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

AN EXPERIMENTAL STUDY ON DNAPL FINGERING MECHANISM IN SATURATED POROUS MEDIA

上野　孝之[1]・RABINDRA RAJ GIRI[2]・西田　憲司[3]・佐藤　邦明[4]
Takayuki UENO, Rabindra Raj GIRI, Kenji NISHIDA and Kuniaki SATO

[1]フェロー　工修　(株)大林組　技術研究所（〒204-8558　東京都清瀬市下清戸四丁目640番地）
[2]Ph.D.　埼玉大学　地圏科学研究センター（〒338-8570　さいたま市下大久保255）
[3]正会員　工博　(株)大林組　技術研究所（〒204-8558　東京都清瀬市下清戸四丁目640番地）
[4]正会員　工博　埼玉大学教授　地圏科学研究センター（〒338-8570　さいたま市下大久保255）

Knowledge of DNAPL fingering phenomena in water-saturated porous media, which is not well investigated, is expected to be useful to get more insights on the contaminant transport behaviors. Laboratory experiments on trichloroethylene (TCE) fingering behaviors in saturated uniform glass sphere porous media were carried out. Two different approaches were adopted in interpreting the experimental results. The effective porosity (n_{eD}) and modification factor (k_D) varied in the ranges 4.0×10^{-2} to 5.0×10^{-2} and 2.0×10^{-4} to 5.0×10^{-2} respectively in these experiments. A correlation between diameter ratio (δ_e) and Reynolds number (R_e) for TCE fingers has been established. The n_{eD} values for three different glass sphere sizes were almost the same while the values of k_D function increased with increasing glass sphere size. The diameter ratio decreased as finger Reynolds number increased.

***Key Words**: DNAPL migration, fingering, velocity of fingering, groundwater contamination, saturated porous media, TCE, porosity*

1．まえがき

近年、難溶解性液体（DNAPL）が不飽和帯を経て飽和地下水面以下に浸透する浸入機構が地下水汚染に関して興味を持たれている。DNAPLの飽和多孔媒体への浸透は水とDNAPLの密度、粘性、および表面張力の差異によって特徴付けられる。多孔媒体中に異種の流体が浸入するとき、しばしばフィンガー状の流れが発生し、この現象はフィンガーリングと呼ばれている。多くの研究者が、均質な多孔媒体におけるDNAPLの浸透モデルを構築することを試みてきている。例えば、Kueper & Frind (1988)[1]は多孔媒体におけるDNAPLのフィンガーリングの概要を紹介している。彼らは一旦フィンガーが発生した後、どのようにフィンガーが浸透するかは、巨視的な流れのポテンシャルが支配すると指摘している。Held & Illangasekare (1995)[2]はDNAPLのフィンガーリングに関して3次元の実験的研究を行っている。実験結果から、フィンガーの挙動において、重力、粘性力、および毛管力が様々な影響を及ぼし、フィンガーの浸透は多孔媒体の粒子サイズ、DNAPLの特性および漏洩条件に密接に関連すると指摘している。Zhang & Smith (2002)[3]は均質な飽和多孔媒体におけるフィンガーリング現象を解析する場合、DNAPLと水の界面の不安定性を考慮することの重要性を指摘している。

本研究は単粒の球粒子をランダム充填した多孔媒体モデルを用いて、DNAPLが飽和多孔媒体中を浸透するフィンガーリング現象を可視化すること、および飽和多孔媒体中におけるフィンガーの浸透をモデル化し、その基礎方程式を導入して定式化し、DNAPLの動的メカニズムを明らかにすることを目的とした。

