃度を測定した．その結果，前者は3.8 mg/ℓ，後者が2.5 mg/ℓであり，人工土壌からも硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸リンが排出されることが判った．

(4) 排水水質の環境基準との比較

表-2に，今回の観測より得られた排水の硝酸・亜硝酸態窒素濃度とリン酸態リン濃度の平均値と最大値を示す．窒素およびリンは，湖沼などの富栄養化を引き起こす最も大きな要因である．そのことを踏まえて，同表には「水質汚濁にかかわる環境基準」中の「生活環境の保全に関する水質環境基準」で定められた，湖沼（水域類型ⅠおよびⅤ）における全窒素および全リンの基準値も示されている．

まず窒素について見ると，排水中の平均濃度は，最も基準が厳しい水域類型Ⅰ（自然環境保全，水道用水等の利用に適応する水域）の基準値の7～10倍程度である．最も基準が緩い水域類型Ⅴ（工業用水，農業用水等の利用に適応する水域）の基準値と比べても，同程度か7割弱である．観測結果は硝酸・亜硝酸態窒素のみであり，これにアンモニア態窒素が加わると，基準値を上回る可能性もある．

リンについては，どの区画の平均濃度も環境基準値を大きく上回っている．水域類型Ⅰおよび水域類型Ⅴの基準値と比較した場合，除草剤区画ではそれぞれ約1400倍と約70倍，基準区画でもそれぞれ約800倍と約40倍になっている．窒素と同様，観測結果はリン酸態リンのみの値であり，有機態のリンが加わると更に大きな値となる．

以上より，今回の観測で得られた屋上緑化区画からの排水中の窒素およびリンの濃度は，環境中の水域のそれらに比べて高いことが知れる．特に，除草剤・肥料を使用していない基準区画でも，リン濃度は最も緩い環境基準値をはるかに超える．従って，屋上緑化施設からの排水の水質を考える場合，肥料や除草剤などに起因する物質のみならず，人工土壌に起因する物質も考慮しなければならない．

6．まとめ

緑化による気候緩和を有効に進めるためには，蒸発

散量および排水量の実測に基づいて緑化用水量を算定する必要がある．また肥料・除草剤などの化学物質が，排水を通じて水質に与える影響も考慮しなければならない．

本研究では基礎的研究として，大阪の東部に位置する近畿大学構内に屋上緑化区画を設置し，微気象観測および屋上緑化区画からの蒸発散量の実測および排水水質の調査を試みた．得られた知見を以下に記す．

(1) 小規模な屋上緑化区画であるが，芝面上での気温上昇抑制効果が確認された．
(2) 今回の観測より得られた夏季の屋上緑化区画からの日蒸発散量は 4.4 mm および 6.2 mm である．
(3) 水を与えない条件下においても，夏季の屋上緑化区画からの日蒸発散量は，5 日間経ってもほとんど変化しない．
(4) 屋上緑化区画からの蒸発散量が卓越する時間帯は，9:00 ～ 16:00 であり，地上の草地等におけるそれに比べて時間が短い．
(5) 緑化区画からの排水には，肥料・除草剤起源のみならず，今回使用した人工土壌起源の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが含まれている．従って，屋上緑化施設からの排水水質に影響を与える物質として，人工土壌に起因する物質も考慮する必要がある．
(6) 緑化区画からの排水の水質を，最も基準が厳しい水域類型 I の湖沼の水質環境基準値と比べると，硝酸・亜硝酸態窒素濃度は 7～10 倍であり，リン酸態リン濃度は 800 ～ 1400 倍程度であった．また，最も基準が緩い水域類型Ｖの湖沼の環境基準値と比較しても，硝酸・亜硝酸態窒素濃度について 0.7～1 倍，リン酸態リン濃度について 40 ～ 70 倍程度であった．

緑化用水の節約あるいは植生維持管理の容易さの観点から，近年，屋上緑化用植物としてセダム類などの耐乾性植物が注目されている．これらの植物の使用は，緑化用水量の低減には大きく寄与するであろうが，緑化区画に与えられる水が少なくなると，蒸発散による気温上昇抑制効果も小さくなる恐れがある．また，本論文で紹介した観測を現在も継続しているが，緑化屋上の熱収支あるいは水分収支を得るには至っていない．今後は微気象観測の項目を増やすとともに，芝のみならず種々の植物を用いて屋上緑化区画を拡張し，より精細な計測に基づく熱・水分収支の算定を行い，緑化による気温上昇抑制効果と植生維持に必要な緑化用水量の算定を試みる．

謝辞：本研究の一部は，文部省科学研究費基盤研究 (c) (1)「大気・土壌連成数学モデルにもとづく土壌汚染物質の予測解析システムの研究（研究代表者：佐藤邦明）」の補助を受けた．ここに記して謝意を表する．

参考文献

1) 例えば，神田学，森脇亮，高柳百合子，横山仁，浜田崇：明治神宮の森の気候緩和機能・大気浄化機能の評価(1)1996 年夏期集中観測，天気，Vol. 44，No. 10，pp. 713-722，1997.
2) 例えば，吉田伸治，村上周三，持田灯，大岡龍三，富永禎秀，金相璉：対流・放射・湿気輸送を連成した屋外環境解析に基づく緑化の効果の分析，日本建築学会計画系論文集，No. 529，pp. 77-84，2000.
3) 牛山素行編：身近な気象・気候調査の基礎，古今書院，2000.
4) 加藤泰子，山本聡，石田均，前中久行：土壌水分および日射量測定に基づく薄層土壌の必要保水量について，ランドスケープ研究，Vol. 64，No. 5，pp. 541-544，2001.
5) 近藤純正編：水環境の気象学，朝倉書店，1994.
6) 近藤裕昭編：人間空間の気象学，朝倉書店，2001.
7) （財）都市緑化技術開発機構編：屋上・壁面緑化技術のてびき，大蔵省印刷局，1999.
8) 国土庁長官官房水資源部編：平成 12 年度版日本の水資源，大蔵省印刷局，2000.

(2003. 3. 14 受付)

ESTIMATION OF EVAPOTRANSPIRATION RATE AND DRAINAGE WATER QUALITY FROM VEGETATION ON ROOFTOP BASED ON METEOLOROGICAL AND HYDROLOGICAL OBSERVATION

Yasuhide TAKANO, T. Goji ETOH, Kohsei TAKEHARA and Teruyuki FUKUHARA

To estimate evapotaranspiration rate and drainage water quality from vagetation on rooftop, meteorological and hydrological observation on rooftop planting has been carried out at Kinki University since 2001. The evapotranspiration from the grass surface was measured by the column buried in the grass-coverd area. It was found that the average evapotranspiration rate form grass-cover area on rooftop is 4.4mm to 6.2mm. Chemical analysis of dranage water from rooftop planting showed that the concentration of NO_2-N and NO_3-N is 7 to 10 times of the most strict water quality standard of lakes in Japan, and the concentration of PO_4-P is 800 to 1400 times of that.

差分連成ランダムウォーク法による 不圧帯水層のDNAPL移行解析と現地適用

佐々木　孝[1]・佐藤　邦明[2]・和田　明[3]

[1]正会員　（株）アーク情報システム（〒102-0076 東京都千代田区五番町4-2）
[2]正会員　工博　埼玉大学教授　地圏科学研究センター（〒338-8570 埼玉県さいたま市桜区下大久保255）
[3]正会員　工博　日本大学教授　生産工学部（〒275-8575 千葉県習志野市泉町1-2-2）

トリクロロエチレンなどのDNAPL (Dense Non-Aqueous Phase Liquid : 水より重い難溶解性液体) による土壌・地下水汚染が表面化し浄化対策が求められている．著者らは先に，DNAPLの空隙内残存量を考慮した移行の基礎方程式を導びき実験と比較し検証した．これにもとづきランダムウォーク法によりDNAPL原液を重力沈降する液滴粒子の運動として表現し，粒子が空隙内に捕捉され残留する過程をモデル化して，高精度TVD (Total Variation Diminishing) 差分スキームによるDNAPL溶液の移流分散方程式と組み合わせた，新しいDNAPL移行解析モデル—差分連成ランダムウォーク法 (FD-RWM) を提案する．これを実際の汚染地域に適用して，汚染範囲にわたるDNAPL溶解量，帯水層への浸入量，残存量を算定することにより，手法の有効性を確認した．

Key Words : *DNAPL(Dense Non-Aqueous Phase Liquid), random-walk-method, pheriatic aquifer, entrapped effect, TVD(Total Variation Diminishing) scheme*

1．はじめに

トルエンやベンゼン，トリクロロエチレン(TCE)などの揮発性有機化合物は，非水溶性，あるいは難溶解性(Non-Aqueous Phase Liquid : NAPL)の性質を持ち，密度により水より軽い場合に LNAPL(Light NAPL)，重い場合に DNAPL(Dense NAPL)と分類される．近年，DNAPL による土壌・地下水汚染が表面化し，浄化対策が求められている．地下環境中の DNAPL 挙動が不鮮明のままで，とりわけ地表からの漏洩量や地中残存量の把握の難しさが，適切で有効な対策の立案・実施を阻害している．

DNAPL は大気中で気化しやすく，粘性が低く，界面張力が小さいという特異な性質を持ち，地下環境中で水溶性物質とは異なる複雑な挙動を示す．このような DNAPL の土壌・地下水中の移行過程の解明は，近年注目される分野の一つとして Mercer and Cohen[1]，Miller et al.[2]，Khachikian and Harmon[3]により現状と課題がレビューされている．

著者らは先に，DNAPL の残存量に注目した鉛直輸送の基礎方程式（フィンガリング成長方程式）を導出し，実験によりこれを検証して，この式から残存量の推定が可能であることを示した[4]．

本論文は，飽和多孔体中に捕捉された DNAPL の形状と挙動，その溶解過程と汚染の影響範囲を予測する手法に注目し，既往の研究動向を重要項目ごとにまとめる．まず，分子拡散や空隙スケールの水理学的分散が現象を支配するミクロスコピックな視点から，室内カラム実験により得られた NAPL 液滴形状と，形（表面積）と密接に関連する難溶解性相から液相への物質輸送を支配する係数について示す．次に，フィンガリングモデルの例を示し，多孔媒体中の DNAPL の実態を整理する．続いて，透水係数の不均一性や複雑な地層形状が支配的なマクロスコピック，メガスコピックな分散現象 (Sato and Iwasa)[5] としての DNAPL 移行について，その数値予測手法と現地規模の適用例に焦点を合わせたレビューを行う．

(1) 多孔媒体中の NAPL 形状とその溶解過程

多孔媒体中に浸入し，液滴の形で捕捉された NAPL は，浸透過程や媒体の性質により，形が不規則で，多くは枝分かれ，引き伸し形状を持ち [3]，一つの間隙を占める単

一球から，複数間隙中の複雑な枝分かれした液滴連鎖まで，100μm から 1mm 程度の様々な大きさと形を持つ不連続な液滴の集合であることが可視化により確かめられている(Conrad et al.[6]). Geller and Hunt[7]は，捕捉されたLNAPL 液滴のカラム溶解実験から，NAPL を孤立した「球」として表現し，溶解によって粒径が減少するモデルにより物質輸送係数(mass transfer coefficient)を求めている．Miller et al.[8]は，カラム実験の結果をもとに，液滴を球により近似して多孔媒体中の NAPL－液相間の物質輸送率係数 (mass transfer rate coefficient) を求め，この係数が液相流速と NAPL 飽和度に関係するとして，修正シャーウッド数(Sherwood: Sh：物質輸送と分子拡散の比を表す無次元数，後述)，レイノルズ数 (Reynolds: Re)，シュミット数 (Schmidt: Sc)と NAPL 飽和体積率（残留飽和度）との関係によるべき乗型の関係式を提案している．Powers et al.[9]は，多孔媒体の粒径分布が捕捉された液滴の形状と分布を表すパラメータとして有効であることを示した．

さらに，DNAPL 液滴の粒径分布，粒径の減少と残留飽和度を関連づけた溶解の数学モデルが提案され，非平衡状態や低い残留飽和度での溶解が指摘されるとともに，物質輸送係数，および界面面積のパラメータを盛り込んだ物質輸送率係数などの関係式も報告されている(Powers et al.,[10]; Powers et al.[11]; Imhoff et al.[12]; Zhu and Sykes[13])．こうした様々な実験結果から求められた物質輸送係数，物質輸送率係数について，Khachikian and Harmon[3]は比較検討を行い，その差が考えられているよりも小さいことを指摘している．

(2) フィンガリング

次に，飽和多孔体に浸透する DNAPL に現れるフィンガリングについては，その発生が溶解フロントからの不安定性によるものであり(Imhoff et al.[14])，フラクタルの一種である DLA (Diffusion-Limited Aggregation:拡散に支配された凝集) を用いてフィンガリング形状を多粒子の連鎖として現象的に近似した STAG (Stochastic Aggregation)モデル(Trantham and Durnford[15])や，フィンガリング実験にもとづいて，フィンガーの本体を「成長核（コア）」と付帯の「鞘」からなるとした Mobile-Immobile-Zone(MIZ)モデル(Zhang and Smith[16])が提案され，媒体粒径の違いに関わらずフィンガーのコアはほぼ同径であるが，不動部分は Re 数と透水係数に比例して大きくなる(Ueno et al.[17])と報告されている．

Zhang and Smith[18]は，水は空気や油に対して濡れ液体(Wetting fluid)であるが，DNAPL は水に対して非濡れ液体(Non-wetting fluid)であるため，これまでの石油分野や不飽和水の理論は，多孔体中 DNAPL の鉛直方向の運動に対しては直接的には適用できない，また従来の方程式系ではフラクタル状に浸透する DNAPL フィンガリングを捕らえることができず，浸透 DNAPL 量を過大評価し，浸透深さを過少評価すると指摘している．

嘉門，遠藤[19]は 2 次元土槽実験をもとに，浸透した DNAPL が小塊に分裂して浸入圧が伝達されず，その圧力変化が間隙中の残留や難透水層上の側方浸透をもたらすと指摘した．DNAPL 地中残存量については，伊藤，川端[20]による土槽実験による検討，長藤ほか[21]による土壌ガス濃度による土中存在量の算定などがある．

これらを要約すると，多孔体中に捕捉されている DNAPL は，(i)間隙空間の大きさに対応した様々な単一液滴，あるいはそれらの連鎖，枝分かれとして存在している，(ii)難溶解性相から液相への物質輸送について，液滴の球による近似をもとに，実測結果との比較により物質輸送係数あるいは物質輸送率係数が得られている，(iii)フィンガリングは溶解フロントの不安定性から起こり，液滴群連鎖や枝分かれの形状を持ち，移動部分(mobile)と不動部分(immobile)に分けられる，(iv)フィンガリング実験により得られた不動部分のパターンは残存 DNAPL 自身であるが，帯水層における量的把握，推定に注目した研究は少なく，浄化対策や予測の上からも重要な課題であると考えられる．

(3) 汚染範囲の数値予測手法

一方，マクロスコピック，メガスコピックな視点から，飽和不飽和帯の NAPL 挙動と汚染の影響範囲を予測する手法に着目すると，移流分散式を支配方程式とし分散現象を数値的に解明する予測手法が多く用いられている．この場合，支配方程式を有限差分法や有限要素法により離散化し，偏微分方程式系を代数方程式系に変換して解く方法と，確率微分方程式にもとづき，等価なランダムウォークモデルに置き換えて解析する方法がある．

有限差分法，有限要素法による場合は，対象 NAPL が単一成分か複数の化合物を含んだ多成分系か，また各相の相間転移を考慮するか否かに応じて，単一成分単相系から多成分多相系まで分類される．

こうした数値予測手法とその適用例には，次のようなものが報告されている．

Abriola and Pinder[22),23]は，帯水層における有機化合物の汚染のモデリングに，難溶解性相，液相の溶質成分，気相の３相の移流分散方程式に定式化し，鉛直１次元の解析領域について有限差分法により解を求めた．Sleep and Sykes[24]は，多相系による予測手法（シミュレータ）を開発し，LNAPL および DNAPL の移流分散解析に適用して，離散化スキームや時間空間刻みの違いによる精度と数値分散誤差の検討を行っている．Adenekan et al.[25]は，多成分多相系の数値予測手法(M^2NOTS：Multiphase Multi component Non isothermal Organics Transport Simulator)を開発

した．開発理由の一つとして，石油分野でこれまで研究されてきた解析コードがNAPL移行の研究にも使われている点に触れ，石油回収(oil recovery)とNAPL輸送/回収(transport/recovery)は別のメカニズムに支配されており，たとえば，石油分野では水への油の溶解拡散問題は重視されていないが，NAPLでは溶解や拡散が極めて重要であると指摘している．

実験室規模における流れの影響を考慮したLNAPLの物質輸送係数の同定(Saba and Illangasekare[26])，現地規模の場における液相と気相のNAPL移行と物質輸送率係数の検討(Zhu and Sykes[13])，矩形/楕円/円形状のDNAPLプールからの溶解による液相輸送と物質輸送係数の算定(Kim and Chrysikopoulos[27])，均一および不均一な場における物質輸送係数の検討(Mayer and Miller[28])，不飽和帯における気相と液相の輸送(Egusa and Jinno[29])など，気相，液相移行問題に２次元，３次元の移流分散型の数値予測手法が用いられている．また，水溶性物質から難溶解性の汚染物質の移動までを含めた多成分多相流の定式化と数値予測手法の提案(登坂ほか[30])，毛管圧，飽和度，流体の相対透過度の関係式にもとづく多相流モデルの定式化が報告されている(藤縄ほか[31])．

現地における予測手法の適用事例としては，Adenekan and Patzek[32]による報告の中で，LNAPLで汚染された地域における蒸気注入による浄化対策の検討に，移流分散型の多成分多相系数値予測手法（シミュレータ）が有効に使われたことが示されている．

移流分散式の離散化法である有限差分法のスキームについて注目すると，１次風上差分は数値分散が大きく，高次精度差分法では，オーバーシュートやアンダーシュートなどの数値振動が起こる．一方，粒子追跡法，特性曲線法やオイラリアン・ラグランジアン法(E-L法)は，複雑な境界や，現地規模の３次元解析などへの適用は困難である(Zheng et al.[33])．近年，TVD (Total Variation Diminishing)スキーム(Cox and Nishikawa[34]; 保原，大宮司[35])が高精度化と安定化のため用いられ，計算の時間刻みを大きくとるためにImplicit化(Yee[36])も計られているが，水理学や地下水流解析への適用は一部の例に限られる．

Pinder and Abriola[37]は，液相，難溶解性相による多相系移流分散式の定式化を行い，鉛直２次元場におけるDNAPLの溶解予測結果を提示する一方で，彼らの定式化には「フィンガリング」は考慮されておらず，この現象がDNAPL移行の上で極めて大きな影響を与えるため，理論的・実験的解明が必要であることを早くから指摘している．

本研究で注目しているランダムウォークモデルによる方法は，有限差分法や有限要素法のような格子形状による制約がなく大規模な問題も効率的に計算できる，また数値分散の影響も受けないという利点を持ち，多孔媒体中の輸送問題に使用されてきた(LaBolle et al.[38])．最近では，大規模な不均一地層特性を持つ場における汚染質の３次元輸送問題への適用(Tompson and Gelhar[39])，非一様な吸着反応と不均一な流れ場が化学物質の移動性に与える影響の解析(Tompson[40])，地質特性の急激な変化や地下水流の不連続性にもとづく不均一かつ複合的な帯水層におけるランダムウォーク手法の拡張(LaBolle et al.[41])などの研究がある．

しかしながら，DNAPL原液の難溶解性とDNAPLの液滴微粒子に注目して，この移行解析にランダムウォーク手法を適用した研究例はない．

したがって，従来の研究成果は次のように要約できる．(i)移流分散型の偏微分方程式系を有限差分法，有限要素法などの離散化により数値的に解く方法は，実験室規模から現地規模まで広い範囲の汚染実態を把握し予測する上で有効な方法でありその実績も多い．しかしながら，(ii)その多くは，気相，液相の移行問題であり，さらに現地規模の問題に対して難溶解性相までを含めて扱った例は少ない，(iii)難溶解性相を扱った場合でも，フィンガリングや液滴の沈降，空隙内拘束を考慮したDNAPL移行解析モデルは少なく，DNAPL液滴の沈降過程，空隙中に捕捉された残存DANPLの分布過程や，不透水基盤上のDNAPLプールの形成過程を含めた移行解析事例はほとんど見られない．(iv)残存DNAPLからの現地規模の汚染の影響範囲を長期間にわたり解析した事例も少ない．(v) 差分には数値分散誤差が少なく安定なスキームが必要であり，近年TVDスキームが注目されているが，DNAPL移行解析に用いられた例は少ない．(vi)ランダムウォークによるDNAPL原液移行への適用例はない．

一方，DNAPL移行解析に求められるのは，現地の汚染影響域に関する長期予測を行うために，マクロスコピックな解析に必要な離散化の規模（解析領域の長さスケール，格子点数の規模，計算効率，予測コスト）を持ち，同時に，ミクロスコピックな視点から，格子以下のスケールの現象であるDNAPL液滴の挙動再現，長期にわたる汚染源となる残存DNAPLの形状，分布，生成過程の近似が可能なモデルである．

移流分散型の数値スキームには，領域を格子に分割しその格子ごとの平均値について支配方程式を満たす解を求めるという基本的な前提がある．したがって，格子以下のスケールの現象を支配方程式で表現するには，そのスケールの現象を格子平均値に反映させる何らかのモデル化が必要となる．

