

IP理論にもとづく 空隙中DNAPL残存特性の基礎的研究

FUNDAMENTAL STUDY ON CHARACTERISTICS OF ENTRAPPED DNAPL DROPLETS IN PORES BASED ON INVASION PERCOLATION THEORY

佐々木 孝¹・佐藤 邦明²
Takashi SASAKI and Kuniaki SATO

¹正会員 博(工) (株)アーク情報システム 先端技術センター(〒222-0033 横浜市港北区新横浜3-22-17)

²正会員 工博 埼玉大学名誉教授 (〒338-8570 さいたま市桜区下大久保255)

Characterization of DNAPL (Dense Non-Aqueous Phase Liquids) penetrating process near source zone gives suggestions to make measures against the groundwater contamination and remediation. The study aims at formulating mathematical model for realizing DNAPL droplets behavior using random-walking with entrapped detention factor by capillary pressure. Comparing fingering model based on the invasion percolation theory with experimental data, the results presented that the entrapped coefficient λ , which is a characteristic parameter in the proposed DNAPL migration model, is related to both capillary number and bond number.

Key Words : DNAPL, fingering, invasion percolation, random-walk-method, entrapped effect

1. 序論

環境省の調査によれば, 平成16年度末時点における地下水環境基準の超過事例は3120件(累積)であり, そのうちVOC(揮発性有機塩素系化合物)によるものが1711件, 中でもトリクロロエチレン, テトラクロロエチレンによるものが大半を占め, その対策は緊急の課題となっている. これらの物質は, 粘性や表面張力が水より小さく, 水より重く, 水に溶けにくい(難水溶性)性質を持ち, DNAPL (Dense Non Aqueous Phase Liquid)とも呼ばれる.

DNAPLは水より浸透しやすく, 大量に漏洩すると土壌空隙中や地下水面上に原液溜りができ, 徐々に溶解して長期に亘る高濃度の汚染源となる. 汚染状況を把握し, 人の健康被害を防止する土壌汚染対策法(平成15年2月15日施行)の趣旨を実現するため, こうした物質による汚染機構の解明や修復技術の研究開発が求められている.

飽和多孔体へのDNAPLの侵入は, 二流体の不安定現象の一種としてフィンガリング(人の指を広げた形の流れ)とも呼ばれ, 多くの研究が行われてきた¹⁾⁶⁾. 著者らはfiltering理論によりフィンガリングをモデル化した空隙内拘束係数の定式化⁷⁾をもとに, ランダムウォークと高精度差分法を連成した新しいDNAPL移行解析手法を開

発し, 差分連成ランダムウォーク法(a coupled Finite Difference-Random Walk Method : FD-RWM)と名づけ, 汚染現地への適用を試みた⁸⁾⁹⁾. この手法の特徴は, DNAPL原液の液滴スケールと現地規模の格子スケールとを同時に表現し, 汚染源近傍を高精度化しつつ現地に適用できる点にある. 液滴の重力沈降にランダムウォーク法, 溶液移流分散に差分法を用い, 空隙内拘束・残存モデルで両者を結合する.

ここでは, 2次元フィンガーの占有部分に着目し, 差分連成ランダムウォーク法の中核をなすDNAPL残存モデルの空隙内拘束係数 λ について, Invasion Percolation(IP)理論¹⁰⁾によるフィンガリングモデルの結果との比較を行い, IP理論により得られたDNAPL密度分布がDNAPL残存モデルにより再現されることを示す.

さらに, 既往の実験によるDNAPL密度(濃度)分布から, λ がフィンガリングを特性づけるキャピラリー数(capillary number: 流れの速度, 粘性係数の積と界面張力の比), ボンド数(bond number: 二流体の密度差による浮力と界面張力の比)と関連することを明らかにする.