2．実験装置と実験方法

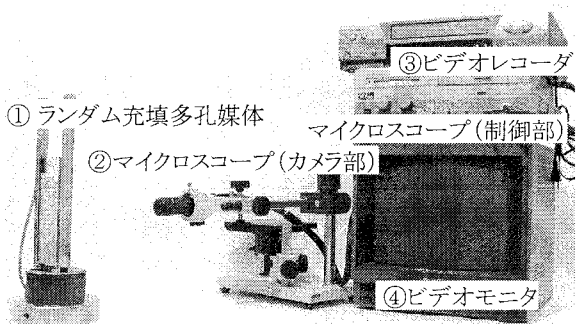

写真-1　実験装置

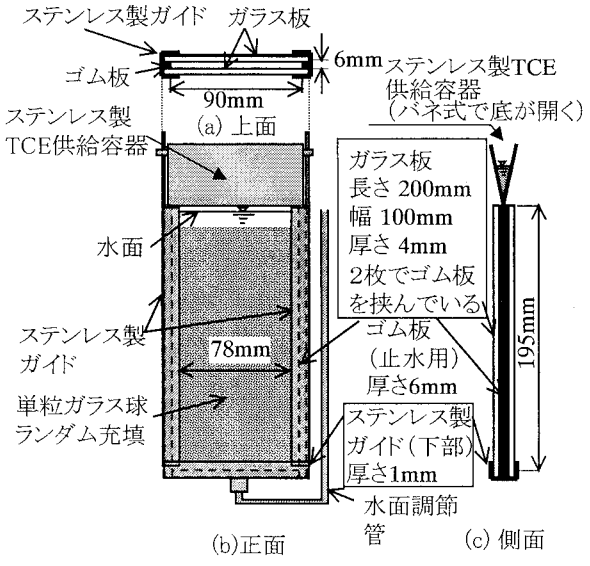

図-1　多孔媒体モデル

(1) 実験装置

実験装置の全景を写真-1 に示す。実験装置は①ランダム充填多孔媒体、②マイクロスコープ、③ビデオレコーダ、および④ビデオモニタで構成されている。ランダム充填多孔媒体中に発生する DNAPL フィンガーをマイクロスコープで拡大し、ビデオモニタに表示してフィンガーの浸入状況を観察すると共に、ビデオレコーダに記録した。DNAPL フィンガーが多孔媒体中を浸透する過程の静止画像をマイクロスコープ制御部内蔵のフロッピーディスクに保存した。その結果に基づいて解析を行う。

(2) 実験方法

ランダム充填の多孔媒体モデルは図-1 に示すように、幅 100mm、長さ 200mm、厚さ 4mm の 2 枚のガラス板を奥行き方向間隔 6mm で平行に並べた。側面、底面はゴムパッキンで防水して水で飽和した後、単粒のガラス球を上部から充填した。充填球粒子直径は表-1 に示すように d = 1,2,3mm の 3 種類である。DNAPL はトリクロロエチレン（TCE）を用いた。

表-1　実験条件

ランダム充填多孔媒体モデル				浸透 DNAPL
球粒子 直径d(mm)	幅(mm)	長さ(mm)	奥行き(mm)	
1.0	90	195	6	TCE
2.0				
3.0				

TCE は図-1 の(c)側面図に示すようなステンレス製供給容器に 1 回当り 1.6cm^3 の TCE を充填した。その後、供給容器底部を開き、多孔媒体幅 (90mm) 全体に注入して一様の深さに TCE を貯留させた。1.6 cm^3 の TCE 体積は幅 90mm、奥行き 6mm の多孔媒体モデルの空間で貯留深さ約 3mm に相当する。多孔媒体に TCE が浸入開始するまで供給を繰り返し、浸入開始したときの累計体積を多孔媒体モデルの断面積(90mm×6mm)で除して限界貯留深さ h_{0c} とした。TCE が多孔媒体中を浸透する動きを明瞭に見えるようにするため溶油性スカーレットで赤色に着色した。

TCE 浸入開始後、フィンガー状に屈曲しながら浸入するプロセスをマイクロスコープで拡大してビデオレコーダに記録した。また、鉛直浸透長約 2cm の浸入ごとに経過時間 t を計測すると共に、静止画像をフロッピーディスクに保存した。保存した画像データはパソコンを用いて、多孔媒体への TCE 鉛直浸透長 ζ および浸透路長 ζ_s を読み取った。浸透路長と経過時間から、多孔媒体の各深度におけるフィンガーの鉛直浸透速度 w および浸透路長の浸透速度 w_s を計算した。

