

# 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<sup>1</sup>・佐藤 邦明<sup>2</sup>・和田 明<sup>3</sup>

<sup>1</sup>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)

<sup>2</sup>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)

<sup>3</sup>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, perched 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<sup>1)</sup>、Miller et al.<sup>2)</sup>、Khachikian and Harmon<sup>3)</sup> 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<sup>4)</sup>。

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)<sup>5)</sup> 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、引き伸び形状を持ち<sup>3)</sup>、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、100 $\mu\text{m}$  から 1mm 程度の様々な大きさ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.<sup>6)</sup>). Geller and Hunt<sup>7)</sup> 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.<sup>8)</sup> 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.<sup>9)</sup> 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.<sup>10)</sup>; Powers et al.<sup>11)</sup>; Imhoff et al.<sup>12)</sup>; Zhu and Sykes<sup>13)</sup>). 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<sup>3)</sup> 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.<sup>14)</sup>)、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(Tranham and Dumford<sup>15)</sup>)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<sup>16)</sup>)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.<sup>17)</sup>)と報告されている。

Zhang and Smith<sup>18)</sup> 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<sup>19)</sup> 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<sup>20)</sup>による土槽実験による検討、長藤ほか<sup>21)</sup>による土壌ガス濃度による土中残存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<sup>22, 23)</sup> 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<sup>24)</sup> 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.<sup>25)</sup> は、多成分多相系の数値予測手法(M<sup>2</sup>NOTS: 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<sup>26)</sup>、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<sup>13)</sup>、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<sup>27)</sup>、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<sup>28)</sup>、不飽和帯における気相と液相の輸送(Egusa and Jinno<sup>29)</sup>)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<sup>30)</sup>、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<sup>31)</sup>。

現地における予測手法の適用事例としては、Adenekan and Patzek<sup>32)</sup>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.<sup>33)</sup>。近年、TVD (Total Variation Diminishing)スキーム(Cox and Nishikawa<sup>34)</sup>、保原、大宮司<sup>35)</sup>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<sup>36)</sup>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<sup>37)</sup>は、液相、難溶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.<sup>38)</sup>。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<sup>39)</sup>、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<sup>40)</sup>、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.<sup>41)</sup>などの研究がある。

しかしながら、DNAPL 原液の難溶性と 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性相までを含めて扱った例は少ない、(iii)難溶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 DNAPL 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。

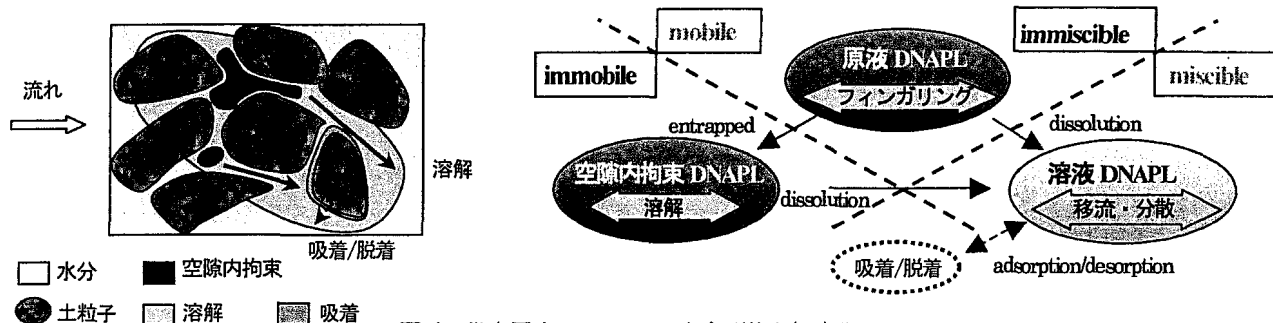


図-1 帯水層中の DNAPL の存在形態と相変化

- (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 ( $k_0$ : 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<sup>19)</sup>。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  $\varepsilon$  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、 $\alpha$  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<sup>20)</sup>。

$$\theta_a \beta_a \rho_a g \frac{\partial \psi_a}{\partial t} + \frac{\partial \theta_a}{\partial t} - \nabla \cdot [k_a (\nabla \psi_a + z)] = \frac{I_a}{\rho_a} \quad (1)$$

と書くことができる。ここで、 $\theta_a$  は体積含有率 [-],  $\beta_a$  は流体圧縮率 [ $M^{-1}L^3$ ],  $\rho_a$  は密度 [ $ML^{-3}$ ],  $g$  は重力加速度 [ $LT^{-2}$ ],  $\psi_a$  は圧力水頭 [L],  $k_a (= \rho_a g K K_{ra} / \mu_a)$  は浸透係数 [ $LT^{-1}$ ],  $K$  は固有浸透係数 [ $L^2$ ],  $K_{ra}$  は相対浸透係数 [-],  $\mu_a$  は粘性係数

[ML<sup>-1</sup>T<sup>-1</sup>],  $z$  は鉛直上向き単位ベクトル[-],  $l_a$  は相変換項 [ML<sup>3</sup>T<sup>-1</sup>]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  $C_a$  [ML<sup>3</sup>]を用いて次のように表せる。

$$\frac{\partial(\theta_a C_a)}{\partial t} + v_a \cdot \nabla(\theta_a C_a) - \nabla \cdot (\theta_a \mathbf{D}_a \cdot \nabla C_a) = \left(1 - \frac{C_a}{\rho_a}\right) I_a \quad (2)$$

ここで、 $v_a$  は空隙平均流速、 $\mathbf{D}_a$  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。 $C_a^*$  は溶液の平衡濃度、 $K_{an}$  は物質輸送率係数[T<sup>-1</sup>]を示し、液相  $l_a$  を正としている。

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

(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<sup>23), 30), 31)</sup>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<sup>2), 23), 24), 25)</sup>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。

$$\frac{\partial(\theta_a C_a)}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \left( \theta_a D_{axx} \frac{\partial C_a}{\partial x} + \theta_a D_{axz} \frac{\partial C_a}{\partial z} \right) - \theta_a u'_a C_a \right\} - \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \left( \theta_a D_{axx} \frac{\partial C_a}{\partial x} + \theta_a D_{axz} \frac{\partial C_a}{\partial z} \right) - \theta_a w'_a C_a \right\} \quad (4a)$$

$$+ \text{Additional\_term}_a = 0$$

$$\begin{aligned} \text{Additional\_term}_a &= \text{ADS}_a - \text{ELU}_a - \text{SOL}_{ea} \\ \text{Additional\_term}_n &= \text{ENT}_{ne} - \text{DET}_{en} \end{aligned} \quad (4b)$$

また、残存 DNAPL の収支式は、次のように表せる。

$$\frac{\partial(\theta_e C_e)}{\partial t} + \text{SOL}_{ea} - \text{ENT}_{ne} + \text{DET}_{en} = 0 \quad (5)$$

$$\text{SOL}_{ea} = \theta_e [K_{en} (C_a^* - C_e)]$$

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、 $\theta_a, \theta_n, \theta_e$  はそれぞれの体積含有率である。地下水流れ場は一樣水平流と仮定する。 $\text{ADS}_a, \text{ELU}_a, \text{SOL}_{ea}$  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。 $\text{ENT}_{ne}, \text{DET}_{en}$  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  $\Delta V$  中の平均濃度  $\bar{C}$  は、次のように表すことができる。