フィンガリングは, 古くは微小平板間隙の粘性係数の異なる二流体問題(Hele-Shaw model), また石油掘削における原油と水の二流体侵入問題として1950年代より研究され¹⁾²⁾, Kueper and O'Frindにそのレビューがある³⁾. ラ

ランダムウォークによる粒子の凝集モデル(DLA: Diffusion-Limited Aggregation)⁴⁾, Percolation (浸透) 理論により多孔媒体をネットワークとしたモデル化⁵⁾⁶⁾などがある。

非重力場のフィンガリングの理論付けは, Lenormand *et al.*¹¹⁾のキャピラリー数と二流体の粘性比を軸とした相形態分類図(Phase Diagram)がある。重力場におけるフィンガリングは, ボンド数で特性付けられ, これをパラメータとして組込んだモデル^{10),12)}や, ボンド数を第三軸としたPhase Diagram¹³⁾が提案されている。Flury and Flühler¹⁴⁾は, DLAをもとに水平・鉛直方向への移動確率を変化させることにより, 鉛直フィンガリングをモデル化し, 実験との比較によりモデルの有効性を示した。

また, Dawson and Roberts¹⁵⁾ は室内実験によりDNAPLの残留飽和度がキャピラリー数とボンド数の線形式で表されることを示した。Trantham and Durnford¹⁶⁾は, マクロ的なキャピラリー数とボンド数の和からなる遷移数(Transition number)を定義し, 実験にもとづくDNAPL占有面積と遷移数の関係をもとにDLAによりフィンガリングを再現して実験結果と比較した。

これまでのPercolation理論やIP理論の成果により, 数理的に生成されたフィンガリング形状が室内実験と比較検証され, 実験結果を再現できることが確認されている。

IPやDLAにもとづくフィンガリングモデルは, 空隙中の侵入流体の内部圧力と界面張力の均衡が崩れて隣接する空隙に侵入する過程, すなわち圧力方程式における変動をモデル化し, どの空隙で不均衡となるかを確率的に表現してランダムウォークを実行している。一方, 連続流体を前提とした移流分散型の支配方程式をランダムウォークで離散化する場合は分散項が対応する。いずれも楕円型の式を確率的に表現したものとなっている。さらに, 侵入流体の空間分布は, 巨視的には濃度分布としてとらえられ, IPやDLAによるフィンガリングモデルと本手法の特徴である液滴ランダムウォークは, 巨視的には同一の現象を把握可能といえることができる。

2. モデルと方法

(1) IP理論によるフィンガリングモデル

Meakin *et al.*¹⁰⁾ は, IP理論によるフィンガリングモデル(IPモデル)にもとづく数値シミュレーションから, 重力場におけるフィンガリング形状を表す特性幅 ξ_w と, (1)式に示すボンド数 B_0 との関係式(2)を明らかにした。(2)式が, 重力安定場(上層からの密度の小さい流体の侵入, あるいはその逆の場合, $B_0 > 0$)だけでなく, 重力不安定場(下層から密度の小さい流体が侵入する, $B_0 < 0$)についても成り立ち, B_0 の値によりフィンガリング形状が異なるとした。

$$B_0 = \frac{\Delta\rho g \delta^2}{\gamma} \quad (1)$$

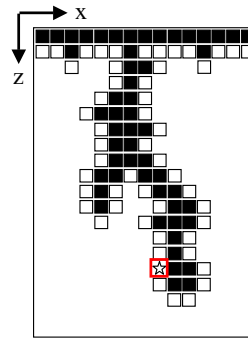


図-1 IPによるフィンガリング
アルゴリズム

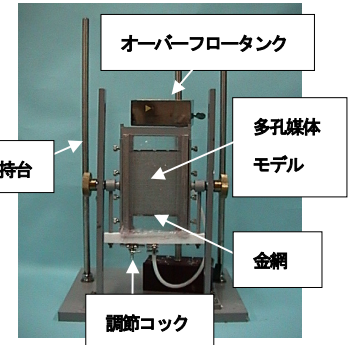


図-2 実験装置

$$\xi_w \approx \left| B_0 \right|^{\frac{\kappa}{\kappa+1}} \quad (2)$$

ここで, δ : 空隙サイズ, $\Delta\rho$: 二流体の密度差, γ : 界面張力, g : 重力加速度である。 κ はPercolationの指数で, 値はモデルの次元が2の場合, $\kappa = 4/3$, $\xi_w \approx B_0^{.47}$ ($\approx$ は近似的に等しいことを示す)となる。

シミュレーションは, x方向×z方向が1024×2048の格子について行い, 上端から流入(1024全格子のいずれか), 下端へ流出, 側方を周期境界として, 一様乱数をもとに各格子に(3)式で示されるしきい値を設定して, 二液界面の全しきい値から最小の値を持つ格子に流体が侵入するというアルゴリズムを用いている。ここで, X_i は, $0 \leq X_i \leq 1$ となる一様乱数, h_i は鉛直方向正規座標($0 \leq h_i \leq 1$), i は各格子を表す。

$$r_i = X_i + B_0 h_i \quad (3)$$

図-1にフィンガー成長過程のアルゴリズムを示す。流体が侵入した格子を■で表示し, フィンガリング形状を生成する。上端一列は初期値, 途中までフィンガーが発達した段階で□と示した隣接格子のうち最小の r_i を持つ格子☆に次のフィンガーが侵入する。

