

II-104 多孔体中のトリクロロエチレン粒塊の溶解について

大阪大学工学部

正員 村岡浩爾・玉井昌宏

(株)熊谷組

正員 大西 淳

国立公害研究所水質土壌環境部 正員 平田健正

1. はじめに トリクロロエチレン(TCE)などの有機塩素化合物の有機溶剤(organic solvents: OSs)による地下水汚染が長期化しているが、その原因追求のためにはOSsの地下水への溶解に関してその機構と定量的な解明が必要である。筆者らの一部は既にガラスビーズ、砂、黒ボク土、鹿沼土に対して、不飽和帯、飽和帯及びその境界付近でのOSsの動態や存在状態を観察しており、地下水汚染への寄与は複雑な機構を有していることを示唆している¹⁾²⁾。そこで本報告では帯水層の多孔体中に存在するTCE粒塊に着目し、それが地下水流によって溶け出す量についての実験結果と解析モデルとの照合を扱った。

2. 問題の設定と解析の手法 これまでの実験により飽和多孔体中のOSsの存在状態は図1の(a)のようであろうと想像される。この状態で定量的な評価を行う実験は困難と考えられるので、(b)のように多孔体を一様な粒径のガラスビーズ(径1mm、3mmの2ケース)で置き換えたもので溶解実験をする。OSsは一般に水に対して難溶解性(TCEの溶解度: 約1100mg/l、25°C)であり、多孔体中のOSsの粒塊からの溶け出しが地下水汚染の初期段階で問題となるからである。この溶解現象の解析モデルとしては、(c)のように一様流の中においたOSsの球塊からの溶け出しを考えることにする。

3. ガラスビーズ多孔体中のOSsの存在状況の確認 ビーズ径1mm、3mm、5mmに変えて水で満たした多孔体上面に、種々の量のTCE塊をデジタルピペットで置いてみる。この結果、上から浸透落下して多孔体中に停留するTCEの大きな粒塊の規模は、空隙の規模、すなわちガラスビーズの粒径の規模とみられる。図2は3mmビーズの上に置いたTCE塊であるが、10μl塊ではビーズ空隙に落ち込んだ後どこかで止まる。40μl、80μlのように大きくなると、空隙に突っ込むように落ち、時にはちぎれた後に止まる。この時の粒塊の規模がガラスビーズ程度とみなし得る。そしてこの状態から次に述べる溶解実験へと進む。

4. TCE粒塊の溶解実験 ガラス製コラム(内径60mm、高さ約100mm)にガラスビーズを充填し、下方から蒸留水を通水する。予め上面から1/4の深さの面に並べたTCE塊(1mmビーズの場合は1.5μlを37個、3mmビーズの場合は40μlを7個、これらの粒塊はビーズ球に近い容量である。)を溶かして上部から浸出する水を定期的に採水してガスクロ(FID検出器)で濃度を出す。Darcy 流速は23.5~452.2cm/dayの範囲で5段階にわけ、5回実験をする。濃度の経時変化から溶け出し量などが計算できる。

5. 溶解実験の結果 コラム浸出で調べたTCE濃度変化は、1mmビーズの場合で図3のようになった。3mmビーズでも類似のパターンになる。測定直後の短時間では濃度に不揃いがあるが、そのあと濃度は減衰に向かい、Darcy 流速が小さい程ゆっくりとした減衰になる。この結果より以下のように考察が展開する。

6. 解析モデルと実験との対比 図1(c)のモデルで、TCE粒塊の体積V(球状とみなしている)の溶け出しによる減少dV/dtが、球の表面積S、Darcy 流速ūに比例すると仮定すると

$$\frac{dV}{dt} = -\alpha \bar{u} S, \quad \alpha: \text{無次元定数(溶解定数と名付ける)} \quad (1)$$

を得る。V=(4/3)πr³、(ここに r: 球の半径)、S=4πr²であるから、式(1)は

$$\frac{dV}{dt} = -\frac{1}{3} k_1 \alpha \bar{u} V^{2/3}, \quad \text{ここに } k_1 = (4\pi/3)^{1/3} \quad (2)$$

これを初期条件(t=0 で V=V₀)のもとで解くと

$$V(t) = - (k_1 \alpha \bar{u} t - V_0^{1/3})^3, \quad \frac{dV}{dt} = -\frac{1}{3} k_1 (k_1 \alpha \bar{u} t - V_0^{1/3})^2 \quad (3)$$

となり、Vは3次曲線、dV/dtは2次曲線の解が得られる。前述通り、図3より実験でのVの変化が求

められ、実験開始後短期間の濃度の不安定な部分を除いて濃度の最大値のところを改めて $t = 0$, $V = V_0$ とし、図に示したのが図4で、理論曲線（式（3）の無次元表示、図中の実線）と比較できる。また、図5のように実験時間中の α が示され、Darcy 流速が速いときは α はほぼ一定、遅いときは α はやや増加傾向とみられるものもある。それはさておき、この α を時間的に平均した $\bar{\alpha}$ を示すのが図6である。