以上の既往の研究レビューを踏まえて，本研究の課題は次の三点にまとめられる．

(i) ミクロスコピックな現象であるDNAPL液滴の挙動にランダムウォーク法を用いて，原液の挙動と分布を求める．

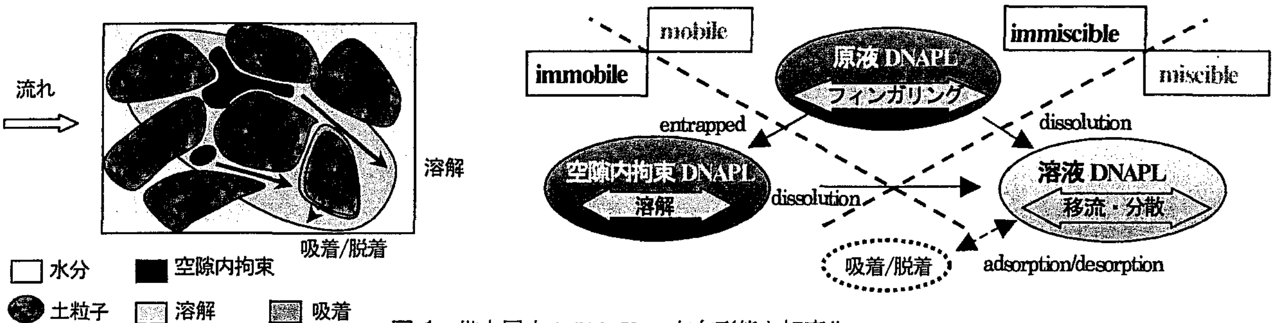


図-1　帯水層中の DNAPL の存在形態と相変化

(ii)　DNAPL 液滴の空隙内拘束のモデル化を通じて，ミクロスコピックとマクロスコピックな現象のモデル化を接続させ，捕捉された DNAPL 原液からの溶解過程を支配方程式に組み込み，溶液の移流分散方程式と結合させる．

(iii)　マクロスコピックな現象である現地規模の溶液移流分散方程式に３次風上差分を用い，さらに安定化と高精度化のため，Semi-Implicit TVD 化を行う．

これらの三点に焦点を当てつつ，ランダムウォーク法をもとに，DNAPL 原液の挙動を重力沈降する液滴粒子の運動として表現し，粒子が空隙内に拘束され残留する過程をモデル化して，高精度 TVD 差分スキームによる DNAPL 溶液の移流分散方程式と組み合わせた，新しい DNAPL 移行解析モデル－差分連成ランダムウォーク法 (coupled Finite Difference-Random Walk Method : FD-RWM)を提案する．加えてこのモデルを適用して現地規模の実測結果をもとに，解析結果を対比して手法の有効性を検証することとする．

2．帯水層における DNAPL 移行モデル

モデル構築に当たり，まず，帯水層中 DNAPL の基本的な存在形態と相変化を整理し，一般的な多相流の移流分散式から，差分連成ランダムウォーク法 (FD-RWM) に必要な原液，溶液の移流分散現象を定式化する．続いて，実験による DNAPL 残存量算定の支配パラメータを示し，原液 DNAPL の液滴微粒子の運動をモデル化して，空隙内に液滴が拘束される過程を表す残存量の式系を離散化する．最後に溶液移流分散方程式を差分法で離散化し，統合された全体の計算手順を述べる．

(1) 帯水層における DNAPL の存在形態と相変化

帯水層中の DNAPL について，溶解・難溶解性 (miscible/immiscible)，移動・不動性(mobile/immobile)の２点で DNAPL の基本的性質と存在形態を分類する．DNAPL を miscible/immiscible すなわち液相，難溶解性相に分け，immiscible の部分をさらに，mobile/immobile で分けると，帯水層における DNAPL の主な移行形態と相変化は，図-1 のように表せる．

ここでは，miscible 部分を溶液 DNAPL，immiscible の mobile 部分を原液 DNAPL，immobile 部分を空隙内拘束 DNAPL(残存 DNAPL) と呼ぶ．地中に浸透した DNAPL は，不圧地下水面上で，一定の圧力 (h_0：限界浸入深さ [L]) により帯水層中に浸入するため，DNAPL プールと呼ばれる液溜りを形成する．このプール高さがある一定値を超えると単一あるいは複数のフィンガーが地下水中に浸入し得る [19]．その一部は多孔媒体の空隙中に捕捉され，長時間にわたって溶出する地下水汚染源となる．他は溶解を伴いつつ溶液 DNAPL となって平均流により移流・分散する．

(2) DNAPL 輸送モデルと定式化

miscible，immiscible-mobile，immiscible-immobile の３つの部分にそれぞれ保存式を立てる．すなわち溶液 DNAPL の移流分散式，原液 DNAPL の液滴沈降モデルによる保存式，残存 DNAPL 収支式である．DNAPL 移行の前提として，DNAPL の単一成分を対象とし，多孔媒体は均一であり，空隙率 ε は一定であると仮定する．地下水面上の DNAPL プールからの溶出を想定して，本提案モデルの対象とする領域は，地下水面から不透水基盤までの帯水層とする．

(a) 液相，難溶解性相の支配方程式

一般に，均一な飽和多孔体中に浸入した DNAPL が残留飽和状態となって溶解する現象を表現する支配方程式は，液相，難溶解性相を考慮して流体の圧力，流速，飽和度を求める２相の流体方程式と，液相に溶解する濃度を解く物質輸送方程式で表される．この式系は，α を相として２つの移動相を溶液相($\alpha=a$)と，難溶解性相($\alpha=n$) と表し，次の(1)-(3)で与えられる [28]．

流れの式は化学反応，および発生と消滅がない場合，

$$\theta_\alpha\beta_\alpha\rho_\alpha g\frac{\partial\psi_\alpha}{\partial t}+\frac{\partial\theta_\alpha}{\partial t}-\nabla\cdot[k_\alpha(\nabla\psi_\alpha+z)]=\frac{I_\alpha}{\rho_\alpha} \quad (1)$$

と書くことができる．ここで，θ_α は体積含有率[-]，β_α は流体圧縮率[$M^{-1}LT^2$]，ρ_α は密度[ML^{-3}]，g は重力加速度[LT^{-2}]，ψ_α は圧力水頭[L]，$k_\alpha(=\rho_\alpha gKK_{r\alpha}/\mu_\alpha)$ は浸透係数[LT^{-1}]，K は固有浸透係数[L^2]，$K_{r\alpha}$ は相対浸透係数[-]，μ_α は粘性係数

$[ML^{-1}T^{-1}]$，z は鉛直上向き単位ベクトル[-]，I_α は相変換項 $[ML^{-3}T^{-1}]$を示す．密度の空間変化は無視できるとし，また線形の溶液圧縮性を仮定し，吸着がないとする．

単一成分の物質輸送方程式は，溶解成分の濃度 $C_\alpha[ML^{-3}]$を用いて次のように表せる．

$$\frac{\partial(\theta_\alpha C_\alpha)}{\partial t}+\mathrm{v}_\alpha\cdot\nabla(\theta_\alpha C_\alpha)-\nabla\cdot(\theta_\alpha \mathbf{D}_\alpha\cdot\nabla C_\alpha)=\left(1-\frac{C_\alpha}{\rho_\alpha}\right)I_\alpha \quad (2)$$

ここで，v_αは空隙平均流速，$\mathbf{D}_\alpha$は分散テンソルを示す．

相変換項は，溶解項によって次のように表せる．C_a^s は溶液の平衡濃度，$K_{\alpha n}$ は物質輸送率係数$[T^{-1}]$を示し，液相 I_aを正としている．

$$I_a = \theta_a\left[K_{an}(C_a^s - C_a)\right] = -I_n \quad (3)$$

(1)，(2)式は，ダルシー則による流体の運動量保存則と質量保存則にもとづく．これを解くには，別に，毛管圧力水頭，体積含有率，相対浸透係数の関係式が必要であり，一般には実験による曲線形が用いられる．

(b) 差分連成ランダムウォーク法の支配方程式

多成分多相流モデルの定式化では，注目する現象のスケールに応じて，DNAPL 原液の移動成分を上述のように分散項を含まない(1)式で表す場合[28),30),31)]と，ダルシー則をもとに，各相のバルク流速（多成分の平均流速）を用いて各成分の質量保存を一括して(2)式で表す定式化[2),22),23),24),25)]がある．

本研究では，現地規模の原液の分散現象に注目して後者の定式化を採用する．さらに，原液 DNAPL を表す液滴は重力沈降と地下水流により移動し，その直径は溶液 DNAPL の移流分散式を離散化する格子間隔と比べて十分に小さいと仮定する．

以上のことから，(1)式を省略し，(2)の液相，難溶解性相の物質輸送式をもとに，溶液 DNAPL，原液 DNAPL，残存 DNAPL の保存式を構成する．

鉛直 2 次元場における溶液 DNAPL，および原液 DNAPL の物質輸送方程式は，次のように表せる．

$$\frac{\partial(\theta_\alpha C_\alpha)}{\partial t}-\frac{\partial}{\partial x}\left\{\left(\theta_\alpha D_{\alpha xx}\frac{\partial C_\alpha}{\partial x}+\theta_\alpha D_{\alpha xz}\frac{\partial C_\alpha}{\partial z}\right)-\theta_\alpha u'_\alpha C_\alpha\right\}-\frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\theta_\alpha D_{\alpha zx}\frac{\partial C_\alpha}{\partial x}+\theta_\alpha D_{\alpha zz}\frac{\partial C_\alpha}{\partial z}\right)-\theta_\alpha w'_\alpha C_\alpha\right\}+Additional_term_\alpha=0 \quad (4a)$$

$$Additional_term_a = ADS_a - ELU_a - SOL_{ea}$$
$$Additional_term_n = ENT_{ne} - DET_{en} \quad (4b)$$

また，残存 DNAPL の収支式は，次のように表せる．

$$\frac{\partial(\theta_e C_e)}{\partial t} + SOL_{ea} - ENT_{ne} + DET_{en} = 0$$
$$SOL_{ea} = \theta_a\left[K_{an}(C_a^s - C_a)\right] \quad (5)$$

ここで，添え字 a, n, e はそれぞれ液相，難溶解性相，残存 DNAPL を示し，C_a, C_n, C_eは濃度，θ_a, θ_n, θ_eはそれぞれの体積含有率である．地下水の流れ場は一様水平流と仮定する．ADS_a，ELU_a，SOL_{ea} はそれぞれ溶液 DNAPL の土粒子との吸着/脱着，原液からの溶解を表す．ENT_{ne}，DET_{en}は液滴微粒子の捕捉，脱着を表す．

したがって，単位コントロールボリューム ΔV 中の平均濃度$\overline{C}$ は，次のように表すことができる．

$$\varepsilon = \theta_a + \theta_n + \theta_e; \quad \overline{C} = \frac{C_a\theta_a + C_n\theta_n + C_e\theta_e}{\varepsilon} \quad (6)$$

物質輸送率係数 K_{an}は，次のような Miller et al.[8)]および Imhoff et al.[12)]による定式化(7a)-(7c)を用いる．

$$Sh = 425\ \mathrm{Re}^{0.75}\ \theta_n^{0.60} \quad (7a)$$

$$Sh = 340\ \theta_n^{0.87}\ \mathrm{Re}^{0.71}(x/d_p)^{-0.31} \quad (7b)$$

$$K_{an} = Sh\cdot D_m / d_p^2 \quad (7c)$$

ここで $x/d_p = 180$，$Sh\ (=K_{an}d_p^2/D_m)$ は修正シャーウッド数，$\mathrm{Re}\ (=v_a\rho_a d_p/\mu_a)$ はレイノルズ数，d_pは多孔媒体平均粒径[L]，D_m は液相における分子拡散係数$[L^2T^{-1}]$である．

$\mathbf{D}_a$，$\mathbf{D}_n$ を水平，鉛直方向の分散係数テンソルとして，成分を次に示す(Bear and Verruijt[42)])．u'_a，w'_a は地下水流の水平，鉛直流速，u'_n，w'_n は原液 DNAPL 液滴粒子の水平移流速と粒子沈降速である．

$$\mathbf{D}_\alpha = (\mathrm{D}_{\alpha ij}) = \alpha_{\alpha T}|\mathrm{v}_\alpha|\delta_{ij} + (\alpha_{\alpha L}-\alpha_{\alpha T})\frac{\upsilon_{\alpha i}\upsilon_{\alpha j}}{|\mathrm{v}_\alpha|} + \delta_{ij}\tau D_m \quad (8)$$

ここで，$\alpha_{\alpha L}$，$\alpha_{\alpha T}$は流下方向，横断方向分散長[L]，$\upsilon_{\alpha i}$，$\upsilon_{\alpha j}$ は空隙流速成分であり，$\upsilon_{ai}= u'_a$，$\upsilon_{aj}= w'_a$，$\upsilon_{ni}= u'_n$，$\upsilon_{nj}= w'_n$とする．δ_{ij}はクロネッカーのデルタ，τは屈曲率である．

以上の(4)-(8)式をもとに，各相の物質輸送式を離散化し，モデルを構築する．

(3) 実験による DNAPL 輸送の定式化

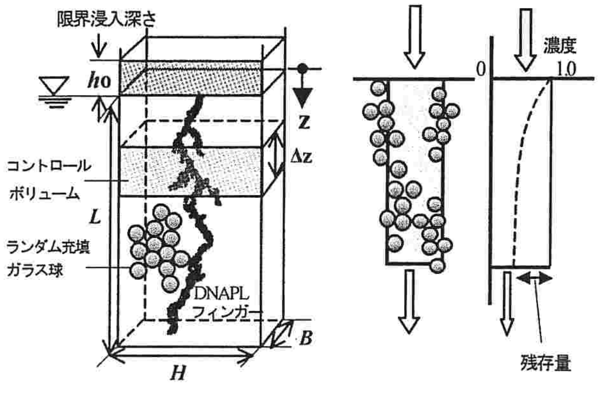
ミクロスコピックな視点から，フィンガリングは DNAPL 移行における重要な現象である．著者らは先に，DNAPL の残存量に注目し，フィンガリングの基礎方程式を導びいて，この式から残存量が算定できることを実験により検証した[4)]．実験と基礎方程式の概要を述べる．

残存量は，DNAPL 原液が地中に浸透し，微細な液滴粒子に分解され，帯水層の空隙中に捕捉・拘束されて残留することから[3),6)]，水中の懸濁質ろ過の概念(Yao et al.[43)]; Rogers and Logan[44)]; Tufenkji et al.[45)])に準じて定式化した．

図-2 (a) のような多孔媒体モデルにおいて，単位コントロールボリューム当たりの原液 DNAPL 量を濃度で，残存 DNAPL 量を体積含有率で表す．DNAPL 保存式を(9)に，wの定義を(10) 式に，残存 DNAPL 量の定義を(11)式に示す．ある点 z における残存量が，その点の濃度に比例するという関係にもとづく．ここでは DNAPL の難溶解性と現象の時間スケールから DNAPL 溶液は対象から省いている．

$$\frac{\partial C\theta_n}{\partial t} + \rho_n\frac{\partial\theta_e}{\partial t} + w\frac{\partial C\theta_n}{\partial z} - D\frac{\partial^2 C\theta_n}{\partial z^2} = 0 \quad (9)$$

$$n_{eD}\cdot w = W_d; \quad W_d = k\cdot k_D\left(\frac{\xi + h_0 + \xi_c}{\xi}\right) \quad (10)$$

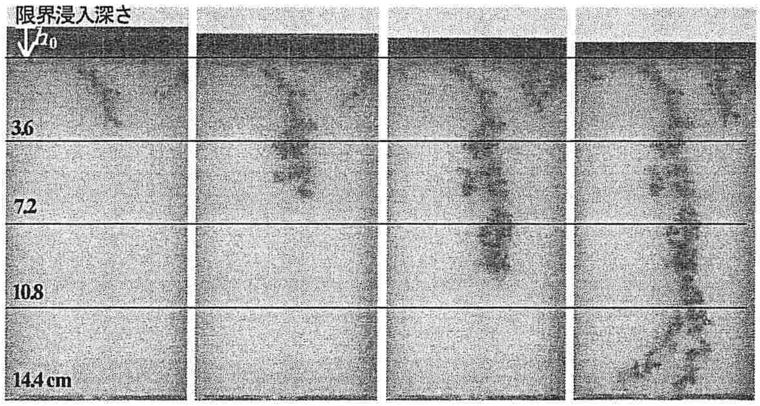


(a) 多孔媒体モデル　　(b) ピストンフローモデル

図-2 フィンガリングのモデル化

表-1 多孔媒体モデルの特性とフィンガリング実験結果

実験ケース	C1a	C1b	C2	C3
d_p (粒径) 10^3 (m)	1.0	1.0	2.0	3.0
LxHxB 10^2 (m)	14.0x9.0x0.6 (C1bのみ 10.0x9.0x0.6)			
ε (空隙率)	0.315		0.385	0.425
透水係数(m/s)	2.52e-2		8.10e-2	11.4e-2
固有浸透係数(m^2)	2.57e-9		8.27e-9	1.16e-8
TCE 浸透係数(m/s) *	6.50e-2		2.09e-1	2.93e-1
フィンガリング速度 w 10^{-2} (m/s)	0.205	0.310	0.732	1.03
落下時間 T_0(sec)	70.4	32.9	19.8	14.0
κ (sec^{-1})	0.0123	0.0222	0.0516	0.0728
λ (m^{-1})	5.93	7.20	6.58	7.10
*TCE 密度 ρ_n : 1.47×10^6 (g/m^3), 粘性係数 μ_n : 5.7×10^{-4}(Pa·s)				



(a) 20sec.　(b) 40sec.　(c) 60sec.　(d) 80sec.

図-3 TCE フィンガーリングパターン（粒径 1mm, L=140mm）

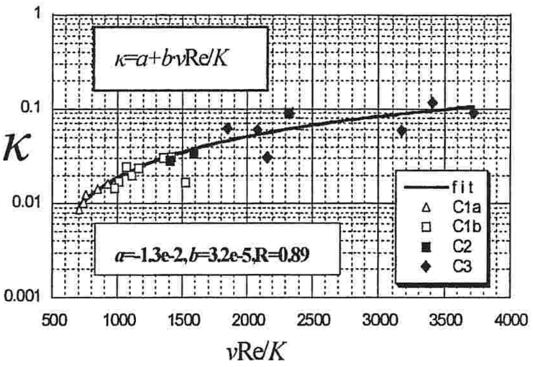


図-4 空隙内拘束率係数 κ と vRe/K

$$\rho_n \frac{\partial \theta_e}{\partial t} = \kappa \cdot C\theta_n \tag{11}$$

ここで，$\theta_n(x,t)$，$\theta_e(x,t)$ は原液および残存 DNAPL 体積含有率(ただし $n_{eD}=\theta_n+\theta_e$)，$C(x,t)$ は DNAPL 濃度，ρ_n は DNAPL 密度，w は鉛直浸透(フィンガリング)速度[LT^{-1}]，D は分散係数，W_d はダルシー速度[LT^{-1}]，k は DNAPL 浸透係数，k_D は補正係数，ξ は鉛直経路長[L]，h_0 は限界浸入深さ[L]，ξ_c は DNAPL 毛管圧力相当水頭[L]，n_{eD} は動的な有効空隙率である．k_D は DNAPL と水との密度差，表面張力，フィンガリング形状係数を含む補正係数であり，n_{eD} は $H{\cdot}B{\cdot}n_{eD}$ がフィンガー断面積を表す．(11)式のパラメータ κ は残存量を支配するものであり，ここでは，κ を空隙内拘束率係数[T^{-1}]，λ を $\lambda=\kappa/w$ と定義して，空隙内拘束係数[L^{-1}]と呼ぶこととする．

定常で分散がない場合，(9), (11)式で $C'=C\theta_n$ とすると次の(12)式となり，$z=z_0$ で $C'=C'_0$ の境界条件を与えて解くと(13)式が得られる．

$$w\frac{dC'}{dz} + \kappa C' = 0 \tag{12}$$

$$C'(z) = C'_0 \exp(-\kappa / w \cdot z) \tag{13}$$

フィンガリングを単純化して，ピストンフローモデルで表現する(図-2(b) 参照)．単位流入量に対して流出量（移動部）と残存量（不動部）の和は等しい．ここで，定常状態を設定し（たとえば，フィンガーの先端が下方境界に到達した時点の濃度分布），近似的に(13)式が成り立つとすると，流出量と残存量が図-2(b) のように表される．

点 z における T_0 時間後の残存量は(14)式から得られる．

$$\int_0^{T_0} \rho_n \frac{\partial \theta_e}{\partial t} dt = \kappa T_0 n_{eD} C_0 \exp(-\kappa / w \cdot z) \tag{14}$$

したがって，DNAPL の流入，流出量を Q_{in}, Q_{out}[M]，多孔媒体全体における残存量を ΔQ (=Q_{in}-Q_{out}) とし，$A=H{\cdot}B$, $A{\cdot}L{\cdot}n_{eD}\,C_0=Q_{in}$ と $L=wT_0$ の関係を用いれば，ΔQ と κ は次のように表せる．

$$\Delta Q = A \cdot \int_0^L \int_0^{T_0} \rho_n \frac{\partial \theta_e}{\partial t} dtdz = Q_{in}\left[1-\exp(-\kappa / w \cdot L)\right] \tag{15}$$

$$\kappa = \frac{w}{L}\log\left(\frac{Q_{in}}{Q_{out}}\right) \tag{16}$$

一方，κ は平均粒径 d_p, 空隙率 ε, 係数 η [-]を用いて(17a)式のように定義される [43), 44), 45)]．κ は，単位体積中の媒体粒子数($A{\cdot}\Delta z(1-\varepsilon)/(\pi d_p^3/6)$)に，媒体粒子の断面積($\pi d_p^2/4$)を乗じたパラメータ $3(1-\varepsilon)/2d_p$ と，粒子への付着，脱着を表す係数 η および流速 w との積の形で表される．

さらに，粒径 d_p と空隙径 δ との関係 $d_p=c\delta$ を用いると，空隙単管モデルにもとづく浸透係数の表現($k=\delta^2\rho g/32\mu$, $K=\mu k/\rho g$)[5)]から，κ は次の(17b)式のように表せる．ζ_p は c