(2) DNAPL残存量を求める空隙内拘束係数 λ の定式化

DNAPL残存量は, 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, 水中の懸濁質ろ過の概念に準じて定式化した^{7)8), 17)}。残存DNAPL量を(4)に示す。filtering理論において, ある点zにおける残存量変化率がその点の濃度に比例すると仮定する。図-2のような実験装置を用いて, 飽和多孔体中のフィンガリング形状と空隙中の残存量を測定し, 空隙内拘束係数 λ を求めた。 Q_m , Q_{out} をそれぞれ装置への流入, 流出量, 残存DNAPL量 ΔQ をその差で表すと λ は(5)式で表される。

$$\frac{dC_n \theta_n}{dz} + \lambda C_n \theta_n = 0; \quad \rho_n \frac{\partial \theta_e}{\partial t} \equiv \lambda C_n \theta_n \quad (4)$$

$$\lambda = -\frac{1}{L} \log_e \left(\frac{Q_{out}}{Q_{in}} \right) = -\frac{1}{L} \log_e \left(1 - \frac{\Delta Q}{Q_{in}} \right) \quad (5)$$

$$\lambda = \frac{3(1-\varepsilon)}{2d_p} \zeta \eta \quad (6)$$

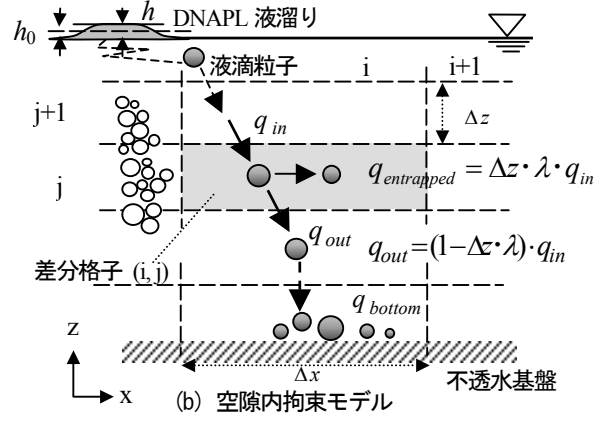
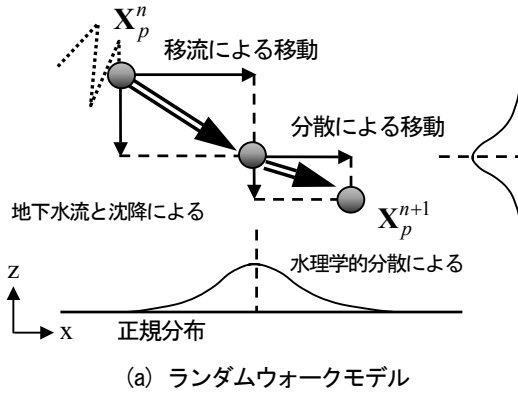


図-3 液滴粒子のランダムウォークと空隙内拘束のモデル化

ここで θ_n , θ_e : 原液, 残存DNAPL体積含有率, C_n : DNAPL濃度, ρ_n : DNAPL密度, λ : 空隙内拘束係数, L : 多孔体モデルの長さである. 一方, λ はfiltering理論から, 土壌平均粒径 d_p , 空隙率 ϵ , 係数 ζ , η を用いて(6)式のように定義される.

(3) 液滴DNAPLのランダムウォークモデル

図-3(a)に原液DNAPL液滴粒子のランダムウォークモデル模式図を示す. 計算液滴粒子は地下水流に比例して水平方向に移動し, 重力により沈降する. 直径(質量)の異なる数種類の液滴を想定してStokes則にもとづき異なる沈降速度で運動させ, 重力沈降による原液移流分散の挙動が再現できる. ランダムウォークとDNAPL残存モデルの関連付けを図-3(b)に示す. 入力した液滴質量 q_{in} が係数 λ により空隙内拘束DNAPL $q_{entrapped}$ とそれ以外 q_{out} に振り分けられる.

