

地下水汚染物質の新しい移流分散モデル に関する研究

STUDY ON THE NEW MODEL OF THE ADVECTION-DISPERSION OF THE CONTAMINANT IN THE GROUNDWATER

岡田健太¹・羽田野祐子²・堀俊和³・毛利栄征⁴
Kenta OKADA, Yuko HATANO, Toshikazu HORI and Yoshiyuki MOHRI

¹非会員 筑波大学大学院 理工学研究科 修士課程 (〒305-8573 茨城県つくば市天王台1-1-1)

²正会員 博(工) 筑波大学助教授 機能工学系 (〒305-8573 茨城県つくば市天王台1-1-1)

³正会員 博(農) (独)農業工学研究所 造構部土質研究室 (〒305-8609 茨城県つくば市観音台2-1-6)

⁴正会員 農博 (独)農業工学研究所 造構部土質研究室 (〒305-8609 茨城県つくば市観音台2-1-6)

Recently as a new governing equation of solute transport, a fractional advection dispersion equation (fADE) has been proposed, which includes non-integer derivatives for the mass-transport phenomena in heterogeneous geologic media by Benson et al. (1998, 2000). Using this equation, heterogeneity can be taken into account effectively without scale dependency. We solved the fADE numerically by the finite difference method, and compare with new experimental data. The data were taken in a sand box with Tohoku silica sand and 3% of NaCl solution. Breakthrough curves are obtained from the experimental result, and we found that the experimental result is essentially different from the ordinary Gaussian profiles and the order of derivative is about 1.5 for our experiments.

Key Words : fractional derivative, dispersivity, scale dependency, fADE,

1. はじめに

近年, 地下水汚染問題が深刻化している. その主な原因として, ガソリンスタンドや半導体製造工場の地下に埋設されたタンクや配管の劣化による破損のための地下への重油や有機媒体の流出である. 地下水は長い時間をかけて複雑な地質媒体中を涵養されるため, 一度汚染されると元の状態に戻すのは非常に困難である. わが国でも膨大な費用をかけて汚染地下水を処理しているにもかかわらず, 汚染が進行し広域化しているところも少なくない. そのため, 汚染物質の移行の予測というものが重要になってくる. その予測式として, 従来から次式のような移流分散方程式が利用されている.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1)$$

ここで, C :濃度(g/m³), $D(=\alpha_L v)$:分散係数(m²/s), α_L :縦分散係数(m), v :地下水平平均流速(m/s), t :時間(s), x :距離(m)である. しかしながら近年, この式は媒体中の物質輸送を表すのに適当なのか, 疑問が提されている. フィール

ドスケールの実験結果¹⁾²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾においても, またラボスケールの実験結果⁶⁾⁷⁾⁸⁾においても示されている. 実験結果の(1)式からの食い違いというのは, 下記の3点にまとめることができる.

(i) 平均2乗距離 $\langle l^2 \rangle$

時間に対するブルームの平均2乗距離 $\langle l^2 \rangle$ を解析したところ, これらの実験では $\langle l^2 \rangle$ の増加の仕方が時間に比例しないということが分かった. 一方, (1)式のような通常の移流分散モデルにおいては $\langle l^2 \rangle \propto t$ であることが分かっているため, これらの実験は通常の拡散理論ではうまく表されないことを意味する. このような現象は, 通常の拡散からずれるという意味で“異常拡散”と呼ばれており⁹⁾, 地質媒体以外でも様々な不均質媒体中の物質移動において観測されている. 従って, 異常拡散のモデルを使うことが示唆される.

(ii) テーリングの問題

距離に関して濃度をプロットすると, ピークより右側のプロファイルにテールが現れる. このテール

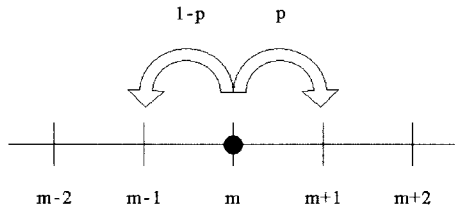


図-1 ランダムウォークモデル

ングも異常拡散モデルにより再現することが可能である。

(iii) α_L のスケール依存性

実験において縦分散係数 α_L は一定ではなく、汚染源からの流下距離に依存し増加するということが分かっている。このようなスケール依存性は重要な問題である。例えば、汚染源から10km下流における濃度を推定したい場合、 α_L は流下距離に従って増加するので、その手前の5km下流などを掘削して増加の具合を確かめなければならない。 α_L の経験式¹⁰⁾や統計的な推測による式¹¹⁾もあるが、地質条件に大きく依存し、統一的な説明はまだ成されていない。そもそもある範囲で成立していた式が、観測範囲を広げると成立しなくなるのは望ましいとは言えない。

