

地下水中の有機塩素化合物の不飽和帯への揮散に関する実験的研究

大阪大学大学院 学生員 ○豊口佳之
清水建設(株) 影山 雄
大阪大学工学部 正 員 村岡浩爾

1. はじめに

近年、有機塩素化合物による地下水汚染はメジャーな話題の1つである。この汚染機構の解明のためには、物質の地下環境における挙動を知る必要がある。そこでこの物質の特性の中でも特に興味深い‘揮発性’という事に着目し、汚染された地下水から土壌圏(不飽和帯)へと揮散していく過程について、円筒カラムを用いた鉛直1次元モデル実験を行い考察した。

2. 実験の概要

実験装置を図1に示す。内径15cm、高さ60cmのガラス製円筒カラムに上端から2.5cmの所まで1mm粒径のガラスビーズを充填した多孔体をモデル土壌としている。モデル土壌表面から下50cmは完全乾燥状態(土壌圏)、それより下方はトリクロロエチレン(TCE)水溶液を満たして飽和状態(地下水圏)としており、そこから上方への揮散現象を実験している。カラム上端には通気孔をつけた蓋がしてあり、外部との空気交換ができるようにするとともに地表面が風にさらされる事を避けている。また、装置は20℃の恒温室内に設置しているため、等温下の現象である。

実験は初期の地下水濃度を变化させ、3種類について行っている(表1)。測定したのは、土壌圏の各深さ(地下水面上1, 10, 20, 30, 40, 50cm)でのガス濃度の経時変化および実験終了後(192h後)の地下水の平均濃度である。土壌圏のガス採取は、先述の蓋の通気孔から挿入設置したステンレス製細管によって行った。また、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 実験ケース

CASE	地下水初期濃度
1	10.1mg/l
2	5.4mg/l
3	2.2mg/l

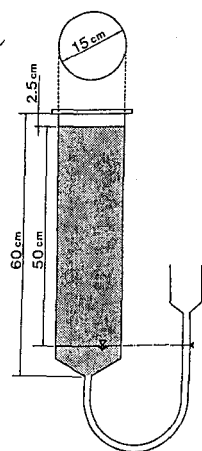


図1 実験装置

3. 理論計算

ここで、TCEガスの不飽和帯(気相)中における現象を考える。本研究では土壌圏が完全乾燥状態のガラスビーズなので、多孔体物質への吸着や土壌水への溶解などはない。また等温等圧下で実験しているため温度勾配や圧力勾配はなく、濃度勾配のみが存在する場合である。

このように2成分(本研究では空気とTCE)を含む気相に濃度差が存在すると、それを解消するように成分分子の移動(拡散)が生じる。その時、分子と分子との衝突が拡散に支配的である場合(通常拡散領域)と、分子と壁面との衝突が支配的である場合(クヌーセン拡散領域)とがある。そして多孔体の間隙の大きさが平均自由行程(ガスの場合、常温常圧で $10^{-8} \sim 10^{-7}m$)に近づくと分子と壁面との衝突が支配的になる¹⁾。

本研究の場合、間隙スケールがガラスビーズの粒径(1mm)と同程度であると考えれば、平均自由行程と比べて明らかに大きく通常拡散領域と考えられる。さらにTCEは十分希薄と考えられるため、Fickの法則が成り立つ。また、多孔体の存在により物質移動が屈曲した経路をたどるなどの効果を考慮にいたれた有効拡散係数は、分子拡散係数に補正項を掛ければよい¹⁾。

そこで、本研究で扱う現象の基礎式は次の様になる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \alpha \times D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (0 < z \leq L; \text{不飽和多孔体})$$

ここで、t: 実験開始時からの時間, z: 気液界面をz=0として鉛直上向きに正

Yoshiyuki TOYOGUCHI, Takeshi KAGEYAMA, Kouji MURAOKA

C : ガス濃度,

α : 多孔体を考慮する補正係数

D : 分子拡散係数 (ギリランドの式¹⁾ により得られる)