7. 結論と今後の課題 1mmビーズの場合も3mmビーズの場合も図6では $\bar{\alpha}$ は一傾向を示しているが、本来ならDarcy 流速にかかわらず、 $\bar{\alpha}$ が一定、また図5で時間にかかわらず α が一定であるような解析モデルがほしい。もともと図1の（a）であるべき所が（c）のようにみなすところに無理があるが、（c）の場合に式（1）の $\bar{u}$ の代わりに摩擦速度 u^* のようなものを考えてみることも必要であろう。

【参考文献】 1)村岡・平田：有機塩素化合物の地下水汚染に関する実験的研究，ハイドロロジー，16，2，59～66，1987. 2)T.Hirata and K.Muraoka：Vertical Migration of Chlorinated Organic Compounds in Porous Media, Water Research, 22，4，481～484，1988.

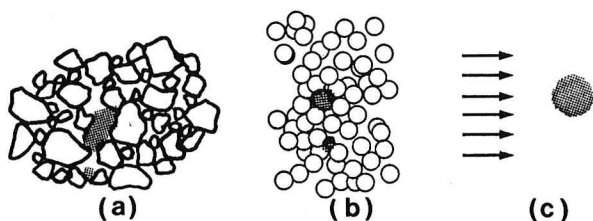


図1 多孔体中のTCEの存在状態（a）現実の予想図，（b）実験の状態，（c）解析モデル

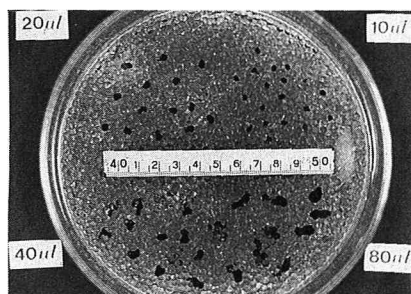


図2 3mmビーズ上のTCE塊

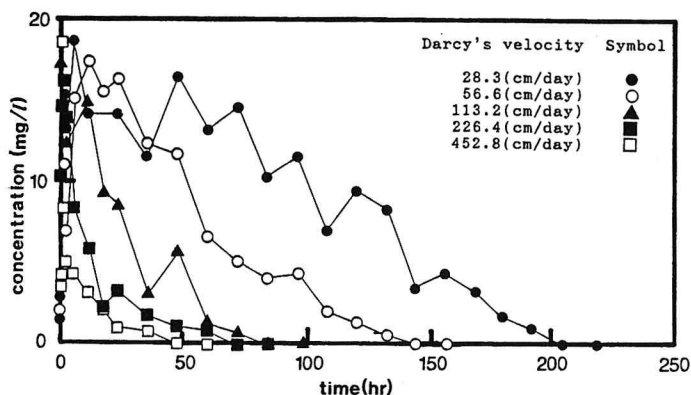


図3 浸出水TCE濃度の時間変化

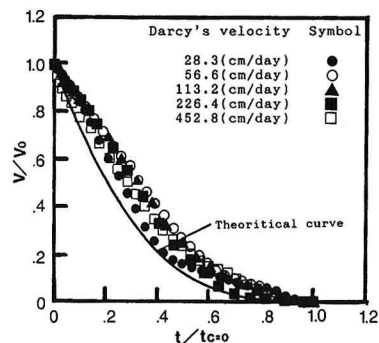


図4 TCE塊体積の時間変化

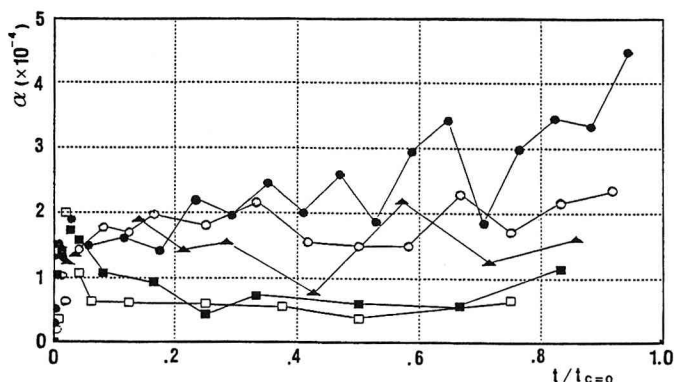


図5 溶出係数 α の変化（1mmビーズ，記号は図3と同じ）

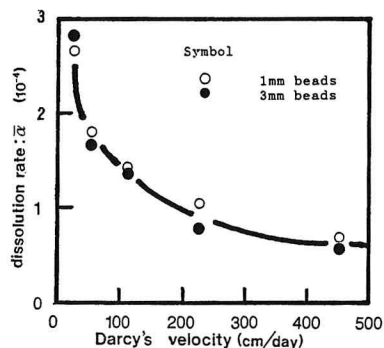


図6 平均溶出係数 $\bar{\alpha}$