

土壌水分の存在による有機塩素化合物ガスの挙動に関する基礎的研究

大阪大学大学院 学生員○李 昌洙

大阪大学工学部 正 員 石井義裕

大阪大学工学部 正 員 村岡浩爾

1. はじめに 近年、トリクロロエチレン(TCE)、テトラクロロエチレン(PCE)などの揮発性有機塩素化合物(VOC)による地下水汚染が環境問題の一つとして取り上げられ、大きな社会問題になってきている。不飽和帯中のVOCガスの挙動についてはまだ未解決点が多い。現実の土壌はいくつかの水分を含んでおり、その土壌水中へのVOCガスが溶解したり、また土壌中の有機炭素成分への吸着によりガス挙動が完全乾燥状態での実験結果とは異なってくることが考えられる。そこで我々は土壌中水分の存在によるトリクロロエチレン(TCE)ガスの溶解による遅れ現象について基礎実験を行い、その解明を試みた。

2. 実験の概要 内径15cm、高さ60cmのステンレス製円筒カラム(図1)を用い、鉛直1次元モデル実験を行った。モデル土壌として粗い砂(50%粒径: $d_{50}=1.2\text{mm}$ 、間隙率 $\theta_T=0.386$)を上端まで充填し、土壌表面下53cmの所に汚染源(TCE原液)を設定した。実験は地表面が被覆されている場合と裸地の場合を想定して表-1のように行った。拡散による各深さ(汚染源上5、10、20、30、40、50、53cm)での土壌ガス濃度を1、3、6、9、12、24時間後に測定した。温度によるTCEガスの影響を一定にするために実験は一貫して20°Cの恒温室内で行い、濃度分析にはガスクロマトグラフ(検出器:FIDおよびECD)を用いた。

表-1 実験のケース

上面状態	含水比(%)
被覆	0
	2.9
	4.8
開放	0
	2.3
	4.4

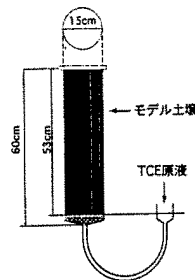


図-1 実験装置

3. 理論解析 本研究で用いたモデル土壌である粗砂中に有機物質を含ませていないので、土壌中の有機炭素性分による吸着の影響は排除し、土壌中水分の存在によるVOCガスの溶解の影響のみの遅れ現象に着目している。実験は温度勾配や圧力勾配などを与えずに行っているため、TCEガスの挙動を支配する現象は濃度勾配による気体分子の拡散である。Fickの第2法則による気体分子の1次元の拡散は式(1)のような形で表せる。

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

ここで、D:分子拡散係数(cm^2/sec)、C:濃度(mg/l)、t:実験開始後の時間(sec)、x:気液界面からの距離(cm) 水分が存在する多孔体中のガスの分子拡散は式(2)⁽¹⁾のようになる。

$$\tau \theta_D D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = \theta_D \frac{\partial C}{\partial t} + \rho_w (\theta_T - \theta_D) \frac{\partial C_D}{\partial t} + \rho_s (1 - \theta_T) \frac{\partial C_s}{\partial t} \quad (2)$$

ここで、 τ :屈曲率(tortuosity)、 θ_D :気相間隙率(含水比(w)=0、2.3、2.9、4.4、4.8%に対しそれぞれ $\theta_D=0.386$ 、0.356、0.351、0.338、0.339)、 θ_T :総間隙率(0.386)、 C_D :土壌水に溶解しているガスの濃度(M/L^3)、

C_s :土壌に吸着されるガスの濃度(M/L^3)、 ρ_w :土壌水の密度($=1\text{g}/\text{cm}^3$ 、 M/L^3)、

ρ_s :土壌粒子の密度($\approx 2.6\text{g}/\text{cm}^3$ 、 M/L^3)

土壤中に滞留している原液は非移動性と考えて、その移動性は無視する。土壌への吸着を無視する。固相、液相、気相間の平衡状態は迅速に達することを仮定すると、式(2)は次のように変形できる。

$$rD\theta_D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = R \frac{\partial C}{\partial t} (\theta_D) \quad R = 1 + \rho_w (\theta_T - \theta_D) / \theta_D \cdot H \quad (3)$$