(4) 空隙内拘束係数 λ の特性検討

Dawson and Roberts¹⁵⁾によれば, 重力場における空隙中のDNAPL残存を支配する方程式系は次のように表される. (7)式はキャピラリー数の定義式である.

$$C_a = \frac{\nu\mu}{\gamma_{nw}} \quad (7)$$

NAPLと水の界面では(8)式が成り立つ. (8), (9)式から(10)式が得られる. この式は, 混じり合わない二液の運動(左辺)が毛管圧(右辺)に等しいことを示す.

$$\left. \begin{aligned} P_c &\equiv P_n - P_w \\ u_n &= -\frac{KK_{rm}}{\mu_n} (\nabla P_n + \rho_n g \nabla z) \\ u_w &= -\frac{KK_{rw}}{\mu_w} (\nabla P_w + \rho_w g \nabla z) \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

$$\frac{u_w \mu_w}{KK_{rw}} - \frac{u_n \mu_n}{KK_{rn}} - \Delta \rho g \sin \alpha = \nabla P_c \quad (10)$$

ここで, ν : 空隙平均流速, u : ダルシー流速, μ : 粘性係数, K : 固有浸透係数, K_r : 相対浸透係数, P_c : 毛管圧, α : 流れの方向が水平方向となす角, $\Delta \rho \equiv \rho_n - \rho_w$, n, w はそれぞれNAPLと水を表す.

(1), (7), (11)式を用いて(10)式の無次元化を行い, 空隙スケールのキャピラリー数, ボンド数の線形式を表す(12)式に帰着する.

$$\frac{u}{\epsilon} = v; \quad \delta^2 = \frac{K}{\epsilon}; \quad \nabla^* = \delta \nabla; \quad P_c^* = \frac{P_c}{\gamma_{nw}} \delta \quad (11)$$

$$C_{aw} \left(\frac{1}{K_{rw}} \right) - C_{an} \left(\frac{1}{K_{rn}} \right) - B_o \sin \alpha = \nabla^* P_c^* \quad (12)$$

一方, Trantham and Durnford¹⁶⁾は, 同様の式展開から, (10)式をもとに, (13)式による無次元化を行い, (14)式に示されるマクロ的な毛管圧の関係式を得た(鉛直下向きを正).

$$\hat{\nabla} = \ell \nabla; \quad \hat{P}_c = \frac{P_c}{P_d} \quad (13)$$

$$\frac{u_w \mu_w \ell a}{KK_{rw} P_d} - \frac{u_n \mu_n \ell a}{KK_{rn} P_d} + \frac{\Delta \rho g \ell \sin \alpha}{P_d} = \hat{\nabla} \hat{P}_c \quad (14)$$

ここで, P_d : 代表圧力, ℓ : 代表長さ, a : 空隙スケールからマクロスケールへの変換定数で 10^2 としている.

(15)式で定義されるマクロキャピラリー数, マクロボンド数の関係から(14)式は(16)式のように表され, 遷移数 T が定義される.

$$\overline{C_a} = \frac{\gamma_{nw} \epsilon \ell a}{KK_r P_d} C_a; \quad \overline{B_o} = \frac{\gamma_{nw} \epsilon \ell}{KP_d} B_o \sin \alpha \quad (15)$$

$$\hat{\nabla} \hat{P}_c = \overline{C_{aw}} - \overline{C_{an}} + \overline{B_o} \equiv T \quad (16)$$

Trantham and Durnfordは遷移数 T をもとに, DNAPLフィンガリングの室内実験から画像処理によりフィンガー占有面積比 S を求め, S から付着確率 Ps を求めてDLAモデルにより, 鉛直二次元のフィンガリングを再現した. Ps と T の関係は(17)式として得られている.

