

黒ぼく土カラムからの土壌コロイド流出解析

Numerical Analysis of Colloid Leaching from Volcanic Ash Soil Columns

川本 健*, 斎藤広隆**, Per MOLDRUP***, 小松登志子*

Ken KAWAMOTO, Hirotaka SAITO, Per MOLDRUP, and Toshiko KOMATSU

Transport of pesticides, heavy metal, radionuclide, and other strongly sorbing contaminants in soils is enhanced by colloid-facilitated transport. In order to understand colloid transport in soil, we first characterized coagulation/dispersion properties of colloidal solutions extracted from volcanic ash soil. Next, we investigated mobilization and leaching of colloidal materials from soil columns during rainfall irrigation. The coagulation/dispersion properties greatly varied with pH in colloidal solutions, causing change in particle size distributions with time. The leaching of colloids was numerically simulated using a new colloid transport model considering both equilibrium and kinetic sorption sites for colloids. HYDRUS-1D was used for the numerical simulation and estimation for transport parameters of colloids. The estimated distribution coefficient of natural colloids (which leached under application of artificial rainwater) was an order of magnitude larger than that of applied colloidal solution. The estimated detachment coefficient of natural colloids was three to four orders of magnitude greater than that of applied colloidal solution.

Keywords: Soil Colloids, Volcanic Ash Soil, Leaching, HYDRUS-1D

1. はじめに

人為的要因（工場からの揮発性有機化合物の漏洩、農地からの農薬の流出など）、自然起因（地層中に存在する高濃度のヒ素など）、自然災害（例えば、最近の米

国ハリケーン被害によるオイルタンクからのガソリン流出）など、様々な要因によって引き起こされる土壌・地下水汚染が世界各地で問題となっている。国内においても同様な問題が顕在化し、昨今の土壌汚染対策法の施行とも相成り、汚染領域の特定手法や効率的な浄化対策を目指して、学術と実務の両面から積極的な研究が推し進められている。

土壌の汚染物質移動現象の中でも、近年、汚染物質輸送のキャリアー（担い手）としての土壌コロイドの存在が注目されている^{1),2),3)}。微小な粒子径からなるコロイドは、汚染物質を吸着して地盤内を長距離まで移動すること（コロイド担体輸送）が報告されるなど、汚染物質の輸送促進の大きな要因となる。しかし、コロイドによる汚染物質の吸着・輸送機構に関しては、未解明な点が多く、より一層のデータの蓄積が必要とされている。さらに、土壌コロイドや汚染物質の移動

*埼玉大学大学院理工学研究科

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University, 255 Shimo-Okubo, Sakura-ku, Saitama, Saitama, 338-8570, Japan

*東京農工大学大学院共生科学技術研究院

Institute of Symbiotic Science and Technology, Tokyo University of Agriculture and Technology, Japan

*** Department of Biotechnology, Chemistry, and Environmental Engineering, Aalborg University, Denmark.

原稿受付日：平成 19 年 4 月 16 日

解析については、現時点ではコロイドの凝集・分散特性や、土壌そのものと土壌コロイドへの吸着分配特性を区別しないなど、土壌コロイドの形態や汚染物質の吸着実態が十分に考慮されていないのが現状である。

本報では、汚染物質のコロイド担体輸送解明に向けての第一歩として、これまでにあまり研究が行われていない黒ぼく土を対象として、土壌コロイド溶液の凝集・分散および粒径分布特性を明らかにした上で、カラム実験における土壌コロイドの流出特性の解明およびその解析を行った。

2. 土壌試料および土壌コロイドの抽出

土壌試料は、東京都西東京市の東京大学大学院農学生命科学研究科付属農場の畑地より採取した黒ぼく土（通称、立川ローム）を用いた。採取深さは0-10cmで、2mm篩で篩分し、その通過分を実験に用いた。試料の主な土壌物理性をTable 1に示した。

2mm篩通過後の同土壌試料より土壌コロイドを抽出し、土壌コロイド溶液（Colloidal solution）を得た。土壌コロイド溶液の抽出方法は以下の通りである。湿土と人工雨水（Artificial rainwater）を、質量比が1:8と

なるようにガラス瓶に入れる。ここで、人工雨水は自然雨水の組成に近づけた溶液で、0.085 mM NaCl + 0.015 mM CaCl₂の混合溶液からなる。次に、このガラス瓶を振とう器に載せ、室温 25°Cで24時間振とうを行う。振とう後、懸濁溶液を1Lメスフラスコに移して粒子を沈降させ、ストークス径2μm以下の画分（土粒子密度を2.68g/cm³と仮定）を含む上澄み溶液をサイホンで回収する。そして、上澄み溶液を孔径1μmのガラス繊維濾紙（GF/B, Whatman®）でろ過したものをコロイド溶液とする。