3．実験結果

ランダム充填した多孔媒体中を TCE がフィンガー状に浸透する形態をマイクロスコープで拡大して撮影した例を写真-2 に示す。直径 d = 1mm の球粒子をランダム充填した多孔媒体における TCE の浸透プロセスを示したもので、フィンガーが鉛直方向に約 2cm 浸透するごとに撮影した画像を並べている。TCE 貯留深さが h_{0c} = 2.1cm に達したとき多孔媒体への浸入が始まり、一筋のフィンガーが木の枝のように屈曲しながら多孔媒体中を浸透し、63sec 後に約 12cm の鉛直浸透長に達する様子が観察された。

d = 2mm の球粒子を充填した多孔媒体では、フィンガーの浸透速度は d = 1mm のときより速く、41sec 後に約 14cm の鉛直浸透長に達している。限界貯留深さは h_{0c} = 1.8cm であった。d = 3mm の充填多孔媒体の浸透速度は d = 2mm の場合よりさらに速く、17sec 後に約 12cm の鉛直浸透長に達した。限界貯留深さは h_{0c} = 1.1cm であった。

3 種類の充填粒子径の異なる多孔媒体におけるフィン

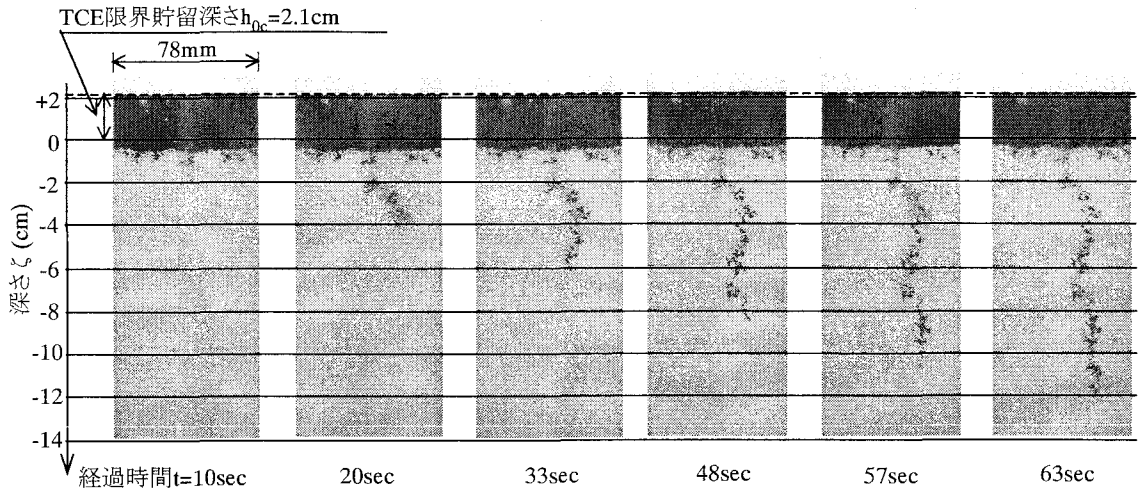

写真-2 球粒子径 d=1mm で構成される多孔媒体モデルにおけるフィンガーリングの進行

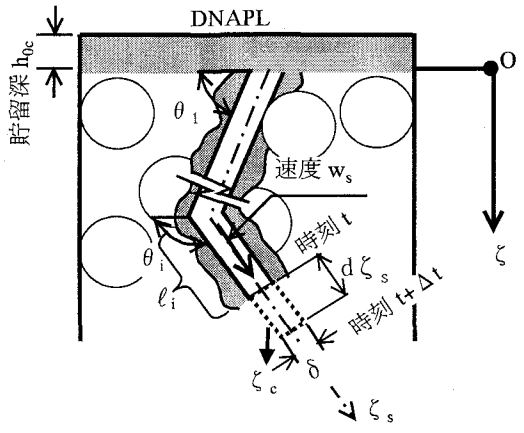

図-2 DNAPL フィンガーのモデル化

ガーの形態は、いずれも一筋のフィンガーしか発生しなかった。充填粒子径が小さいランダム多孔媒体ほど TCE の限界貯留深さ h_{0c} は大きく、フィンガー浸透速度が遅い結果が得られた。

