

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<sup>1),2)</sup>。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<sup>3)</sup>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<sup>4),5)</sup>、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<sup>6)</sup>、DNAPL プールからの溶出解析<sup>7)</sup>、均一・不均一な飽和多孔媒体中の溶液と原液の解析<sup>8)</sup>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单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。

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  $h \geq h_0$ ) 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

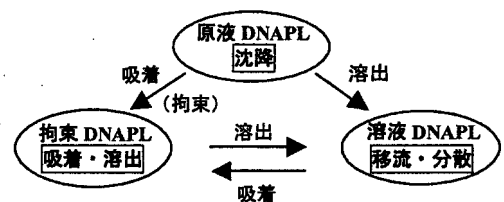


図1 帯水層中の DNAPL 移行

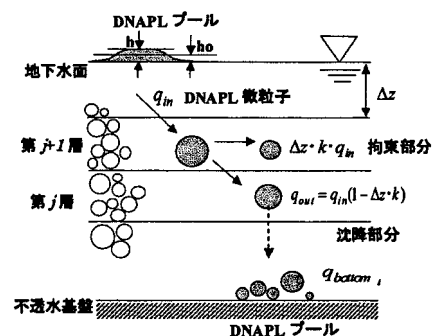


図2 空隙内拘束、沈降 DNAPL のモデル

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<sub>AE</sub>、SOL<sub>EA</sub>、ADS<sub>NE</sub>、DES<sub>EN</sub> 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	$\frac{\partial(\theta_A C_A)}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left\{ (\theta_A D_{\alpha} \frac{\partial C_A}{\partial x}) - \theta_A u' C_A \right\} - \frac{\partial}{\partial z} \left\{ (\theta_A D_{\alpha} \frac{\partial C_A}{\partial z}) - \theta_A w'_1 C_A \right\} + ADS_{AE} - SOL_{EA} = 0$
②原液 DNAPL	$\frac{\partial(\theta_N C_N)}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left\{ (\theta_N D_{\alpha} \frac{\partial C_N}{\partial x}) - \theta_N u' C_N \right\} - \frac{\partial}{\partial z} \left\{ (\theta_N D_{\alpha} \frac{\partial C_N}{\partial z}) - \theta_N w'_2 C_N \right\} + ADS_{NE} - DES_{EN} = 0$
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	$ADS_{AE} = \rho_d K_d \frac{\partial C_A}{\partial t}, \quad SOL_{EA} = \theta_A [K_{AE} (C_A^S - C_A)]$
⑤原液の吸着(拘束)	$ADS_{NE} = \Delta z \cdot k \cdot \sum_i q_{ini} + \sum_i q_{bottomi}$

C<sub>A</sub>, C<sub>N</sub>, C<sub>E</sub>: 溶液、原液、空隙内 DNAPL 濃度    ρ<sub>d</sub>: 土粒子見かけの密度  
 θ<sub>A</sub>, θ<sub>N</sub>, θ<sub>E</sub>: 溶液、原液、空隙内 DNAPL 含有率    K<sub>d</sub>: 溶液吸着係数  
 D<sub>α</sub>, D<sub>α</sub>: 水平方向、鉛直方向分散係数    K<sub>AE</sub>: 物質移行係数  
 u', w'<sub>1</sub>, w'<sub>2</sub>: 水平方向、鉛直方向流速、粒子沈降速度    C<sub>A</sub><sup>S</sup>: 溶液飽和濃度

表 1(2) 空隙内拘束 DNAPL のモデル化

⑥ $\frac{\partial q}{\partial x} + w \frac{\partial C}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial C}{\partial z} = -k \cdot C$	q: 層当たり拘束される質量 k: 拘束率(1/cm)
⑦ $k = \frac{3(1-\varepsilon)\beta\eta}{2d_p}$	ε: 空隙率(無次元), β: 衝突合一係数(無次元) d <sub>p</sub> : 土粒子径(cm), η: 捕集効率(無次元)
⑧ $q_{out} = q_{in}(1 - \Delta z \cdot k)$	q <sub>in</sub> , q <sub>out</sub> : 流入、流出する粒子の質量 Δz: 鉛直セル幅 (⑥の第 2 式より)