ここでは, Trantham and Durnfordがフィンガリングモデルの検証に使用したDNAPL実験結果のフィンガー占有面積をもとに, (18)式で定まる λ と, 遷移数 T の関係を整理する.

$$Ps = 0.12278221 |T|^{-1.3240317} \quad (17)$$

$$\lambda = -\frac{1}{L} \log_e \left(1 - \frac{\Delta Q}{Q_{in}} \right) = -\frac{1}{L} \log_e (1 - S) \quad (18)$$

表-1 フィンガリング実験結果とIPモデルによるシミュレーション結果

Case	実験結果 ⁷⁾				シミュレーション結果(50 回の平均値)			
	C1a	C1b	C2	C3	$B_0 = 0$	$B_0 = -0.0001$	$B_0 = -0.001$	$B_0 = -0.01$
ガラスビーズ粒径 d	1mm	1mm	2mm	3mm	-	-	-	-
L (m)	0.14	0.10	0.14	0.14	1.0	1.0	1.0	1.0
空隙率 ϵ	0.315	0.315	0.385	0.425	-	-	-	-
有効空隙率 n_{eD}	0.073	0.102	0.064	0.057	-	-	-	-
フィンガー占有比 S	-	-	-	-	0.306	0.148	0.0516	0.0161
Q_{out}/Q_{in} ($=1-S$)	0.428	0.486	0.405	0.458	0.694	0.859	0.948	0.984
λ (m^{-1})	5.93	7.20	6.58	7.10	0.365	0.152	0.0534	0.0161

3. 解析結果と考察

(1) IPモデルによるフィンガリングの再現

著者らは, Meakin *et al.*と同じ条件で $B_0 = 0, -0.0001, -0.001, -0.1$ の計算をそれぞれ50回ずつ行い, ほぼ同様のフィンガリング形状を得た. 図-4は実験によるガラスビーズ粒径が1mmの場合のフィンガリング形状, 図-5は B_0 数が異なる場合のシミュレーション結果のフィンガリング形状を示す.

IPモデルによるシミュレーションでは, フィンガーが下端に到達して計算が終了する. 図-5に示したように■をDNAPLが拘束された格子として全領域格子数との比(面積比)を S とする. 全格子点数が流入量, DNAPL格子数が残存量に当たる. 各ケース50回の平均の面積比 S をもとにIPモデルによる λ を $L=1(m)$ として(18)式より求め, 実験による粒径1, 2, 3mmの結果とともに表-1に示した. 実験による結果が $\lambda = 5.93 \sim 7.20$, IPモデルは B_0 に対応して $\lambda = 0.0161 \sim 0.365$ の値が得られた. 実験との差は, 主として流入量の定義の違いによると思われる. フィンガリング形状をIPモデルの結果と比較すると, 実験結果は $B_0 = -0.0001$ と $B_0 = -0.001$ の間にあると判断される.

(2) IPモデルにもとづくDNAPL残存量の検討比較

$B_0 = 0, -0.0001, -0.001, -0.1$ のフィンガリング占有面積から定めた λ の値をもとに, 構築した原液液滴のランダムウォークモデルと空隙内拘束・残存DNAPLの定式化の検証を行う. 水平流速はなしとする. IPモデルによる面積比から求めた $1-S$ の値が0.7, 0.85, 0.95, 0.984に相当する $\lambda = 0.3567, 0.1625, 0.05129, 0.001613(m^{-1})$ を用いて, 原液液滴のランダムウォークにより, 空隙内に拘束されるDNAPL量を計算した. IPモデルの z 方向長さ $L=1(m)$ に対応させ, 計算領域は $x=50, z=100, \Delta x=\Delta z=1$ (水平, 鉛直, 格子幅, $10^{-2}m$)である. Δt 時間ステップ(1秒)ごとに, 粒径 $\delta_p = 0.01 \sim 0.1(10^{-2}m)$ の7種の液滴を一様乱数をもとに発生させ, 1200ステップ(20分)までに各格子に拘束・残存するDNAPLの流下方向分布を, IPモデルによる50回平均の結果と比較した. 図-6にグラフを示す. (a)-(d)のそれぞれについて, 上段がIPモデルによる分布, 下段が本モデルによる結果である. (d)のみ縦軸を対数で示す. 液滴ランダムウォークの結果は,

表-2 フィンガリング実験による遷移数 T と占有面積比 S の関係 (文献¹⁶⁾をもとに作成)