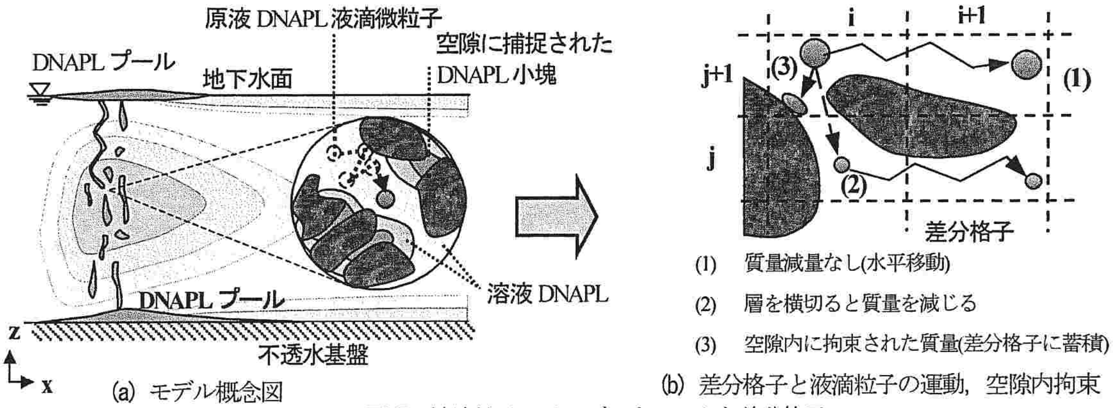


図-5 液滴粒子のランダムウォークと差分格子

などの空隙形状に関わる係数，μ は DNAPL の粘性係数，ν は動粘性係数$[L^2T^{-1}]$，Kは固有浸透係数である．

$$\kappa = \frac{3(1-\varepsilon)}{2d_p} w\eta \qquad (17a)$$

$$\kappa = \beta_p \frac{\nu \mathrm{Re}}{K}, \qquad \beta_p = \frac{3}{2}(1-\varepsilon)\eta\zeta_p \qquad (17b)$$

実験で得られた各ケースのフィンガリング速度 w，落下時間 T_0 と，(16)式から得られた κ と λ の値を表-1 に示す．λ が大きいほど残存率が高い．λ の値でみると，供試体長さ L が 10cm のケース(C1b)を除き，粒径の増加により値が大きくなり，1, 2, 3mm のケースについて，それぞれ $\lambda = 5.93, 6.58, 7.10\ (m^{-1})$ という値が得られた．

κ の特性を見るために，$\nu Re/K$ との関係を図-4 のグラフに示す．実験から，$\kappa = a + b\nu Re/K$ として Re 数が 4 から 110 の範囲で，$a = -1.3x10^{-2}$，$b = 3.2x10^{5}$，相関係数 R=0.89 という結果が得られている．

残存量の定式化と実験で得られた λ の値にもとづき，空隙内拘束 DNAPL のモデル化を行う．

(4) 液滴 DNAPL のランダムウォークモデル

原液 DNAPL 液滴粒子のランダムウォークモデルを前提とした本モデルの模式図を図-5, 図-6 に示す．図-5(a) は DNAPL 移行に関わる各相の模式図であり，図-5(b) に空隙内拘束 DNAPL とランダムウォークする液滴粒子，溶液 DNAPL の差分格子との関係を示した．

図-6(a) に示すように，液滴粒子は地下水流に等しい速度で水平方向に移動し，重力沈降により鉛直方向に移動する．水平・鉛直分散項は，正規分布を仮定して，その標準偏差が分散係数と時間の積に対応する関係から，個々の粒子の n+1 時刻後の位置を正規乱数により求める．

液滴として直径（質量）の異なる数種類の球粒子を想定し，異なる沈降速度で運動させ，重力沈降メカニズムによる原液移流分散の挙動が再現できる．

飽和水中へ自由沈降する単粒子の最終速度は，w_p を自由沈降速度，d_p を粒子径，ν を動粘性係数，Re 数を $Re = w_p d_p/\nu$ とし，粒子径にもとづく Re 数に応じて，$w_p = g(\rho_p - \rho)d_p^2/18\mu$ (Re<1; Stokes の式)，$w_p = 0.233((\rho_p-\rho)^2/(\mu\rho g^2))^{1/3}\cdot d_p$ ($1 \le Re \le 100$; Allen の式) と表せる．ここで，ρ，ρ_p は媒体と粒子の密度，g は重力加速度，μ は粘性係数である．

また，多孔媒体中を沈降する DNAPL 液滴粒子には，摩擦，形状抵抗，壁面効果による抵抗，衝突，反発，接触，表面張力による抵抗など，様々な抵抗力が作用する (Giri et al.[46])．多粒子の相互干渉にもとづく沈降速度の補正係数 γ を用いて単粒子沈降速度を補正し，総合的な抵抗を考慮した．γ を補正係数，ε を空隙率として，$w'_n = \gamma w_p$, $\gamma = \varepsilon^m$, $(2.30 \le m \le 4.6)$ (Maude et al.[47]) と表せる．ここでは，補正係数 γ として多粒子の相互干渉がある場合の最小値 ($\gamma = 0.0148, m = 4.6$)を使用した．

こうして定めた重力沈降速度をもとに，ランダムウォークモデルの定式化[38),39)]にしたがって，鉛直２次元場の(4)式の離散化を行う．移流分散式による物質輸送のランダムウォークモデルの基礎方程式は，x-z 平面上で $\mathbf{X}_p(t)$，$\mathbf{X}_p(t+\Delta t)$を現在，および次の時間ステップにおける粒子の位置，$\mathbf{A}(\mathbf{X}_p, t)$ を位置を定めるベクトル，$\mathbf{B}(\mathbf{X}_p, t)$ を $\mathbf{X}_p(t)$における粒子の拡がりを示すスケーリングテンソル，$\mathbf{R}$を正規乱数のベクトルとして，次のように表せる．

$$\mathbf{X}_p(t+\Delta t) - \mathbf{X}_p(t) = \mathbf{A}(\mathbf{X}_p, t)\Delta t + \mathbf{B}(\mathbf{X}_p, t)\cdot \mathbf{R}\sqrt{\Delta t} \qquad (18)$$

ここで，$\mathbf{R} = (r_x, r_z)$ とし，r_x, r_z は平均 0，分散が 1 の 2 方向独立な正規乱数とする．各時間ステップの液滴粒子の位置は，$\mathbf{A}$ と $\mathbf{B}$ が定まれば，(18)式により求めることができる．$\mathbf{A}$ と $\mathbf{B}$ は，次の式で表される．

$$\mathbf{A} \equiv \mathbf{v}_n + \nabla\cdot\mathbf{D}_n + \frac{1}{\varepsilon}\mathbf{D}_n\cdot\nabla\varepsilon; \quad \mathbf{B}\cdot\mathbf{B}^{\mathrm{T}} \equiv 2\mathbf{D}_n \qquad (19)$$

ここで，$\mathbf{v}_n = (u'_n, w'_n)$，分散係数テンソル $\mathbf{D}_n$ と空隙率 ε は，空間的に一様とすれば，$\mathbf{A} = \mathbf{v}_n$ が成り立つ．(8)式から，$\mathbf{D}_n$ の成分は，分散長 α_{nL}，α_{nT} として液滴直径を長さスケールの基準にとり，次のように表せる．

$$D_{nxx} = \alpha_{nL}\frac{u_n'^2}{q'} + \alpha_{nT}\frac{w_n'^2}{q'} + D_m; \quad D_{nzz} = \alpha_{nT}\frac{u_n'^2}{q'} + \alpha_{nL}\frac{w_n'^2}{q'} + D_m$$
$$D_{nxz} = D_{nzx} = (\alpha_{nL} - \alpha_{nT})\frac{u'_n w'_n}{q'} \qquad \left(|v_n| = \sqrt{u_n'^2 + w_n'^2} = q'\right) \qquad (20)$$

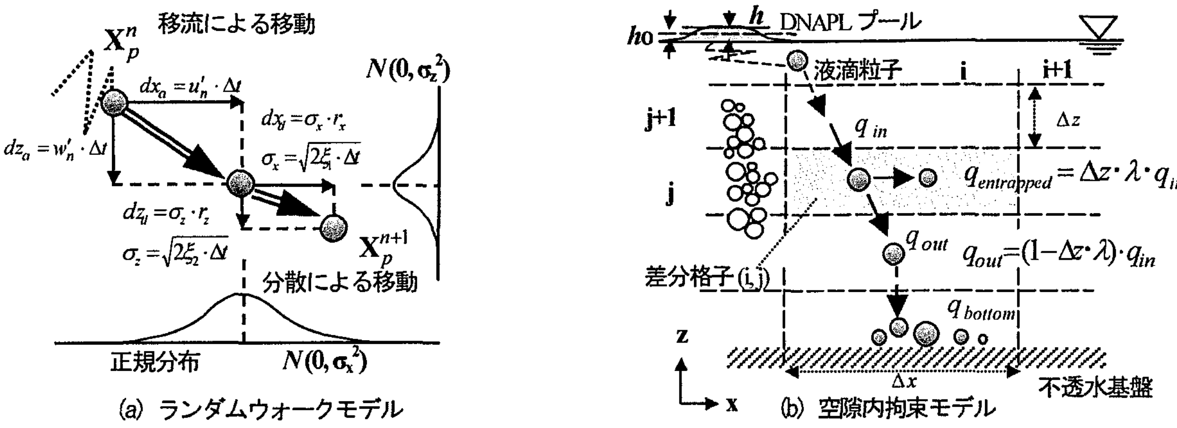


図-6　液滴粒子のランダムウォークと空隙内拘束のモデル化

B の成分は $\mathbf{D}_n$ を対角化した $\mathbf{D}'_n$ により，$\mathbf{B}'=\sqrt{2\mathbf{D}_n'}$ と書けて，次のように求まる．

ξ_1，ξ_2 を $\mathbf{D}_n$ の固有値とすれば，これは分散係数テンソルの主軸方向を表し，水平，鉛直流速を反映した分散係数表現となる．(20)式より

$$\xi_1=\alpha_{nL}\sqrt{u_n'^2+w_n'^2}+D_m$$
$$\xi_2=\alpha_{nT}\sqrt{u_n'^2+w_n'^2}+D_m \qquad (21a)$$

$$\mathbf{B}'=\begin{pmatrix}\sqrt{2\xi_1} & 0\\ 0 & \sqrt{2\xi_2}\end{pmatrix} \qquad (21b)$$

したがって，x，z 方向の粒子位置は，(18)式で B の代わりに B'を用いて，$\mathbf{X}_p^{n+1}=\mathbf{X}_p(t+\Delta t)$，$\mathbf{X}_p^n=\mathbf{X}_p(t)$ と書いて，

$$\mathbf{X}_p^{n+1}=\mathbf{X}_p^{n}+(dx_a,dz_a)+(dx_d,dz_d)$$
$$(dx_a,dz_a)=(u_n'\Delta t,w_n'\Delta t)$$
$$(dx_d,dz_d)=(\sigma_x r_x,\sigma_z r_z) \qquad (22)$$
$$\sigma_x=\sqrt{2\xi_1\Delta t},\quad \sigma_z=\sqrt{2\xi_2\Delta t}$$
$$r_x=N(0,1),\quad r_z=N(0,1)$$

ここで，$\mathbf{X}_p^{n+1}$，$\mathbf{X}_p^n$ は液滴粒子の n+1，n 時刻の位置，dx_a，dz_a は移流による移動距離，dx_d，dz_d は分散による移動距離である．(図-6(a)参照)

なお，原液 DNAPL 液滴粒子が移動する時間スケールは，地下水面から不透水基盤に到達するまでを基準とすれば，液滴粒子から液相として溶解する時間スケールと比べて短いことから，移動中の溶解は起こらないとし，(4)，(5)式で示すとおり，難溶解性相から液相への移行は残存 DNAPL から液相の場合のみとする．

(5) 空隙内拘束 DNAPL のモデル化

空隙内に捕捉・拘束される DNAPL 液滴のモデル化は，本研究で提案する移行解析モデルの中核となる部分であり，次の点が前提となる．(i) 原液 DNAPL の液滴粒子質量が移動・不動の 2 つの部分に分かれる，すなわち残存量が，その点の濃度に比例するという関係から，重力沈降する液滴の運動から分離された拘束 DNAPL の液質量を定義する（量の決定）．(ii) 鉛直方向のある格子(層)を通過する際，液滴粒子の一部質量がその格子内に拘束され，粒子自身は質量を減じて下底に達するまでランダムウォークを続ける（アルゴリズム）．(iii)格子平均値で定義された移流分散差分式による DNAPL 輸送量と，格子の長さスケールよりはるかに小さい原液 DNAPL 液滴の分布とを結合し，拘束 DNAPL 質量を格子平均値として溶液 DNAPL 移流分散式に反映させる（ランダムウォークと差分の結合）．

すでに述べたように，空隙内に拘束された DNAPL 質量は，(12)，(17)式を用いて表せる．これらの式をもとに，空隙内拘束係数 λ を用いて原液 DNAPL の一部が空隙に捕捉され残りが沈降する割合を定め，質量を求め得る．図-6(b)の h，h_0 は DNAPL プール高さ（限界浸入深さ）で，$h\geq h_0$ のとき，地下水中に浸入する．

q_{in}，q_{out} を，それぞれある差分格子の上下の境界面を横切って単位時間に流入，流出する液滴質量とし，ΔV を格子間隔に対応するコントロールボリュームとすれば，(12)式は $\lambda=\kappa/w$ から，次のように表せる．

$$\frac{1}{\Delta V}\frac{q_{out}-q_{in}}{\Delta z}=-\lambda\frac{q_{in}}{\Delta V} \qquad (23a)$$

$$q_{out}=(1-\Delta z\cdot\lambda)q_{in}$$
$$q_{entrapped}=q_{in}-q_{out}=\Delta z\cdot\lambda\cdot q_{in} \qquad (23b)$$

ある格子に流入する個々の粒子質量を q_{in_k} とすれば，一定時間後に格子に拘束される液滴粒子の総質量は，k_e をその格子の下面から流出する液滴粒子の総数として，次のようになる．ただし，空隙内拘束 DNAPL の体積含有率 θ_e は，残留飽和度 $\theta_e$max を超えないものとし，超えた場合には，液滴粒子はその格子に拘束・残留されずに下に移動するものとしている．$\theta_e$max の値は，最大残留飽和度を S_n= 15%として，0.15ε とした[11),14),20)]．

$$ENT_{ne}=\sum_{k_e}\Delta z\cdot\lambda\cdot q_{in_k}$$
$$\theta_e=\frac{\int ENT_{NE}\,dt}{\varepsilon\cdot\rho_n\cdot\Delta V}\leq\theta_{e\max}=0.15\varepsilon \qquad (24a)$$

また，不透水基盤上の DNAPL プールは，ランダムウォークにより移動した粒子が着底して形成されることから，k_b をその格子内で着底した液滴粒子の総数として，各格子について次の式で求められる．

$$ENT_{ne\ pool} = q_{bottom} = \sum_{k_b} q_{out_k} \qquad (24b)$$

空隙内拘束 DNAPL の収支を示す(5)式から，ENT_{ne} 項と，各差分格子における溶液 DNAPL への溶解を表す SOL_{ea} 項，空隙内拘束 DNAPL 量の時間変化項が関係付けられる．なお，液滴粒子の脱着（不動部から移動部への移行）を示す DET_{en} 項は，ここでは 0 とする．

(6) 溶液 DNAPL 移流分散方程式の離散化

溶液 DNAPL 移流分散方程式は，現地規模の解析を意図し，透水係数の不均一性や複雑な帯水層形状を分散係数でモデル化する．分散係数の成分は，(8)式から次のように表せる．

$$D_{axx}=\alpha_{aL}u'_a+D_m;\quad D_{azz}=\alpha_{aT}u'_a+D_m;\quad D_{axz}=D_{azx}=0 \qquad (25)$$

実験に見られるように，帯水層中 DNAPL の鉛直方向分布は，主として原液 DNAPL の重力沈降と分散により定まり，溶液の鉛直方向移流成分の影響は小さいとして，溶液の鉛直移流速度は $w'_a=0$ とおいた．

式の離散化は，打切り誤差が３次オーダの３次精度風上差分スキームをもとに，TVD 法を用いて高精度で安定な解法とした．さらに計算効率と精度の点から Semi-Implicit 化を行い[35),36)]，後述する対角行列の各成分を導出した．溶液移流分散式は(4)式をもとに，次の１次元の例に示すように差分化する．

１次元の移流分散式は，v を移流速として，$C_t=\partial C/\partial t$, $vC_x= v\partial C/\partial x$, $G = D\partial^2 C/\partial x^2$ とおいて，$C_t+vC_x=G$ と書ける．このとき，移流項を $F=vC_x$, $\zeta=\Delta t/\Delta x$ とおいて離散化し，時間刻みを n, 空間刻みを j として一般形で表せば，重み Θ を用いて，$0\leq\Theta\leq1$ として，

$$\begin{aligned} &C_j^{n+1} + \Theta\zeta \left(\tilde{F}_{j+1/2}^{n+1} - \tilde{F}_{j-1/2}^{n+1}\right) - \Theta \Delta t G^{n+1} \\ &= C_j^n - (1-\Theta)\zeta\left(\tilde{F}_{j+1/2}^{n} - \tilde{F}_{j-1/2}^{n}\right) + (1-\Theta)\Delta t G^n \end{aligned} \qquad (26)$$

と書ける．ここで，$\Theta = 1$ のとき Implicit, $\Theta = 1/2$ のとき Semi-Implicit, $\Theta = 0$ のとき Explicit となる．また，移流項を離散化した数値流束は，$\Delta C_{j+1/2} = C_{j+1} - C_j$ として，

$$\tilde{F}_{j\pm1/2} = \left(F_{j\pm1} + F_j\right)/2 + \hat{F}_{j\pm1/2}(\Delta C) \qquad (27)$$

と表せる．

TVD 制限関数付の数値流束の一般形は，

$$\begin{aligned} \hat{F}_{j+1/2}(\Delta C) &= -\frac{1}{2}\left|v_{j+1/2}\right|\Delta C_{j+1/2} \\ &+\frac{1}{4}v_{j+1/2}^{+}\left[(1-\beta)\phi(r_{j-1/2}^{+})\Delta C_{j-1/2} + (1+\beta)\phi(r_{j+1/2}^{-})\Delta C_{j+1/2}\right] \\ &-\frac{1}{4}v_{j+1/2}^{-}\left[(1-\beta)\phi(r_{j+3/2}^{-})\Delta C_{j+3/2} + (1+\beta)\phi(r_{j+1/2}^{+})\Delta C_{j+1/2}\right] \end{aligned} \qquad (28a)$$

$$\begin{aligned} &\phi(r) = \mathrm{minmod}(1, b_{TVD}\cdot r), \\ &\mathrm{minmod}(x,y) \equiv \mathrm{sign}(x)\max\left[0, \min\left\{|x|, \mathrm{sign}(x)y\right\}\right] \end{aligned} \qquad (28b)$$

$$r_{j+1/2}^{+} = \Delta C_{j+3/2}/\Delta C_{j+1/2},\quad r_{j+1/2}^{-} = \Delta C_{j-1/2}/\Delta C_{j+1/2} \qquad (28c)$$

$$v^{\pm} = (v \pm |v|)/2,\ v^{+} + v^{-} = v,\ v^{+} - v^{-} = |v| \qquad (28d)$$

と表せる．C_{CFL} をクーラン数($=v\zeta$)として(29)が成り立つとき TVD 安定条件が満たされる[35)]．３次風上差分で Semi-Implicit の場合，$\beta=1/3$, $\Theta=1/2$, $b_{TVD}=4$ である．

$$1 \leq b_{TVD} \leq (3-\beta)/(1-\beta);\quad (1-\Theta)C_{CFL} \leq 1 \qquad (29)$$

線形化した Semi-Implicit 型の一般形は，C^{n+1} を直接解かずに，時間変化 $\delta C=C^{n+1}-C^n$ の解を求める表現(Δ形式)として，(26)-(28)式を用いて次のように表せる．

$$\begin{aligned} &A_1\delta C_{j+2} + A_2\delta C_{j+1} + A_3\delta C_j + A_4\delta C_{j-1} + A_5\delta C_{j-2} \\ &= -\zeta\left(\tilde{F}_{j+1/2}^{n} - \tilde{F}_{j-1/2}^{n}\right) + \Delta t G_j^{\,n} \end{aligned} \qquad (30)$$

この式は，N を格子数，j=1, N として，左辺が１行に５つの非 0 成分を持つ NxN の五重対角行列，右辺が N の定数ベクトルとなる．これを解いて δC を求め，次の時刻の C^{n+1} の値が定まる．３次風上差分を Semi-Implicit TVD 化した対角行列の成分は，次の式で表される．

$$\left.\begin{aligned} A_1 &= \frac{\zeta\Theta}{6}\left(-v_{j+1/2}^{-}\phi(r_{j+3/2}^{-})\right) \\ A_2 &= -\frac{\Theta\Delta t D}{\Delta x^2} \\ &+\frac{\zeta\Theta}{6}\Big\{3v_{j+1} - 3\left|v_{j+1/2}\right| \\ &\quad + 2v_{j+1/2}^{+}\phi(r_{j+1/2}^{-}) + v_{j+1/2}^{-}\phi(r_{j+3/2}^{-}) \\ &\quad - 2v_{j+1/2}^{-}\phi(r_{j+1/2}^{+}) + v_{j-1/2}^{-}\phi(r_{j+1/2}^{-})\Big\} \\ A_3 &= 1 + \frac{2\Theta\Delta t D}{\Delta x^2} \\ &-\frac{\zeta\Theta}{6}\Big\{-3\left|v_{j+1/2}\right| - 3\left|v_{j-1/2}\right| \\ &\quad + 3v_{j+1/2}^{+}\phi(r_{j+1/2}^{-}) - v_{j+1/2}^{+}\phi(r_{j-1/2}^{+}) \\ &\quad - 3v_{j+1/2}^{-}\phi(r_{j+1/2}^{+}) + v_{j-1/2}^{-}\phi(r_{j+1/2}^{-}) \\ &\quad + 2v_{j-1/2}^{+}\phi(r_{j-1/2}^{-}) - 2v_{j-1/2}^{-}\phi(r_{j-1/2}^{+})\Big\} \\ A_4 &= -\frac{\Theta\Delta t D}{\Delta x^2} \\ &-\frac{\zeta\Theta}{6}\Big\{3v_{j-1} + 3\left|v_{j-1/2}\right| \\ &\quad + v_{j+1/2}^{+}\phi(r_{j-1/2}^{+}) - 2v_{j-1/2}^{+}\phi(r_{j-1/2}^{-}) \\ &\quad - v_{j-1/2}^{+}\phi(r_{j-3/2}^{+}) + 2v_{j-1/2}^{-}\phi(r_{j-1/2}^{+})\Big\} \\ A_5 &= \frac{\zeta\Theta}{6}\left(v_{j-1/2}^{+}\phi(r_{j-3/2}^{+})\right) \end{aligned}\right\} \qquad (31)$$