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

物質輸送率係数  $K_{an}$  は、次のような Miller et al.<sup>8)</sup> および Imhoff et al.<sup>12)</sup> による定式化(7a)-(7c)を用いる。

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

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

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

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、 $\text{Re} (=v_a \rho_a d_p / \mu_a)$  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<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>]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 Verweij<sup>42)</sup>).  $u'_a, w'_a$  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。

$$\mathbf{D}_a = (D_{aj}) = \alpha_{at} |v_a| \delta_{ij} + (\alpha_{at} - \alpha_{at}) \frac{v_a v_{aj}}{|v_a|} + \delta_{ij} \tau D_m \quad (8)$$

ここで、 $\alpha_{at}, \alpha_{at}$  は流下方向、横断方向分散長[L],  $v_a, v_{aj}$  は空隙流速成分であり、 $v_a = u'_a, v_{aj} = w'_a, v_{at} = u'_n, v_{aj} = w'_n$  とする。 $\delta_{ij}$  はクロネッカーのデルタ、 $\tau$  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<sup>4)</sup>。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<sup>3), 6)</sup>、水中の懸濁質通過の概念(Yao et al.<sup>43)</sup>, Rogers and Logan<sup>44)</sup>, Tufenkji et al.<sup>45)</sup> 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。

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

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

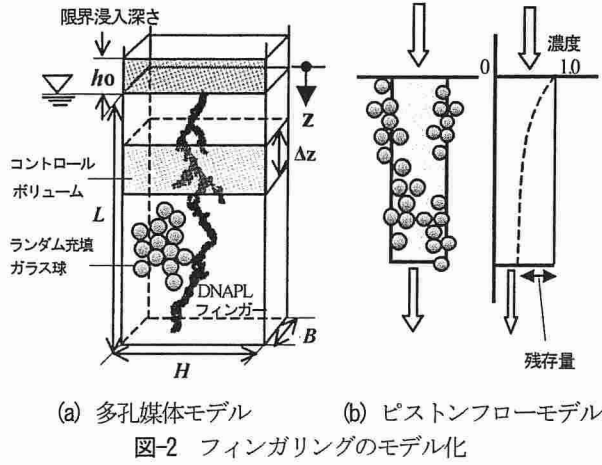
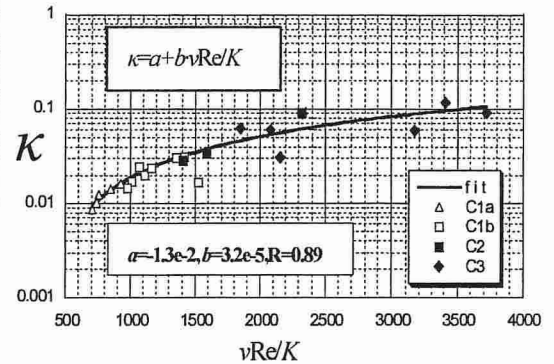
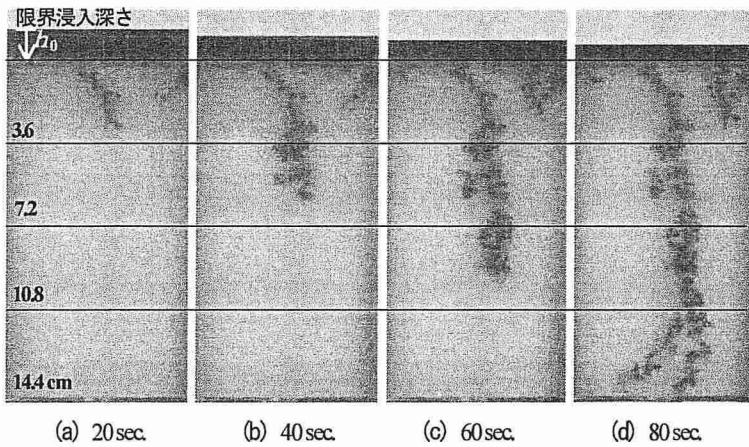


表-1 多孔媒体モデルの特性とフィンガリング実験結果

| 実験ケース                            | C1a                                       | C1b    | C2      | C3      |
|----------------------------------|---|--------|---------|---------|
| $d_p$ (粒径) $10^3$ (m)            | 1.0                                       | 1.0    | 2.0     | 3.0     |
| $L \times H \times B$ $10^2$ (m) | 14.0 × 9.0 × 0.6 (C1bのみ 10.0 × 9.0 × 0.6) |        |         |         |
| $\varepsilon$ (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 <sup>2</sup> )         | 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    |
| $\kappa$ (sec <sup>-1</sup> )    | 0.0123                                    | 0.0222 | 0.0516  | 0.0728  |
| $\lambda$ (m <sup>-1</sup> )     | 5.93                                      | 7.20   | 6.58    | 7.10    |

\*TCE 密度  $\rho_t: 1.47 \times 10^6$  (g/m<sup>3</sup>), 粘性係数  $\mu_t: 5.7 \times 10^{-4}$  (Pa·s)



$$\rho_n \frac{\partial \theta_e}{\partial t} = \kappa \cdot C \theta_n \quad (11)$$

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,  $\rho_n$  は DNAPL 密度,  $w$  は鉛直浸透(フィンガリング)速度 [LT<sup>-1</sup>],  $D$  は分散係数,  $W_d$  はダルシー速度 [LT<sup>-1</sup>],  $k$  は DNAPL 浸透係数,  $k_D$  は補正係数,  $\xi$  は鉛直経路長 [L],  $h_0$  は限界浸入深さ [L],  $\xi_0$  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  $HBn_{ed}$  がフィンガー断面積を表す. (11)式のパラメータ  $\kappa$  は残存量を支配するものであり, ここでは,  $\kappa$  を空隙内拘束率係数 [T<sup>-1</sup>],  $\lambda$  を  $\lambda = \kappa/w$  と定義して, 空隙内拘束係数 [L<sup>-1</sup>]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.

$$w \frac{dC'}{dz} + \kappa C' = 0 \quad (12)$$

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

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.

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

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  $\Delta Q (=Q_{in} - Q_{out})$  とし,  $A = H \cdot B$ ,  $A \cdot L \cdot n_{ed} C_0 = Q_{in}$  と  $L = w T_0$  の関係を用いれば,  $\Delta Q$  と  $\kappa$  は次のように表せる.