このようにして得られたコロイド溶液の特性を、人工雨水の特性と合わせて、Table 2に示した。pH調整を行わない場合のpH（Natural pH）は、6.5~7.0であった。土壌コロイド溶液の濁度は、濁度計（2100P型濁度計、HACH社製）で測定し、あらかじめ求めておいた関係式（コロイド濃度[mg/L] = 0.70 × 濁度[NTU]）より、コロイド濃度に換算した。溶存有機物（Dissolved organic carbon）濃度は、TOC計（TOC-5000, SHIMADZU社製）を用いて測定した。ζ電位は、ゼータ電位計（Model 502, 日本ルフト（株））を用いて顕微鏡電気泳動法で測定し、Smoluchowskiの式⁴⁾で算出した。

Table 1 Soil physical characteristics.

Soil	Depth	Soil texture [†]	Clay	Silt	Sand	Organic matter	Soil mineral density	pH [‡]	EC [‡]
	m			%			g m ⁻³		mS m ⁻¹
Tachikawa loam (Andisol)	0.0-0.1	Loam	8.7	39.8	51.5	7.8~9.2	2.68	6.5~6.8	5.8~6.5

[†] Soil textures are classified based on the International Soil Science Society (ISSS) standard.

[‡] Soil pH was determined in H₂O with a 1:2.5 (w/w) soil/water suspension. Soil EC was determined in H₂O with a 1:5 (w/w) soil/water suspension.

Table 2 Characteristics of artificial rainwater and colloidal solution at natural pH.

Soil	pH	EC	Turbidity	Concentration of CS	Dissolved Organic Carbon	ζ potential at pH = 6~7 [‡]
		mS m ⁻¹	NTU	mg L ⁻¹	mg L ⁻¹	mV
Artificial Rainwater [†]	6.5~6.8	2.1~2.3	0	-	0	-
Colloidal solution	6.5~7.0	2.5~5.8	7.2~10.1	4.8~7.1	0.42~2.33	-12 ~ -14

[†] 0.085 mM NaCl+0.015 mM CaCl₂.

[‡] ζ potential was determined by the Smoluchowski equation with using measured electrophoretic mobility.

3. 土壌コロイドの凝集・分散特性

カラム実験による土壌コロイドの流出特性の解析に先立ち、土壌コロイド溶液の凝集・分散特性に pH が及ぼす影響を調べた。具体的には、コロイド溶液の（分散状態の）安定度、 ζ 電位、粒径分布に pH が及ぼす影響について検討した。

コロイド溶液の安定度の検討として、pH 調整した溶液のコロイド粒子を（凝集）沈降させ、その上澄み溶液の濁度の時間変化を調べた。ここで、pH 調整は、Natural pH のコロイド溶液に 0.01M の HCl もしくは 0.01M の NaOH を加えることで行い、pH 2.9, 3.8, 4.9, 5.8, 6.8 (Natural pH), 8.4, 9.3 のコロイド溶液を作製した。高さ 4cm のガラス瓶に pH 調整を行ったコロイド溶液を入れ、所定の時間（0, 0.25, 0.5, 1, 3, 6, 24, 48, 96, 120 時間）に上澄み溶液をガラス瓶より採取して、濁度を測定した。この時、それぞれの所定時間における測定は別々のサンプルを用いて行った。

コロイド溶液の安定度の結果を Fig. 1 に示した。pH 2.9 と 3.8 の強酸性では、24 時間までに濁度の急激な低下を示したことから、コロイドが比較的短時間で凝集沈降したものと見える。pH 5.8 と 6.8 の弱酸性から中性付近のコロイド溶液は、濁度の低下が遅く、比較的長時間、分散して安定した状態（凝集沈降速度が小さい）にあるものと見える。pH 8.4 や 9.38 のアルカリ性では、強酸性と中性付近の条件の中間的な濁度低下を示した。

次に、コロイド溶液の ζ 電位の測定結果を Fig. 2 に示した。 ζ 電位は、溶液作製直後（0 時間）と 48 時間静置後の 2 通りの条件で測定した。いずれの時間においても、 ζ 電位の絶対値は pH 5.8 から 6.8 付近の弱酸性から中性で最も大きな値（-12~-14 mV）を示し、pH 2.9 の強酸性では最も小さな値（-4~-0 mV）を示した。コロイド溶液の安定度の結果（Fig. 1）と ζ 電位の測定結果より、弱酸性から中性付近の pH 領域では、 ζ

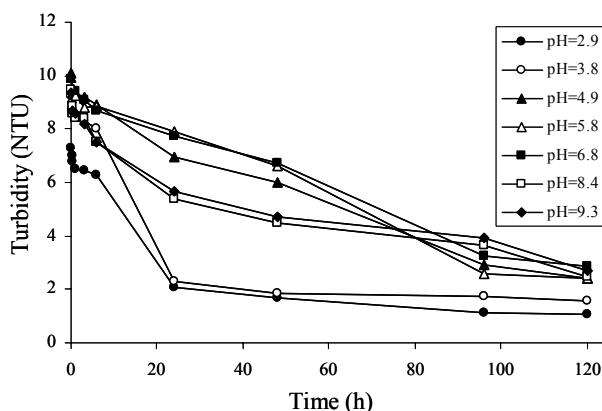


Fig. 1 Stability of colloidal solution at different pH.