以上の3点より、異常拡散のモデルを地下水汚染問題に適用することが強く示唆される。異常拡散を最初に理論的に取り扱ったのは Montroll と Scher¹²⁾ である。その後、Koch と Brady¹³⁾ により不均質透水性媒体中の透水係数について、それらの場所に関する変動量の相関を考慮することにより異常拡散のモデル化が行われた。さらに近年ではこのような異常拡散モデルが地下水汚染問題に適用されつつある¹⁴⁾¹⁵⁾¹⁶⁾。

そこで、本研究では異常拡散モデルを地下水汚染に適用する。具体的には、ランダムウォークモデルをもとに新しい支配方程式を導き、数値計算により解を求める。更に、実験を行い計算結果との比較を行う。

2. 理論

1章で述べた問題点を解決するため、次のような移行のモデルを考える。図-1に示すような1次元ランダムウォークにおいて、時刻 $t=0$ 、 $x=0$ で汚染物質がランダムウォークをはじめ、このとき、粒子が右側にジャンプする確率を p 、左側へジャンプする確率を $1-p$ とし、ジャンプは時間間隔 Δt ごとに1回起こるとする。ある時間経過後、各位置における粒子の存在確率の平均値がその時刻における濃度分布を示している。この時、ジャンプ幅 Δx が一定値

であるとする、 $N+1$ タイムステップ後の位置 m における濃度は

$$C(m, N+1) = p \cdot C(m-1, N) + (1-p) \cdot C(m+1, N) \quad (2)$$

で与えられ、これは従来の移流分散方程式(1)に帰着する。新しい支配方程式では、ジャンプ幅に分布を持たせ、1回のジャンプで遠くまで移動する場合も考慮する。このことは、粒子が多孔質媒体中を流れる際に様々な流速で流れていくことを意味し、空隙の広い場所を通ったり、水みちと呼ばれる選択的な経路を通ったりする場合に相当する。このような場合、十分大きい体系において(2)式は次のようになる。

$$C(m, N+1) = \sum_{i=1}^{\infty} p(m-i) \cdot C(i, N) \quad (3)$$

ここで $p(x)$ は距離 x だけのジャンプが起こる確率を意味し、上式では位置 m の手前にあるすべての場所から、1回のジャンプで位置 m に到達する確率を表している。この $p(x)$ として、本研究では次のようなレヴィの安定分布と呼ばれる関数を仮定した。

$$P(x, \alpha, \beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-ikx - c(\beta) \cdot |k|^{\alpha}) dk \quad (4)$$

ここで、

$$c(\beta) \equiv 1 - i\beta \text{sign}(k) \tan \frac{\pi\alpha}{2} \quad (5)$$

である。レヴィの安定分布の特徴は、特別な場合を除き、分散が無限大になるという点である。分散が無限大になるということは、この場合、粒子の一回のジャンプのうち、あるものは非常に長い距離をジャンプし、別のものは非常に短い距離をジャンプするというに相当する。分散が有限な場合(これまでのモデル、(1)式)と比較すると、平均的なジャンプ距離から大きく外れたジャンプが数多く起こっていることになる。このことは言い換えると、各汚染物質粒子を運んでいる流速の値の範囲を広くしたことに相当している。

更に補足すると、このようにジャンプ距離の分布関数 $p(x)$ が有限の値の分散を持たないことは、顕著な意味を持っている。Montroll と Scher¹²⁾ によると、もし $p(x)$ として有限な値の分散を持つ関数を仮定してしまうと、どんな形であろうと結局、(1)式に帰着してしまうことが示されている。つまり、異常拡散を再現するには、 $p(x)$ として分散が発散する関数を使う必要があるということである。そのような性質を持つ確率密度関数のうち、代表的なものとしてレヴィの安定分布が用いられている。他の研究例として半導体の電子の移動やレオロジー分野での応用¹⁷⁾などがある。