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

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

一方,  $\kappa$  は平均粒径  $d_p$ , 空隙率  $\varepsilon$ , 係数  $\eta$  [-]を用いて(17a)式のように定義される<sup>43), 44), 45)</sup>.  $\kappa$  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  $3(1 - \varepsilon) 2 d_p$  と, 粒子への付着, 脱着を表す係数  $\eta$  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  $\delta$  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 ( $k = \delta^2 \rho g / 32 \mu$ ,  $K = \mu k / \rho g$ )<sup>5)</sup> から,  $\kappa$  は次の(17b)式のように表せる.  $\zeta_p$  は  $c$



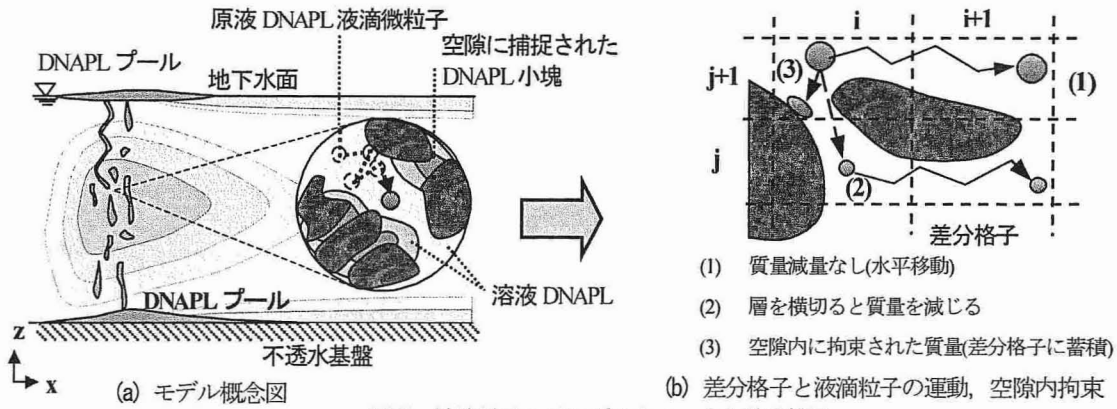


図-5 液滴粒子のランダムウォークと差分格子

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

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

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

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  $\kappa$  と  $\lambda$  の値を表-1 に示す。 $\lambda$  が大きいほど残存率が高い。 $\lambda$  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。

$\kappa$  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、 $a=1.3 \times 10^2$ 、 $b=3.2 \times 10^5$ 、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  $\lambda$  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、 $\nu$  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)、 $w_p = 0.233((\rho_p - \rho)^2 / (\mu \rho g^2))^{1/3} \cdot d_p$  ( $1 \leq Re \leq 100$ ; Allen の式)と表せる。ここで、 $\rho$ 、 $\rho_p$  は媒体と粒子の密度、 $g$  は重力加速度、 $\mu$  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  $\gamma$  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。 $\gamma$  を補正係数、 $\varepsilon$  を空隙率として、 $w'_n = \gamma w_p$ 、 $\gamma = \varepsilon^m$ 、( $2.30 \leq m \leq 4.6$ ) (Maude et al. 47)と表せる。ここでは、補正係数  $\gamma$  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<sup>38),39)</sup>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  $X_p(t)$ 、 $X_p(t+\Delta t)$  を現在、および次の時間ステップにおける粒子の位置、 $A(X_p, t)$  を位置を定めるベクトル、 $B(X_p, t)$  を  $X_p(t)$  における粒子の拡がりを示すスケーリングテンソル、 $R$  を正規乱数のベクトルとして、次のように表せる。

$$X_p(t+\Delta t) - X_p(t) = A(X_p, t)\Delta t + B(X_p, t) \cdot R\sqrt{\Delta t} \quad (18)$$

ここで、 $R=(r_x, r_z)$  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、 $A$  と  $B$  が定まれば、(18)式により求めることができる。 $A$  と  $B$  は、次の式で表される。

$$A = v_n + \nabla \cdot D_n + \frac{1}{\varepsilon} D_n \cdot \nabla \varepsilon; \quad B \cdot B^T = 2D_n \quad (19)$$

ここで、 $v_n=(u'_n, w'_n)$ 、分散係数テンソル  $D_n$  と空隙率  $\varepsilon$  は、空間的に一様とすれば、 $A=v_n$  が成り立つ。(8)式から、 $D_n$  の成分は、分散長  $\alpha_{nL}$ 、 $\alpha_{nT}$  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。

$$D_{nxx} = \alpha_{nL} \frac{u_n'^2}{q'} + \alpha_{nT} \frac{w_n'^2}{q'} + D_m; \quad D_{nzz} = \alpha_{nT} \frac{u_n'^2}{q'} + \alpha_{nL} \frac{w_n'^2}{q'} + D_m \quad (20)$$

$$D_{nzz} = D_{nxx} = (\alpha_{nL} - \alpha_{nT}) \frac{u_n' w_n'}{q'} \quad (|v_n| = \sqrt{u_n'^2 + w_n'^2} = q')$$

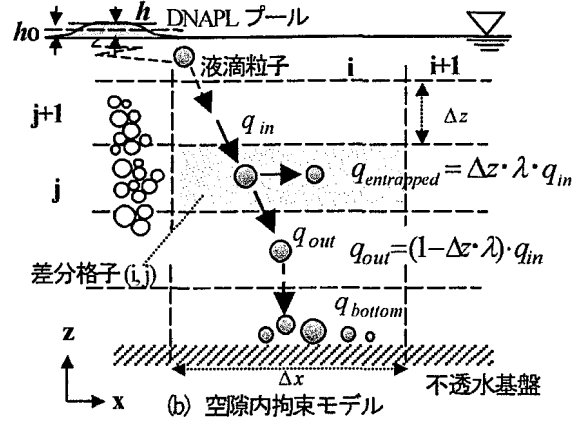
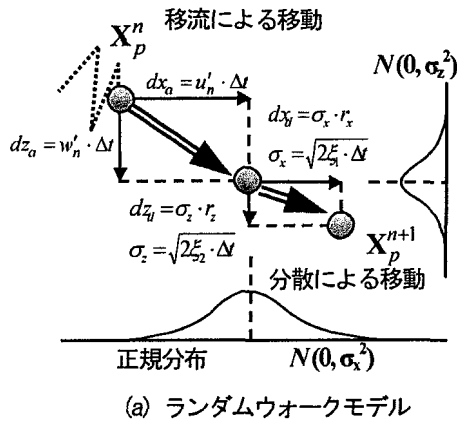


図-6 液滴粒子のランダムウォークと空隙内拘束のモデル化

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

$\xi_1, \xi_2$  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

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

$$\xi_2 = \alpha_{nT} \sqrt{u_n'^2 + w_n'^2} + D_m \quad (21b)$$

$$\mathbf{B}' = \begin{pmatrix} \sqrt{2\xi_1} & 0 \\ 0 & \sqrt{2\xi_2} \end{pmatrix}$$

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

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

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  $\lambda$  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,  $\Delta V$  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.