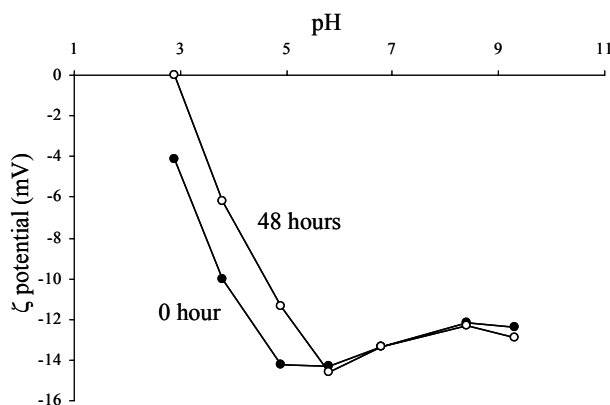


Fig. 2 ζ potential as a function of pH at 0 and 48 hours.

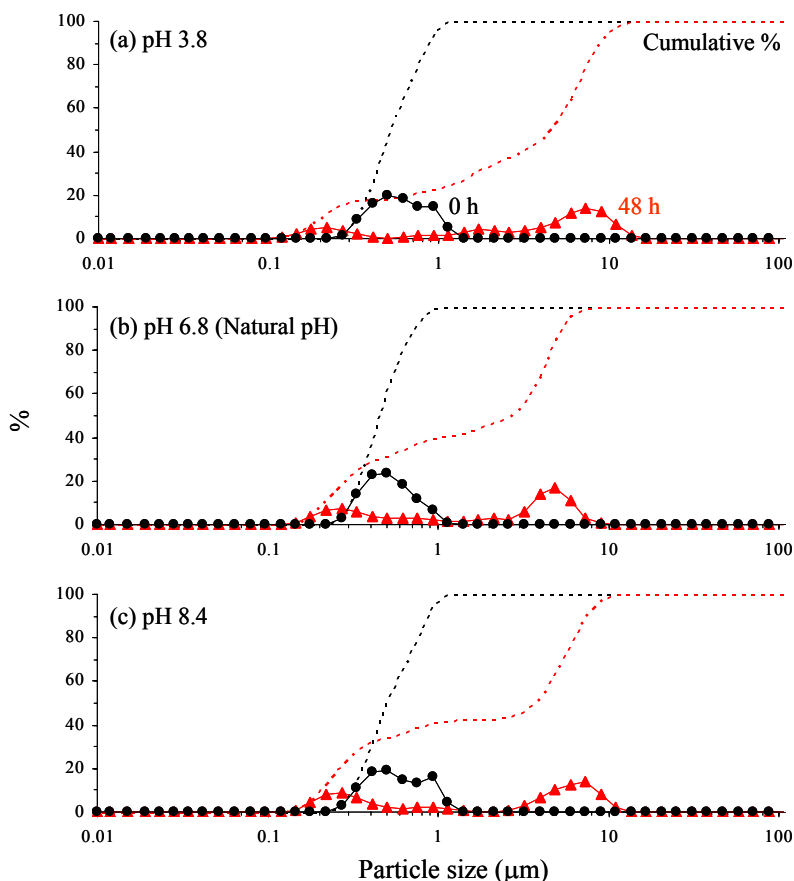


Fig. 3 Particle size distribution of colloidal materials at different pH.

電位の絶対値が大きく（コロイド粒子表面の負電荷が大きく）、コロイド粒子同士の反発力が大きいため、凝集沈降速度が小さくなったものと言える。逆に、強酸性の pH 領域では、 ζ 電位の絶対値が小さく（コロイド粒子表面の負電荷が小さい）、コロイド粒子同士の反発力が小さいため、凝集沈降速度が大きいものと理解できる。