新しい支配方程式は、(3)式をフーリエ変換することに

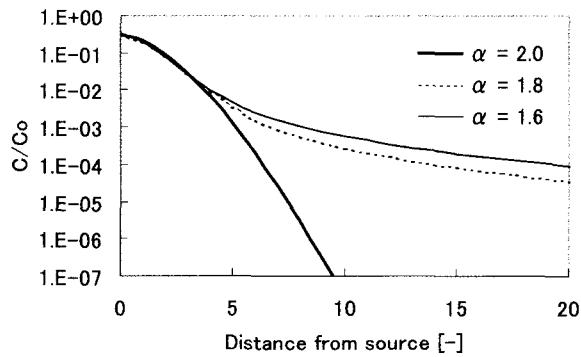


図-2 非整数微分を含む移流分散方程式の解

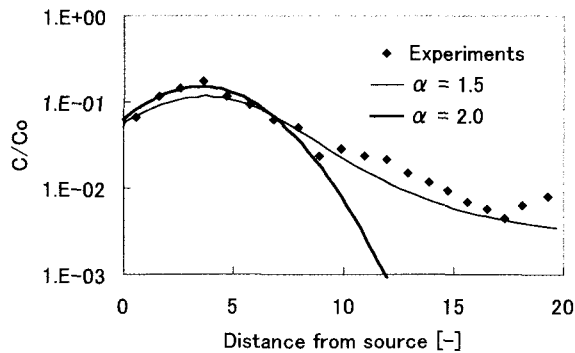


図-3 実験結果との比較 (対数軸)

より以下のようにして求められる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{2}(1+\beta)D_{\alpha} \frac{\partial^{\alpha} C}{\partial x^{\alpha}} + \frac{1}{2}(1-\beta)D_{\alpha} \frac{\partial^{\alpha} C}{\partial (-x)^{\alpha}} - v \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1 \leq \alpha \leq 2, -1 \leq \beta \leq 1) \quad (6)$$

ここで、微視的分散係数 D_{α} はランダムウォークより $(\Delta x)^{\alpha}/2\Delta t$ と導かれ、通常の移流分散方程式における微視的分散係数 D とは $D_{\alpha} = D^{\alpha/2}$ という関係にある。また β はレヴィの安定分布に含まれるパラメータの一つであり、分布の対称性を表す。これは一般の確率分布では歪度と呼ばれるものに相当する。 β が 0 の場合は、左右対称の分布になり、正の場合は右に歪んだ形になる。このような式は非整数階微分方程式と呼ばれ、弾性体の振動、粘性流体の運動方程式¹⁸⁾に使われている。非整数階の微分は具体的に以下のようにして計算することができる。

$$\frac{\partial^{\alpha} C(x)}{\partial x^{\alpha}} = (\Delta x)^{-\alpha} \sum_{j=0}^{n-1} \frac{\Gamma(-\alpha+j)}{\Gamma(-\alpha)\Gamma(j+1)} C(x-j\Delta x) \quad (7)$$

式としては複雑だが、意味するところは(3)式のように、今粒子がいる地点より手前のすべてのジャンプを考慮することに相当している。

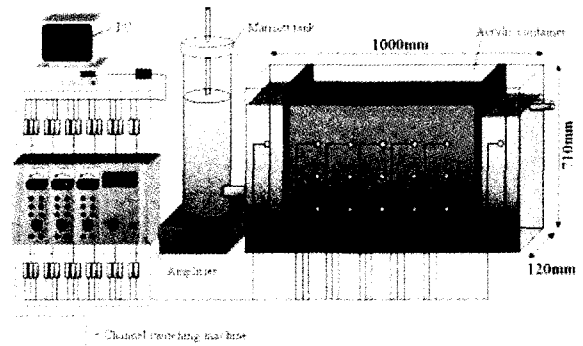


図-4 実験装置概略

上式(6)は、特別な場合を除いて解析的には解けない。そのため我々は差分法を用いて、広田の方法によって数値的に解析した¹⁹⁾。結果の一例を図-2に示す。横軸に汚染源からの距離、縦軸に対数軸で濃度をとっている。 $\alpha = 2.0$ というのが従来の式の結果を表し、グラフは1.6~2.0までの結果を示している。図のように、 $\alpha = 2.0$ の場合は濃度の減少が速いのに対して、 α の値を小さくしていくことによって分布に長いテール部分が現れるのが分かる。