DNA PL	T	S	λ	DNA PL	T	S	λ
DCA	0.393	0.0424	0.0433	PCE	0.264	0.0645	0.0667
DCA	0.544	0.0585	0.0603	PCE	0.312	0.0636	0.0657
DCA	0.322	0.0731	0.0759	PCE	0.407	0.1172	0.1247
DCA	0.473	0.145	0.1567	PCE	0.207	0.0402	0.0410
DCA	0.214	0.0804	0.0838	PCE	0.248	0.0344	0.0350
DCA	0.364	0.1085	0.1148	PCE	0.127	0.0295	0.0299
CT	0.313	0.0644	0.0666	PCE	0.174	0.0429	0.0438
CT	0.338	0.1003	0.1057	MP	-2.44	0.0620	0.6613
CT	0.229	0.0612	0.0632	MP	-2.44	0.1376	0.9472
CT	0.254	0.0986	0.1038	MP	-2.44	0.1327	0.6306
CT	0.169	0.0445	0.0455	MP	-2.44	0.1174	0.3997
CT	0.194	0.0623	0.0643	MP	-4.98	0.2638	0.9746
CT	0.099	0.0275	0.0279	MP	-4.98	0.2137	-
CT	0.124	0.0464	0.0475	MP	-2.47	0.2921	1.4244
PCE	0.354	0.0551	0.0567	MP	-5.02	0.2739	1.3204
PCE	0.402	0.0825	0.0861	MP	-5.02	0.1734	-
PCE	0.496	0.0913	0.0957				

DCA: 1,2-Dichloroethane, CT: Carbon Tetrachloride, PCE: Tetrachloroethylene, MP: Mobile Pyrogard 53, T : 遷移数, S : 実験による占有面積比, λ : (18)式によるMPの補正前の S は上から0.0060, 0.0215, 0.0311, 0.0367, 0.0742, 0.2137, 0.0708, 0.0664, 0.1734である

ほぼ10分で定常に達しIPモデルによるフィンガリング分布を良く再現することが分かった. IPモデルとの比較から, 空隙内拘束係数 λ は単位長さ当りの量(線密度)に対応し, ボンド数と一定の関係を持つことが示唆された.

(3) 空隙内拘束係数 λ とキャピラリー数・ボンド数

Trantham and Durnfordの実験による面積比から(18)式により $L=1(m)$ として λ を求め表-2に示した. 遷移数 T と λ の関係を図化すると図-7となる. 装置の下底までフィンガーが達していないMPの結果は, 画像から基準長さをフィンガー長さとして面積比 S を補正した. 画像の掲載されていないMPの2ケースは λ を算定していない. 図中補正なしをlambda1:■で, 補正ありをlambda2:▲で表す. $\lambda = a|T|^b$ の当てはめの結果, 遷移数 $|T|$ が0.1から5の範囲で $a=0.22491, b=0.93238$, 相関係数 $R=0.88$ という結果を得た(a は $[L^{-1}]$ の次元). このことから λ がマクロキャピラリー数, マクロボンド数と関連付けられ,



