

VII-292

水分不飽和多孔体中における難水溶性液体の残余量に関する実験的研究

北海道大学大学院工学研究科 正会員 石井一英 正会員 田中信壽 清野昭則

1. はじめに

トリクロロエチレン等による土壌・地下水汚染が社会的に問題となっている。汚染機構の解明、効率的な修復作業を行うためには、まず難水溶性液体 (NAPL) 原液の土壌層内での挙動が重要である。そこで本研究ではNAPLが浸透した後に土壌間隙に取り残されるNAPL残余量に着目し、まず懸垂水帯を模擬したガラスビーズ層を用いて実験的にその量を求め、そしてNAPLの物性値及びビーズ粒径による影響を明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

表1 NAPLの物性値

NAPL	密度(20℃) [g/cm ³]	粘性係数 [mPa·s]	表面張力(20℃) [mN/m]	水との界面張力 [mN/m]
TCA	1.3376	0.795	25.6	45.0
TCE	1.4649	0.580	29.5	35.0
PCE	1.6230	0.880	32.9	47.5
Bromoform	2.9035	2.110	45.5	40.9
Toluene	0.8660	0.586	28.4	36.3
water	0.9987	1.005	72.8	-

注：Bromoformの粘性係数のみ測定値

実験に用いたNAPLは、1,1,1-トリクロロエタン (TCA)、トリクロロエチレン (TCE)、テトラクロロエチレン (PCE)、プロモホルム、及びトルエンである(表1)。液体はいずれも透明なので、視覚的に確認しやすいようにズダンIVで赤色に着色した(濃度0.0001g/mL)。なお着色によるNAPLの物性の変化はなかった。

またガラスビーズは粒径0.18～0.212mmのもの広い粒径分布を有する0.074～1.0mmの2種類で、ビーズ表面のわずかな汚れも実験結果に影響を及ぼす恐れがあるため、ビーズをアルカリ洗剤に浸けておき、使用前に十分濯いでから使用した。

実験装置は、内径35mmのステンレス管を長さ25mm又は50mmに輪切りにしたものを積み重ねてカラムを組み立て、つなぎ目にはテフロンテープとビニールテープを巻き、さらに上下方向からねじで締め付けた(図1)。実験方法はカラムにガラスビーズをできるだけ均一になるように充填し、カラム下方から水飽和する。但しカラム底から5cmは、後述する水分調整のため粒径2mmのビーズを充填し、その上に実験対象となるビーズを充填した。それから懸垂水帯(水量が残余水飽和度程度で鉛直分布が一定である領域)を模擬するためカラム内の水分量を重力脱水の後ポンプで吸引し、水飽和度を0.07～0.08に調整した(但し対象ビーズ層下端は約0.2～0.4程度であった)。吸引条件は、0.18～0.212mmで2L/min;1h, 5L/min;1.5h, 0.074～1.0mmで2L/min;2h, 5L/min;3hである。それから次に示す2つの実験を行った。

実験a 空気-NAPL-水系の特性曲線の測定: NAPLをカラム下方から注入し、カラム内を再飽和する。その後自由NAPL面からNAPLを排出させ、2日後にカラムを分解し、NAPLと水の分布を測定する(粒径0.18-0.212mmのみ)。

実験b NAPL浸透後の残余量の測定: NAPLをカラム上方から、注入量、注入流量を変えて注入し(但し三方コックを取り外しカラム底を大気解放にする)、一定期間放置(0.18～0.212mm:48h, 0.074～1.0mm:96h～168h)した後にカラムを分解し、NAPLと水の分布を測定する。なお測定方法は、分解したカラムそれぞれから代表サンプルを採取し、n-ヘキサン抽出法で単位ビーズ当たりのNAPL量を求める。残ったサンプルと代表サンプルを乾燥し、全液体量を求め、NAPL量を差し引くことで水量を求めた。

3. 空気-NAPL-水系の特性曲線の測定(実験a)