4．結果の考察

(1) 飽和多孔媒体におけるフィンガーリングの基礎方程式

単粒の球粒子でランダム充填された多孔媒体中を DNAPL がフィンーガー状に浸透するときの浸透速度を解析的に表現し、実験結果と比較して、フィンガーの水理学的性質を明らかにするために、フィンガーの浸透をモデル化し、その基礎方程式を導いた。

フィンガーの径、長さを定義するために図-2 に示すようなモデル化を行った。水で飽和された多孔媒体上面の DNAPL 貯留深さが限界貯留深さ h_{0c} となったとき DNAPL はフィンガー状に浸透する。この DNAPL フィンガーを直径 δ の細管と見なし、細管はある区間ごとに角度 θ で屈曲し、DNAPL は屈曲細管中を速度 w_s で浸透すると仮定した。ダルシー則と微少要素 $d\zeta_s$ の時間 Δt における連続条件から、細管の屈曲角を θ_i、区間長を ℓ_i、細管内の流速を w_s とすると、鉛直方向（ζ 軸方向）の DNAPL フィンガーの浸透速度は $w = w_s \sin\theta_i$ となる。鉛直方向浸透速度 w はダルシー則より、

$$w = kk_D \frac{(\zeta + h_{0c} + \zeta_c)}{\zeta} \qquad (1)$$

ここに、k：浸透係数 (cm/s)、k_D：DNAPL と水の密度差、表面張力、およびフィンガーリング形状係数を含む補正係数（無次元）、h_{0c}：DNAPL 限界貯留深さ、ζ_c：DNAPL 毛管圧力相当水頭（水と DNAPL に働く界面力に起因）。一方、連続式から

$$w = n_{eD} \frac{d\zeta}{dt} \qquad (2)$$

ただし、n_{eD}：動的な有効空隙率。

式(1)、(2)より

$$kk_D \frac{(\zeta + h_{0c} + \zeta_c)}{\zeta} = n_{eD} \frac{d\zeta}{dt} \qquad (3)$$

となり、式(3)が DNAPL フィンガーリングの基礎式となる。

式(3)の解は、変数分離して両式を積分すると、

$$\zeta + (\zeta_c + h_{0c}) \log \frac{\zeta_c + h_{0c}}{\zeta + (\zeta_c + h_{0c})} = \frac{kk_D}{n_{eD}} t \qquad (4)$$

となる。式(4) は DNAPL の鉛直浸透長 ζ の時間変化を示すが、陰形式なので ζ を与えて時間 t を得る形である。

(2) DNAPL フィンガーの浸透路長と時間

表-2　計算入力値

ランダム充填		TCE	動的有効空隙率	ランダム充填補正係数	毛管圧力成分
粒子径 d(cm)	TCE浸透係数 k(cm²/s)	限界貯留高さ h_{0c}(cm)	n_{eD}	k_D	ζ_c(cm)
0.1	6.1	2.1	0.04～0.05	0.001～0.002	0～9
0.2	23.4	1.8	0.04～0.05	0.0005～0.001	0～9
0.3	93.2	1.1	0.04～0.05	0.0002～0.0003	0～9

表-3　パラメータ同定結果

		粒子径		
		d=1mm	d=2mm	d=3mm
動的有効空隙率 n_{eD}	鉛直	0.04～0.05	0.04～0.05	0.04～0.05
	路長	0.04～0.05	0.04～0.05	0.04～0.05
補正係数 k_D	鉛直	0.001	0.0005	0.0002～0.0003
	路長	0.001～0.0015	0.002	0.003～0.005