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

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

$$q_{entrapped} = q_{in} - q_{out} = \Delta z \cdot \lambda \cdot q_{in}$$

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  $\theta_e$  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,  $0.15\varepsilon$  とした<sup>11), 14), 20)</sup>.

$$ENT_{ne} = \sum_{k_e} \Delta z \cdot \lambda \cdot q_{in_k} \quad (24a)$$

$$\theta_e = \frac{\int ENT_{NE} dt}{\varepsilon \cdot \rho_n \cdot \Delta V} \leq \theta_{e,max} = 0.15 \varepsilon$$



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。

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

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  $SOL_{en}$  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。

$$D_{axx} = \alpha_{ax} l'_a + D_m; \quad D_{axz} = \alpha_{ax} l'_a + D_m; \quad D_{azz} = D_{axx} = 0 \quad (25)$$

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、打ち切り誤差が 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<sup>35) 36)</sup>、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、 $C_t = \partial C / \partial t$ ,  $v C_x = v \partial C / \partial x$ ,  $G = D \partial^2 C / \partial x^2$  において、 $C_t + v C_x = G$  と書ける。このとき、移流項を  $F = v C_x$ ,  $\zeta = \Delta x / \Delta t$  において離散化し、時間刻みを  $n$ , 空間刻みを  $j$  として一般形で表せば、重み  $\theta$  を用いて、 $0 \leq \theta \leq 1$  として、

$$\begin{aligned} C_j^{n+1} + \theta \zeta (\tilde{F}_{j+1/2}^{n+1} - \tilde{F}_{j-1/2}^{n+1}) - \theta \Delta t G^{n+1} \\ = C_j^n - (1 - \theta) \zeta (\tilde{F}_{j+1/2}^n - \tilde{F}_{j-1/2}^n) + (1 - \theta) \Delta t G^n \end{aligned} \quad (26)$$

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、

$$\tilde{F}_{j+1/2} = (F_{j+1} + F_j) / 2 + \hat{F}_{j+1/2}(\Delta C) \quad (27)$$

と表せる。

TVD 制限関数付の数値流束の一般形は、

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

$$\begin{aligned} \phi(r) = \min(\min(1, b_{TVD} \cdot r), \\ \min(\min(x, y), \text{sign}(x) \max[0, \min(|x|, \text{sign}(x)y)])) \end{aligned} \quad (28b)$$

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

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

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<sup>35)</sup>。3 次風上差分で Semi-Implicit の場合、 $\beta = 1/3$ ,  $\theta = 1/2$ ,  $b_{TVD} = 4$  である。

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

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

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

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  $N \times N$  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  $\delta C$  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。

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

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

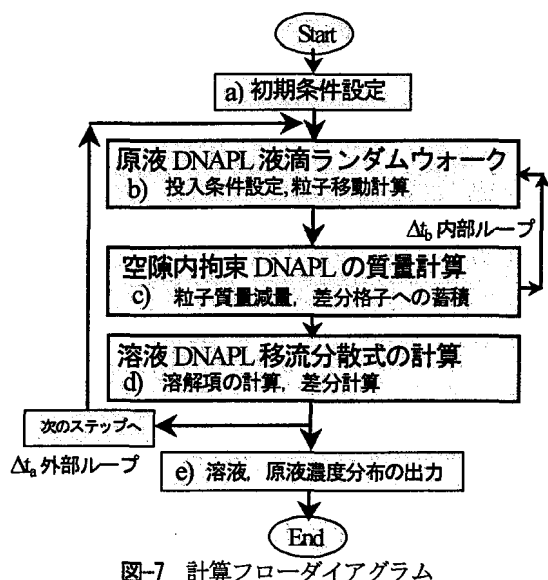


図-7 計算フローダイアグラム

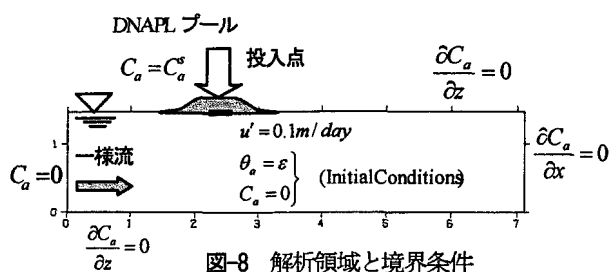


図-8 解析領域と境界条件

表-2 DNAPL(TCE)の特性値

|                |  |                |   |
|----------------|--|----------------|---|
| $\rho_n$ (密度)  | $1.47 \times 10^6$ (g/m <sup>3</sup> ) | $D_m$ (分子拡散係数) | $8.0 \times 10^{-10}$ (m <sup>2</sup> /s) |
| $\mu_n$ (粘性係数) | $5.7 \times 10^{-4}$ (Pa·s)            | $C_a^s$ (飽和濃度) | $1.27 \times 10^3$ (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

|   |                                     |   |   |
|---|-------------------------------------|---|---|
| $\varepsilon$ (空隙率), $d_p$ (平均粒径) $\times 10^2$ (m) | 0.4, 0.04                           | $\delta_p$ (液滴粒径: 7 タイプ) $\times 10^2$ (m)            | 0.01, 0.02, 0.04, 0.05, 0.06, 0.08, 0.1 |
| 分散長(縦・横) $\times 10^2$ (m)                          | $\alpha_{dl}, \alpha_{dr}$ 9.0, 3.0 | $\gamma$ (沈降速度の補正係数)                                  | 0.0148                                  |
|   | $\alpha_{nl}, \alpha_{nr}$ 9.0, 3.0 | $\lambda$ (空隙内拘束係数) (m <sup>-1</sup> )                | 5.62                                    |
| $u'$ (空隙平均流速) (m/day)                               | 0.1                                 | 格子間隔 ( $\Delta x, \Delta z$ ) $\times 10^2$ (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  $\Delta t_a$  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  $\Delta t_b$  で繰り返して  $\Delta t_a$  時間内の液滴粒子の運動を追跡する。その結果をもとに  $\Delta t_a$  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性相の移流分散を同時に解析した Mayer and Miller<sup>20)</sup> 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次元場において一樣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  $\delta_p$  として  $\delta_p = 0.01 \sim 0.1$  ( $\times 10^2$  m) の7種類を与え、どの粒子を発生させるかを一樣乱数で設定する。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<sup>49)</sup>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ブルームの現象が再現されている。図(d),