上述した差分スキームに加えて，分散項，溶解項を離散化して行列の各成分を求め，時間刻みごとに行列の解を求めることにより，溶液濃度が計算できる．

(7) 差分連成ランダムウォーク法の計算手順

FD-RWM の計算手順の概略を図-7 に示す．初期値と計算条件として，DNAPL プールの位置と液滴粒子の浸入条件を既知としている．不飽和帯との連成解析を行う

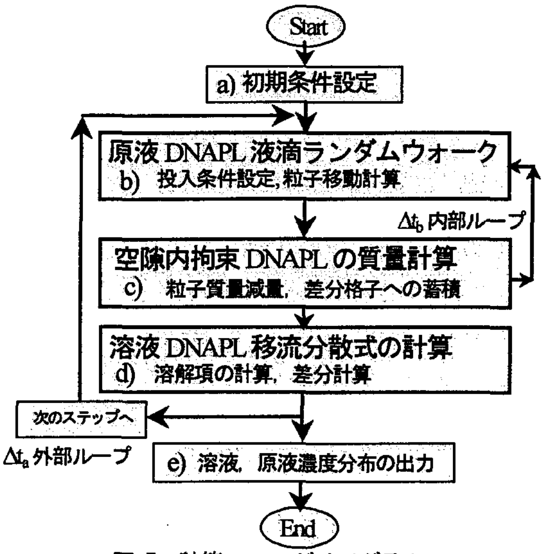


図-7 計算フローダイアグラム

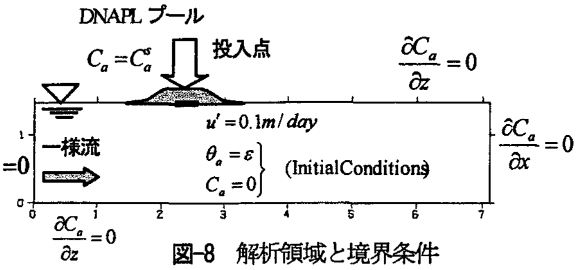


図-8 解析領域と境界条件

表-2 DNAPL(TCE)の特性値

ρ_n(密度)	1.47x10^6(g/m^3)	D_m(分子拡散係数)	8.0x10^{-10}(m^2/s)
μ_n(粘性係数)	5.7x10^{-4}(Pa·s)	C_a^s(飽和濃度)	1.27x10^3(mg/L)

表-3 計算ケース

ケース	期間	計算条件 *FDM：移流分散式の差分
A-1	18日	DNAPLプールからの溶出による溶液分散 FDM*
A-2	4日	差分連成ランダムウォーク法(FD-RWM)

表-4 差分連成ランダムウォーク法の計算条件

ε(空隙率), d_p(平均粒径) x10^{-2}(m)		0.4, 0.04	δ_p(液滴粒径; 7 タイプ) x10^{-2}(m)	0.01, 0.02, 0.04, 0.05, 0.06, 0.08, 0.1
分散長(縦・横)x10^{-2}(m)	α_{aL}, α_{aT}	9.0, 3.0	γ(沈降速度の補正係数)	0.0148
	α_{nL}, α_{nT}	9.0, 3.0	λ(空隙内拘束係数) (m^{-1})	5.62
u'(空隙平均流速) (m/day)		0.1	格子間隔($\Delta x, \Delta z$)x10^{-2}(m), 格子点数	(9,3), (79,49)

場合は, 図-6(b)の限界浸入深さが $h \geq h_0$ となる場合に, この条件を満たす境界格子から h_0 を超えた液滴量を浸入させる.

計算は, 溶液DNAPL移流分散式について設定時間刻みΔt_aの繰り返しにより制御する. b)のランダムウォークとc)の粒子質量減量部分は内部の小さいΔt_bで繰り返してΔt_a時間内の液滴粒子の運動を追跡する. その結果をもとにΔt_a時間ごとに各格子の粒子拘束部分の合計質量を求め, 溶液DNAPLへの溶解量を算定し, 移流分散式に接続する. 計算の時間刻みは格子間隔と移流速度によるクーラン安定条件から定まる.

3. 差分連成ランダムウォーク法の基本的特性

(1) 感度解析とその条件

現地適用性の検討に先立って, 本提案モデル(FD-RWM)の基本的な特性を把握するために, 既往の計算結果から液相および難溶解性相の移流分散を同時に解析したMayer and Miller[29]の2相モデルを一例として比較・検討した. 解析条件と解析ケースを表-2～表-4に, 解析領域を図-8に示す. 鉛直2次元場において一様水平地下水流がある場合を想定している. 差分連成ランダムウォーク法をFD-RWMで, 移流分散式の差分解法をFDMで表す.

原液DNAPLは, 液滴直径を δ_p として $\delta_p = 0.01$～0.1(x10^{-2}m)の7種類を与え, どの粒子を発生させるかを一様乱数で設定する. 解析ケースA-1は, DNAPLプールからの溶出を境界条件として原液の浸透（ランダムウォーク）がない場合の溶液濃度分布の結果である. ケースA-2は, FD-RWMの結果であり, 2相流モデルとの差を示すもので, 入力条件は同一ではないが原液, 溶液濃度分布の傾向を比較する.

嘉門ほかの2次元土槽実験[48]によれば, 水平流の影響はDNAPL原液の移動性を高め, DNAPLの側方浸透でなく, 下方浸透を促進させる結果が得られている.

Mayer and Millerは支配方程式を, 1次風上差分をもとにFEMで離散化し, 原液飽和体積率($\theta_n = 0.166$), 溶液飽和濃度 C_a^s を境界格子に設定し, 原液飽和度と圧力および透水係数の関係式から原液の移動を求めた. また(7a), (7c)式に示した物質輸送率係数により溶解条件を与えて, 一定時間後(100秒後)に境界からのフラックスを遮断しその後の長期間の解析結果を得た.

(2) 本手法による液滴微粒子の挙動と溶液濃度分布

図-9(a)に2相モデルの結果(約18日後)を, 図(b)-(e)にFD-RWMの結果を示した. 等値線は溶液正規化濃度を対数で, シェイディングは残存DNAPL体積含有率を対数で示す. 図(b)は本モデルの差分式のみによる溶液移流分散(A-1)の結果である. DNAPLプールを境界条件として, 原液浸透がない場合の18日後の結果を求め, 使用した移流分散スキームと溶解モデルの妥当性を確認した.

図(c)はFD-RWMによる4日後の結果である. DNAPLの重力沈降にともなって形成される空隙内拘束DNAPLの分布（汚染柱）が得られ, これを発生源として移流分散される汚染プルームの現象が再現されている. 図(d),

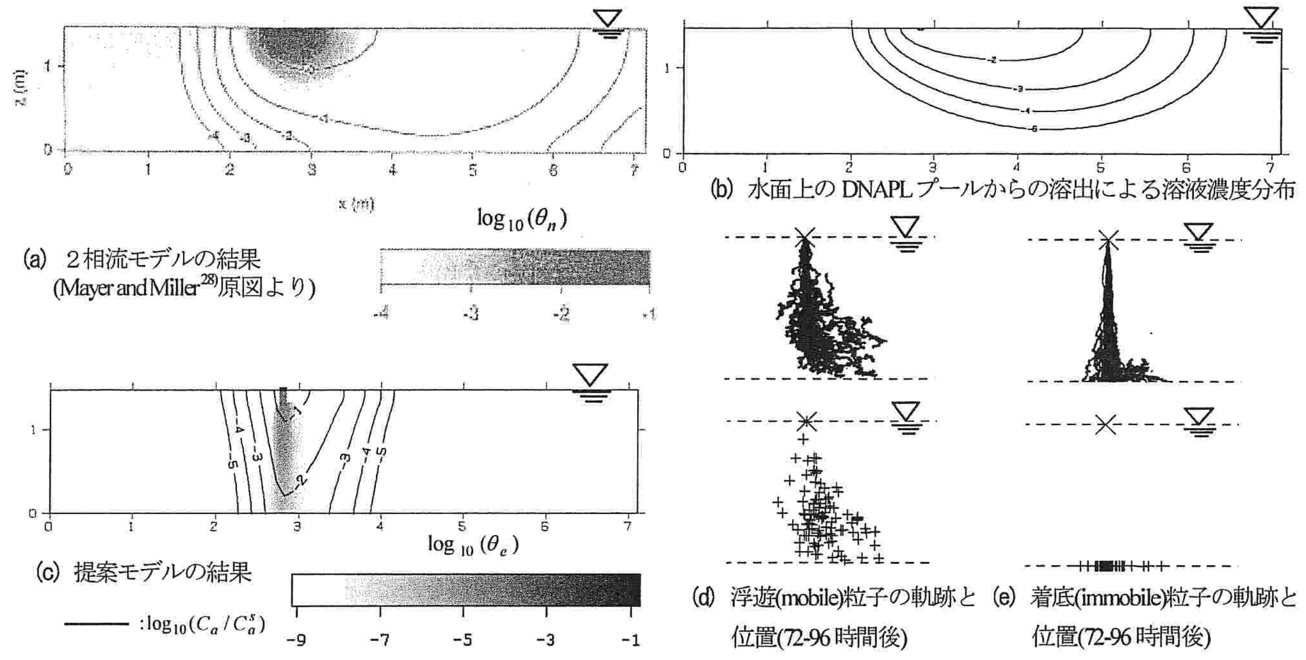


図-9 差分連成ランダムウォーク法による溶液濃度 C_a，残存DNAPL体積含有率 θ_e および液滴粒子の軌跡と位置の分布

(e)は最後の24時間に移流中および着底した原液DNAPL粒子の最終位置と軌跡である．δ_p の大きな粒子は速やかに沈降するが，空隙内に捕捉されて質量を減じ下方で分散・移流の影響を受けること，δ_p の小さな粒子は滞留時間，水平移動が大きいことが示されている．

2相モデルによる解析結果(図(a))は，原液DNAPLの浸入を毛管圧と残留飽和度の関係式により求め，一定時間後にこの浸入を遮断している．浸透したDNAPLは水面付近で静止しており，長期（5年）の解析でも沈降は起こらない．溶液のみの計算(A-1)とは異なり，帯水層中に原液が浸透し溶解により分散するケースであるが，浸透DNAPLが半円状に拡がり，Zhang and Smith [18] が指摘したように浸透深さが過少評価される傾向があることが分かる．

4．現地規模への適用性とその検討

著者らはすでに，空隙内拘束係数 λ と地下水流速をパラメータとした残存DNAPL量の分布について，本手法(FD-RWM)による予備検討の結果を報告した [49]．ここでは，DNAPL(TCE)による地下水汚染の事例にもとづき，FD-RWMの現地における適用性と有効性を検討する．

現地実測結果と解析結果を照合して，帯水層中に浸入したDNAPL量を把握し，残存量と汚染範囲，分散の時間スケールを算定した適用例を示す．検討対象のTCE汚染域は，比較的長期にわたり水質調査が継続され汚染の拡散範囲が把握されている(小林 [50]；中辻 [51]；中杉，平田 [52]；江種ほか [53])．

(1) 現地の地質特性と汚染の概要

(a) 汚染の概要

中辻 [51] によると，1983年12月，A町の水源井戸3ヶ所のうち2ヶ所から飲料水の水質暫定基準値(案)(WHO基準)0.03mg/Lを超えたトリクロロエチレンが検出された．1984年1月～3月に行われた水質調査により，一般家庭用井戸287ヶ所のうち128ヶ所の井戸水が暫定水質基準を超えていることが明らかとなった．汚染源は同町内の工場であり，敷地内の地下配管からTCE原液が漏洩したと特定された．工場付近の土壌調査をもとに，南北7~8m，東西9m，深さ7mにわたって1mg/kg以上の汚染土壌を約1005m^{3}掘削除去し，さらに汚染源付近に揚水井を設置して揚水曝気処理を開始した．揚水処理は現在も継続中であり，現状ではすべての観測井で環境基準値（TCE: 0.03mg/L以下）が満たされている．

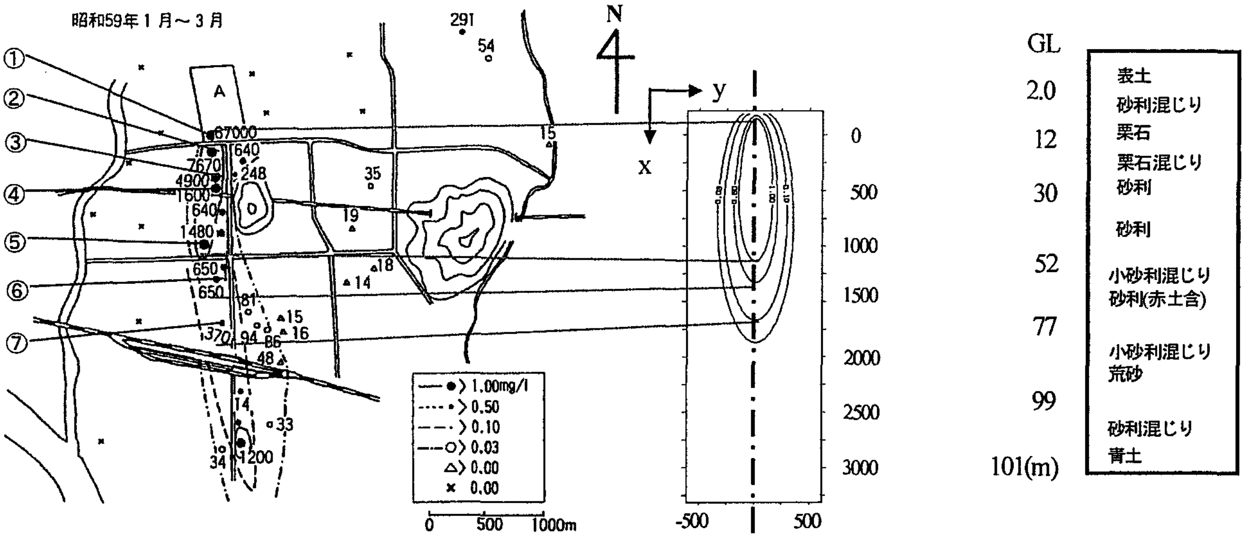
地質と地下水の流動特性に関する調査結果を表-5にまとめた．図-10(a)に現地実測値を，図(b)に平面2次元モデルの濃度分布結果(F-3ケース，後述)を，図(c)に鉛直地盤構成を，図中の①から⑦に検討に使用した実測点の位置を示す．図中，TCE濃度の数値をppbで，等値線をmg/Lで表示している．

(b) 地下水の流動特性

地形は南北に緩やかな勾配を持ち，透水性が良く，地下水の豊かな地質である．地下水流はほぼ南向きに，夏季，冬季それぞれ50 m/d，1m/dで流れる．不透水基盤は100mほどの深さを持ち，地表面下25m付近にも難透水層があり，この層上が浅層地下水と考えられる．地中に浸入したTCEは，浅層中を移流分散するとともに，よ

表-5　地質および地下水の流動特性　　　　　　　　　　　　*同定値(中辻[51])

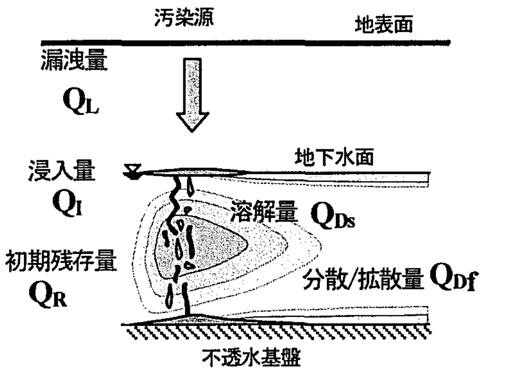
地質特性		地下水流動特性	
地質	白亜紀流紋岩質の溶結凝灰岩の基盤上に洪積層，最上位に沖積層が堆積	敷地内浅井戸	地下水面　GL-3.5〜7.0(m) 透水係数　$k=0.9\times10^{-2}$(m/s)
傾斜	地表面勾配（南北方向）0.0034 沖積層底部　0.0115	敷地内深井戸 (揚水井)	地下水面　GL-40〜60(m) 透水係数　$k=0.0086\times10^{-2}$(m/s)
電気探査	深度25m付近に比抵抗値の急変点	地下水面勾配*	夏季10^{-3}；冬季10^{-4}　(南北方向)
粒度組成	砂礫土，礫質50-80%，砂分30-40%	地下水流速*	夏季50；冬季1(m/d)
空隙率	空隙率(ε)0.35，有効間隙率0.15	帯水層深さ*と透水係数*	GL-25(m)，$k=0.003\times10^{-2}$(m/s)



(a) TCE濃度分布(小林[50];中辻[51]原図より)　(b) 平面2Dモデルによる結果(F-3)　(c) 鉛直地盤構成[51]

図-10　現地実測値と地質特性

表-6　差分連成ランダムウォーク法・差分解析にもとづくDNAPL各量の定義



Q_L	-	未知量
Q_I	FD-RWM	M_R×倍率係数
Q_R	FD-RWM	M_E×倍率係数 $=\Delta y\cdot\iint\theta_e(t_0)C_e(t_0)dxdz$
Q_{Ds}	FDM	$\Delta z\cdot\int_{t_0}^{T}\int_S\theta_a\left[K_{an}(C_a^s-C_a)\right]dsdt$
Q_{Df}	FDM	$\Delta z\cdot\int_S\theta_a(T)C_a(T)ds$

FD-RWM：差分連成ランダムウォーク法，FDM：移流分散式の差分解析
M_R：投入粒子の合計質量，M_E：空隙内拘束粒子の合計質量
倍率係数：投入粒子質量に乗じて想定浸入量と残存量の算定に使用する.
Δy：発生源単位幅，Δz：帯水層厚さ，S：汚染範囲，t_0：溶解の開始時刻
T：分散時間(汚染前から現地実測値に達するまでの時間)

り深層にも沈降し，地下水位の季節変動にともない溶出・希釈により分散すると考えられている.

(2) 浸入量と残存量算定の検討手順

(a) 浸入量と残存量の定義

現地の地質特性と汚染状況から，原液TCEの分散範囲は発生源のごく近傍であり，図-10の実測値が示す汚染範囲は，原液が地下水中に溶解して水面から一定の深さについて移流分散された結果と推察される.

現地では，その後，汚染土壌の除去，溶剤転換，地下水揚水処理等の防止策がとられ，汚染状況は改善された.

ここでは，1984年1~3月の測定結果にもとづき，この時点におけるTCEの浸入量と残存量の把握を試みる．DNAPLの漏洩量Q_L，帯水層中への浸入量Q_I，初期残存量Q_R，溶解量Q_{Ds}，分散量Q_{Df}を表-6に示す．これらの量は時間の積分値であり，$Q_L\geq Q_I\geq Q_R\geq Q_{Ds}\geq Q_{Df}$の関係がある.