式(4)は動的有効空隙率 n_{eD}、毛管圧力相当水頭 ζ_c、DNAPL と水の密度差、表面張力、およびフィンガーリング形状係数を含む補正係数 k_D が未知数であり、鉛直浸透長 ζ、および浸透路長 ζ_s と時間 t に関する解が直接得られないため、これらの未知数をパラメータとして数値解析を行い、実験結果と比較することによって、未知数を同定することとした。

表-2 に示す計算入力値の TCE 浸透係数 k (Kozeny-Carman の式[4]による)、TCE 限界貯留深さ h_{0c}、動的有効空隙率 n_{eD}、ランダム充填補正係数 k_D を用いて、式(4)より、充填粒子径 d = 1mm、d = 2mm、d = 3mm のランダム多孔媒体における TCE フィンガーの鉛直浸透長 ζ および浸透路長 ζ_s と時間 t の関係を計算した。

計算した粒子径 d = 1mm の充填多孔媒体における TCE 鉛直浸透長 ζ および浸透路長 ζ_s と時間の関係を図-3 および図-4 に示し、3 回繰り返した実験結果をまとめて併記した。

実験では鉛直浸透長 ζ と時間 t はほぼ直線関係にあり、TCE フィンガーの先端は浸透開始後 70sec で鉛直方向に約 14cm 浸透している。同じ補正係数の場合、動的有効空隙率 n_{eD} が小さくなるほど、すなわち、フィンガーの径が小さくなるほど浸透速度は速くなる。また、同じ動的有効空隙率の場合、補正係数 k_D が大きくなるほどフィンガーは速く浸透することがわかった。

鉛直浸透長 ζ について、実験値を解析解にフィッティングさせ、動的有効空隙率 n_{eD} および補正係数 k_D を同定すると n_{eD} = 0.04～0.05、k_D ≒ 0.001 が得られた。

毛管圧力相当水頭は ζ_c = 0～9cm の範囲で変化させてパラメター解析を行ったが、実験値のばらつきの範囲にあり、ζ_c の値は同定することができなかった。

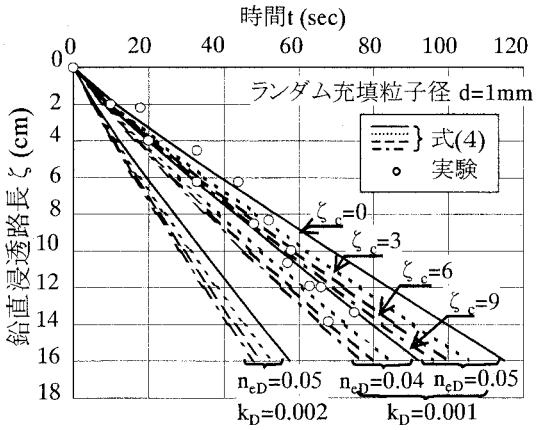

図-3　TCE の鉛直浸透長と時間の関係

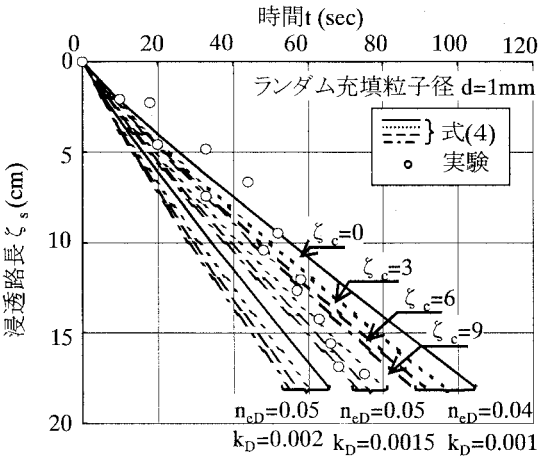

図-4　TCE の浸透路長と時間の関係

屈曲しながら浸透するフィンガーの浸透路長 ζ_s は鉛直浸透長 ζ に比べて平均 25%長いが、屈曲による θ_i の変化は ζ_s の中で評価されているので、実験的には θ_i を直接求める必要はなくなる。浸透路長 ζ_s と時間 t の解析解にフィッティングすると実験結果は動的有効空隙率 n_{eD} = 0.04～0.05、補正係数 k_D = 0.001～0.0015 と同定された。鉛直浸透長 ζ からの同定値と比較すると、動的有効空隙率は等しく、補正係数がやや大きくなることがわかった。