次に、式(6)の数値解析の結果とカラム実験の結果との比較を図-3に示す。比較に用いた実験は中山らによって行われたカラム実験の結果を使用した²⁰⁾。グラフより、この実験においては従来のモデルの $\alpha = 2.0$ よりも、 $\alpha = 1.5$ で実験値を再現できるということが分かった。

ここでパラメータ α によって濃度プロファイルは様々に変化してしまうので、我々は α の値が媒体の物理的特性とどのように関係しているのかを調べるために、実際に実験を行った。

3. 実験

実験装置はSillimanら²¹⁾のものを元に構築しており、概略図を図-4に示す。実験装置はサンドボックス型で、アクリル容器、電気伝導度計、チャンネル切り替え器、そしてPCから構成される。アクリル容器は幅1000mm、高さ710mm、奥行き120mmであり、容器両端は水槽になっており水頭差が5cmに保たれる。トレーサー濃度は砂の中に埋め込まれた15個の電極により測定される。また図-4における点線で囲った部分はチャンネル切り替え器であり、6チャンネルしかないアンプで18チャンネルまで測定できるように構築した。

媒体は東北硅砂6号(平均粒径0.125mm、乾燥密度1.63g/cm³)、トレーサーは3%NaCl水溶液を使用した。実験から得られた平均流速は 1.85×10^{-4} m/s、間隙率は0.39である。

水中落下法により砂層を作成後、左右の水槽部分に水

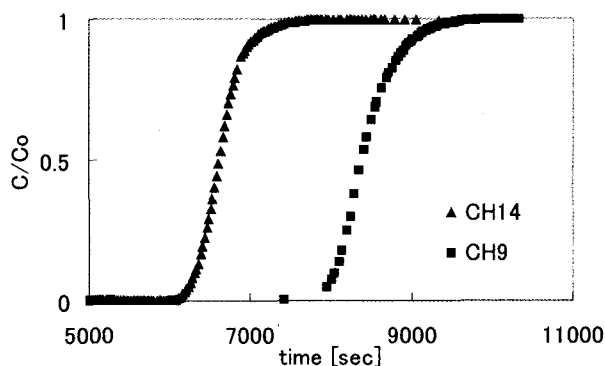


図-5a 実験結果

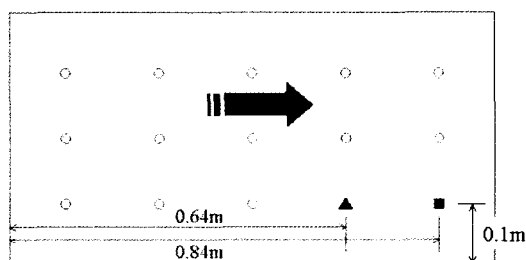


図-5b 測定位置

頭差を与え、流速が安定したところで、上流側の水槽をNaCl水溶液に置換した。

4. 結果と考察

得られた破過曲線を図-5aに示す。それぞれの測定結果は図-5bに示す位置である。

具体的なフィッティングを行う前に、実験結果の定性的な特徴をまず示す。図-6は正規確率プロットと呼ばれ、ある量がガウス分布をしているかどうかを判定するために使われている手法である。もしある量がガウス分布に従うならば、このプロット上では直線になる。従来の移流分散方程式の解はガウス分布をもとにした関数であるため、直線になっている。しかし、実験結果においては、カーブの立ち上がり部分及び飽和する部分において直線にのらないことが分かる。つまり本実験の結果は、本質的にガウス分布とは異なるということが明らかになった。この違いはリニアスケールの軸でプロットした場合は小さいのだが、従来の支配方程式の根本的な性質とは異なる点が重要である。

次に新しい支配方程式(6)においてパラメータを変えてフィッティングを行った。 $\alpha=1.5$, $\beta=-1.0$ とした場合の計算結果を正規確率プロットに加えたものを図-7に示す。フィッティングの結果、 α の値は図3のケースと同様に1.5であることが分かった。ここで $\beta=-1.0$ としたのは、得られた実験結果における濃度プロファイルが濃度比 $C/C_0=0.5$ となる点において点対称になっていなかった