測定結果の例(粒径:0.18～0.212mm, NAPL:TCE)を図2に示す。縦軸は、自由NAPL面基準の高さ、横軸は飽和度を表し、水の飽和度(三角印)と全液体飽和度(丸印)の間がTCEの飽和度を表す。そこで空気-TCEの2相系での特性曲線(別の実験で測定した)も図示し、3相系での特性曲線と比較する。3相系での特性曲線については全液体飽和度の曲線に注目すると、毛管力の小さ

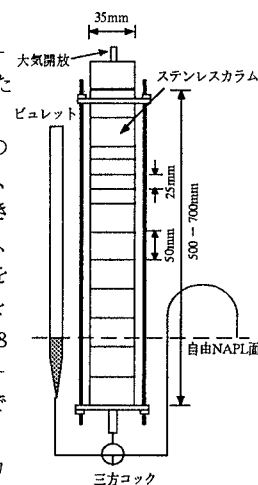


図1 実験装置図

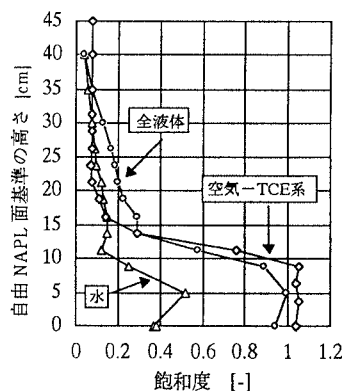


図2 特性曲線測定結果(TCE)

キーワード 土壌・地下水汚染 難水溶性液体 原液挙動 懸垂水帯 残余量

【連絡先】札幌市北区北13条西8丁目 北海道大学大学院工学研究科環境資源工学専攻廃棄物管理工学研究室

石井一英 tel (011) - 706 - 7284 FAX (011) - 706 - 7890 E-mail ishii@atmos.sany.hokudai.ac.jp

な領域(0cm~13cm)では両者の特性曲線はほぼ一致するが、飽和度が小さい領域では一致しない。その理由として飽和度が大きいとNAPLは連続して存在するが、飽和度が小さくなるとNAPLは不連続に存在するためであると考えられた。このような傾向は他のNAPLでも同じであった(但しPCEでは実験は行っていない)。

4. NAPL 浸透後の残余量(実験b)

4.1 残余 NAPL 飽和度の定義

次にNAPLが実際に浸透した後に取り残される残余量を測定した。その結果の例として粒径0.18-0.212mm, TCA(66mL)注入後45時間後の水とNAPLの鉛直分布を図3に示す。ここで20cm~40cm付近の水及びNAPLの飽和度が比較的一定である領域でのNAPL飽和度を、残余NAPL飽和度と定義する。実際の土壤環境では、懸垂水帯の領域が数mのオーダーで存在しているので、わずかな残余量でもその後の原液の浸透挙動に大きな影響を与えると考えられる。

4.2 注入量、注入流量の影響

TCAのみで注入量、注入流量による残余NAPL飽和度の変化を確かめた。実際には注入量 M と注入流量 q の間には、注入に要した時間 Δt とすると、 $q=M/\Delta t$ なる関係があるので、 M と Δt の組み合わせを変えて実験を行った。実験条件は粒径0.18-0.212mmの場合($M, \Delta t$)=①(11.1mL, 1s), ②(22.2mL, 2s), ③(66mL, 4min), ④(280mL, 79min)、粒径0.074-1.0mmの場合⑤(22.2mL, 1min), ⑥(51.9mL, 10min), ⑦(21.1, 20min)である。図4より注入量や注入流量に対して残余NAPL飽和度は変化しないことが確かめられた。

4.3 粒径及び物性値による影響

図5に粒径の違いによる残余NAPLの変化を示す。但し過去に行った実験である0.5-0.6mmの実験結果¹⁾も合わせて示した(PCEは行っていない)。広い粒径分布を有するビーズ(0.074-1.0mm)とその他の均一粒径のビーズとの比較が困難なため、固有浸透係数 k [m^2] で比較した。その結果固有浸透係数が大きくなると残余NAPL飽和度が小さくなる傾向が確認できた。また図6に物性の中で最も相関の高かった表面張力 σ_{an} との関係を示す。表面張力との関係が一番大きかった理由として、残余状態のNAPLはビーズ層間隙内に不連続に存在しているためであると考えられた。