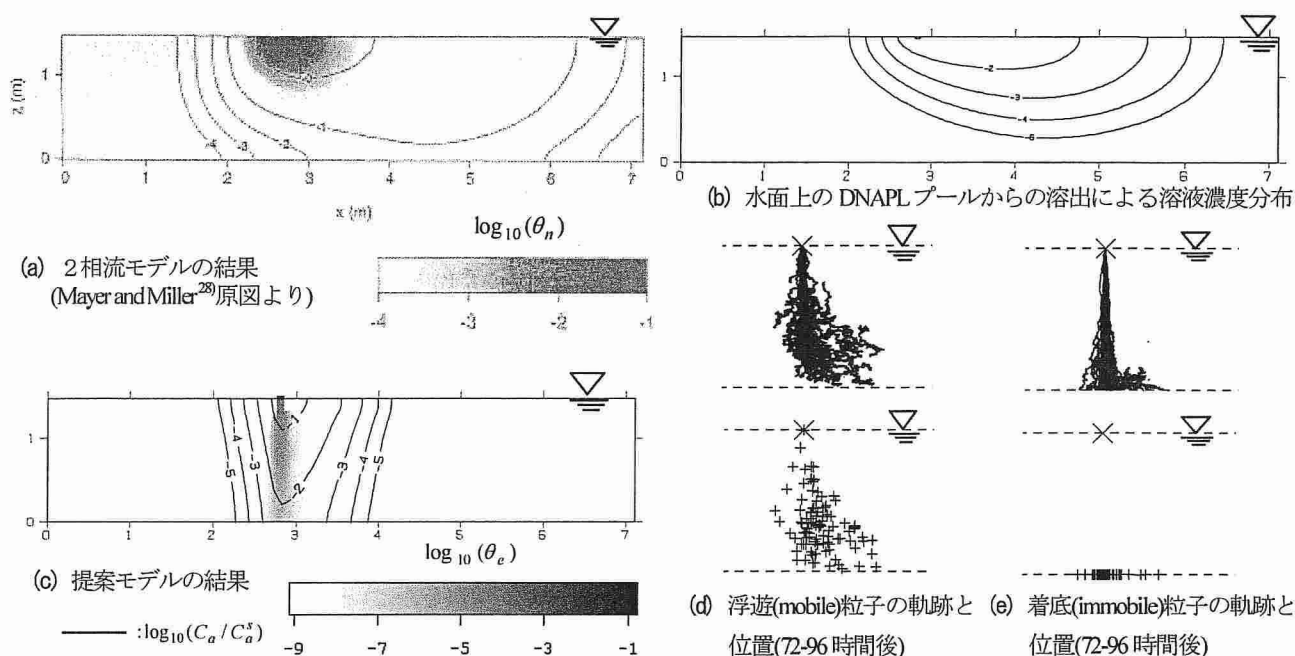


図9 差分連成ランダムウォーク法による溶液濃度  $C_a$ ，残存 DNAPL 体積含有率  $\theta_n$  および液滴粒子の軌跡と位置の分布

(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。 $\delta_p$  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， $\delta_p$  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-I)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<sup>18</sup> 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  $\lambda$  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<sup>49</sup>。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<sup>50</sup>；中辻<sup>51</sup>；中杉，平田<sup>52</sup>；江種ほか<sup>53</sup>)。

#### (I) 現地の地質特性と汚染の概要

##### (a) 汚染の概要

中辻<sup>51</sup>によると，1983 年 12 月，A 町の水源井戸 3 ケ所のうち 2 ケ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 ケ所のうち 128 ケ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<sup>3</sup> 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<sup>5)</sup>)

| 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)<br>透水係数 $k=0.9 \times 10^{-2}(\text{m/s})$  |
| 傾斜   | 地表面勾配(南北方向) 0.0034<br>沖積層底部 0.0115 | 敷地内深井戸(揚水井)  | 地下水面 GL-40~60(m)<br>透水係数 $k=0.0086 \times 10^{-2}(\text{m/s})$ |
| 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(c) 0.35, 有効空隙率 0.15            | 帯水層深さ*と透水係数* | GL-25 (m), $k=0.003 \times 10^{-2}(\text{m/s})$                |

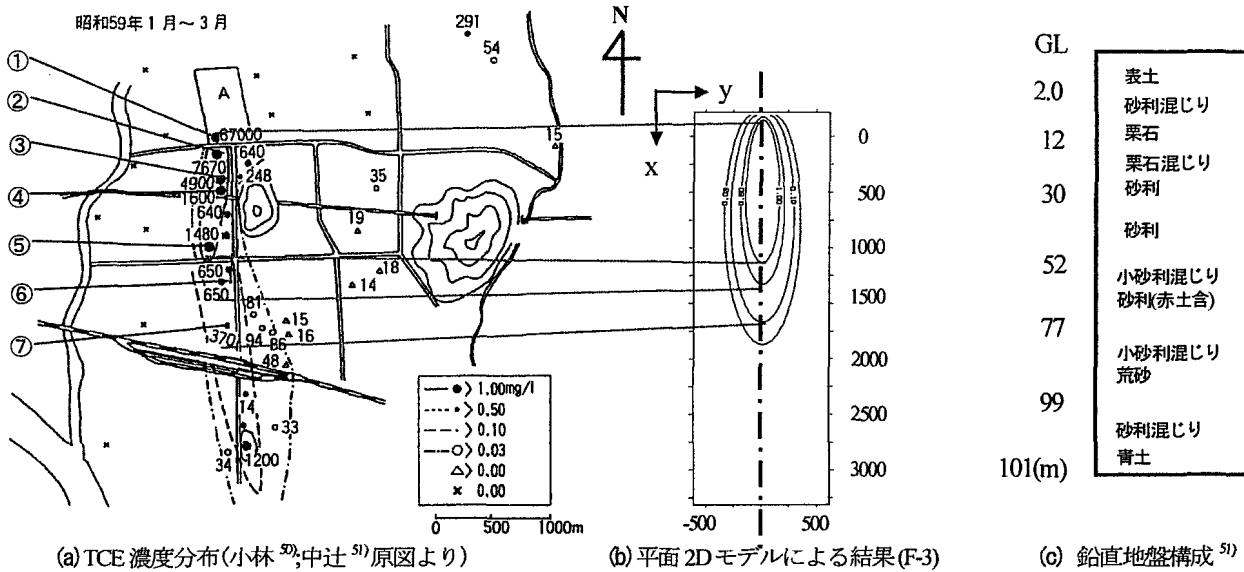


図-10 現地実測値と地質特性

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 | $M_R \times \text{倍率係数}$   |
|  | $Q_R$    | FD-RWM | $M_E \times \text{倍率係数} = \Delta y \cdot \iint \theta_e(t_0) C_e(t_0) dx dz$ |
|  | $Q_{Ds}$ | FDM    | $\Delta z \cdot \int_{t_0}^T \int_S \theta_a [K_{an} (C_a^s - C_a)] ds dt$   |
|  | $Q_{Dr}$ | 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<br>$M_R$ : 投入粒子の合計質量, $M_E$ : 空隙内拘束粒子の合計質量<br>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.<br>$\Delta y$ : 発生源単位幅, $\Delta z$ : 帯水層厚さ, $S$ : 汚染範囲, $t_0$ : 溶解の開始時刻<br>$T$ : 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 $Q_{Dr}$ を表-6に示す。これらの量は時間の積分値であり、 $Q_L \geq Q_I \geq Q_R \geq Q_{Ds} \geq Q_{Dr}$ の関係がある。