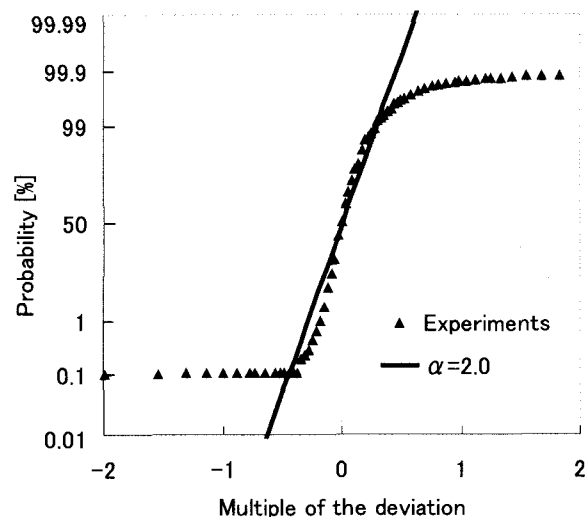


図-6 実験結果と式(1)の正規確率プロットでの比較

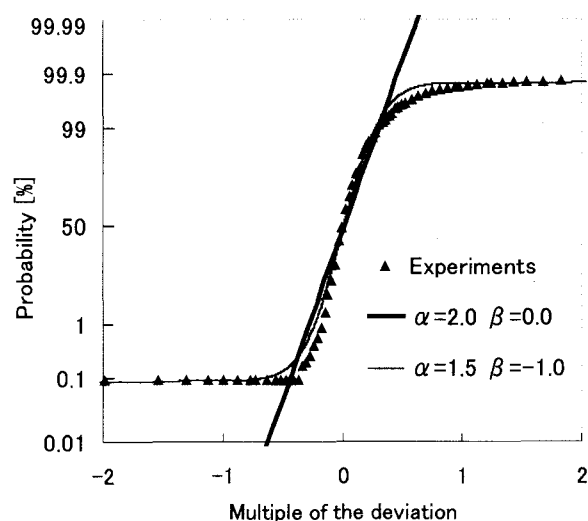


図-7 実験結果、式(1)、式(3)の正規確率プロットでの比較

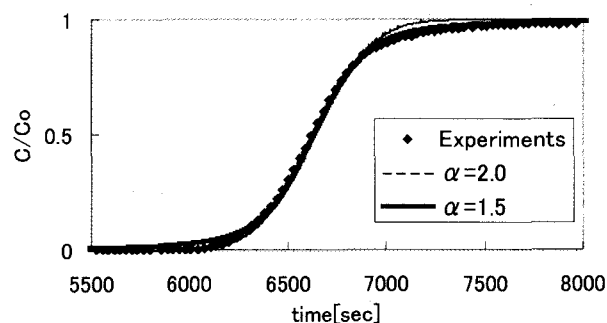


図-8 式(3)と実験結果の比較

めに、歪みを表現するためにパラメータ β を様々に与えて計算したためである。図に示すように、 $\alpha=1.5$, $\beta=-1.0$ の場合というのは $\alpha=2.0$, $\beta=0.0$ の場合とは本質的に

異なり、実験結果により近い分布を示していることが分かる。

最後に、実験結果と新しい支配方程式(6)の結果を通常のグラフにプロットしたものを図-8に示す。パラメータは図-7と同様に $\alpha=1.5$, $\beta=-1.0$ とした。立ち上がりの部分は実験結果と計算結果がうまく一致しているが、濃度比 $C/C_0=1.0$ に近づく部分においてはずれが大きくなった。主な原因として考えられるのは、従来の移流拡散方程式と同様に、今回の新しい支配方程式においても密度流の影響を考慮していないためではないかと考えられる。今後、その点を考慮することによって、現在よりもうまく実験結果を再現できるのではないかと推測される。

5. おわりに

これまでの実験によって、実験結果が従来の移流分散方程式とは異なる、つまりGauss分布的なふるまいをせず、本質的に異なるということを確認した。つまり濃度分布が従来の移流分散方程式の解よりも、長いテール部分を持つということである。また本研究の数値計算によって、上記の実験結果を新しい支配方程式によって定性的に再現し得るということを示した。また、支配パラメータのひとつである α の値は1.5程度であることを見出した。