ここで、R:遅れ係数(R=1(W=0%)、R=1.26(W=2.3%)、R=1.31(W=2.9%)、R=1.43(W=4.4%)、R=1.44(W=4.8%))

H:無次元ヘンリーの定数(20℃のTCEの場合:0.325)

(3)式を以下の初期条件、境界条件の下で計算($\Delta x=1\text{cm}$ 、 $\Delta t=1\text{sec}$)を行った結果を図4に示す。

上面解放の場合、 初期条件 : $C=0(t=0, 0 \leq x \leq L)$ 境界条件: $C=C_0(x=0)$ 、 $C=0(x=L)$

上面被覆の場合、 初期条件 : $C=0(t=0, 0 \leq x \leq L)$ 境界条件: $C=C_0(x=0)$ 、 $\Delta C/\Delta x=0(x=L)$

初期濃度 C_0 は理想的には飽和蒸気密度(520mg/l)とすべきであるが、気液界面の濃度は測定困難であるため、計算における C_0 は含水比0%の場合で24時間後にはほぼ平衡状態になると考えられるのでデータを外挿して決めた(280mg/l)。

3. 実験・計算結果 土壌ガス濃度の時間変化の実験・計算結果を図2(上面被覆)、図3(上面開放)に示す。縦軸は汚染源からの距離である。土壌中の含水比の増加とともに有機塩素化合物ガスの拡散が遅れていることがわかる。

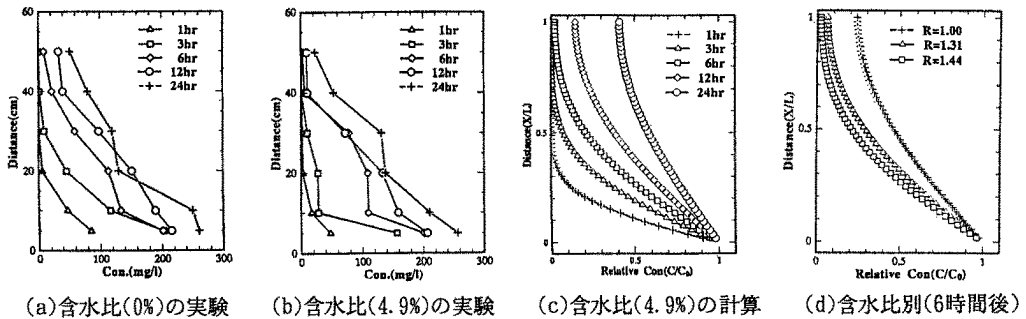


図2 実験・計算結果(上面被覆)

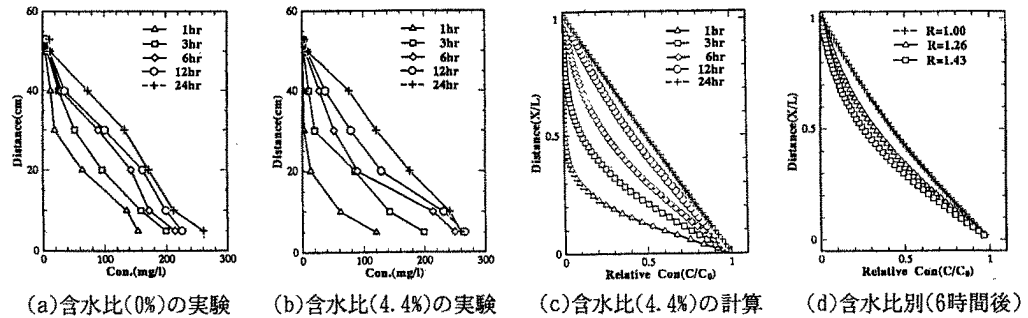


図3 実験・計算結果(上面開放)

5. 考察 実験・計算結果とも土壌中の含水比の増加に伴い同じ経過時間で土壌中の濃度分布は低下する。上面解放の場合、含水比を顧慮した遅れ係数を用いることで、実験結果を説明できる。上面被覆の場合、地表面の境界条件が複雑であるため、計算結果が実験結果より早く進行してしまうなど実験結果を十分には説明できない。

6. 参考文献 1. Weeks, E. P., D. E. Earp, G. M. Thompson, Use of atmospheric fluorocarbons F-11 and F-12 to determine the diffusion parameters of unsaturated zone in the southern high plains of Texas, W. R. R., 18(5), 1365-1378, 1982