コロイド溶液に含まれる土壌コロイドの粒径分布を Fig. 3 に示した。粒径分布は、ナノ粒子径分布測定装置（SALD-7100、島津製作所）を用いて、レーザ回折・散乱法で求めた。SALD-7100 の測定範囲は 0.01～300 μm であり、光源となる紫外線半導体レーザー（波長 375nm）を回分セル内の溶液に照射し、回折・散乱光を検出することにより光強度分布が求まる。測定された光強度分布から粒径分布への計算には、Fraunhofer 回折理論と Mie 散乱理論が用いられている。また、計算の際に測定対象物質の屈折率が必要となるが、土壌コロイドの屈折率は未知数であるため、ここでは標準的な屈折率である $1.70-0.20i$ (i は虚数) を用いた。粒径分布の測定は、3 段階に調整した pH (3.8, 6.8 (Natural pH), 8.4) で行い、溶液作製直後 (0 時間) と 48 時間静置後の 2 通りの条件で測定した。

0 時間の粒径分布は pH による違いは小さく、粒径は概ね 0.2～1 μm となった。48 時間後は、いずれの pH においても粒径分布が二つの領域（山）に分離した。小さい粒径領域では、いずれの pH においても 0.25 μm 付近にピークが位置した。大きい粒径領域のピークは pH によって異なり、pH 6.8 の中性では 4.9 μm にピークが現れたのに対し、pH 3.8 と 8.4 の強酸性、強アルカリ性では 7.3 μm 付近にピークが現れた。粒径の増加はコロイド粒子の凝集によってフロックが形成されたものと考えられるが、そのフロック径の大きさが pH で変化する理由は定かではない。前述のように、強酸性、強アルカリ性条件では、中性条件に比べ、 ζ 電位の絶対値が小さく凝集沈降速度が大きいことから (Fig. 1, Fig. 2)、 ζ 電位の違いがフロック径の大きさに影響を与えたことが唆される。さらに、本研究では、pH 調整に HCl や NaOH を用いたが、これらに含まれる Cl^- や Na^+ の影響もフロック径の大きさに影響を及ぼしたも

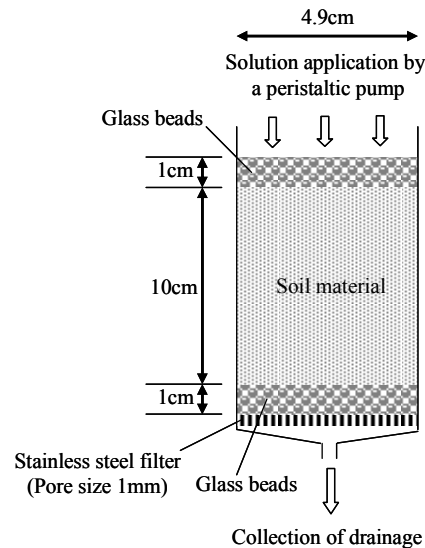


Fig. 4 Experimental apparatus for column tests.

Table 3. Applied solutions for column experiments.

Experiment	Solution schedule †		
A	ARW (20 hr)	CS (20 hr)	ARW (20 hr)
B	ARW (20 hr)	CS (20 hr)	ARW (20 hr)
C		ARW (20 hr)	
D		ARW (20 hr)	

† ARW: artificial rainwater. CS: Colloidal solution.

のと考えられる。また、0.25 μm 付近に現れたピークに関しては、検出限界を超えている、もしくは、光強度が小さすぎて検出できなかった 0.1 μm 以下の粒子が凝集してフロックを形成したために観測された可能性がある。

4. カラム実験による土壌コロイドの流出特性

4.1 実験装置および手順

カラム実験の装置を Fig. 4 に示した。カラムは内径 4.9cm、高さ 15cm のアクリル製のカラムを用いた。試料高さを 10cm とし、試料上下には供給・排出溶液がカラム断面に均一に広がるようにガラスビーズを 1cm 高さに充填した。

カラム実験では供給溶液として、人工雨水 (ARW) と Natural pH (6.5～7.0) の土壌コロイド溶液 (CS) を用いた (Table 2)。降雨強度は 80mm/hr とし、ARW の 20 時間降雨 + CS の 20 時間降雨 + ARW の 20 時間降雨の条件 (Exp. A, B)、60 時間の ARW 連続降雨の条件