参考文献

- 1) Mackay, D., D. L. Freyburg, P. V. Roberts, and J. A. Cherry.: A natural gradient experiment on solute transport in a sand aquifer 1. approach and overview of plume movement, *Water Resour. Res.*, Vol.22, pp.2017-2029, 1986.
- 2) Adams, E. E., and L. W. Gelhar.: Field study of dispersion in a heterogeneous aquifer, 2, spatial moment analysis, *Water Resour. Res.*, Vol.28(12), pp.3293-3308, 1992.
- 3) Sidle, R. C., B. Nilsson, M. Hansen, and J. Fredericia.: Spatially varying hydraulic and solute transport characteristics of a fractured till determined by field tracer test, Funen, Denmark, *Water Resour. Res.*, Vol.34(10), pp.2515-2527, 1998.
- 4) Becker, M. W., and A. M. Shapiro.: Tracer transport in fractured crystalline rock: Evidence of nondiffusive breakthrough tailing, *Water Resour. Res.*, Vol.36(7), pp.1677-1686, 2000.
- 5) Haggerty, R., S. W. Fleming, L. C. Meigs, and S. A. McKenna.: Tracer tests in a fractured dolomite 2. Analysis of mass transfer in single-well injection-withdrawal tests, *Water Resour. Res.*, Vol.37(5), pp.1129-1142, 2001.
- 6) Berkowitz, B., H. Scher, and S. E. Silliman.: Anomalous transport in laboratory-scale, heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.*, Vol.36(1), pp.149-158, 2000.
- 7) Farrell, J., and M. Reinhard.: Desorption of halogenated organics from model solids, sediments, and soil under unsaturated conditions, 2, Kinetics, *Environ. Sci. Technol.*, Vol.28(1), pp.63-72, 1994.
- 8) Werth, C. J., J. A. Cunningham, P. V. Roberts, and M. Reinhard.: Effects of grain-scale mass transfer on the transport of volatile organics through sediments, 2, Column results, *Water Resour. Res.*, Vol.33(12), pp.2727-2740, 1997.
- 9) Scher, H., M. F. Schlesinger, and J. T. Bendler.: Time-scale invariance in transport and relaxation, *Phys. Today*, Vol.44, pp.26-34, 1991.
- 10) Neuman, S. P.: Universal scaling of hydraulic conductivities and dispersivities in geologic media, *Water Resour. Res.*, Vol.26(8), pp.1749-1758, 1990.
- 11) Hess, K. M., S. H. Wolf, and M. A. Celia.: Large-scale natural gradient tracer test in sand and gravel, Cape Cod, Massachusetts, 1, Hydraulic conductivity variability and calculated macro-dispersivities, *Water Resour. Res.*, Vol.28(8), pp.2011-2027, 1992.
- 12) Montroll, E. W., and H. Scher.: Random walks on lattices. IV. Continuous-time walks and influence of absorbing boundaries, *J. Stat. Phys.*, Vol.9, pp.101-135, 1975.
- 13) Koch, D., and J. F. Brady.: Anomalous diffusion in heterogeneous porous media, *Phys. Fluids.*, Vol.35, pp.965-973, 1988.
- 14) Berkowitz, B., and H. Scher.: On characterization of anomalous dispersion in porous and fractured media, *Water Resour. Res.*, Vol.31, pp.1461-1466, 1995.
- 15) Benson, D. A.: Fractional advection-dispersion equation: development and application, Ph.D. thesis, University of Nevada, Reno, 1998.
- 16) Hatano, Y., and N. Hatano.: Dispersive transport of ions in column experiment: An explanation of long-tailed profiles, *Water Resour. Res.*, Vol.34, pp.1027-1033, 1998.
- 17) Sokolov, I. M., J. Klafter, and A. Blumen: Fractional Kinetics, *Physics Today*, November, pp. 48-54, 2002.
- 18) 杉本信正: 非整数階微分・積分とその応用, 日本流体力学会「ながれ」, 4, pp.110-120, 1985.
- 19) 広田良吾: 差分方程式講義, サイエンス社, 2000.
- 20) 中山真一, T. T. Vandergraaf, 熊田政弘: 深地層条件下における放射性核種の移行実験, 放射性廃棄物研究, Vol.1(1), pp.67-76, 1994.
- 21) Silliman, S. E., and E. S. Simpson.: Laboratory evidence of the scale effect in dispersion of solutes in porous media, *Water Resour. Res.*, Vol.23(8), pp.1667-1673, 1987.

(2003. 9. 30受付)