粒子径 d = 2mm および d = 3mm のランダム充填多孔媒体における TCE 鉛直浸透長 ζ および浸透路長 ζ_s と時間 t の関係についても同様の方法で検討した。同定された各粒子径のランダム充填多孔媒体における TCE フィンガーの動的有効空隙率および補正係数を一覧にして表-3 に示す。

つぎに、同定した未知数のうち TCE フィンガーの径を意味する動的有効空隙率 n_{eD} の値について、各球粒子を最密充填および最粗充填したときの空隙の大きさと比較してその妥当性を検討した。ランダム充填の幾何学的空隙率 n は最密充填と最粗充填の間にあり、n = 0.112～0.215 の値を持つ。一般的に動的有効空隙率 n_{eD} は幾何学

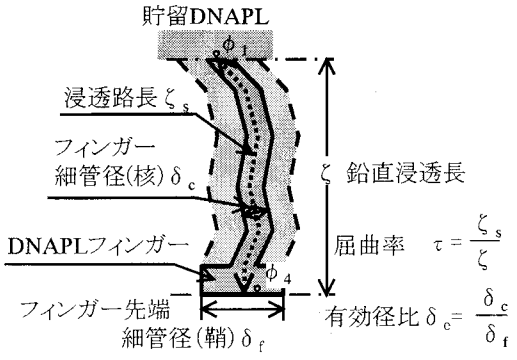

図-5 DNAPL フィンガーモデルの定義

空隙率 n より 1 オーダー小さい。同定した動的有効空隙率はいずれの粒子充填においても n_{eD} = 0.04～0.05 の範囲にあり、オーダー的には妥当性があると考えられる。しかし、ランダム充填粒子径が異なるにも拘わらず動的有効空隙率は同じ結果が得られた。そこで、フィンガーを細管と仮定し、最密充填の場合、空隙サイズに等価な細管径を $\delta = ((2\times3^{1/2}-\pi)\cdot d/2)^{1/2}$、最粗充填の場合 $\delta = ((4-\pi)\cdot d/\pi)^{1/2}$ とすると、粒子径 d = 1mm のランダム充填では δ = 0.127～0.165、粒子径 d = 2mm では δ =0.18～0.234、粒子径 d = 3mm では δ = 0.220～0.287 となり、粒子径が大きくなると等価細管径も大きくなる。このことを考慮し、式(4)の n_{eD} に対応するフィンガー径 δ と後述の式(6)の δ_e を等価と置き、δ_c を算定するといずれの粒径についてもほぼ等しい値が得られた。したがって、実験に供した粒径の範囲のランダム充填においてはフィンガーの核の径はほぼ一定となることが判明した。

以上のことから、実験に供した粒径の範囲のランダム充填多孔媒体においては、フィンガーの浸透速度は DNAPL と水の密度差、表面張力、およびフィンガーリング形状係数を含む補正係数によって変化すると考えられる。

(3) 飽和多孔媒体における DNAPL フィンガーリング径の検討

飽和多孔媒体中の DNAPL フィンガーリングに関する研究が Zhang & Smith (2002)[5] によって行われている。Zhang & Smith は水で飽和されたガラス球の多孔媒体におけるフィンガーリング現象を表現するために、"Mobile-Immobile-Zone (MIZ)モデル" と呼ぶモデルを提案している。MIZ モデルは 1 つのフィンガーを異なる 2 つの領域、すなわち中心部分の核と呼ばれる細い円管の動領域とその外側の鞘と呼ばれる円管の不動領域を持つ細管に区分したフィンガーのモデルであり、フィンガー屈曲度、フィンガー直径およびその他のパラメータと関連づけた基礎方程式を導き、定常状態のフィンガー径の性質を検討している。