(b) 検討手順とシミュレーションモデル

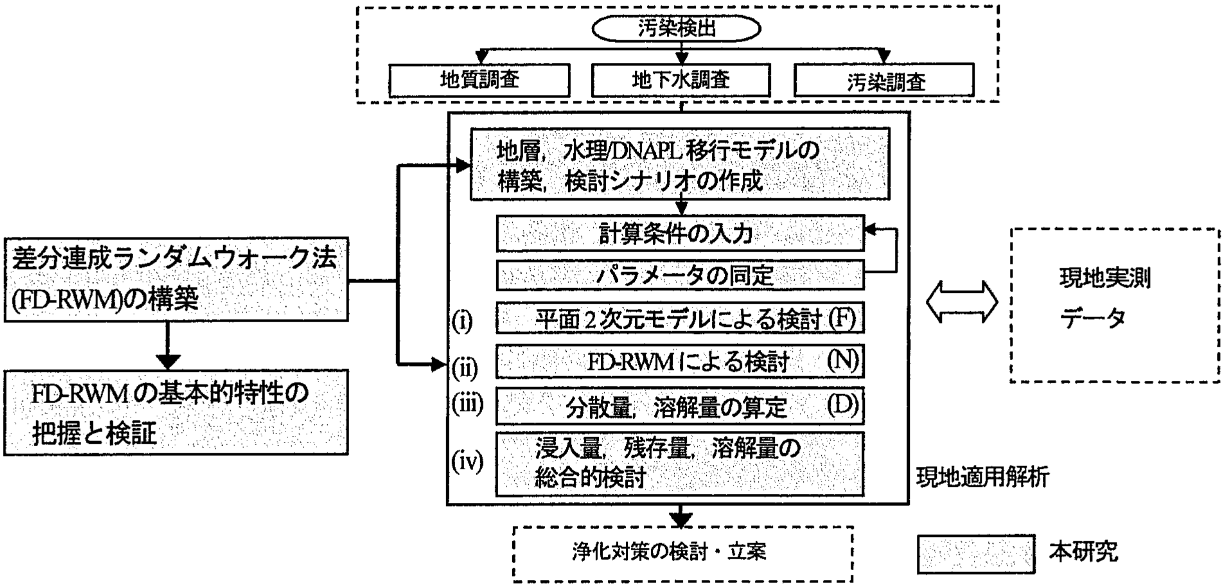


図-11 差分連成ランダムウォーク法の現地適用による浸入および残存 DNAPL 量の検討手順

表-7 検討ケースと解析条件

ケース	期間	モデル	領域(m)	格子(m)	分散長 α_{aL}, α_{aT}(m)	時間刻み	空隙平均流速 u' (m/day)	その他の条件		
F-0	15年	平面 2D FDM	L_2, B 4000, 1300	100, 100	10, 1~500, 50	5 日	1.0	発生源濃度 C_0 1.0		
F-1					100, 10					
F-2			3650, 1250	50, 50						
F-3			3525, 1225	25, 25						
F-4							0.4			
F-5							2.5			
N-1	10 日	鉛直 2D FD-RWM *1	L_1, D 100.0, 50.0	$\Delta x, \Delta z$ 1.0, 1.0	α_{aL}, α_{aT} 100, 10 (α_{nL}, α_{nT} 5.0, 2.5 x10^{-2}(m))	Δt_a 6時間 Δt_b 360秒	1.0	拘束率 λ (m^{-1})	6.0	液滴粒径 δ_px10^2(m) 0.015, 0.02, 0.04, 0.05, 0.06, 0.08, 0.1
N-2									0.2	
N-3									0.05	
N-4							0.4		0.2	
N-5							2.5			
D-1	5年	平面 2D FDM +溶解モデル *2	L_2, B 3525, 1225	$\Delta x, \Delta y$ 25, 25	100, 10	5 日	1.0	残留飽和度 S_n(%)	10	*3 θ_e 0.035
D-2									1.0	0.0035
D-3	10年						0.4			
D-4	5年						2.5			
D-5							1.0		0.2	0.0007

溶解モデル((7b),(7c)式)，*1: C^s_a=1270(mg/L), *2: C^s_a=22.2(mg/L), *3: θ_e 残存 DNAPL 体積含有率, ε(空隙率)=0.35, d_p(平均粒径)=0.04 x10^{-2}(m)

表-6 の Q_I, Q_R, Q_{Ds}, Q_{Df} の各量の算定は，次の手順で行う．図-11 に全体的な検討概要と浸入量，残存量の検討手順，シミュレーションモデルとの関係を示した．

(i) 現地の汚染状況から，平面２次元モデルをもとに汚染分散範囲の全域にわたり粗い格子で分割し，分散係数を同定する．さらに分散範囲に対する地下水流速の影響を検討し，発生源の濃度と分散時間を把握する．

(ii) 発生源の近傍域を，鉛直２次元の詳細な格子で分割し，本提案モデル(FD-RWM)により帯水層への浸入量と空隙内に残存する DNAPL 量の関係を求める．

(iii) 濃度と分散範囲から DNAPL の溶解量 Q_{Ds}，分散量 Q_{Df} を把握する．平面２次元モデルに溶解モデルを組み込み，残存量 Q_R と溶解濃度の関連を検討する．

(iv) 平面２次元モデルと鉛直２次元 FD-RWM の検討結果から，地下水面から一定の厚さを想定した場合の DNAPL の浸入量 Q_I，残存量 Q_R を推定する．

(3) 検討ケースと解析条件

表-7 に検討ケースの全体を示した．表には主に分散長 α_{aL}, α_{aT} を同定した結果にもとづくケースを示す．

平面２次元の溶液移流分散式の離散化にも，Semi-Implicit TVD を用いた．表に示した Δt, Δx, 空隙平均流速 u' により，各ケースとも TVD 安定条件が満たされている．

図-12(a) に平面２次元モデルによる汚染の遠方域

（図-10(a)に対応する 0.03mg/L までの汚染範囲）の解析領域を，図-13(a)に FD-RWM による鉛直２次元の汚染源近傍の解析領域を示す．遠方域は，格子間隔 Δx，Δy を 100，50，25m の３種とし，溶液移流分散式により長期の積分計算を行う．格子間隔を近傍域よりも大きく取り，遠方域の計算範囲に対応させつつ総格子点数を減らして，計算効率化を図る．

近傍域は Δx，Δz とも 1m の詳細格子による分割を行い，FD-RWM により残存量の分布と DNAPL 汚染柱近傍の溶液濃度分布を求める．

まず遠方域（F ケース）では，100m 格子で発生源濃度を C_0=1.0 として計算を行い，分散係数を同定して，発生源における格子平均濃度と現地実測値に達するまでの分散時間を把握する．50m および 25m の格子についても同様に計算する．地下水流速は，現地観測された流速分布のデータが得られないため，中辻，および江種ら[53]の検討をもとに，移流量の少ない冬期の空隙平均流速 u = 1m/d を基準として，南向き水平一様流を設定した．さらに，25m 格子について流速を 0.4，2.5m/d に設定し，流速が 40%，250%と変化した場合の分散時間への影響を検討した．

次に，近傍域（N ケース）について検討する．現地の地質特性から，浅井戸の地下水面は地表面下 3.5〜7.5m，深井戸内水面は地表面下 40〜60m の範囲であり，地下およそ 100m までは明瞭な不透水基盤が認められないため，近傍域の計算範囲として流下方向 100m，深さ方向を浅井戸地下水面から 50m の範囲とした．

また，ランダムウォーク法に用いる空隙内拘束を支配するパラメータ λ は，フィンガリング実験にもとづく値（6.0 m^{-1}：この値は，地表面近くで大部分が捕捉される場合に相当する），50m 層の全体にわたり分布する場合，50m の境界から流出する場合の３通りを設定した．ランダムウォークの時間刻みを Δt_b = 360sec，溶液の移流分散差分式の時間刻みを Δt_a = 21600sec とし，10 日間の時間積分を行う．液滴微粒子の直径は，δ_p = 0.015〜0.1(x10^{-2}m) の７種とし，一様乱数により計算領域の上部境界 19.0 ≤ x ≤ 21.0 (m)の位置から，2xΔt_b秒ごとに１つ投入する．計算期間中の投入粒子総数は 1200 個，約 0.25g と微小であるが，FD-RWM では液滴微粒子の相互干渉はないとしており粒子分布の重ね合わせが可能である．

同様に，D (Dissolve) ケースとして，25m 格子の平面２次元モデルに Imhoff et al. [12]の溶解項((7b),(7c)式)を組み込み，発生源格子の DNAPL 残留飽和度 S_n をパラメータに，残存量，溶解量と分散範囲の関係を検討した．飽和濃度 C^*_a は 25m 格子の格子平均濃度 C_0 = 22.2 mg/L とし，発生源（DNAPL が溶解する格子）で最大濃度となるように溶解モデルを設定した．

５．現地適用解析結果と考察

(1) 平面２次元モデルによる検討

図-12(b)に分散長の同定を行った結果を示す．横方向分散長は，縦方向のほぼ 1/10 であることが知られている．図-10 に示した①から⑦の実測値が汚染プルームのほぼ中心軸上にあることから，計算によりこれを再現する濃度分布と分散長を求めた．図から実測値の濃度低減が再現されるのは，分散長が 100，10 あるいは 200，20m の組み合わせの場合であることが分かる．

次に格子間隔を 50，25m に詳細化した結果を図-12(d)，(e)に示す．詳細格子 25m の図(e)の結果から，最終的に分散長が 100，10m と同定された．100m 格子で２年後，50，25m 格子で 2.5 年後の中心軸上の濃度低減曲線が，実測値にほぼ一致する．発生源比濃度 C/C_0 = 1.0 をもとに実測値から発生源の格子平均濃度を算定すると，100，50，25m のそれぞれの場合で，C_0 = 10.1，13.2，22.2 mg/L となることが分かった．

25m 格子の場合，流速の変化による分散時間と濃度低減への影響を，u = 0.4 m/d (F-4, 6 年後)，u = 2.5 m/d (F-5, 1, 1.5 年後) の結果として図(f)に示す．u = 2.5m/d では，上流境界の環境バックグランド濃度 C_a = 0 の影響により発生源下流で一定の濃度低下が見られるものの，移流速度と分散時間の積に対応して濃度低減曲線が実測値とほぼ一致することが図に示される．

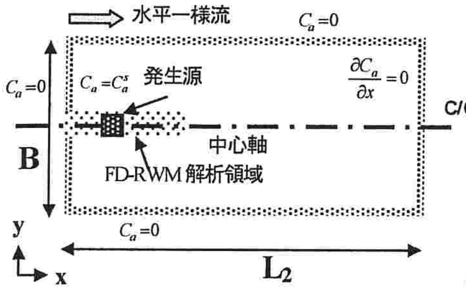
このことから，想定した地下水流速に 40%から 250%の範囲(0.4 ≤ u ≤ 2.5)(m/d)で変化があっても，ある移動距離（移流速度と分散時間の積）において，現地実測値の分布が再現されることが分かる．

F-3 ケースの平面濃度分布を図-10(b)に現地実測値と対比させて示した．等値線は内側から 1.0, 0.5, 0.1, 0.03 mg/L である．実測値では，下流 2.7km 付近に高濃度部分があり，また環境基準に近い 0.03mg/L 以上の範囲が大きいが，0.1mg/L 以上の高濃度部分は実測値の分布をほぼ再現する結果が得られている．

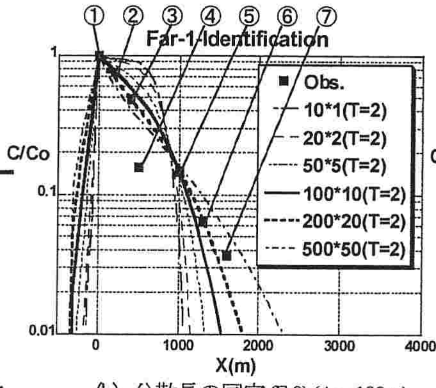
(2) 差分連成ランダムウォーク法による現地適用解析

図-13(a)に解析領域を，図(c)，(e)に u=1.0m/d で λ=0.2, 0.05 m^{-1} の場合の溶液濃度 C_a，残存 DNAPL 体積含有率 θ_e，移流粒子の軌跡と位置を，図(b)，(d)，(f)に u =1.0m/d で λ = 6.0 m^{-1}，および流速が u = 0.4，u = 2.5m/d で λ = 0.2 m^{-1} の場合の残存 DNAPL 分布と移流粒子の位置を示した．等値線とシェイディングは溶液正規化濃度と体積含有率を対数で示している．粒子表示は軌跡を実線で，最終時刻（10 日後）の粒子位置を粒径に応じて A(0.015)-G(0.1)(x10^{-2}m) の文字で表す．

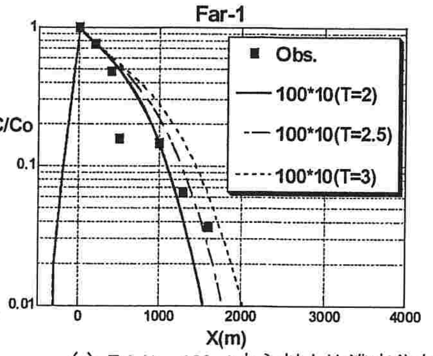
λ が大きい N-1 ケース(図(b))は，水面下 10m に浅く拡がり，λ が小さくなるにつれ深層に浸入し，もっとも λ



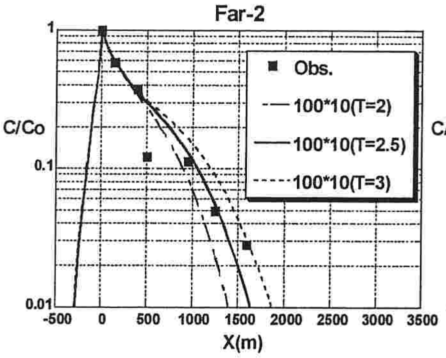
(a) 平面 2D モデルの解析領域と境界条件



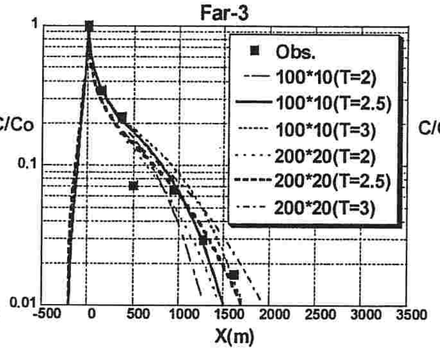
(b) 分散長の同定 (F-0) (Δx=100m)



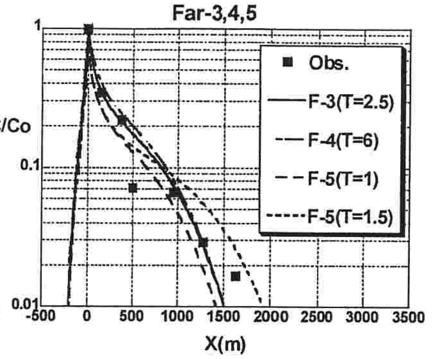
(c) F-1 (Δx=100m)中心軸上比濃度分布



(d) F-2 (Δx=50m)中心軸上比濃度分布

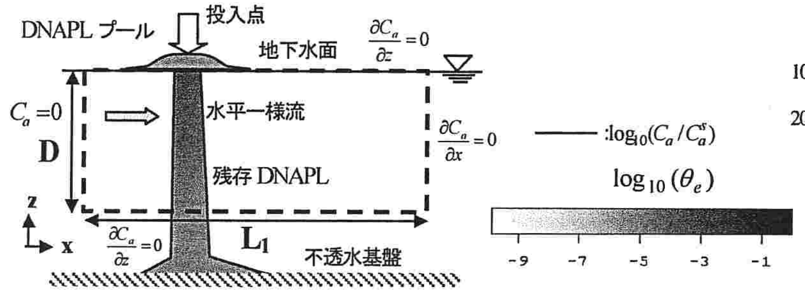


(e) F-3 (Δx=25m)中心軸上比濃度分布

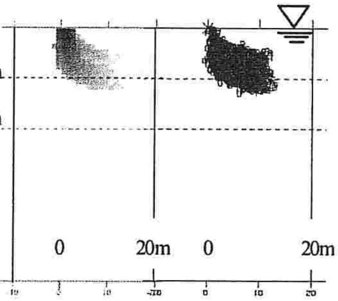


(f) F-3,4,5 (Δx=25m)中心軸上比濃度分布

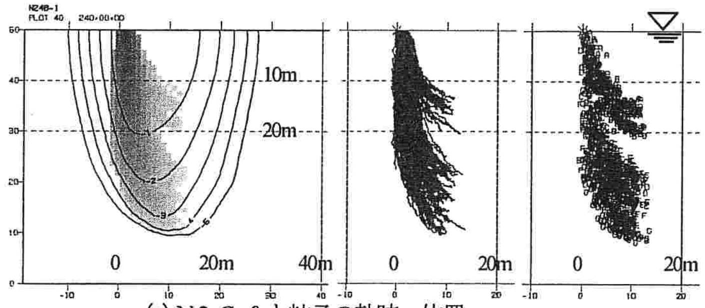
図-12　平面 2D モデルによる中心軸上の比濃度低減分布



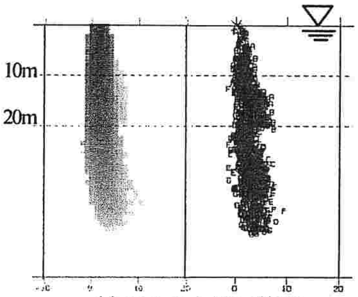
(a) 本提案モデルの解析領域と境界条件



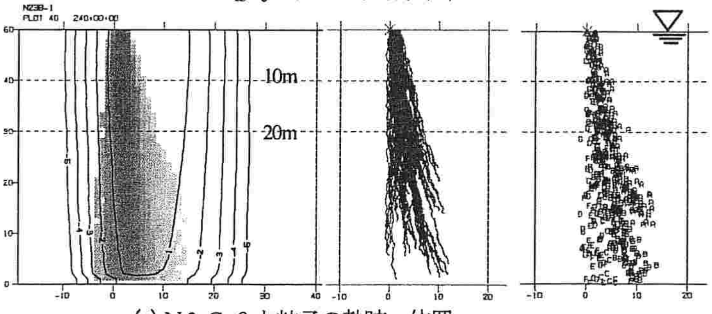
(b) N-1 θ_e と粒子位置



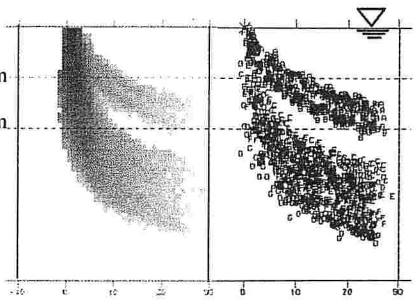
(c) N-2 C_a, θ_e と粒子の軌跡、位置



(d) N-4 θ_e と粒子位置



(e) N-3 C_a, θ_e と粒子の軌跡、位置



(f) N-5 θ_e と粒子位置

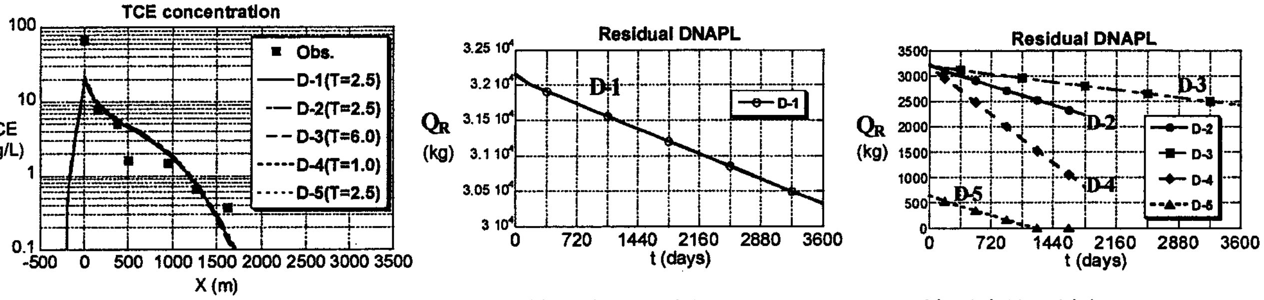
図-13　差分連成ランダムウォーク法による溶液濃度 C_a，残存 DNAPL 体積含有率 θ_e および液滴粒子の軌跡と位置の分布

表-8 空隙内拘束粒子の割合

ケース	投入粒子 M_R(g)	拘束粒子 ($M_E/M_R=Q_R/Q_I$)(%)			移動粒子 (%)	
		10m	20m	50m	浮遊	流出
N-1	0.250966	99.6	99.7	99.7	0.3	-
N-2	0.265993	88.5	97.8	98.7	1.3	-
N-3	0.245734	39.8	63.1	88.8	4.6	6.5
N-4	0.246260	88.6	97.7	98.7	1.3	-
N-5	0.250375	88.4	97.5	98.4	1.6	-

表-9 平面2Dモデルから得られた分散量，溶解量

ケース	格子 Δx, Δy (m)	発生源濃度 C_0(mg/L)	分散時間 T(年)	溶解量 Q_{Ds} (≈TxC_0) x10^2 (kg)	分散量 Q_{Df} x10^2 (kg)
F-1	100	10.1	2.0	25.5	3.99
F-2	50	13.2	2.5	10.4	3.73
F-3	25	22.2	2.5	4.37	3.64



(a) 中心軸上濃度分布　(b) 残存量Q_R減少 (D-1)　(c) 残存量Q_R減少 (D-2～D-5)

図-14 溶解モデルによる検討

が小さいN-3ケース(図(e))では，水面下50mの境界を越えている．また水平流速がu=0.4m/dの場合(図(d))は，ほぼ下方に浸入するのに対して，u=2.5m/dの場合(図(f))は，原液の液滴微粒子が空隙内に捕捉されるにつれて質量を減じるために，下層では沈降速度より水平移流速度が卓越し，流下方向に運ばれる様態が見て取れる．

残存DNAPL体積含有率は，N-3ケースを除いて粒子の軌跡と最終位置の分布に対応している．N-3ケースは，下部境界から流出する粒子のために他のケースと分布が異なることが分かる．

浸入量の算定を行うため，計算期間中の溶解はないとして，粒子質量の合計から求めた投入量(M_R)（DNAPLの想定浸入量を表す）と拘束量(M_E)，浮遊量(M_R - M_E)（原液DNAPLの移動部分）の割合を表-8に示す．残存DNAPL量の浸入量に対する割合は，上記の粒子投入量と拘束量の比で表されるから，各格子ごとの拘束粒子質量を累計して，地下水面下10mまで，20mまで，50m（計算領域全体）について算定した．

この結果，浅く拡がるN-1ケースでは，10m層まででほとんどが拘束されるのに対して，深く浸入する場合を想定したN-3では，10mまで39.8，20mまで63.1，50mまで88.8，領域外に達するもの6.5%となった．水平流速を変えた場合は，深さ方向の浸入割合はN-2ケースとほぼ同様の結果を示し，10mまで89%，20mまで98%という値が得られた．

(3) 溶解量と残存量の検討

100，50，25m格子の平面2次元モデルから分散長の同定と発生源平均濃度を把握し，鉛直2次元FD-RWMにより浸入量と残存量を求めた．さらに，平面2次元溶解モデルにより残存量と溶解量，分散時間を算定し，これをもとに浸入量と残存量，溶解量の総合的検討を行う．

表-10 溶解量と分散時間の算定

ケース	残存体積含有率 θ_c	初期残存量 Q_R(kg)	溶解量 Q_{Ds} x10^2(kg)	発生源濃度 C_0(mg/L)	分散時間 T(年)
D-1	0.035	32,156	5.08	19.9	2.5
D-2	0.0035	3,216	5.07	21.6	2.5
D-3			4.90	21.7	6.0
D-4			5.02	21.5	1.0
D-5	0.0007	643	4.78	20.6	2.5

(a) 平面2次元モデルによるDNAPL溶解量の検討

表-9に，平面2次元モデルの発生源格子平均濃度の算定値と分散範囲から求めたDNAPLの溶解量，分散量をまとめた．この値は溶液濃度分布からのDNAPL量の算定であり，汚染実測値にもとづくDNAPL浸入量の最低値を意味している($Q_I \geq Q_{Ds} \geq Q_{Df}$)．25m格子の場合で，発生源濃度と分散時間の積から算定した溶解量Q_{Ds}が4.37x10^2，分散範囲の濃度分布積分値からの分散量Q_{Df}が3.64x10^2 kgとなった．Q_{Ds}は格子間隔の差による精度と発生源面積の違いから，ケースの差が大きいが，Q_{Df}は格子間隔によらずほぼ一定値となっている．このことから，詳細な25m格子について，発生源濃度推定値の妥当性が確認できる．