この式は、 t についての条件式 1 個 (初期条件) と z についての条件式 2 個 (境界条件) を与える事により解ける。初期条件は $C_{z=0, t=0} = 0$ である。また境界条件の 1 つは、モデル土壌表面 ($z=L$) で $C=0$ として与えられる。そこで気液界面 ($z=0$) での濃度が t の関数として $C=\phi(t)$ と与えられれば解が得られる。界面におけるガス濃度は、界面液相側の濃度と相平衡状態、すなわち比例関係にある事がわかっているが、実験的にも理論的にも正確な液相 ($-d \leq z < 0$) の濃度分布が得られていないため、厳密な解は得られていない。そこで実験結果より、液相の平均濃度 C_{lm} が $C_{lm} = C_0 e^{-\lambda t}$ (C_0 = 液相の初期濃度) と近似できる事を確かめた上で、界面のガス濃度がこれに比例する、すなわち $C_{z=0} = m C_{lm}$ (m : ヘンリー則から得られる定数) と仮定して計算した。

4. 実験結果の考察と今後の課題

図 2 に実験結果として各深さにおける濃度の経時変化を示す。各ケースとも地下水の濃度に応じてガス濃度の大きさは変化するが、同様な形状の推移をしている。

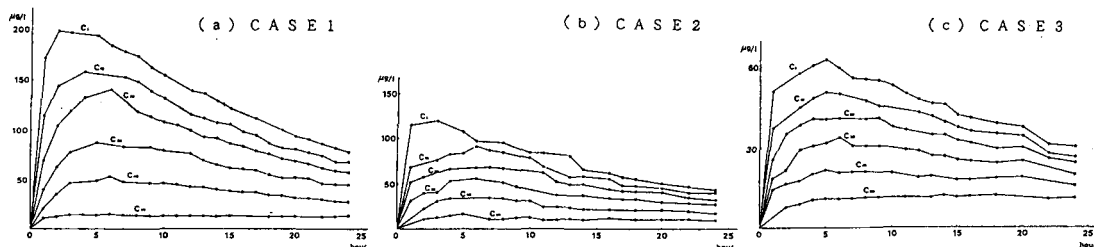


図 2 実験結果

図 3 は、CASE1 で補正係数 $\alpha = 1/3$ として計算したときの結果である。グラフの縦軸は、実験開始直後の気液界面気相側におけるガス濃度； $C_{z=0, t=0}$ で除して無次元化したものである。これを実験結果と比較するとピークの濃度が現れるまでの時間や形状はほぼ同様である。しかし、その後の濃度の低減傾向にはかなり時間的な差がある事がわかる。こうした傾向は、我々の行った 3 ケース全てにおいて同様である。これは、界面のガス濃度は実際には液相の界面濃度に比例するが、計算では液相の平均濃度と比例関係があると仮定した事に問題があると思われる。実験開始時には界面でも平均濃度とほぼ同程度の濃度であったものが、時間の経過と共に液相の濃度勾配が大きくなり、平均濃度で界面の濃度を近似する事の歪が出たものと思われる。

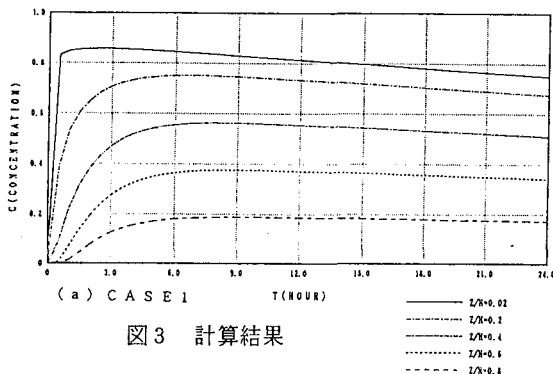


図 3 計算結果

これらの事を解決するため、厳密な理論計算を行う事が今後の課題である。

(参考文献)

- 1) 田中信寿・神山桂一：廃棄物埋立処分地におけるガス及びガス成分の移動について－廃棄物層・土壌層を流れるガスの移動方程式とその応用－，廃棄物学会誌，Vol. 2, No. 1, pp. 46-58, 1991
- 2) 谷下市松：伝熱工学，裳華房，pp. 293-294, 1986