表-4 計算の入力値

ランダム充填		TCE		水	フィンガー	相対
粒子径 d (m)	TCE固有浸透係数 K(m²)	密度 ρ_d (tonf/m³)	粘性係数 μ_d (pa·sec)	密度 ρ_w (tonf/m³)	DNAPL含有率 θ_d	浸透係数 K_{rd}
0.001	2.405E-09	1.468	5.66E-04	1.000	0.386	0.4～0.6
0.002	9.203E-09				0.381	
0.003	3.626E-08				0.437	

彼らの手法と同様の方法で本実験の結果を解析し、本研究で行った方法による結果と比較して本研究の妥当性を検討する。

Zhang & Smith は図-5 に示すようなフィンガーの定義を用いて、屈曲した浸透路長 ζ_s に沿ったフィンガーの速度 w_s を次式で表現している。

$$w_s = \left(\frac{\delta_e}{\tau}\right)^2 \frac{K_{rd}K}{\theta_d\mu_d}\left[g(\rho_d-\rho_w)+\frac{(\phi_1-\phi_4-p_c)-\varepsilon}{\zeta_s}\right] \qquad \rho_d > \rho_w \qquad (5)$$

ただし、δ_e : DNAPL フィンガー有効径比 (= δ_c/δ_f)、K_{rd} : 相対浸透係数、K : 固有浸透係数、τ : フィンガー屈曲度、θ_d : フィンガーDNAPL 含有率、μ_d : DNAPL の粘性係数、g : 重力の加速度、ρ_d : DNAPL の密度、ρ_w : 水の密度、ϕ_1, ϕ_4 : DNAPL のポテンシャル、p_c : 毛管圧力成分、ε : フィンガー先端部のポテンシャル差 (ある基準線よりの位置ポテンシャルの意味)、ζ_s : DNAPL フィンガー浸透路長。

フィンガーの屈曲の定義を用いると、鉛直方向のフィンガー速度は $w = w_s/\tau$ で表せる。フィンガー長が長くなると、ポテンシャル差 ε はフィンガー長 ζ_s に比べて相対的に小さくなることから、式(5)の (ε/ζ_s) の項は無視できる。

また、フィンガー長が長くなるとフィンガー速度は定常状態となり、DNAPL 貯留深さおよび水の流れの効果は相対的に小さくなることから、式(5)の第 2 項は零に近くなる。したがって、式(5)の第 2 項を無視して、δ_e を求める式に書き直すと、次式となる。

$$\delta_e = \tau\left[\frac{w\,\theta_d\mu_d}{K_{rd}Kg(\rho_d-\rho_w)}\right]^{1/2}, \quad \rho_d > \rho_w \qquad (6)$$

表-4 に示す計算入力値を用いて、式 (6) より、TCE フィンガーの有効径比 $\delta_e = (\delta_c/\delta_f)$ を計算した。縦軸に DNAPL フィンガーの有効径比 δ_e をとり、横軸にフィンガーレイノルズ数 R_e (=d·w/ν、ただし、w : フィンガー鉛直浸透速度、d : 充填粒子径、ν : DNAPL の動粘性係数) をとって δ_e～R_e 関係の相関を整理した。