### (b) 検討手順とシミュレーションモデル

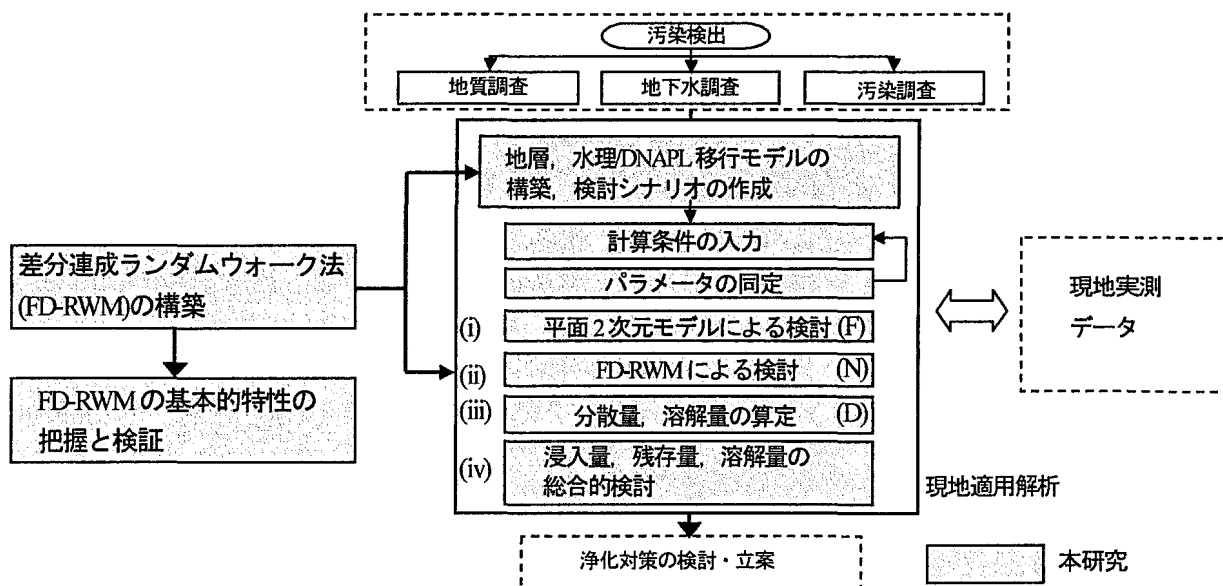


図-11 差分連成ランダムウォーク法の現地適用による浸入および残存 DNAPL 量の検討手順

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<br>$\alpha_{dL}, \alpha_{dT}$ (m)   | 時間<br>刻み                                      | 空隙平均流速<br>$u'$ (m/day) | その他の条件                                  |     |  |       |        |
|--|------|--------------------------|-------------------------|----------------------------------|---|---|------------------------|---|-----|--|-------|--------|
| F-0  | 15 年 | 平面 2D                    | $L_2$ B                 | 100, 100                         | 10, 1~500, 50   | 5 日   | 1.0                    | 発生源濃度<br>$C_0$ 1.0                      |     |  |       |        |
| F-1  |      |                          | 4000, 1300              |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| F-2  |      | 3650, 1250               | 50, 50                  |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| F-3  |      | FDM                      | 3525, 1225              | 25, 25                           | 100, 10   |   |                        |   |     |  |       |        |
| F-4  |      |                          |                         |                                  |   |   | 0.4                    |   |     |  |       |        |
| F-5  |      |                          |                         |                                  |   |   | 2.5                    |   |     |  |       |        |
| N-1  | 10 日 | 鉛直 2D                    | $L_1, D$<br>100.0, 50.0 | $\Delta x, \Delta z$<br>1.0, 1.0 | $\alpha_{dL}, \alpha_{dT}$<br>100, 10<br>$\left[ \begin{array}{l} \alpha_{dL}, \alpha_{dT} \\ 5.0, 2.5 \\ \times 10^{-2}(\text{m}) \end{array} \right]$ | $\Delta t_a$<br>6 時間<br>$\Delta t_b$<br>360 秒 | 1.0                    | 拘束率<br>$\lambda$<br>( $\text{m}^{-1}$ ) | 6.0 | 液滴粒径<br>$\delta_p \times 10^2$ (m)<br>0.015, 0.02,<br>0.04, 0.05, 0.06,<br>0.08, 0.1 |       |        |
| N-2  |      |                          |                         |                                  |   |   |                        |   | 0.2 |  |       |        |
| N-3  |      | 0.05                     |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| N-4  |      | 0.4                      |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| N-5  |      | 2.5                      |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| D-1  | 5 年  | 平面 2D<br>FDM<br>+溶解モデル*2 | $L_2$ B                 | $\Delta x, \Delta y$<br>25, 25   | 100, 10   | 5 日   | 1.0                    | 残留<br>飽和度<br>$S_r$ (%)                  | 10  | *3<br>$\theta_e$   | 0.035 |        |
| D-2  | 10 年 |                          |                         |                                  |   |   |                        |   | 0.4 |  | 1.0   | 0.0035 |
| D-3  |      |                          |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| D-4  |      |                          |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| D-5  |      |                          |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |
| 溶解モデル((7b),(7c)式), *1: $C_a^s=1270(\text{mg/L})$ , *2: $C_a^s=22.2(\text{mg/L})$ , *3: $\theta_e$ 残存 DNAPL 体積含有率, $\epsilon$ (空隙率)=0.35, $d_p$ (平均粒径)= $0.04 \times 10^{-2}(\text{m})$ |      |                          |                         |                                  |   |   |                        |   |     |  |       |        |

溶解モデル((7b),(7c)式), \*1:  $C_a^s=1270$ (mg/L), \*2:  $C_a^s=22.2$ (mg/L), \*3:  $\theta_e$  残存 DNAPL 体積含有率,  $\varepsilon$ (空隙率)=0.35,  $d_p$ (平均粒径)= $0.04 \times 10^{-2}$  (m)

表-6 の  $Q_i$ ,  $Q_R$ ,  $Q_{Ds}$ ,  $Q_{Dr}$  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。

- 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。
- 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。
- 濃度と分散範囲から DNAPL の溶解量  $Q_{Ds}$ 、分散量  $Q_{Dr}$  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。

- 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  $\alpha_{ul}$ ,  $\alpha_{ul}$  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  $\Delta t$ ,  $\Delta x$ , 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  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  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  $\Delta x$ ,  $\Delta z$  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<sup>53)</sup>の検討をもとに、移流量の少ない冬期の空隙平均流速  $u = 1\text{m/d}$  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  $\lambda$  は、フィンガリング実験にもとづく値 ( $6.0\text{ m}^{-1}$ : 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  $\Delta t_b = 360\text{sec}$ 、溶液の移流分散差分式の時間刻みを  $\Delta t_s = 21600\text{sec}$  とし、10 日間の時間積分を行う。液滴微粒子の直径は、 $\delta_p = 0.015 \sim 0.1 (\times 10^{-2}\text{m})$  の 7 種とし、一様乱数により計算領域の上部境界  $19.0 \leq x \leq 21.0 (\text{m})$  の位置から、 $2 \times \Delta t_b$  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.<sup>12)</sup> 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  $C_s$  は 25m 格子の格子平均濃度  $C_0 = 22.2\text{ mg/L}$  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、 $C_0 = 10.1, 13.2, 22.2\text{ mg/L}$  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、 $u = 0.4\text{ m/d}$  (F-4, 6 年後),  $u = 2.5\text{ m/d}$  (F-5, 1, 1.5 年後)の結果として図(f)に示す。 $u = 2.5\text{ m/d}$  では、上流境界の環境バックグラウンド濃度  $C_a = 0$  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( $0.4 \leq u \leq 2.5 (\text{m/d})$ )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。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  $u = 1.0\text{ m/d}$  で  $\lambda = 0.2, 0.05\text{ m}^{-1}$  の場合の溶液濃度  $C$ 、残存 DNAPL 体積含有率  $\theta$ 、移流粒子の軌跡と位置を、図(b), (d), (f)に  $u = 1.0\text{ m/d}$  で  $\lambda = 6.0\text{ m}^{-1}$ 、および流速が  $u = 0.4, u = 2.5\text{ m/d}$  で  $\lambda = 0.2\text{ m}^{-1}$  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  $A(0.015) \sim G(0.1) (\times 10^{-2}\text{m})$  の文字で表す。