4.4 Bond Number との関係

上記の結果から残余NAPL飽和度は、固有浸透係数、表面張力それぞれの指標だけでは残余NAPL飽和度の表現は不十分であることが分かった。そこでこれらの特性値から導き出されたBond Number ($Bo = \Delta \rho g k / \sigma_{an}$) なる無次元数を導入する(空気との比重差 $\Delta \rho$ 、重力加速度 g)。その結果を図7に示すが、プロモホルムを除くとBond Numberが大きくなるほど残余NAPL飽和度が小さくなる傾向が確かめることができ、Bond Numberと残余NAPL飽和度との間に一定の関係があることが示唆された。しかし全体的に点がばらついており検討が必要で、今後の課題である。またプロモホルムだけが異なる傾向を示すのは、spreading coefficient ($= \sigma_{aw} - \sigma_{an} - \sigma_{nw}$) なる水の上にNAPLがまかれたときにNAPLが示す挙動を決定するパラメータが存在²⁾し、正の値であれば油のように水の上に非常に薄く広がり、負の値であれば水の上に球状に存在する。そこでプロモホルム(-13.6)、PCE(-7.6)が負の値となり、特にプロモホルムが他のNAPLよりも間隙中に取り残されやすい性質を有することが確かめられた。

参考文献 (1) 石井一英: 特性の異なる難水溶性液体の水分不飽和多孔体中の浸透挙動に関する実験的研究, 第7回廃棄物学会研究発表会講演論文集, pp877-879 (1996) (2) W. Adamson: Physical Chemistry of Surfaces fifth edition, John Wiley & Sons, Inc. pp107-202 (1990)

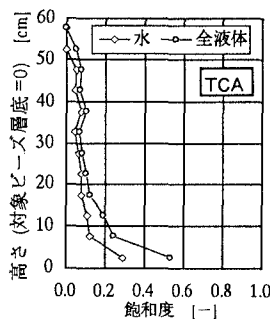


図3 TCA 浸透後の鉛直分布

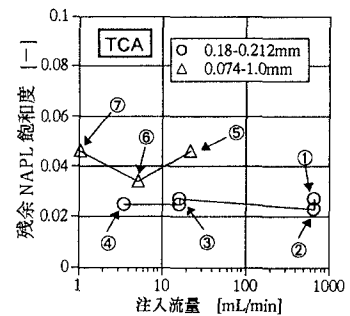


図4 注入流量による影響

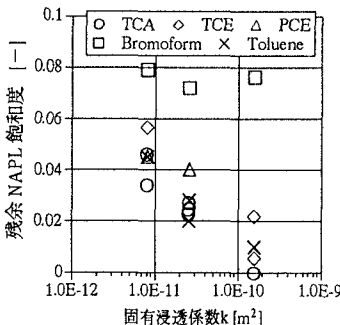


図5 粒径による影響

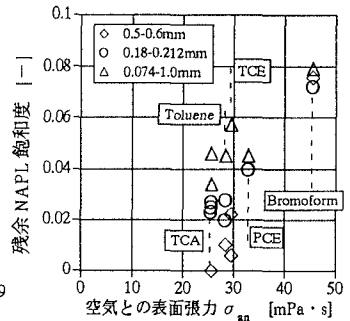


図6 表面張力による影響

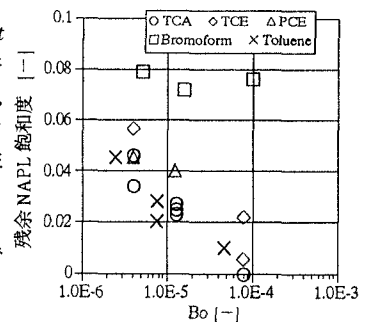


図7 Bond Number との関係