図-4 実験によるフィンガリング形状

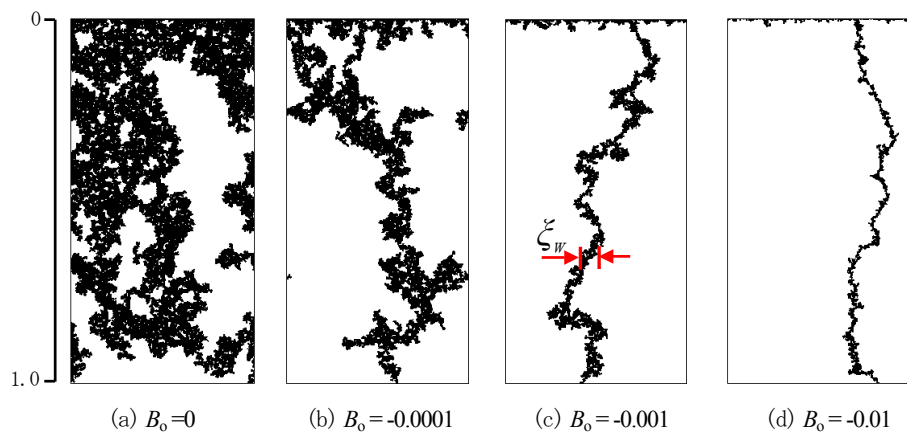


図-5 IPモデルによるシミュレーション結果

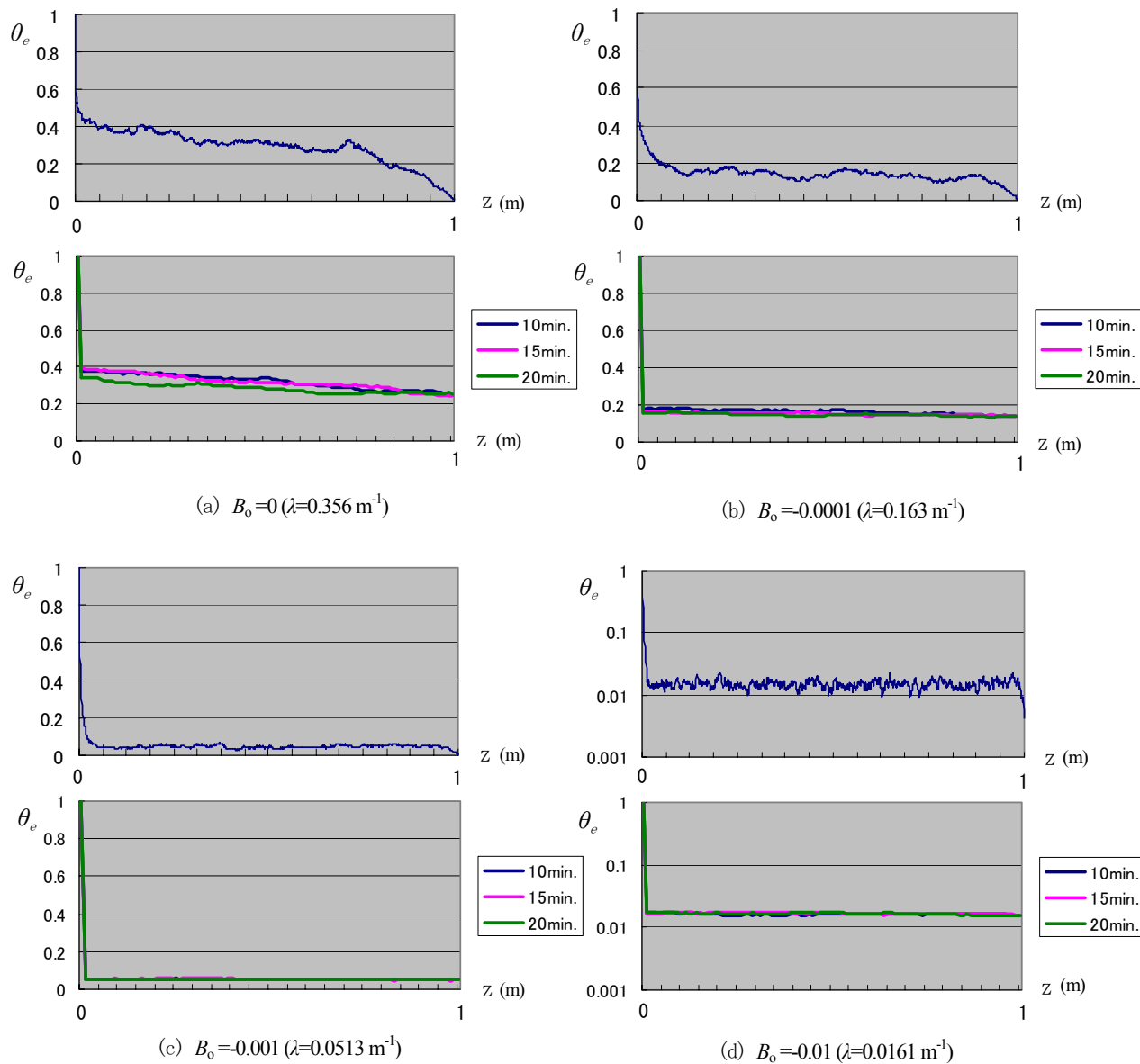


図-6 空隙内拘束係数 λ による残存DNAPL密度分布の比較（上段: IPモデル, 下段: DNAPL拘束・残存モデル）

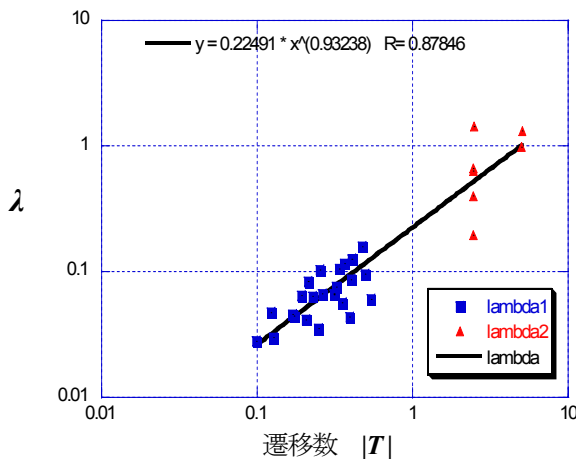


図-7 λ と遷移数 T の関係

これらの和 T が残存する部分を表す支配要素となり、(19)式により λ の算定が可能となることが示された。

$$\lambda = 0.22491 |T|^{0.93238} \quad (19)$$

4. 結論

本研究は、新たに開発した差分連成ランダムウォーク法(FD-RWM)の中核をなすDNAPL残存モデルの空隙内拘束係数 λ について、フィンガー占有面積に着目して、IP理論による残存分布と比較し、 λ がフィンガリングの特性量と関連付けられることを示したもので、次の3点にまとめられる。

- (1) IP理論にもとづくフィンガリング密度分布について、DNAPL原液液滴のランダムウォークと空隙内拘束・残存モデルによる再現性が示された。
- (2) 空隙内拘束係数 λ とキャピラリー数、ポンド数との関連付けが示された。
- (3) フィンガー占有面積による λ の算定、マクロ的なキャピラリー数、ポンド数にもとづく λ の定量化が可能となった。

本研究により、空隙スケール、実験室スケールで理論化されてきた従来のDLAやPercolation理論によるフィンガリング研究成果を、 λ の定式化を通じて現地規模の地下水汚染解析に導入することが可能となる。

謝辞： 本研究の一部は、2005、2006年の文部科学省科学研究費 基盤研究(C)17560483「拘束・残存・移行モデルによる原液DNAPLの地下水汚染修復支援数理ツールの開発（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) Scheidegger, A.E.: *The physics of flow through porous media*, 3rd Edition, University of Toronto Press, Toronto, p.229, p.231, 1974.
- 2) Homsy, G.M.: Viscous fingering in porous media, *Annual Review*

of Fluid Mechanics, Vol.19, pp.271-311, 1987.

- 3) Kueper, B.H. and O'Frind, E.: An overview of immiscible fingering in porous media, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.2, pp.95-110, 1988.
- 4) Witten, T.A. and Sander L.M.: Diffusion limited aggregation, *Physical Review B*, Vol.27, No.9, pp.5686-5697, 1983.
- 5) Chandler, R., Koplik, J., Lerman, K. and Willemsen, J.F.: Capillary displacement and percolation in porous media, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.119, pp.249-267, 1982.