(b) 平面2次元溶解モデルによる残存量と溶解量の検討

25m格子の平面2次元モデルに溶解項を組み込み，初期残存量と水平流速を変えて計算した結果から，分散時間と溶解量の合計を求め表-10にまとめた．

図-14(a)に各ケースの中心軸上の濃度低減と実測値の比較を，図-14(b)，(c)に，溶解量Q_{Ds}による初期残存量Q_Rの変化を示す．一格子の単位厚さ当たりの初期残存

表-11 浸入量と残存量の推定　　*初期残留飽和度 S_n＝15%

想定発生源 (m^2)		層厚 (m)	初期残存量* x10^3 Q_R(kg)	溶解量 Q_{Ds} x10^3 (kg) (2.5年)	残存量(1984年) Q_R-Q_{Ds} x10^3 (kg)	浸入量 Q_I x10^3(kg)			分散時間 T_D (年) (1984年以降)
						N-1	N-2	N-3	
S-1	5×5	10	19	5.0	14	19	22	49	7
		20	39	10	29	-	40	61	7
S-2	10×10	10	77	5.0	72	77	87	190	36
		20	150	10	140	-	160	250	36

量は，空隙率 ε = 0.35 で残留飽和度 S_n = 10%の場合に 32156kg，1%の場合に 3216kg となる．

図-14(a)から，水平流速を u = 0.4m/d から 2.5m/d へ変化させても，中心軸上の濃度分布は分散時間に応じてほぼ重なり，移流速度と分散時間の積の関係が図-12(f)よりも明瞭に示される．

表-10から，残留飽和度が S_n = 0.2〜10%の範囲内で，空隙平均流速 u = 1.0m/dの場合に，実測値の濃度分布となる分散時間は2.5年，その間のDNAPL溶解量は，単位厚さ当たり約500kgとなることが分かる．ここで得られた値は，上述の表-9の発生源濃度および分散範囲のそれぞれから求めた値 Q_{Ds}, Q_{Df} と対応している．

初期残存量 Q_R を分散量 Q_{Ds} に近い値とした S_n = 0.2%のケース D-5 では，3 年を過ぎた時点で残存量がほぼ溶解して，発生源濃度が急速に低下した．このことから，(7b), (7c)式による溶解モデル [12] が，現地規模の格子による残留飽和度と格子平均飽和濃度の値に対しても適用できることが確かめられた．

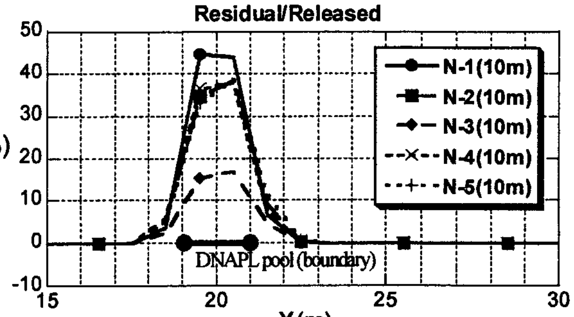
(c) FD-RWMによる浸入量，残存量と溶解量の検討

表-5 によれば，浅層地下水面は GL -3.5〜7.0m，地下水流動層が GL-25m の範囲にある．DNAPL が分散する厚さを 10m および 20m の 2 ケースと想定して浸入量 Q_I，残存量 Q_R を検討する．

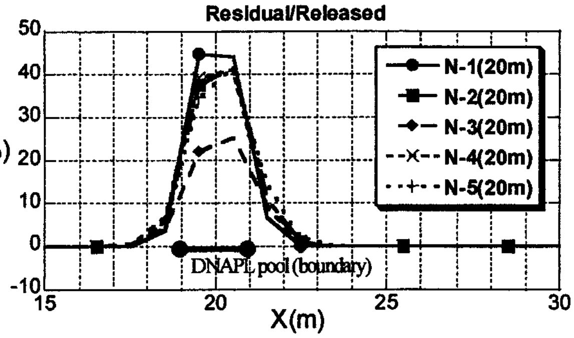
図-15 に，FD-RWM から得られた地下水面下 10m 層まで，20m 層までの残存 DNAPL 量の分布について投入量を基準として%で表したグラフを示す．残存量の分布はいずれのケースも，投入境界 19.0 ≤ x ≤ 21.0 (m)から上流側，下流側とも 2m の範囲までとなっており，限られた部分に集中している．投入境界を 5m とした場合も，それより 2m の範囲内に残存量が分布すると予想される．

したがって，発生源の残存量算定に当たり，土壌掘削範囲も考慮して 5x5m および 10x10m の領域を対象として，ケースを S-1，S-2 で表し，厚さを 10m および 20m と想定する．既往の研究成果にもとづき，最大残留飽和度を S_n= 15%，空隙率 ε = 0.35 とすれば [11),14),20)]，残存 DNAPL 量 Q_R は表-11 のように表せる．さらに，FD-RWM の結果を用いて表-8 をもとに，残存量から浸入量を算定する．

表層に浅く拡がる場合を想定した N-1 ケースは，浸入量の 99%が 10m 層に残存するため，浸入量は残存量とほぼ等しい 19，77 t となる．50m 層に拡がる N-2 ケースは，発生源が S-1 の場合に，10m 層で 22，20m 層で 40，S-2 の場合は，それぞれ 87，160 t となる．N-3 ケースは，10m 層は，浸入量の 40%，20m 層は 63%が残存する結果が得られている．したがって，浸入量として S-1 の場合に 49, 61 t，S-2 の場合に 190, 250 t という結果となった．



(a) 10m 層の M_f/M_R 比



(b) 20m 層の M_f/M_R 比

図-15 残存 DNAPL 分布(流下方向)

現地の地層状況から 10m 層のみに残存する N-1 ケースは考えにくいため，20m 層までの浸入量として 40 から最大で 250 t と判断できる．

現地実測値に示された分散量は，20m 層で 10 t が必要であり，また中杉・平田 [52] の調査時点で 10 数 t が揚水処理により回収され，今日まで 20 数 t が回収されたと伝えられていることを考慮すると，帯水層中に浸入した DNAPL 量は最低でも 30 数 t となる．したがって，浸入量は数 10 t 以上と考えられ，5x5m の範囲を想定した S-1 ケースの 40 t という値は妥当であり，10x10m の範囲で残留飽和度 S_n=15%とした S-2 ケースは残存量の過大評価の可能性がある．

一方，現地実測値が得られた時点の溶解環境（地下水

流量，残存量分布，溶解条件）と同様の条件が継続するとして，初期残存量と溶解量の差をもとに，1984年以降の溶解時間 T_D を算定した結果，S-1ケースで7年，S-2ケースで36年という結果が得られた．これは，発生源（DNAPLが溶解する格子）において，原液から溶液への相転移の時間スケールを表し，浄化対策検討の目安とできる．

ここでは，1984年時点の汚染濃度分布と地下水流速1m/dの2つの基本的データを用いて，帯水層中に浸入したDNAPL量 Q_I の把握を試みた．地表からの漏洩量 Q_L は，土壌掘削による除去量，土壌中の残存量，ガス化して揮散した量などを Q_I に加えることにより求められ，また工場の操業状況やDNAPLの消費量からも把握できる．これら諸量の情報を合わせて検討することにより，その後の溶解時間など予測精度の向上が期待できる．本手法により，そうした総合的検討のための基本的情報の提供が可能となる．

6．結論

著者らは先に，フィンガリング実験により，空隙内に残存するDNAPL量の算定モデルを定式化し，その支配パラメータである λ の値を求めた．

本研究は，残存量モデルをもとに，ミクロスコピックな視点から，重力沈降するDNAPL液滴粒子の運動をランダムウォークにより表し，マクロスコピックなDNAPL溶液移流分散方程式の高精度TVD差分スキームによる解法と組み合わせた，新しいDNAPL移行解析モデル－差分連成ランダムウォーク法(FD-RWM)を構築した．

これにもとづき既往の2相流による解析結果と比較検討し，さらに，現地適用例としてTCE汚染地域の実測結果と照合させ，帯水層中に浸入し残存するDNAPL量の算定を試みて，以下のような結論を得た．

1) DNAPLを溶解・難溶解性，移動・不動性の2つの側面から3つの部分（原液移動部分，原液不動部分＝空隙内残存DNAPL，溶液部分）に分けて保存式をたて，ランダムウォーク法および差分法により離散化して数値解析を行う本手法(FD-RWM)を構築し，実験から得られた残存量の支配パラメータ λ をもとに，DNAPLの重力沈降にともなって形成される残存DNAPLの分布（汚染柱）と汚染プルームの再現が可能であることを数値実験から確認した．原液・溶液とも格子により離散化する従来の2相流系の移流分散方程式モデルと比較検討を行い，本手法が格子間隔に制約されずに汚染源付近のDNAPL挙動が再現できることを明らかにした．
2) 現地における適用例として，DNAPL(TCE)による地下水汚染の事例から，帯水層中に浸入したDNAPL量を把握し，残存量と汚染範囲，分散時間を算定した．現地の汚染濃度分布と地下水流速をもとに，平面2次元モデルによる溶液移流分散方程式の結果から分散長を同定し，縦・横方向分散長を100m，10m，汚染前の状態から現地実測値に達するまでの分散時間（2.5年）と発生源の25m格子平均TCE濃度（約22mg/L）の値を得た．さらに，このモデルに溶解項を組み込み，残存量と残留飽和度，溶解量と溶解時間を検討して，現地実測値を再現するための単位厚さ当たりの溶解量を約500kgと算定した．
3) これらの結果と，本手法により得られた発生源付近の残存量分布および浸入量と残存量の比から，帯水層中への浸入量を40tから最大250tと見積もった．この値は浄化対策により揚水井から既に回収された値20数tと，現地実測値が取得された時点での汚染範囲全域にわたる分散量の算定値約10tの和30数tに対応しており，算定結果の妥当性が確認できた．

以上のことから，差分連成ランダムウォーク法(FD-RWM)は汚染域における発生源付近のDNAPL残存量とその分布を把握し，溶解時間を推定する上で有効であり，汚染浄化対策の立案・実施のための重要な基本的情報を提供できることを確認した．

謝辞：本研究の一部は，2003年から実施された埼玉大学における民間機関等との共同研究「大気・土壌・地下水連成モデルによる汚染物質移行手法の開発」および2002，2003年の文部科学省科学研究費基盤研究(C)(1) 14550539「大気・土壌連成数学モデルにもとづく土壌汚染物質の予測解析システムの研究（研究代表者：佐藤邦明）」の補助を受けた．ここに記して謝意を表します．

参考文献

1) Mercer, J.W. and Cohen, R.M. : A review of immiscible fluids in the subsurface: Properties, models, characterization and remediation, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.6, pp.107-163, 1990.
2) Miller, C. T., Christakos, G., Imhoff, P. T., McBride, J. F., Pedit, J. A. and Trangenstein, J. A. : Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media : challenges and approaches, *Advances in Water Resources*, Vol.21, No.2, pp.77-120, 1998.
3) Khachikian, C. and Harmon, T.C. : Nonaqueous phase liquid dissolution in porous media: Current state of knowledge and research needs, *Transport in Porous Media*, Vol.38, pp.3-28, 2000.
4) 佐々木孝，佐藤邦明：飽和多孔媒体中のフィンガリングによるDNAPL鉛直輸送に関する基礎的研究，水工学論文集，第48巻，2004年(受理).
5) Sato, K. and Iwasa, Y., Eds. : *Groundwater Hydraulics*, Springer-verlag, Tokyo, Japan, pp.18-20, pp.73-87, 2003.
6) Conrad, S.H., Wilson J.L., Mason, W.R. and Peplinski, W.J. : Visualization of residual organic liquid trapped in aquifers, *Water Resources Research*, Vol.28, No.2, pp.467-478, 1992.

7) Geller, J.T. and Hunt, J.R. : Mass transfer from nonaqueous phase organic liquids in water-saturated porous media, *Water Resources Research*, Vol.29, No.4, pp.833-845, 1993.

8) Miller, C.T., Poirier-Mcneill, M.M. and Mayer, A.S. : Dissolution of trapped nonaqueous phase liquids: Mass transfer characteristics, *Water Resources Research*, Vol.26, No.11, pp.2783-2796, 1990.

9) Powers, S.E., Abriola, L.M. and Weber, W.J. : An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems: Transient mass transfer rates, *Water Resources Research*, Vol.30, No.2, pp.321-332, 1994.

10) Powers, S. E., Loureiro, C.O., Abriola, L. M. and Weber, W. J. : Theoretical study of the significance of nonequilibrium dissolution of nonaqueous phase liquids in subsurface systems, *Water Resources Research*, Vol.27, No.4, pp.463-477, 1991.

11) Powers, S. E., Abriola, L. M. and Weber, W. J. : An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems: Steady state mass transfer rates, *Water Resources Research*, Vol.28, No.10, pp.2691-2705, 1992.

12) Imhoff, P.T., Jaffé, P.R. and Pinder, G.F. : An experimental study of complete dissolution of a nonaqueous phase liquid in saturated porous media, *Water Resources Research*, Vol.30, No.2, pp.307-320, 1993.

13) Zhu, J. and Sykes, J.F. : The influence of NAPL dissolution characteristics on field-scale contaminant transport in subsurface, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.41, pp.133-154, 2000.

14) Imhoff, P.T., Thyrum, G.P. and Miller, C.T. : Dissolution fingering during the solubilization of nonaqueous phase liquids in saturated porous media 2. Experimental observations, *Water Resources Research*, Vol.32, No.7, pp.1929-1942, 1996.

15) Trantham, H. and Durnford, D. : Stochastic aggregation model (SAM) for DNAPL-water displacement in porous media, *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.36, pp.377-400, 1999.

16) Zhang, Z. F. and Smith, J.E. : The velocity of DNAPL fingering in water-saturated porous media: laboratory experiments and a mobile-immobile-zone model, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.49, pp.335-353, 2001.

17) Ueno T., Giri, R.R., Nishida K. and Sato K. : An experimental study on DNAPL fingering mechanism in saturated porous media, *Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering JSCE*, Vol.21, No.2, pp.47-59, 2003.

18) Zhang, Z. F. and Smith, J.E. : Visualization of DNAPL fingering processes and mechanisms in water-saturated porous media, *Transport in Porous Media*, Vol.48, pp.41-59, 2002.

19) 嘉門雅史，遠藤和人：地盤汚染における DNAPL 侵入圧の考え方，土と基礎，第 50 巻，第 11 号，pp.21-23，2002.

20) 伊藤圭二郎，川端淳一：帯水層中の DNAPL 残存量の評価について，地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第 9 回講演集，pp.366-369, 2003.

21) 長藤哲夫，今村聡，日下部治，平田健正：揮発性有機塩素化合物の汚染形態と土中存在量算定方法に関する研究，土木学会論文集，No.615/VII-10，pp.33-41，1999.

22) Abriola, L. M. and Pinder, G. F. : A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds: 1. Equation development, *Water Resources Research*, Vol.21, No.1, pp.11-18, 1985.

23) Abriola, L. M. and Pinder, G. F. : A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds: 2 Numerical simulation, *Water Resources Research*, Vol. 21, No. 1, pp.19-26, 1985.

24) Sleep, B.E. and Sykes, J.F. : Compositional simulation of groundwater contamination by organic compounds 2. Model applications, *Water Resources Research*, Vol.29, No.6, pp.1709-1718, 1993.

25) Adenekan, A.E., Patzek, T.W. and Pruess, K. : Modeling of multiphase transport of multicomponent organic contaminants and heat in the subsurface: Numerical model formulation, *Water Resources Research*, Vol.29, No.11, pp.3727-3740, 1993.

26) Saba, T. and Illangasekare, T.H. : Effect of groundwater flow dimensionality on mass transfer from entrapped nonaqueous phase liquid contaminants, *Water Resources Research*, Vol.36, No.4, pp.971-979, 2000.

27) Kim, T.J. and Chrysikopoulos, C.V. : Mass transfer correlations for nonaqueous phase liquid pool dissolution in saturated porous media, *Water Resources Research*, Vol.35, No.2, pp.449-459, 1999.

28) Mayer, A.S. and Miller, C.T. : The influence of mass transfer characteristics and porous media heterogeneity on nonaqueous phase dissolution, *Water Resources Research*, Vol.32, No.6, pp.1551-1567, 1996.

29) Egusa, N. and Jinno, K. : Numerical simulation for transport of chlorinated hydrocarbons with gas advection and diffusion in unsaturated zone, *Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering, JSCE*, Vol.14, No.2, pp.97-104, 1996.

30) 登坂博行，伊藤一誠，蛯原雅之，稲葉薫，伊藤彰，小島圭二：多成分多相型移流拡散モデルによる包括的な地下水汚染解析，地下水学会誌，第 38 巻，第 3 号，pp.167-180, 1996.

31) 藤縄克之，日比義彦，藤原幸彦：多孔体中における水－疎水性液体－気体の等温多相流れに関する研究の進歩，農業土木学会論文集，No.214, pp.149-158, 2001.

32) Adenekan, A.E. and Patzek, T.W. : Cleanup of the gasoline spill area with steam: Compositional simulations: in dynamic underground stripping project: LLNL Gasoline Spill Demonstration Project, Newmark, R. L., Ed. by, *DOE Report UCRL-ID-116964*, Vol. 3, 5-141-5-167, July 1994.

33) Zheng, C., Wang, P.P. and Dortch, M.S. : Subsurface contaminant transport modeling: Challenges and resolutions, *Prepared for 16th IMACS World Congress*, Lausanne, Switzerland, August 21-25, 2000.

34) Cox, R.A. and Nishikawa, T. : A New Total Variation Diminishing Scheme for the Solution of Advective-Dominant Solute Transport, *Water Resources Research*, Vol.27, No.10, pp.2645-2654, 1991.

35) 保原充，大宮司久明編：数値流体力学－基礎と応用，東京大学出版会，pp.56-82，1992.

36) Yee, H. C. : Linearized form of implicit TVD schemes for the multidimensional Euler and Navier-Stokes equations, *Computers and Mathematics with Applications*, Vol.12A, Nos. 4/5, pp.413-423, 1986.

37) Pinder, G.F. and Abriola, L.M. : On the simulation of nonaqueous phase organic compounds in the subsurface, *Water Resources Research*, Vol. 22, No. 9, pp.109S-119S, 1986.

38) LaBolle, E. M., Fogg, G. E. and Tompson, A. F. B. : Random-walk simulation of transport in heterogeneous porous media: Local mass-conservation problem and implementation methods, *Water Resources Research*, Vol. 32, No. 3, pp.583-593, 1996.

39) Tompson, A.F.B. and Gelhar, L.W. : Numerical simulation of solute transport in three-dimensional, randomly heterogeneous porous media, *Water Resources Research*, Vol.26, No.10, pp.2541-2562, 1990.

40) Tompson, A.F.B. : Numerical simulation of chemical migration in physically and chemically heterogeneous porous media, *Water Resources Research*, Vol.29, No.11, pp.3709-3726, 1993.

41) LaBolle, E. M., Quastel, J., Fogg, G. E. and Gravner, J. : Diffusion processes in composite porous media and their numerical integration by random walks: Generalized stochastic differential equations with discontinuous coefficients, *Water Resources Research*, Vol. 36, No. 3, pp.651-662, 2000.

42) Bear, J. and Verruijt, A.: *Modeling Groundwater Flow and Pollution*, D. Reidel Publishing Company, pp.153-167, 1987.

43) Yao, K.M., Habibian, M.T. and O'Melia, C.R. : Water and waste water filtration: Concepts and applications, *Environmental Science and Technology*, Vol.5, No.11, pp.1105-1112, 1971.

44) Rogers, B. and Logan, B.E. : Bacterial transport in NAPL-contaminated porous media, *Journal of Environmental Engineering, ASCE*, Vol.126, No.7, pp.657-666, 2000.

45) Tufenkji, N., Redman, J.A. and Elimelech, M. : Interpreting deposition patterns of microbial particles in laboratory-scale column experiments, *Environmental Science and Technology*, vol.37, pp.616-623, 2003.

46) Giri, R.R., Ueno, T. and Sato, K. : An experimental investigation on DNAPL migration in saturated porous medium models, *Annual Journal of Hydraulic Engineering, JSCE*, vol.46, pp.175-180. 2002.

47) 土木学会編：水理公式集・昭和 60 年版，土木学会，pp.417, 1985.

48) 嘉門雅史，遠藤和人，川端淳一，伊藤圭二郎，乾徹，勝見武：地下水流れを考慮した DNAPL 浸透土槽実験，地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第 8 回講演集，pp.131-134, 2002.

49) 佐々木孝，佐藤邦明：帯水層における空隙内拘束を考慮した DNAPL 移流分散解析手法の現地適用性の検討，日本地下水学会，2003 年秋季講演会予稿集, pp.162-167, 2003.

50) 小林悦夫：地下水汚染対策－現場からの報告：兵庫県の事例，公害と対策，第 23 巻，第 10 号，pp.969-975，1987.

51) 中辻啓二：有機塩素化合物による地下水汚染の時間的・空間的拡がり，土木学会論文集，第 387 号/II-8，pp.145-152，1987.

52) 中杉修身，平田健正：トリクロロエチレン等の地下水汚染の防止に関する研究，国立環境研究所特別研究報告，SR-15-'94，1994.

53) 江種伸之，角尾隆，平田健正，吉岡昌徳，中杉修身：地下水汚染浄化対策現場における揮発性有機化合物の自然減衰効果，水工学論文集，第 47 巻，pp.307-312，2003.