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



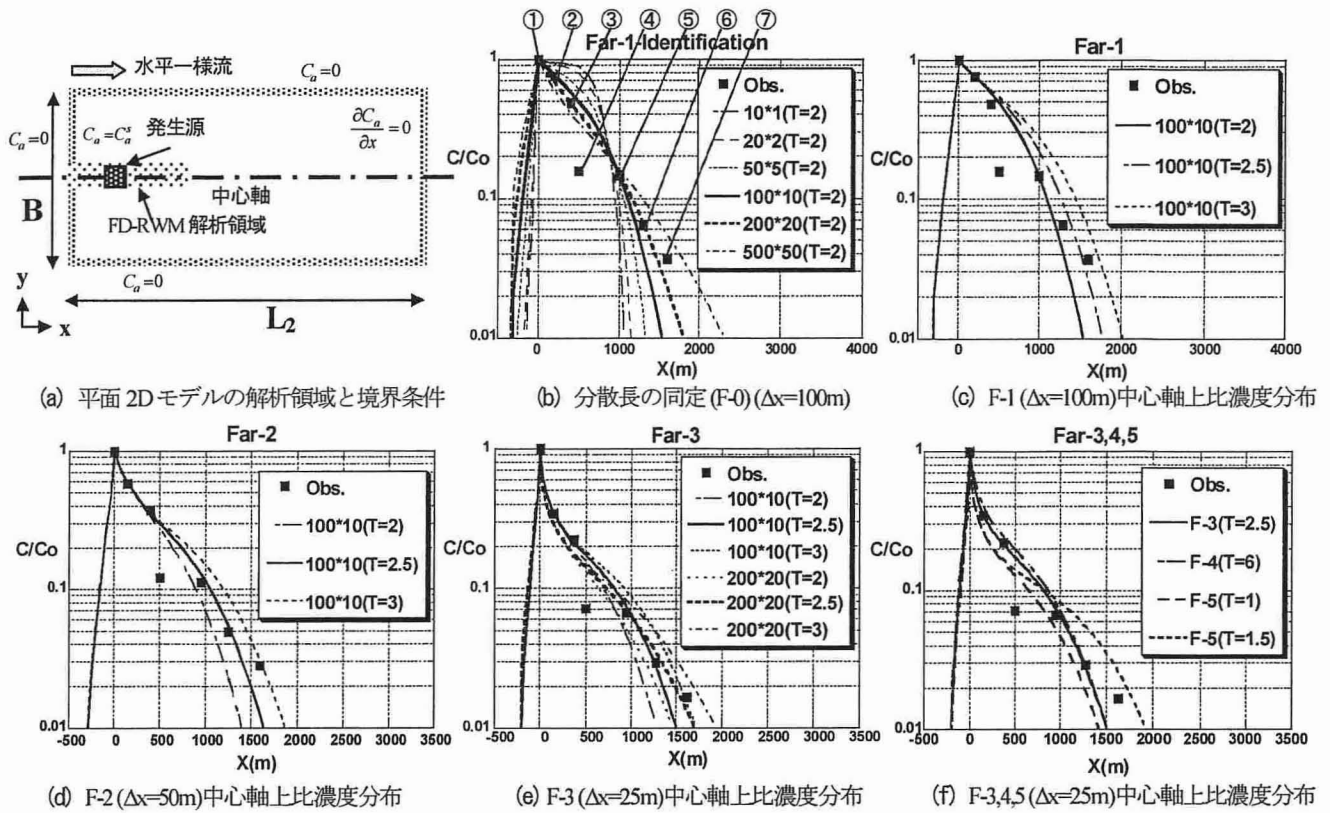


図-12 平面 2D モデルによる中心軸上の比濃度低減分布

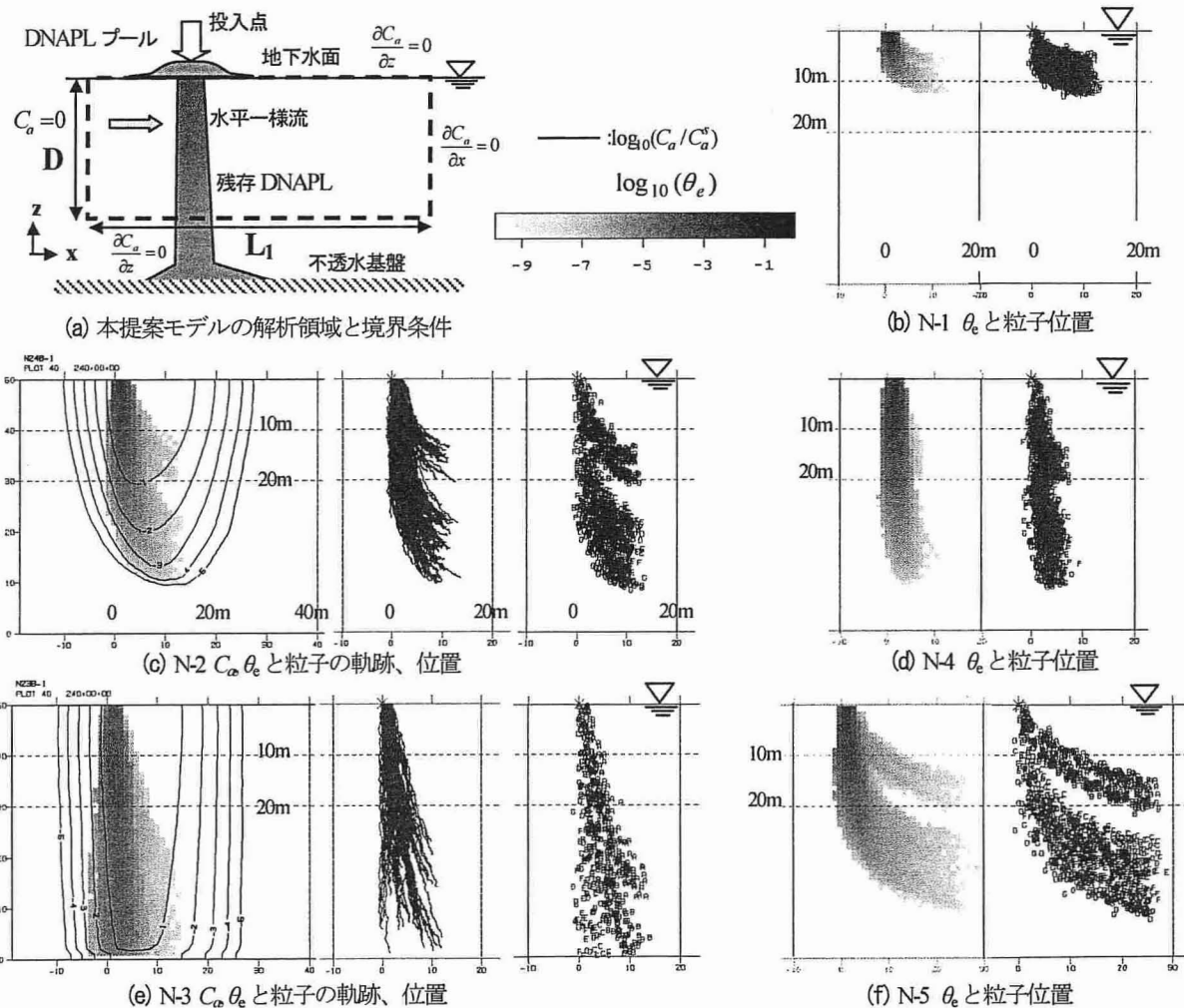


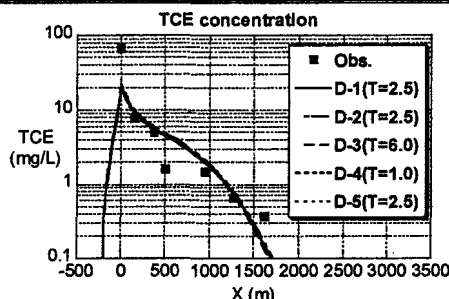
図-13 差分連成ランダムウォーク法による溶液濃度  $C_a$ 、残存 DNAPL 体積含有率  $\theta_e$  および液滴粒子の軌跡と位置の分布