- 6) Kueper, B. H. and McWhorter, D. B.: The use of macroscopic percolation theory to construct large-scale capillary pressure curves, *Water Resources Research*, Vol.28, No.9, pp.2425-2436, 1992.
- 7) 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, pp.313-318, 2004.
- 8) 佐々木孝, 佐藤邦明, 和田明: 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, 土木学会論文集, 第782号/II-70, pp.11-30, 2005.
- 9) Sasaki, T., Sato, K., Wada, A. and Giri, R.R.: DNAPL migration analysis by means of a coupled TVD finite difference method with random walk process, Proceedings of 31th IAHR Congress, Vol. Theme C, pp.2284-2293, Seoul, Korea, 2005.
- 10) Meakin, P., Feder, J., Frette, V. and Jøssang, T.: Invasion percolation in a destabilizing gradient, *Physical Review A*, Vol.46, No.6, pp.3357-3368, 1992.
- 11) Lenormand, R., Touboul, E. and Zarcone, C.: Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.189, pp.165-187, 1988.
- 12) Frette, V., Feder, J., Jøssang, T. and Meakin, P.: Buoyancy-driven fluid migration in porous media, *Physical Review Letters*, Vol.68, No.21, pp.3164-3167, 1992.
- 13) Ewing, R. P. and Berkowitz, B.: A generalized growth model for simulating initial migration of dense non-aqueous phase liquids, *Water Resources Research*, Vol.34, No.4, pp.611-622, 1998.
- 14) Flury, M. and Flühler, H.: Modeling solute leaching in soils by diffusion-limited aggregation: Basic concepts and application to conservative solutes, *Water Resources Research*, Vol.31, No.10, pp.2443-2452, 1995.
- 15) Dawson, H. E. and Roberts, P. V.: Influence of viscous, gravitational, and capillary forces on DNAPL saturation, *GROUND WATER*, Vol.35, No.2, pp.261-269, 1997.
- 16) 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.
- 17) 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.

(2006. 9. 30受付)