(2004. ??. ?? 受付)

A NUMERICAL APPROACH TO DNAPL CONTAMINANT TRANSPORT AND ENTRAPMENT IN AQUIFER BASED ON A COUPLED FINITE DIFFERENCE-RANDOM WALK METHOD

Takashi SASAKI, Kuniaki SATO and Akira WADA

Dense Non Aqueous Phase Liquids (DNAPLs) are common sources of groundwater contamination in the subsurface. A new model (a coupled Finite Difference-Random Walk Method : FD-RWM) of DNAPL migration for an aqueous phase and for a nonaqueous mobile/immobile phase with entrapment effect of DNAPL blobs in pores is presented. It has been developed on a combination of the RWM with the FDM of the advection dispersion equation discretized using Semi-Implicit TVD (Total Variation Diminishing) scheme. Investigating field scale applicability of the model with experimental results and observed data at a site, it demonstrates that the FD-RWM can provide information of a total amount of the infiltrated and remained DNAPL mass in the aquifer.

地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会　第9回講演集(pp.192-195) 2003/6/19-20

５９．大気・土壌・地下水連成モデルによる土壌中および地下水中DNAPLの移行解析
ー帯水層における空隙内拘束を考慮したDNAPLの移流分散解析ー

○佐々木　孝（アーク情報システム）　佐藤　邦明（埼玉大・地圏科学研究センター）

１．はじめに

土壌・地下水汚染の原因物質の一種である揮発性有機化合物は、非水溶性、あるいは難溶解性(Non-Aqueous Phase Liquid: NAPL)の性質を持ち、密度により水より軽い場合にLNAPL(Light NAPL)、重い場合にDNAPL(Dense NAPL)と分類される。NAPLは廃棄や漏洩により地表面から地中に浸入して汚染源となるが、水溶性物質とは異なる複雑な挙動を示す。このようなNAPLの土壌・地下水中の挙動解析、移行過程の解明は、汚染規模の予測や浄化対策の立案に不可欠であり、近年注目され研究される分野の一つとなっている。

NAPLの揮発性に注目した移行解析の研究として、すでに大気・土壌連成数学モデル（SALSAモデル）と土壌中DNAPLの移行モデルを結合させた解析手法を提案してきた[1),2)]。また、DNAPLの飽和地下水中への浸透について、実験に基づく重力沈降メカニズムの解明[3)]がなされている。

ここでは大気・土壌・地下水の連成モデルによる土壌・地下水中DNAPLの移行モデルを構築する前提として、重力沈降メカニズムをもとにした飽和多孔媒体中のDNAPL移行モデルを検討する。

飽和・不飽和多孔媒体中のNAPL移行については、不飽和帯における浸透とガス拡散の解析[4),5)]、飽和・不飽和帯における液相から気相への揮散に注目した解析[6)]、DNAPLプールからの溶出解析[7)]、均一・不均一な飽和多孔媒体中の溶液と原液の解析[8)]などの例がある。最後の1例を除いては希薄溶液を対象として、液相の移流分散式に単相モデルを用いている。溶液と原液を同時に扱う場合には多相型の移流分散モデルが必要となる。しかしながら、多相モデルを用いても、重力により沈降し空隙内に捕捉されるDNAPLの挙動を的確に表現するのは難しい。

本研究では、重力沈降する液滴粒子の運動により原液DNAPLの挙動を表現し、粒子が空隙内に拘束される過程をモデル化して溶液の移流分散式と組み合わせることにより、多孔媒体中のDNAPL移行モデルの構成を試みる。

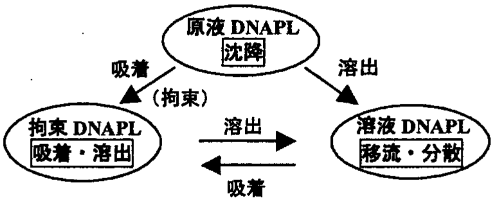


図1　帯水層中のDNAPL移行

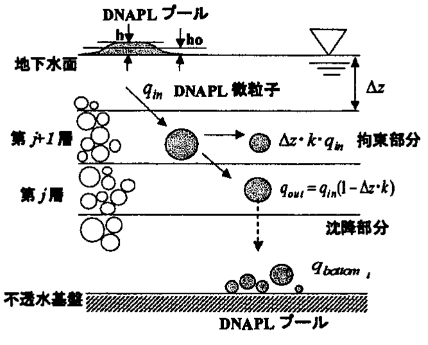


図2　空隙内拘束、沈降DNAPLのモデル

２．帯水層におけるDNAPL移行モデル

（１）帯水層におけるDNAPL移行

帯水層におけるDNAPLの主な移行形態と相変化は、図1のように表せる。地中に浸透したDNAPLは地下水面上でDNAPLプールを形成する。この高さがある一定値を超える（図中限界侵入深さ h≧ho）とフィンガー状に地下水中に浸入する。一部は多孔媒体の空隙中に捕捉

され、長時間にわたって溶出する地下水汚染源となる。他は溶液DNAPLとなって移流・分散する。拘束されたDNAPLと溶液DNAPLの間にも吸着・脱着、溶出などの移行が生じる。図2に拘束されたDNAPLと帯水層下面のDNAPLプール形成過程の模式図を示す。

（2）モデル化と基礎式

帯水層におけるDNAPL移行について、溶液DNAPLの移流分散式、原液DNAPLの沈降モデルによる保存式、空隙内拘束DNAPL保存式の3つの式でモデル化し、以下のような方法で解くこととする。①溶液DNAPLの移流分散式は、通常の移流分散方程式を差分法により解く。②原液DNAPLは、移流分散式をもとに液滴を想定した粒子についてランダムウォークにより解く。すなわち移流項については、水平方向は空隙内平均流速による移流、鉛直方向は単粒子の重力沈降運動、水平および鉛直分散項は、正規分布を仮定して、標準偏差が分散係数と時間の積に対応する関係から、個々の粒子のn+1時刻後の位置を正規乱数により求める。液滴として直径（質量）の異なる数種類の球粒子を想定し、異なる沈降速度で運動させることによって、重力沈降メカニズムによる原液の移流分散の挙動が再現できる。③空隙内拘束DNAPLは、土粒子中の吸着・脱着のモデル化（(3)に後述）に基づいて保存式を作り、溶液DNAPLの差分解および原液DNAPLの粒子移動の結果により、計算領域の各セルにおける吸着、溶出、残留濃度を算定する。

それぞれの基礎式を右表に示した。ここで添え字A、N、Eはそれぞれ溶液、原液、空隙内拘束DNAPLである。ADS_{AE}、SOL_{EA}、ADS_{NE}、DES_{EN}は溶液からの吸着、溶出、原液からの吸着（拘束）、原液への脱着を表す。これら4つの項のうち、はじめの2項は右表④のようにモデ

表1(1)　基礎式および収支

①溶液DNAPL

$$\frac{\partial(\theta_A C_A)}{\partial t}-\frac{\partial}{\partial x}\left\{\left(\theta_A D_{cx}\frac{\partial C_A}{\partial x}\right)-\theta_A u' C_A\right\}$$
$$-\frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\theta_A D_{cz}\frac{\partial C_A}{\partial z}\right)-\theta_A w_1' C_A\right\}+ADS_{AE}-SOL_{EA}=0$$

②原液DNAPL

$$\frac{\partial(\theta_N C_N)}{\partial t}-\frac{\partial}{\partial x}\left\{\left(\theta_N D_{cx}\frac{\partial C_N}{\partial x}\right)-\theta_N u' C_N\right\}$$
$$-\frac{\partial}{\partial z}\left\{\left(\theta_N D_{cz}\frac{\partial C_N}{\partial z}\right)-\theta_N w_2' C_N\right\}+ADS_{NE}-DES_{EN}=0$$

③空隙内拘束DNAPL

$$\frac{\partial(\theta_E C_E)}{\partial t}-ADS_{AE}+SOL_{EA}-ADS_{NE}+DES_{EN}=0$$

④溶液の吸着、溶出

$$ADS_{AE}=\rho_d K_d\frac{\partial C_A}{\partial t}、\quad SOL_{EA}=\theta_A\left[K_{AE}\left(C_A^S-C_A\right)\right]$$

⑤原液の吸着(拘束)　$ADS_{NE}=\Delta z\cdot k\cdot\sum_i q_{ini}+\sum_i q_{bottomi}$

C_A,C_N,C_E：溶液、原液、空隙内DNAPL濃度　ρ_d：土粒子見かけの密度
$\theta_A,\theta_N,\theta_E$：溶液、原液、空隙内DNAPL含有率　K_d：溶液吸着係数
D_{cx},D_{cz}：水平方向、鉛直方向分散係数　K_{AE}：物質移行係数
u',w_1',w_2'：水平方向、鉛直方向流速、粒子沈降速度　C_A^S：溶液飽和濃度

表1(2)　空隙内拘束DNAPLのモデル化

⑥$\frac{\partial q}{\partial t}+w\frac{\partial C}{\partial z}=0$、$\frac{\partial C}{\partial z}=-k\cdot C$　q：層当たりに拘束される質量
k：拘束率$(1/cm)$

⑦$k=\frac{3}{2}\frac{1-\varepsilon}{d_p}\beta\cdot\eta$　ε：空隙率(無次元),β：衝突合一係数(無次元)
d_p：土粒子径(cm),η：捕集効率(無次元)

⑧$q_{out}=q_{in}(1-\Delta z\cdot k)$　q_{in},q_{out}：流入、流出する粒子の質量
(⑥の第2式より)　Δz：鉛直セル幅

表1(3)　原液DNAPLのランダムウォーク

⑨$(x,z)^{n+1}=(x,z)^n+(dx_a,dz_a)+(dx_d,dz_d)$
$(dx_a,dz_a)=(u'\Delta t,w_2'\Delta t)$、$(dx_d,dz_d)=(\sigma_x r_x,\sigma_z r_z)$
$\sigma_x=\sqrt{2D_{cx}\Delta t}$，　$\sigma_z=\sqrt{2D_{cz}\Delta t}$，　$r_x=N(0,1)$，　$r_z=N(0,1)$

$(x,z)^{n+1}$、$(x,z)^n$：時間刻みをΔtとして$n,n+1$時刻の粒子の位置、
(dx_a,dz_a)：移流による移動距離、(dx_d,dz_d)：分散による移動距離
D_{cx}，D_{cz}：分散係数、r_x,r_z：平均0、標準偏差1の正規乱数

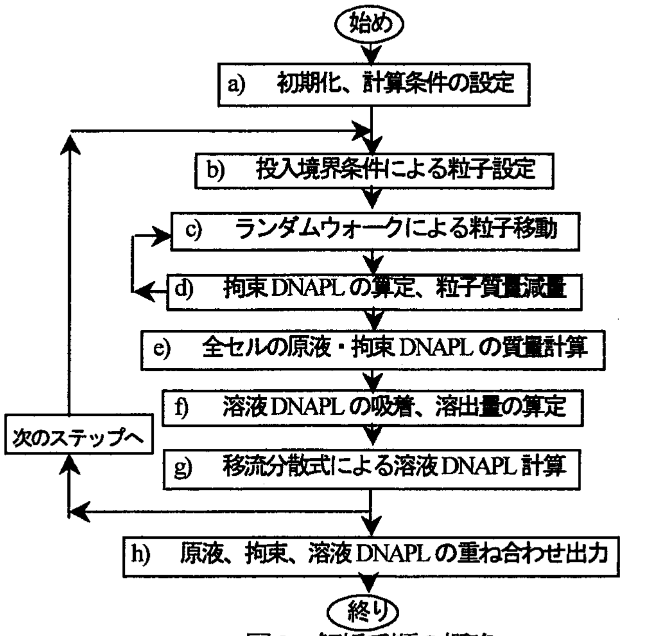


図3　解析手順の概略

ル化する。3 項は（3）に述べる。ここでは 1、4 項は 0 と仮定した。本モデルでは土壌中の残留 DNAPL や不透水基盤上の DNAPL プールからの溶出は、拘束 DNAPL の収支式中で扱う。

（3）空隙内拘束 DNAPL のモデル化

ランダムウォークで表現された原液 DNAPL の液滴粒子と拘束 DNAPL との相互作用は、ろ材に捕捉される濁質のアナロジーからモデル化した [9]。これを表 1 の⑤～⑧に示した。ここで k は空隙寸法と捕集作用に関わる拘束率である。濃度の低減率がその場所の濃度に比例するという関係から、原液 DNAPL の一部が空隙に捕捉され残りが沈降する割合を定めている。⑤の右辺第 1 項は、土壌空隙中に拘束された DNAPL、第 2 項は不透水層上の DNAPL プールの液質量である。

表2　解析条件

ε（間隙率）	0.4	δ（液滴粒径）	0.01, 0.02, 0.04,0.05, 0.06, 0.08,0.1 (cm)
d_p（平均粒径）	0.04 (cm)		
ρ_n (DNAPL 密度:TCE)	1.46 (g/cm^3)		
μ_n (DNAPL 粘性係数)	5.7×10^{-3}(g/cm·s)	α（低減係数）	0.0148
α_L（横方向分散長）	9.0 (cm)	k（拘束率）	0.0562 (1/cm)
α_T（縦方向分散長）	3.0 (cm)	β（衝突合一係数）	0.5
C^s_a（溶液飽和濃度）	1.5×10^{-4} (g/cm^3)	η（捕集効率）	0.005
D_M(溶液分子拡散係数)	1.0×10^{-5} (cm^2/s)	格子（$\Delta x\times\Delta z$）	9×3 (cm)
u'(間隙平均流速)	0.1 (m/day)	格子(セル)数	79×49

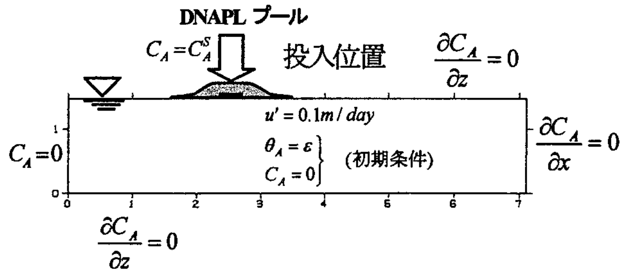


図4　解析領域

（4）解析手順と条件

解析手順の概略を図 3 に示す。これを設定した時間刻み Δt_1 で指定の期間まで繰り返して計算する。c)、d)のランダムウォークと粒子質量減量部分は内部で小さい Δt_2 で繰り返している。解析条件は Mayer and Miller(1996) [8]に基づき鉛直 2 次元領域で一様水平地下水流がある場合を想定した。解析条件を表 2 に、解析領域を図 4 に示す。計算の時間刻みはセルサイズと移流速度による CFL 安定条件から定まる。ここでは、Δt_1=3600 秒、Δt_2=30 秒とし、96 時間までの計算を行って Mayer and Miller の結果と比較した。なお溶液の計算には移流項に 3 次上流差分をもとに安定で高精度な TVD スキームを Implicit 化して用いている [10),11)]。

原液 DNAPL は、液滴直径を δ として δ=0.01～0.1(cm)の 7 種類を与え、どの粒子を出発させるかを一様乱数で設定する。粒子径による Re 数が Re<1 のとき Stokes 式 [9]、1≦Re≦100 のとき Allen 式 [9]を用いて静止水中における単粒子の自由沈降速度(w_{def}) を決め、多孔媒体中の衝突・反発・摩擦などの抵抗による沈降速度の低減係数 α を与えて、実際の粒子沈降速度($w_2' = \alpha \cdot w_{def}$) を設定している。ここでは、低減係数 α として多粒子の相互干渉がある場合の Muade ら(1958)の式 [9]の最小値（α =0.0148）を使用した。

3．解析結果と考察

図 5(a) に Mayer and Miller の結果(約 18 日後)を、(b)～(e)に本解析結果を示した。等値線は溶液正規化濃度を対数で、シェイディングは原液体積率を対数で示す。(b)は本モデルによる溶液のみの移流分散の結果である。DNAPL プールからの溶出を境界条件として 18 日後の結果を求め、ここで使用した移流分散スキームと溶出モデルの妥当性を確認した。(c)は提案モデルの 4 日後の結果である。DNAPL の重力沈降にともなって形成される空隙内の拘束 DNAPL の分布(汚染柱)が得られ、これを

発生源として移流分散される汚染プルームの現象が再現されている。(d)、(e)は最後の24時間に移流中および着底した原液DNAPL粒子の最終位置と軌跡である。δの大きな粒子は速やかに沈降するが、空隙内に捕捉されて質量を減じ下方で分散・移流の影響を受けること、δの小さな粒子は滞留時間、水平移動が大きいことが示されている。Mayer and Millerの2相モデルによる解析結果は、本解析条件と同一ではなく、原液DNAPLの浸入をDNAPLのϕ-θ関係と物質移動係数によりモデル化し、一定時間後にこの浸入を遮断しているため、長期の解析でも沈降は起こらない。

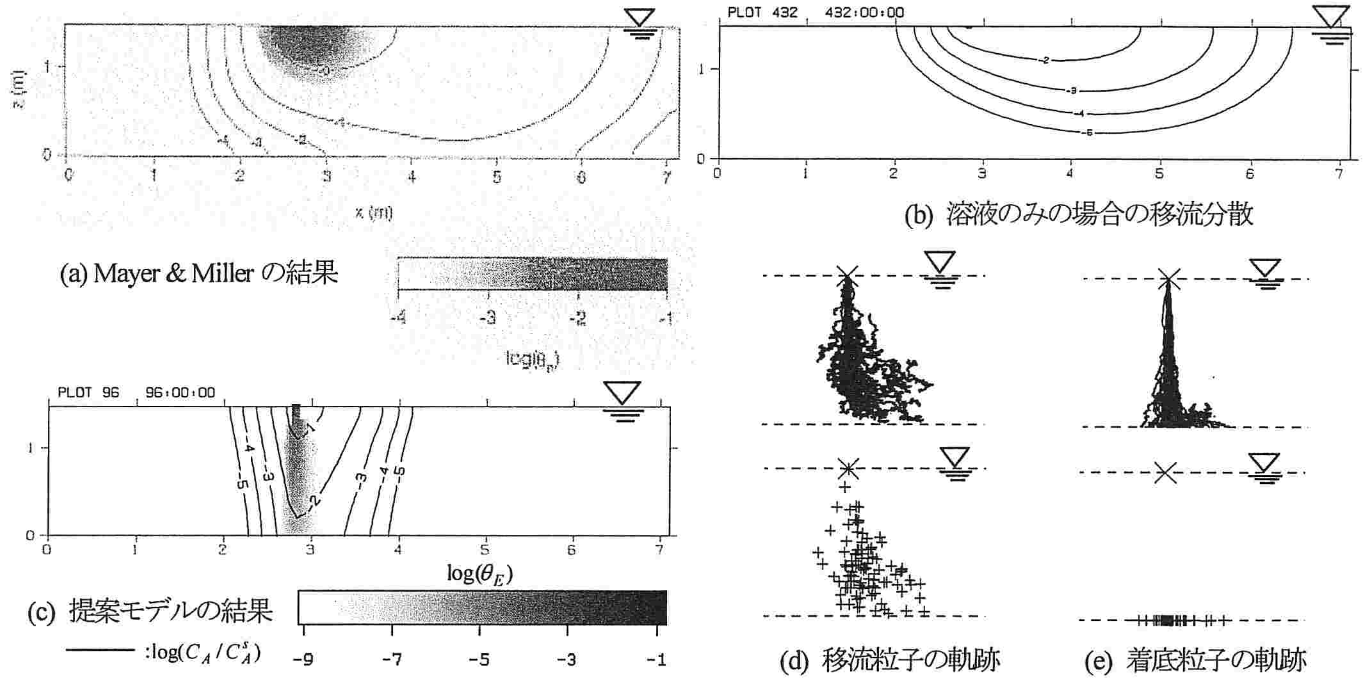


図5 解析結果

4. まとめ

本研究では、原液DNAPLを重力沈降する粒子で表し、空隙内に拘束される過程をモデル化して溶液の移流分散式と組み合わせた飽和多孔媒体中DNAPL移行モデルを提案した。これをMayer and Millerの結果と比較して、DNAPL汚染柱の形成と汚染プルームの再現が可能であることを示した。

今後、観測データに基づいて現地における適用性を検証するとともに、2つのパラメータ、重力沈降速度の多孔媒体中の低減係数αと、拘束率kについてさらに検討を行う予定である。

参考文献

1) K. Sato et al., A numerical approach to simulate heat and mass budgets in the topsoil and lower atmosphere for the different land-use conditions, Journal of Hydroscience and Hydraulic Engineering, JSCE (JHHE), Vol.19, No.2 November, 2001, 31-46,

2) R.R. Giri et al A simulation study of aqueous and gas phase DNAPL migration in shallow unsaturated land elements, JHHE, Vol.20, No.2 November, 2002, 51-69

3) 上野ほか、飽和多孔媒体におけるDNAPL浸透メカニズムに関する実験的研究、水工学論文集、第47巻、2003年2月、313-318

4) 石井ほか、飽和多孔体中を流下する有機塩素化合物溶液の濃度低下、水工学論文集、第40巻、1996年2月、1133-1136

5) N. Egusa and K. Jinno, Numerical simulation for transport of chlorinated hydrocarbons with gas advection and diffusion in unsaturated zone, JHHE, Vol.14, No.2, November, 1996, 97-104

6) 下村ほか、地盤中における揮発性有機化合物の浸透およびガス拡散現象、土木学会論文集、No.631/III-48,1999.9,25-32

7) T.J. Kim, Mass transfer correlations for nonaqueous phase liquid pool dissolution in saturated porous media, Water Resources Research, 35(2):449-459, 1999

8) A.S. Mayer and C.T. Miller, The influence of mass transfer characteristics and porous media heterogeneity on nonaqueous phase dissolution, Water Resources Research, 32(6):1551-1567, 1996

9) 水理公式集 - 昭和60年版、土木学会、1985, pp.416, pp.423

10) 保原 充、大宮司 久明編、数値流体力学ー基礎と応用、東京大学出版会、1992

11) H. C. Yee, Linearized form of implicit TVD schemes for the multidimensional Euler and Navier-Stokes equations, Comp. & Maths. With Appls. Vol.12A, Nos. 4/5, pp.413-423,1986