表 1(3) 原液 DNAPL のランダムウォーク

⑨ $(x, z)^{n+1} = (x, z)^n + (dx_o, dz_o) + (dx_d, dz_d)$ $(dx_o, dz_o) = (u' \Delta t, w'_2 \Delta t), (dx_d, dz_d) = (\sigma_x r_x, \sigma_z r_z)$ $\sigma_x = \sqrt{2D_{\alpha} \Delta t}, \sigma_z = \sqrt{2D_{\alpha} \Delta t}, r_x = N(0,1), r_z = N(0,1)$	(x, z) <sup>n+1</sup> , (x, z) <sup>n</sup> : 時刻間を Δt として n, n+1 時刻の粒子の位置、 (dx <sub>o</sub> , dz <sub>o</sub> ): 移流による移動距離、(dx <sub>d</sub> , dz <sub>d</sub> ): 分散による移動距離 D <sub>α</sub> , D <sub>α</sub> : 分散係数、r <sub>x</sub> , r <sub>z</sub> : 平均、標準偏差 1 の正規乱数
---	---

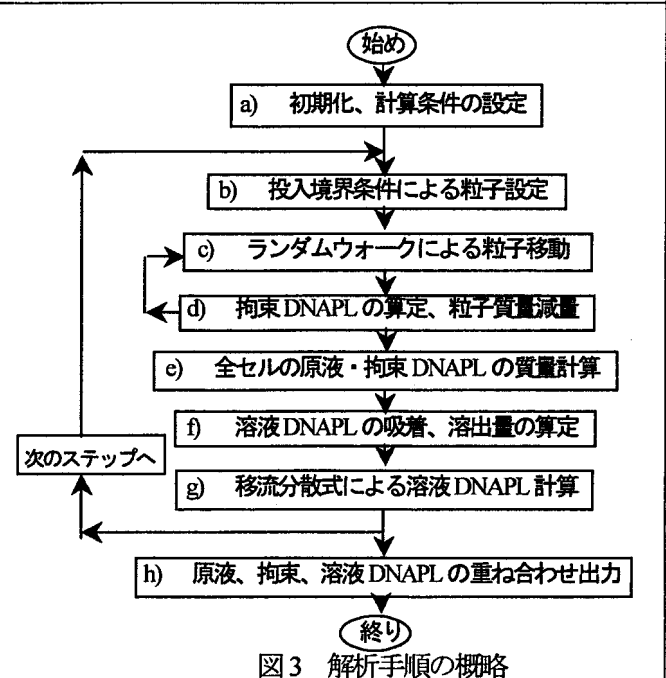


図 3 解析手順の概略

ル化する。3項は(3)に述べる。ここでは、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<sup>9)</sup>。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。濃度の低減率は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。

### (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 $\Delta t_1$ 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 $\Delta t_2$ で繰り返している。解析条件はMayer and Miller(1996)<sup>8)</sup>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、 $\Delta t_1=3600$ 秒、 $\Delta t_2=30$ 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<sup>10),11)</sup>。

原液 DNAPL は、液滴直径を $\delta$ として $\delta=0.01\sim 0.1(\text{cm})$ 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 $\text{Re}<1$ のとき Stokes 式<sup>9)</sup>、 $1\leq\text{Re}\leq 100$ のとき Allen 式<sup>9)</sup>を用いて静止水中における単粒子の自由沈降速度( $w_{\text{def}}$ )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 $\alpha$ を与えて、実際の粒子沈降速度( $w'_2 = \alpha \cdot w_{\text{def}}$ )を設定している。ここでは、低減係数 $\alpha$ として多粒子の相互干渉がある場合の Muade ら(1958)の式<sup>9)</sup>の最小値( $\alpha=0.0148$ )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