図-6 に相対浸透係数 K_{rd} = 0.5 の場合の δ_e～R_e 関係を示す。フィンガーレイノルズ数 R_e と有効径比 δ_e の関係は

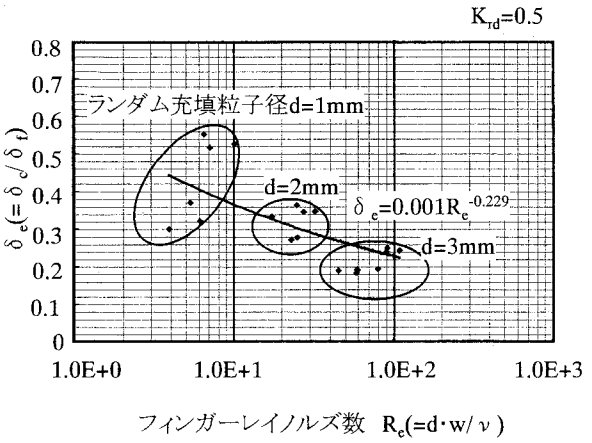

図-6 δ_eとフィンガーレイノルズ数R_eの関係

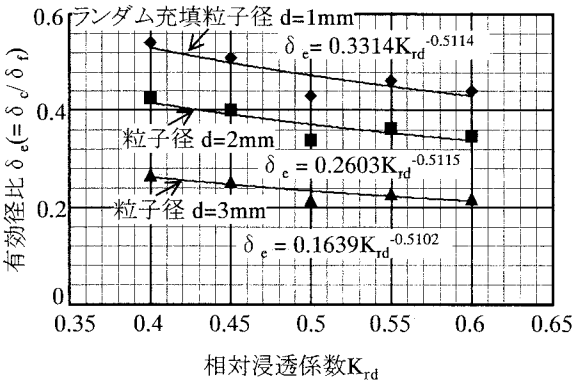

図-7 有効径比δ_eと相対浸透係数K_{rd}の関係

R_eの増加に伴いδ_eは減少するが、フィンガーレイノルズ数が小さいとフィンガーリングの不安定性のため、フィンガー浸入路が変化するため多少ばらつきが大きくなる。

本実験の結果を定式化すると、$R_e = 4.0\times10^0 \sim 1.0\times10^2$の範囲で$\delta_e = 0.001\times R_e^{-0.229}$ の相関(標準偏差 0.67)が得られた。δ_eとR_eの関係に着目すると、充填粒径の変化の幅は1～3mm と小さいが、粒径が大きくなるほどフィンガーレイノルズ数が大きくなるということは、流速が急速に増すことを意味する。

一方、前述したようにδ_eがほぼ一定であることからフィンガーレイノルズ数が小さいとき、δ_fは相対的に小さくなることを意味する。著者らの導いた式 (4) と Zhang & Smith の式 (6) とはモデル化が異なるので、正確にδ_eとn_{eD}を比較して議論はできないが、フィンガーリングは不安定現象であり、R_eが大きくなるにつれ流速も増し、同時にそれを横切る小針状フィンガーも増すことが写真より見て取れる。したがって、n_{eD}はδ_fも含めて定義されているのでδ_eが大きくなってもn_{eD}が顕著に変わらないものと考えられる。

つぎに、Zhang & Smith にならって整理したフィンガー有効径比δ_eと相対浸透係数K_{rd}の関係を図-7 に示す。いずれの粒子径のランダム充填多孔媒体おいても相対浸透係数 K_{rd} が大きくなるにしたがってフィンガー有効径比δ_eは小さくなる。

5．結論

単粒の球粒子をランダム充填した多孔媒体によるフィンガーリング実験を行い、理論的考察を加え以下の結論を得た。

1) DNAPL フィンガー浸透の基礎方程式を導入して、動的有効空隙率n_{eD}、DNAPL と水の密度差、表面張力、およびフィンガーリング形状係数を含む補正係数k_Dが同定できた。
2) 粒径に拘わらずランダム充填多孔媒体において、動的有効空隙率はn_{eD}= 0.04～0.05 の範囲にある。
3) 補正係数は空隙サイズによって変化し、k_D = 0.0002～0.005 の範囲にある。
4) フィンガーの有効径比δ_e(=δ_e/δ_f)とフィンガーレイノルズ数R_eの関係として$\delta_e = aR_e^{-b}$が導かれた。

以上の結果よりランダム充填多孔媒体におけるフィンガーリングの浸入を見積もることができよう。

参考文献

1) Kueper, B.H. and Frind, E.O.: An overview of immiscible fingering in porous media, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.2, pp. 95-110, 1988.
2) Held, R.J. and Illangasekare, T.H.: Fingering of dense non-aqueous phase liquids in porous media: 1. Experimental investigation, *Water Resources Research*, Vol.31, No. 5, pp.1213-1222, 1995.
3) 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.
4) Bear, J.: Dynamics of Fluids in Porous Media, American Elsevier, pp.165-167, 1972.
5) 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.

（2002. 9. 30受付）