表-8 空隙内拘束粒子の割合

| ケース | 投入粒子<br>$M_R(g)$ | 拘束粒子<br>( $M_E/M_R=Q_R/Q_0$ )(%) |      |      | 移動粒子<br>(%) |     |
|-----|------------------|----------------------------------|------|------|-------------|-----|
|     |                  | 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<br>$\Delta x, \Delta y$<br>(m) | 発生源<br>濃度<br>$C_0(mg/L)$ | 分散<br>時間<br>$T(年)$ | 溶解量<br>$Q_{ds}$<br>( $\approx 7 \times C_0$ )<br>$\times 10^2 (kg)$ | 分散量<br>$Q_{dr}$<br>$\times 10^2 (kg)$ |
|-----|-----------------------------------|--------------------------|--------------------|---|---------------------------------------|
| 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

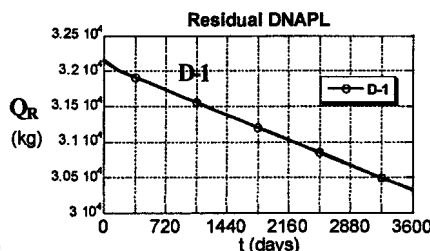
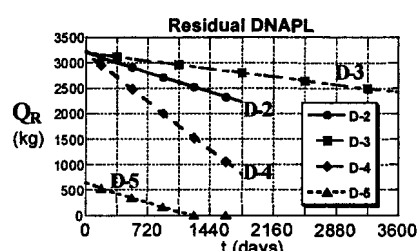
(b) 残存量  $Q_R$  減少 (D-1)(c) 残存量  $Q_R$  減少 (D-2~D-5)

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 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、浅く広がる 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

表-10 溶解量と分散時間の算定

| ケース | 残存体積<br>含有率<br>$\theta_e$ | 初期<br>残存量<br>$Q_R(kg)$ | 溶解量<br>$Q_{ds}$<br>$\times 10^2 (kg)$ | 発生源<br>濃度<br>$C_0(mg/L)$ | 分散<br>時間<br>$T(年)$ |
|-----|---------------------------|------------------------|---------------------------------------|--------------------------|--------------------|
| 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                |

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。

#### (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( $Q \geq Q_{ds} \geq Q_{dr}$ )。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  $4.37 \times 10^2$ 、分散範囲の濃度分布積分値からの分散量  $Q_{dr}$  が  $3.64 \times 10^2 kg$  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、 $Q_{dr}$  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<br>( $m^2$ ) | 層厚<br>(m) | 初期残存量*<br>$\times 10^3 Q_R$ (kg) | 溶解量 $Q_{Ds}$<br>$\times 10^3$ (kg) (2.5年) | 残存量(1984年)<br>$Q_R - Q_{Ds} \times 10^3$ (kg) | 浸入量 $Q_i \times 10^3$ (kg) |     |     | 分散時間 $T_D$<br>(年)<br>(1984年以降) |
|--------------------|-----------|----------------------------------|---|---|----------------------------|-----|-----|--------------------------------|
|                    |           |                                  |   |   | N-1                        | N-2 | N-3 |                                |
| S-1                | 5×5       | 19                               | 5.0                                       | 14  | 19                         | 22  | 49  | 7                              |
|                    | 20        | 39                               | 10  | 29  | -                          | 40  | 61  | 7                              |
| S-2                | 10×10     | 77                               | 5.0                                       | 72  | 77                         | 87  | 190 | 36                             |
|                    | 20        | 150                              | 10  | 140   | -                          | 160 | 250 | 36                             |

量は、空隙率  $\varepsilon = 0.35$  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  $S_n = 0.2 \sim 10\%$  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  $Q_{Ds}$ ,  $Q_{Dr}$  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<sup>12)</sup>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  $19.0 \leq x \leq 21.0$  (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  $\varepsilon = 0.35$  とすれば<sup>11), 14), 20)</sup>, 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。

表層に浅く広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

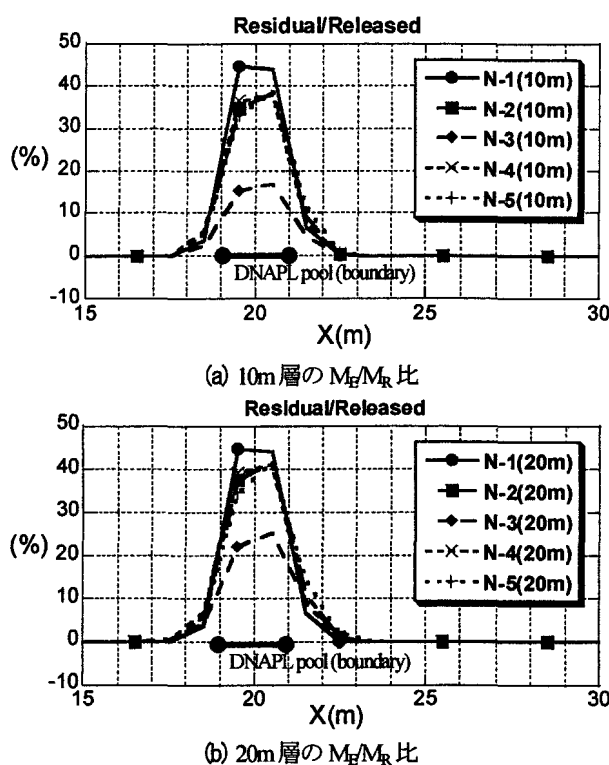


図-15 残存 DNAPL 分布(流下方向)

ほぼ等しい 19, 77t となる。50m 層に広がる 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。

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<sup>52)</sup>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はある。

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  $1\text{m/d}$  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、土壤掘削による除去量、土壤中の残存量、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る。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  $\lambda$  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  $\lambda$  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  $100\text{m}$ 、 $10\text{m}$ 、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  $25\text{m}$  格子平均 TCE 濃度 (約  $22\text{mg/L}$ ) 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  $500\text{kg}$  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  $40\text{t}$  から最大  $250\text{t}$  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  $\text{t}$  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  $10\text{t}$  の和  $30$  数  $\text{t}$  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, 蛭原雅之, 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 Thompson, 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) Thompson, 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) Thompson, 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 Graven, 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.