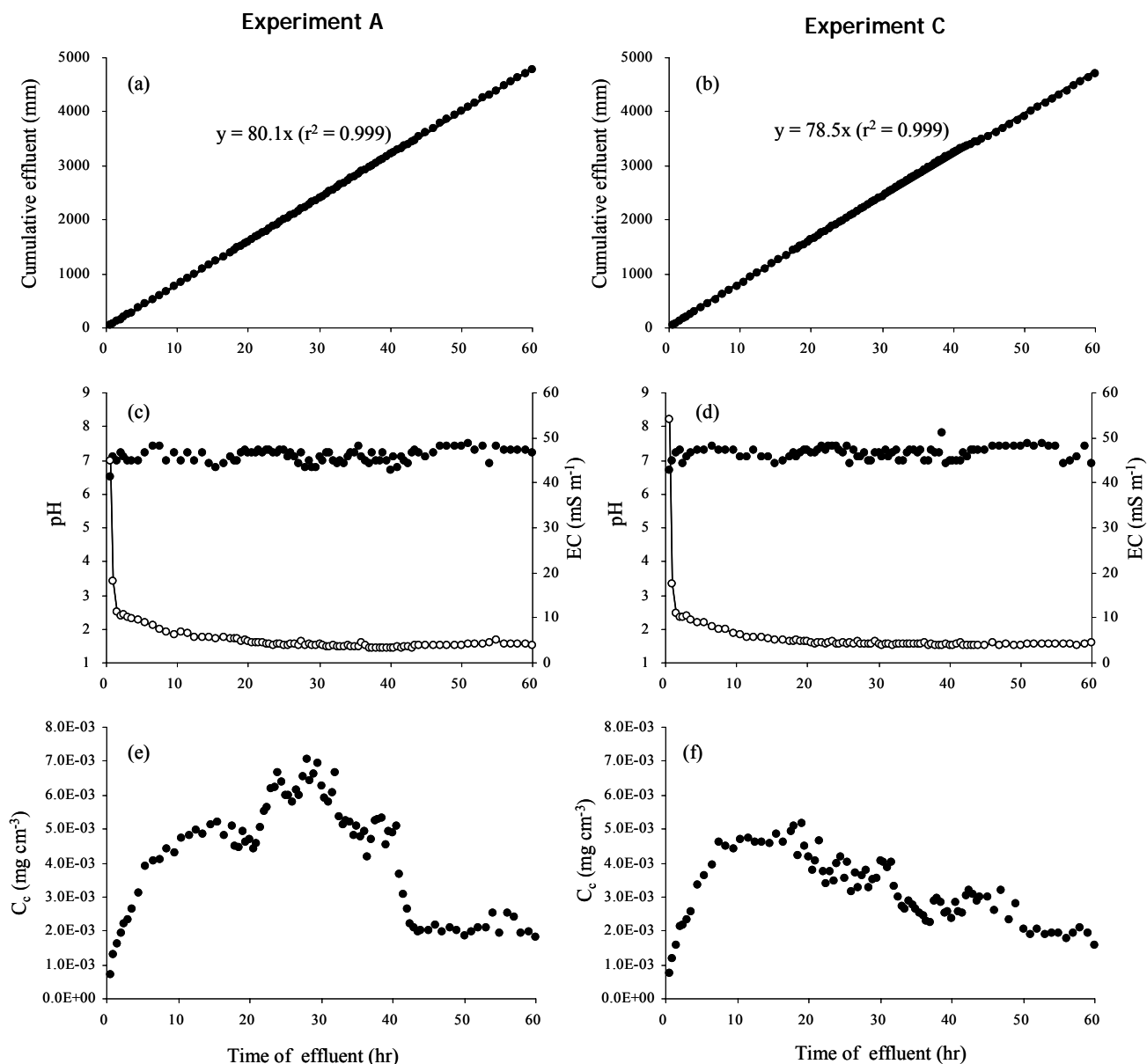


Fig. 5 Effluent characteristics for experiments A and C. (a), (b) Cumulative effluent, (c), (d) pH and EC, and (e), (f) Colloid concentration, C_c , as a function of time.

(Exp. C, D) の 2 通りでカラム実験を行った (Table 3)。実験中、カラム下端からの排水溶液をガラス瓶で採取し、排水量、濁度、pH、EC の測定を行った。なお、排水溶液の測定は、凝集沈降の影響を避けるため、回収後 12 時間以内に測定を行い、濁度は測定直前にガラス瓶を手で数回振ってから測定を行った。

4.2 コロイドの流出特性

カラム実験における排水溶液の累積排水量、pH と EC、コロイド濃度 (C_c) の測定例 (Exp. A, C) を Fig. 5 に示した。供給溶液が同一である Exp. A と B, Exp. C と D はほぼ同じ流出特性を示した。また、いずれの条

件においても排水開始は降雨開始後約 20 分であった。

累積排水量の回帰式より、排水強度は排水開始直後より降雨強度の 80 mm/h とほぼ同じ値となった (Fig. 5(a), (b))。排水溶液の pH は、排水中概ね 7 を示した (Fig. 5(c), (d))。EC は、排水直後に 40~55 mS m^{-1} と比較的高い値を示したが、その後急減し、排水開始後 20 時間以降は概ね 4 mS m^{-1} の値を示した (Fig. 5(c), (d))。

降雨に人工雨水のみを連続供給した Exp. C では、排水溶液の C_c は排水とともに増加し、排水後 20 時間あたりでピークを示した後、緩やかに低下していった (Fig. 5(f))。人工雨水とコロイド溶液を供給した Exp. A では、人工雨水供給時は Exp. C と同様に C_c は排水と