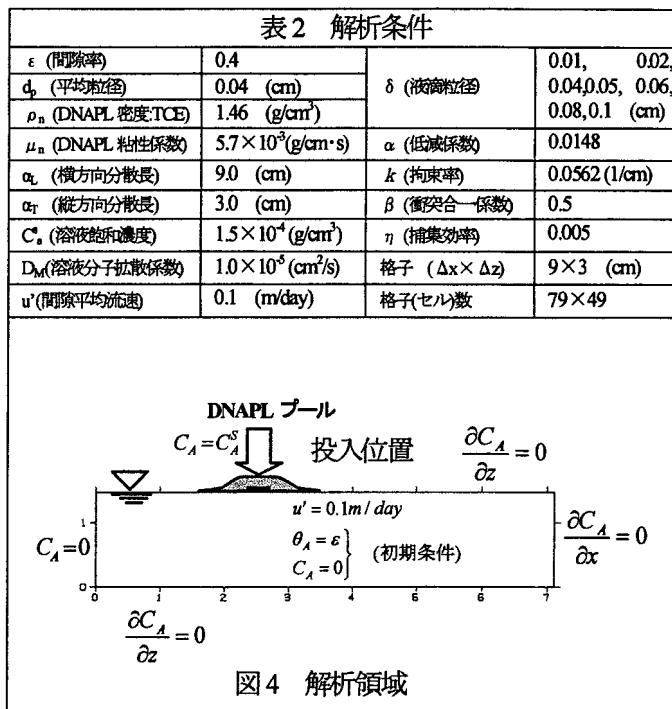


図4 解析領域

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。 $\delta$ 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、 $\delta$ 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 $\phi$ - $\theta$ 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。

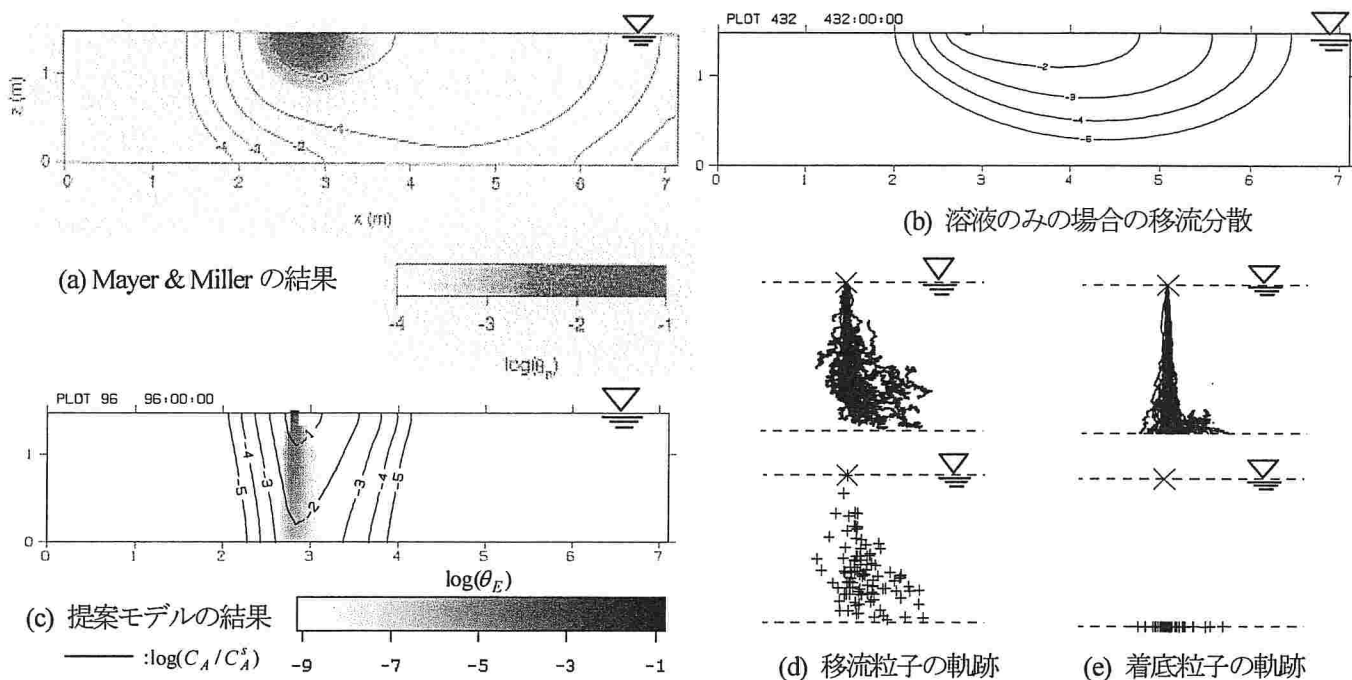


図5 解析結果

#### 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 $\alpha$ 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—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