緑化用水量算定を目的とした緑化屋上微気象・水文観測

近畿大学理工学部　正会員　○高野　保英*
近畿大学理工学部　正会員　江藤　剛治*
近畿大学理工学部　正会員　竹原　幸生*
福井大学工学部　正会員　福原　輝幸**

1. はじめに

ヒートアイランドの緩和対策として都市における緑化が注目されており，公園，緑地および建物屋上を対象とした，緑化による熱環境改善効果に関する研究が進展している．しかしながら国内の水資源利用の状況を踏まえると，緑化用水量には制限があり，特に夏季の渇水期においては都市用水・農業用水の確保が優先されるため，大規模な緑地・緑化屋上を長期に渡って維持することは困難になる．また，屋上緑化の場合には土壌の保水量に制限があるため，地上での緑化に比べて用水量が多くなることも予想される．従って，緑化による気候緩和を有効に進めるためには，都市域における緑化用水量を評価することが重要となる．

筆者らは，近畿大学構内に緑化区画および微気象・水文観測システムを構築し，緑化屋上における植栽による気温上昇抑制効果の検討，および蒸発散量の実測による緑化屋上における植生維持に必要な水量の算定を試みている．本報告では，観測システムの概要とその計測結果例を紹介する．

2. 微気象・水文観測システム概要

微気象・水文観測は，近畿大学34号館（大阪府八尾市，建物高さ約8m）屋上に設置された緑化区画および屋上コンクリート面（非緑化区画）を対象として，2001年6月より開始された．緑化区画は，コンテナ（外形567×399×166mm）を9つ並べたものであり，コンテナ内部には**図-1**に示すように排水層および土壌層が設けられ，表面はコウライシバで覆われている．

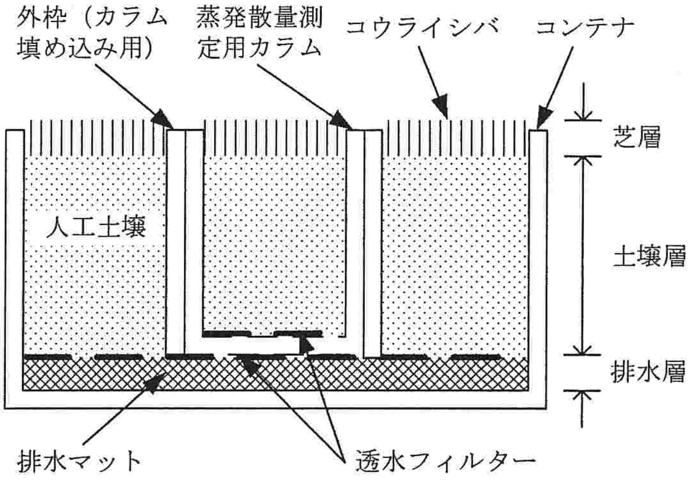


図-1　コンテナおよび蒸発散量測定用カラム断面図

気温の計測には熱電対が使用され，非緑化区画では地表面（コンクリート面）およびその上方の7点，緑化区画では地表面（芝面）およびその上方4点に設置される．大気の相対湿度観測は，湿度センサー（TDK製）により，非緑化区画および緑化区画ともその上方の3点で計測される．また他の気象要素の計測機器として，風杯式風速計（屋上面より高度1.7mに設置），短波放射計，長波放射計（以上英弘精機製）および簡易雨量計[1)]が，両区画の近傍にそれぞれ設置される．

緑化区画の芝面からの蒸発散量は，**図-1**および**写真-1**に示すようなカラムを2個用いて測定される．内径200mm，長さ116mmの塩ビ管をコンテナ内の人工土壌に埋設し，その中にプラスチック容器（カラム）をはめ込む．カラム内には，コンテナと同様に人工土壌およびコウライ芝が敷設されており，底部には排水用の穴が設けられている．このカラムを取り出し，その重量変化を電子天秤で測定することにより，蒸発散量を得る．

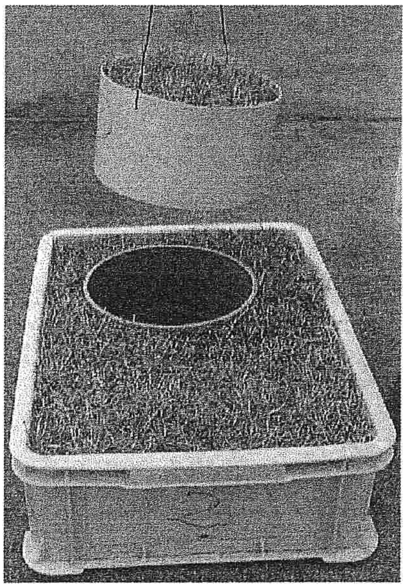


写真-1　蒸発散量測定用カラム

上記の機器よる計測は，蒸発散量測定用カラムおよび簡易雨量計を除い

キーワード：屋上緑化，緑化用水，蒸発散

*　〒577-8502　東大阪市小若江 3-4-1　TEL. 06-6370-1762　FAX. 06-6730-1320
**　〒910-8507　福井市文京 3-9-1　TEL. 0776-23-0500　FAX. 0776-27-8746

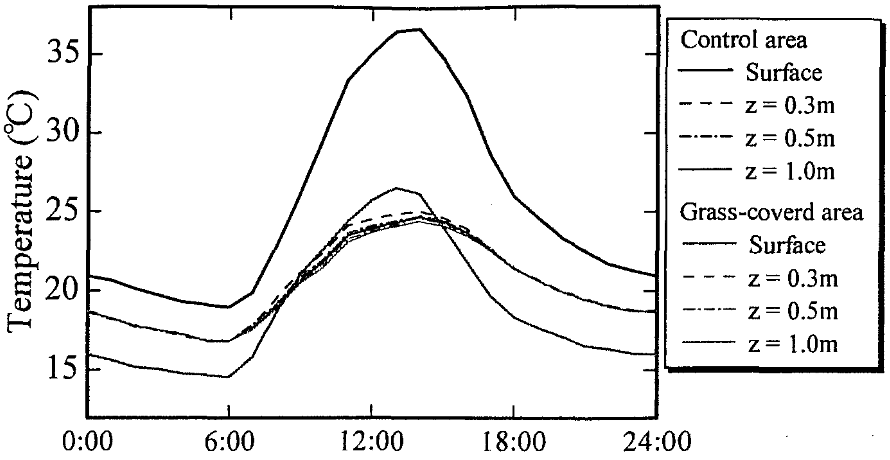


図-2　地表面温度および気温の月平均日変化（2001年10月）

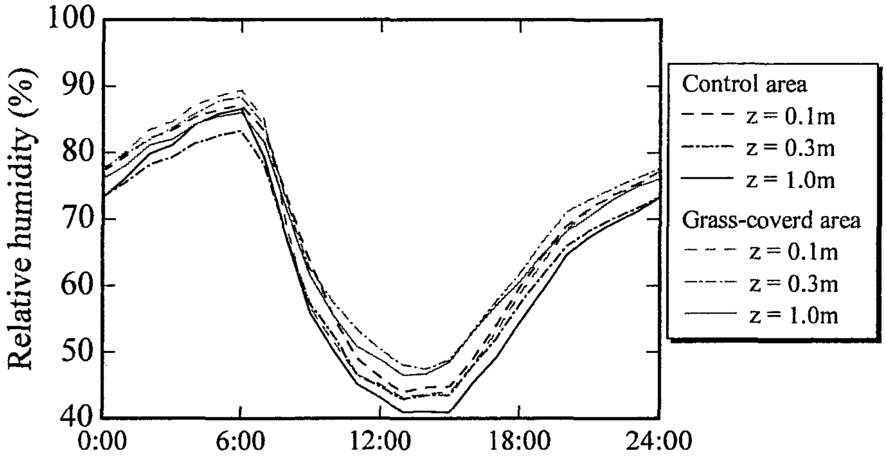


図-3　大気相対湿度の月平均日変化（2001年10月）

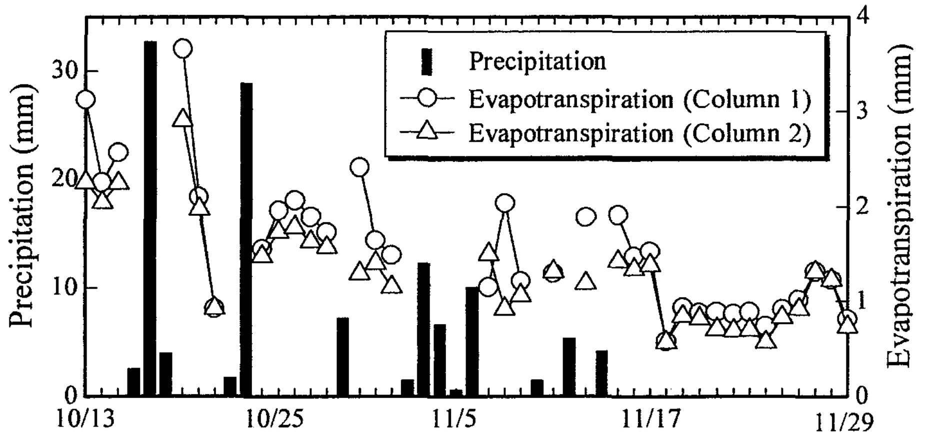


図-4　降雨量および蒸発散量の経時変化（2001年10月13日～11月29日）

て，10分～1時間間隔で連続的に行われ，データロガーやAD変換器を介してパーソナルコンピュータに自動的に記録される．また，蒸発散量および雨量は，毎日1回測定される．

3. 計測結果

図-2に，緑化・非緑化区画の地表面温度，および地表面からの高度(z) 0.3m，0.5m，1mにおける気温の月平均日変化を示す（2001年10月）．両区画を比較すると地表面温度の違いが最も大きく，非緑化区画に比べて緑化区画のそれは日中最大で約10℃低い．この違いは蒸発散の有無により生じるものであり，他の高度における気温を比較しても，最大約0.5℃の差が確認できる．

図-3に，両区画のz = 0.1m，0.3mおよび1mにおける大気相対湿度の月平均日変化を示す（2001年10月）．z = 0.3mおよび1mの相対湿度を両区画で比較すると，常に緑化区画の方が高い値を示しており，日中最大で約6%高い．これも芝面からの蒸発散により生じる現象であるが，z = 0.1mの相対湿度のみ日中芝面の方が低くなっており，疑問が生じた．これについては，湿度センサーの交換あるいはセンサー設置方法の変更を検討している．

図-4に，2001年10月13日～11月30日に亘る日降雨量および日蒸発散量の経時変化を示す．蒸発散量の変化について，降雨後急増し，その後時間の経過とともに減少する傾向が確認されていること，また2個のカラムともほぼ同じ変化傾向を示していることから，今回採用したカラムによる蒸発散量の連続測定の結果は妥当であると考えられる．

4. おわりに

緑化屋上における植生維持に必要な水量の算定を目的として，近畿大学構内に構築した微気象・水文観測システムとその計測結果例を紹介した．今後さらに緑化区画を拡大するとともに，夏期を中心として集中的な観測を行い，散水量の違いによる，植生状態，蒸発散量あるいは気候緩和効果の違いを調べる．

謝辞：本研究の一部は，文部省科学研究費基盤研究(c)(1)「大気・土壌連成数学モデルにもとづく土壌汚染物質の予測解析システムの研究（研究代表者：佐藤邦明）」の補助を受けた．ここに記して謝意を表する．

参考文献　1) 牛山素行編：身近な気象・気候調査の基礎，古今書院, 2002.

緑化屋上区画からの排水水質の連続観測

近畿大学理工学部　　正会員　○高野　保英
近畿大学理工学部　　正会員　江藤　剛治
近畿大学理工学部　　正会員　竹原　幸生

1. はじめに

ヒートアイランドの緩和対策として都市における建物屋上緑化が注目されており，その熱環境改善効果に関する研究が進展している．しかしながら国内の水資源利用の状況を踏まえると，緑化用水量には制限があり，緑化による気候緩和を有効に進めるためには，都市域における緑化用水量を評価することが重要となる．また，植生維持のために除草剤・肥料等を使用すると，これらの化学物質が排水を通じて水質に与える負荷も考慮しなければならない．

筆者らは，近畿大学構内に屋上緑化区画および微気象・水文観測システムを構築し，緑化屋上における植栽による気温上昇抑制効果の検討，蒸発散量の実測による緑化屋上における植生維持に必要な水量の算定，さらに緑化区画からの排水の水質調査を試みている．その結果，緑化区画からの排水に含まれる硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リン濃度の時間変化を知ることができたので，報告する．

2. 排水水質連続観測の概要

2.1 緑化区画の概要　屋上緑化区画および微気象・水文観測機器は，2001 年 6 月，近畿大学 34 号館（大阪府八尾市，建物高さ約 8m）屋上に設置され，それ以後，継続的に計測および緑化区画の拡張・増設が進められている．

緑化区画は**写真-1** に示すように，プラスチック製コンテナ（外形 567×399×166mm）を上下二段に計 162 個並べたものである．上段の各コンテナの内部は**図-1** のように，排水フィルターとマットで構成された排水層，および人工軽量土壌層が設けられ，表面はコウライシバで覆われている．下段のコンテナは空であり，緑化区画からの排水の採取に使用する．正味の緑被面積は 14.9m^2 となる．この緑化区画および隣接する屋上面上において，気温，大気湿度，降雨量，蒸発散量，日射量および風速の長期連続観測が行われている．

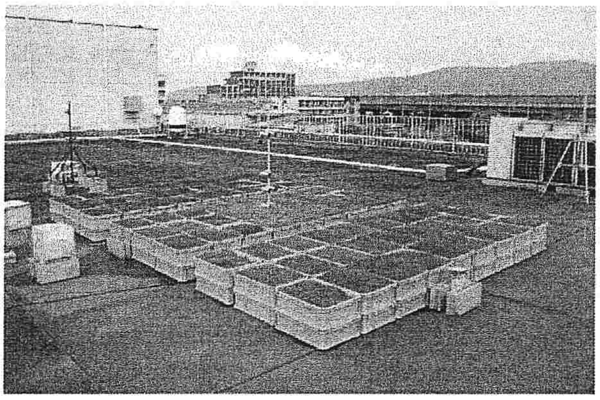


写真-1　屋上緑化区画

2.2 排水水質連続観測　2002 年 8 月 31 日，上述の緑化区画内の北側に配置された 27 個の緑化コンテナに化成肥料（粒状，保証成分（%）N:8，P_2O_5:8，K_2O:8）を 60.6 g/m^2，また南側の 27 個の緑化コンテナに除草剤（DCBN 粒剤，2,6-ジクロロチオベンザミド 4.0%）を 10g/m^2，それぞれ散布する．中央の 27 個の緑化コンテナは，比較対照のための基準区画として，何も散布しない（**図-2** 参照）．肥料および除草剤の散布量は，それぞれの製品に記載されている使用方法に従って決定された．散布後，降水が確認された日を除いて，所定の潅水（10.89mm）を毎日与え，総ての区画について 2 箇所の排水コンテナから排水を採取する．排水採取は散布翌日から開始し，散布 2，3，5，7，30，45，60，75，90 日後にそれぞれ採水する．吸光光度法により，

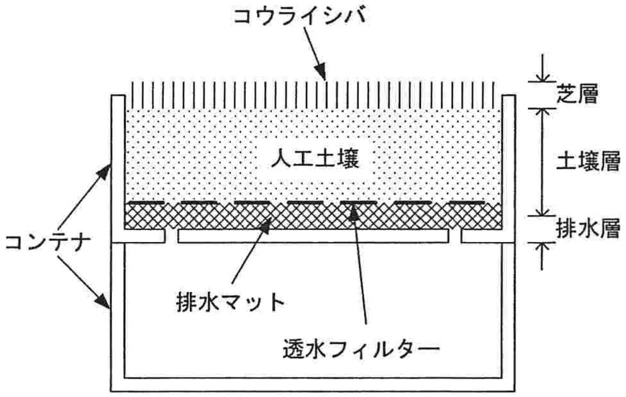


図-1　コンテナ断面図

キーワード：屋上緑化，排水水質，微気象・水文観測
連絡先：577-8502　大阪府東大阪市小若江 3-4-1　近畿大学水工学研究室　TEL: 06-6721-2332

排水内の硝酸・亜硝酸態窒素（NO_2-N, NO_3-N）およびリン酸態リン（PO_4-P）の濃度を測定する．なお，潅水する水および降水の分析も行ったが，上記の物質はほとんど含まれていないことが確認されている．

3. 観測結果

図-3 および図-4 に，各区画からの排水中の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンの濃度経時変化をそれぞれ示す．

まず硝酸・亜硝酸態窒素濃度に注目すると，基準区画(□)および除草剤区画（△）では，ほとんど濃度の変化が観られない．一方肥料区画（○）では，散布 1 週間後まで濃度が高くなり，散布 30 日後以降は他の 2 区画とほぼ同じ値を示す．従ってこの頃までに，肥料の成分として加えられた量に相当する硝酸・亜硝酸態窒素は，土壌中から失われていることが知れる．また，基準区画の排水からも常に 0.5～1mg/ℓ 程度の硝酸・亜硝酸態窒素が検出されており，人工軽量土壌から窒素が排出されていることが示唆される．

次にリン酸態リンの経時変化を観ると，総ての区画について，散布直後から高い濃度が検出されていることが判る．特に除草剤区画では散布週間後までに濃度が急上昇し，その後指数関数的に減少する．散布 45 日後以降，総ての区画でリン酸態リン濃度はほぼ同じ値を示しながら漸減する．また硝酸・亜硝酸態窒素と同様に，基準区画の排水からも高濃度のリン酸態リンが検出されており，人工軽量土壌にはリンも多量に含まれていることが予想される．

基準区画排水中の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが，人工土壌起源のものかどうかを検討するために，緑化基盤として使用した人工軽量土壌 0.1g を 100mℓ の水に加え，よく攪拌させた後，水の硝酸・亜硝酸態窒素濃度とリン酸態リン濃度を測定した．その結果，前者は 3.8mg/ℓ，後者が 2.5mg/ℓであり，人工土壌からも硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸リンが排出されることが判った．

4. おわりに

屋上緑化区画に，肥料および除草剤を与えた場合，排水にはそれらを起源とする物質が含まれることになり，水質に与える影響を考慮しなければならない．この問題に関する基礎的な知見を得るため，屋上緑化区画からの排水水質の連続観測を行った．その結果，人工土壌を基盤材に使用した場合，緑化区画からの排水には，肥料・除草剤起源のみならず，人工土壌起源の硝酸・亜硝酸態窒素およびリン酸態リンが含まれていることが示された．

謝辞：本研究の一部は，文部省科学研究費基盤研究(c)(1)「大気・土壌連成数学モデルにもとづく土壌汚染物質の予測解析システムの研究（研究代表者：佐藤邦明）」の補助を受けた．ここに記して謝意を表する．

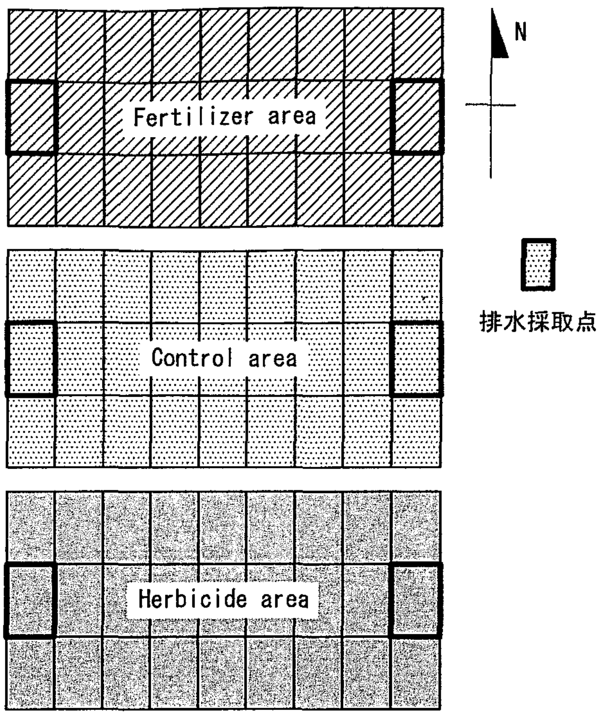


図-2 排水水質連続観測区画の概要

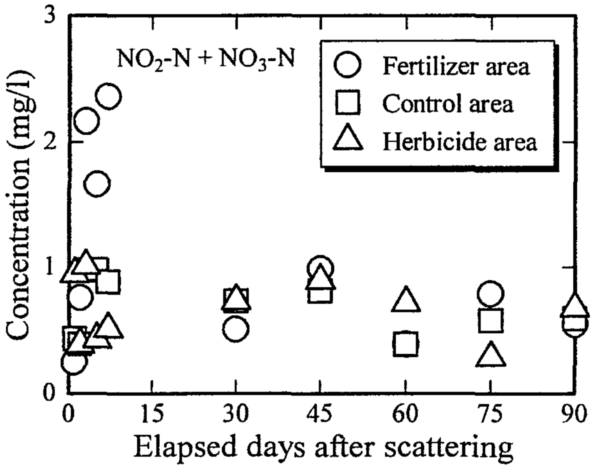


図-3 硝酸・亜硝酸態窒素濃度経時変化

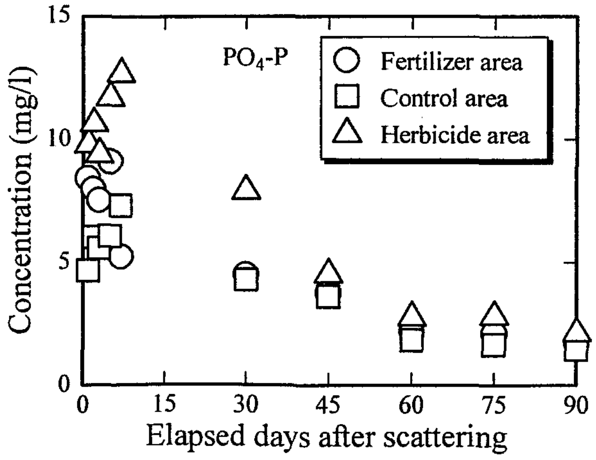


図-4 リン酸態リン濃度経時変化