ともに増加し、排水後 20 時間あたりでピークを示した。その後のコロイド溶液供給時は、供給直後 C_c は急増を示したが、供給継続につれて C_c は緩やかに低下した。そして、再度、人工雨水に供給を切り替えると、 C_c は急減し、Exp. C とほぼ同じ C_c まで低下した。

4.3 コロイドの土壌内移動モデル

土壌内でのコロイドの移動を記述するモデルは、これまでに幾つか提案されている。例えば、Pang ら (2005)⁵⁾ は、土壌を通過するバクテリア移動を、バクテリアの土壌への吸着・脱離を考慮した移流・分散方程式で記述し、その流出特性を解析した。ここで、彼らはバクテリアの土壌への吸着・脱離を動力的 (kinetics) 過程と仮定し、吸着・脱離係数を含む一次反応式で記述した。Simunek ら (2006)⁶⁾ は、コロイドの土壌内挙動をより正確に記述するために、コロイドの各相 (土 (固相)、水 (液相)、空気 (気相)) への分配過程を考慮した移流・分散方程式を提案した。彼らのモデルでは、コロイドの固相への分配は、吸着・脱離と物理的捕捉 (straining) の二つの過程からなるとし、両過程を吸着・脱離係数および straining 係数を含む一次反応式で記述した。Pang ら (2005) や Simunek ら (2006) のモデルはいずれもコロイドの固相への分配を、kinetic な吸着サイトのみと仮定している点が共通している。しかし、このような kinetic な吸着サイトのみでは、本カラム実験の結果のような排水直後の急激なコロイド流出 (土壌浸水時に瞬間的に発生する固相からコロイド脱離) や、長時間に及ぶコロイドの排出挙動 (tailing) を正しく表現できず、これらのモデルの適用は難しいと考えられる。

そこで本研究では、コロイドの吸着・脱離を、静的 (equilibrium) ならびに動力的 (kinetics) の二つの吸着サイトからなると仮定し、以下のコロイド移動モデルを提案した。

$$\frac{\partial \theta_w C_c}{\partial t} + \rho \frac{\partial S_c}{\partial t} + \rho \frac{\partial S_k}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\theta_w D_c \frac{\partial C_c}{\partial z} \right) - \frac{\partial q C_c}{\partial z} \quad [1]$$

ここで、 θ_w はコロイドが移動する体積含水率 ($\text{cm}^3 \text{cm}^{-3}$)、 C_c は液相でのコロイド濃度 (mg cm^{-3})、 ρ は乾燥密度 (g cm^{-3})、 S_c は静的吸着サイトのコロイド量 (mg mg^{-1})、

S_k は動力的吸着サイトのコロイド量 (mg mg^{-1})、 D_c はコロイドの分散係数 ($\text{cm}^2 \text{h}^{-1}$)、 θ は液相 (水) の体積フラックス (cm h^{-1}) である。また、 S_c は分配係数 K_d ($\text{cm}^3 \text{mg}^{-1}$) を用いて次式で表される。

$$S_c = K_d C_c \quad [2]$$

なお、[1]式は、コロイドの化学的・生物学的な消失 (sink) は考慮していない。

動力的なコロイドの吸着・脱離は、次の式で記述される。

$$\rho \frac{\partial S_k}{\partial t} = \theta_w k_{ac} C_c - k_{dc} \rho S_k \quad [3]$$

ここで、 k_{ac} 、 k_{dc} は一次反応コロイド吸着・脱離係数 (h^{-1}) となる。本モデルでは、コロイドの吸着・脱離に関しては、土 (固相) 全体が静的と動力的の二つの吸着サイトとして機能するものと仮定し、両サイトの比率を設定していない。

4.4 コロイドの流出解析

コロイドの土壌内移動および流出解析には、不飽和水分移動汎用プログラム HYDRUS-1D⁷⁾ を用いた。HYDRUS-1D では、鉛直 1 次元非定常水分移動の基礎方程式である Richards 式を、有限要素法を用いて、各時間ステップでの土壌カラム各深さの圧力と水分量の変化を計算した後、[1] 式の移流・分散方程式を解くことで、土壌内部および排水溶液のコロイド濃度の変化を計算する。計算の際、本実験条件では土壌内部の水分はほぼ飽和とみなせるため、水分移動は飽和流を仮定し、初期条件としては一定圧力 ($h = 0 \text{ cm}$) を与え、土壌カラム上端および下端にはフラックス一定条件を与えた⁸⁾。なお、飽和透水係数はフラックスと同値の 80 mm h^{-1} を与えた。コロイド移動の初期条件としては、初期コロイド濃度 (S_i) (未知パラメータ) が各深さ一定の条件を与え、境界条件としては土壌カラム表面に一定濃度のコロイドフラックスが流入するフラックス境界条件⁹⁾を与えた。

本研究では、コロイド流出曲線 (Fig. 5(e), (f)) の実測データから、コロイド移動に関する未知パラメータを逆解析により、推定した。具体的には、まず Exp. C のコロイド流出曲線を使い、人工雨水供給時に流出す

るコロイド(以降 Natural colloid)の移動パラメータを求めた。次に、求められたパラメータより、Natural colloidの流出曲線を計算し、Exp. A と B の流出曲線より引くことで、20~40 時間に与えたコロイド溶液のコロイド(以降 Applied colloid)の流出曲線を求めた。Applied colloid の移動パラメータは、このようにして求められた流出曲線を使って、逆解析より求めた。ここで、Natural colloid と Applied colloid は相互に作用しないと仮定した。

Fig. 6 に HYDRUS-1D によるコロイド流出曲線の解析結果を示す。なお Fig. 6(a)の Exp. A と B の計算結果は、Natural colloid と Applied colloid の各々の計算結果を足し合わせたものである。いずれの条件においても、解析結果はコロイド流出の実測データを上手く再現していることが分かる。特に、コロイド溶液供給・停止時のコロイド濃度の急激な立ち上がりや低下 (Fig. 6(a)), 長時間に及ぶコロイド濃度の緩やかな低下である tailing 挙動が正しく表現されている。このことから、[2]式を用いたコロイド流出挙動解析が妥当であると判断できる。

コロイド移動および水移動のパラメータを Table 4 に示した。注目すべき点は、Natural colloid と Applied colloid の移動パラメータ (静的な吸着サイトにおける

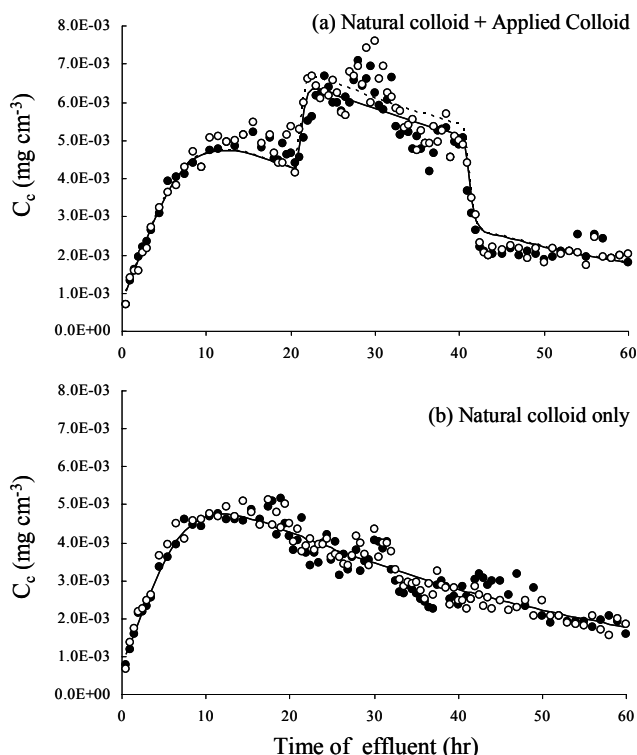


Fig. 6 Inverse solution of colloid breakthrough curves. (a) Release of natural and applied colloids for experiments A and B. (b) Release of natural colloids for experiment C and D.

分配係数 K_d や動力的な吸着サイトにおける吸着・脱離係数 k_{ac} , k_{dc}) の違いである。Natural colloid の K_d は $6.84 \text{ cm}^3 \text{ mg}^{-1}$ で、Applied colloid の $2.96 \times 10^{-1} \text{ cm}^3 \text{ mg}^{-1}$

Table 4. Transport and reaction parameters used to simulate colloid breakthrough curves for column experiments.

Description	Parameter	Value
<u>Parameters for water transport</u>		
Saturated volumetric water content, $\text{cm}^3 \text{ cm}^{-3}$	θ_s	0.77
Dry bulk density, g cm^{-3}	ρ	0.62
<u>Parameters for natural colloids</u>		
Initial soil colloid concentration adsorbed to the sorption site, mg mg^{-1}	S_i	3.42×10^{-1}
Equilibrium distribution coefficient, $\text{cm}^3 \text{ mg}^{-1}$	K_d	11.4
First-order colloid attachment coefficient, h^{-1}	k_{ac}	-
First-order colloid detachment coefficient, h^{-1}	k_{dc}	2.22×10^{-2}
<u>Parameters for applied colloids</u>		
Initial soil colloid concentration adsorbed to the sorption site, mg mg^{-1}	S_i	0
Equilibrium distribution coefficient, $\text{cm}^3 \text{ mg}^{-1}$	K_d	8.13×10^{-1} (Exp. A), 5.69×10^{-1} (Exp. B)
First-order colloid attachment coefficient, h^{-1}	k_{ac}	8.72×10^{-1} (Exp. A), 7.41×10^{-1} (Exp. B)
First-order colloid detachment coefficient, h^{-1}	k_{dc}	6.82×10^{-6} (Exp. A), 1.29×10^{-6} (Exp. B)

(Exp. B) や $4.00 \text{ E-}01 \text{ cm}^3 \text{ mg}^{-1}$ (Exp. A) よりも 1 オーダー大きな値を示した。また, Natural colloid の k_{dc} は $2.22\text{E-}02 \text{ h}^{-1}$ で, Applied colloid の $9.92\text{E-}07 \text{ h}^{-1}$ (Exp. B) や $1.26 \text{ E-}06 \text{ h}^{-1}$ (Exp. A) よりも 3 オーダー大きな値を示した。さらに, Applied colloid の k_{ac} は k_{dc} よりも 5 オーダー以上大きく, 動力学的な収着サイトで脱離過程は実質的に無視できることが言える。

本研究で提案した[1]式のコロイド移動モデルは, 黒ぼく土カラムからのコロイドの流出挙動を上手く再現し, コロイド移動を支配するパラメータの定量的評価を可能とした。しかし, 本モデルは動力学的収着サイトへのコロイド分配に吸着・脱離過程 (k_{ac} , k_{dc}) しか考慮しておらず, 物理的捕捉である straining 現象を考慮していない。Bradford ら (2002)¹⁰⁾は, 粒径が小さく微細な間隙を有する多孔質媒体では顕著な straining が生じ, 一次反応式を用いたコロイド吸着・脱離のみではコロイドの多孔質媒体内移動を適切に評価できないことを示した。本研究で用いた黒ぼく土は, 団粒構造が発達し, 団粒内部に微細な間隙を多数有することからも, これらの微細間隙で straining が生じ, 解析によって求めた k_{ac} が straining 効果を含む可能性が高い。今後は, さらなる実測データを得て, コロイド移動パラメータの定量的評価を試みると同時に, straining を含めた解析を進める予定である。

謝辞

本研究は埼玉大学総合研究機構研究プロジェクトならびに文部科学省科学研究費 (No. 18686039) の補助を受けた。

参考文献

- 1) Kersting, A.B., Efurud, D.W., Finnegan, D.L., Rohop, D.J., Smith, D.K. and Thompson, J.L., Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site, *Nature*, 397, 56–59, 1999.
- 2) McCarthy, J.F., and Zachara, J.M., Subsurface Transport of Contaminants, *Environ. Sci. Technol*, 23, 496-502, 1997.

- 3) Nyhan, J.W., Drennon, B.J., Abeele, W.V., Wheeler, M.L., Purtymun, W.D., Trujillo, G., Herrera, W.J., and Booth, J.W., Distribution of Plutonium and Americium Beneath a 33-Year-Old Liquid Waste Disposal Site, *J. Environmental Quality*, 14, 501-9, 1985.
- 4) 足立泰久, 岩田進午編著, 土のコロイド現象 土・水環境の物理化学と工学的基礎, 学会出版センター, 2003.
- 5) Pang, L., Close, M.E., Noonam, M.J., Flintoft, M.J., and van den Brink, P., A Laboratory Study of Bacteria-Facilitated Cadmium Transport in Alluvial Gravel Aquifer Media, *J. Environ. Qual.*, 34, 237-247, 2005.
- 6) Simunek, J., He, C., Pang, L., and Bradford, S.A., Colloid-Facilitated Solute Transport in Variably Saturated Porous Media: Numerical Model and Experimental Verification, *Vadose zone J.*, 5, 1035-1047, 2006.
- 7) Simunek, J., van Genuchten, M. Th., and Sejna, M., The HYDRUS-1D software package for simulating the movement of water, heat, and multiple solutes in variably saturated media. Version 3.0. HYDRUS Software Series 1, Dep. of Environmental Sciences, Univ. of California Riverside, Riverside, CA, 2005.
- 8) 斎藤広隆, 坂井勝, J. Simunek, 取出伸夫, 不飽和土中の水分移動モデルにおける境界条件, 土壌の物理性, 104, 63-73, 2006.
- 9) 取出伸夫, 坂井勝, 斎藤広隆, 土中の溶質移流分散モデルにおける境界条件, 土壌の物理性, 104, 75-84, 2006.
- 10) Bradford, S.A., Yates, S.R., Bettahar, M., and Simunek, J., Physical Factors Affecting the Transport and Fate of Colloids in Saturated Porous Media, *Water Resour. Res.*, 38(12), 1327, doi:10.1029/2002WR001340, 2002.