

土壤水分の影響を受ける有機塩素化合物ガスの多孔体中挙動について

大阪大学大学院 学生員○李 昌洙
香川県 溝内寿昌
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 地下水は日本の水使用量の約6分の1、生活用水の約3分の1を占める身近にある貴重な水資源として広く活用されている。近年、この地下水が揮発性有機塩素化合物(VOC)によって汚染された地域などが報告され、大きな社会問題になってきている。その物質ガスの多孔体中の挙動についてはモデル土壤として完全乾燥のガラスビーズを使って解明したが、実際の土壤の中には水分、有機炭素成分などによってガスの広がりに遅れが生じる。そこで我々は土壤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。モデル土壤である粗い砂(50%粒径: $d_{50} = 1.2\text{mm}$ 、間隙率 $\theta_f = 0.386$)を上端まで充填し、土壤表面下53cmの所に汚染源(TCE)を設定する。実験は含水比(w)0.2, 0.9, 4.85%の3ケースについて行った。拡散による各深さ(汚染源上5, 10, 20, 30, 40, 50cm)での土壤ガス濃度を1, 3, 6, 12, 24時間後に測定した。実験中にモデル土壤のがん水比の変化を防ぐためカラム上端を被覆した。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。TCEの特性が温度により影響を受けるために実験は一貫して20°Cの恒温室内で行った。

3.実験結果 実験結果として図2に土壤ガス濃度の鉛直分布の時間変化を示す。縦軸は底面からの距離である。土壤中の含水比の増加とともに有機塩素化合物ガスの遅れていることがわかる。

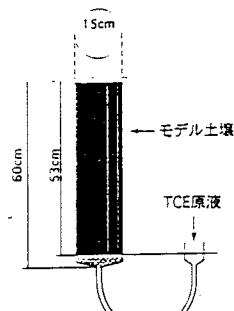


図1. 実験装置

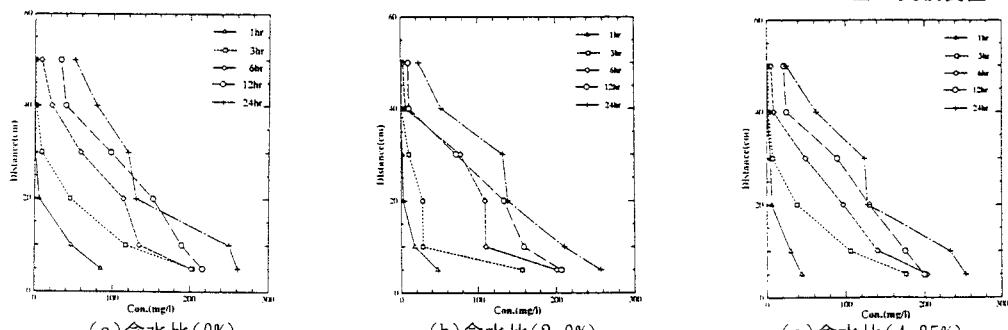


図2. 実験結果

4.理論解析 本研究では砂中に有機物質を含ませていないので、土壤中水分の存在による気体分子の溶解などの影響のみの遅れ現象に着目している。このように土壤中の有機炭素成分による吸着の影響は排除し、また温度勾配や圧力勾配などを与えずに実験をおこなっているため、TCEガスの移動現象を支配するのは濃度勾配

のみである。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(L^2/T)、C:濃度(M/L^3)、t=実験開始後の時間(T)

x:気液界面からの距離(L)

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, 2.9, 4.85%に対しそれぞれ θ_D =0.386, 0.351, 0.338)、 θ_T :総間隙率、 C_D :土壤水に溶解しているガスの濃度(M/L^3)、 C_s :土壤に吸着されるガスの濃度(M/L^3)、 ρ_w :土壤水の密度($=1, \text{M}/\text{L}^3$)、 ρ_s :土壤粒子の密度($\approx 2.6, \text{M}/\text{L}^3$)

土壤中に滞留している原液は非移動性と考えて、その移動性は無視し、固相、液相、気相間の平衡状態は迅速に達し、土壤に吸着されることを無視するから式(2)は次のように変形できる。

$$\tau D \theta_D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = R \frac{\partial C}{\partial t} (\theta_D) \quad (3)$$

$$R = 1 + \rho_w (\theta_T - \theta_D) / \theta_D \cdot H \quad (4)$$

ここで、R:遅れ係数(0% = 1, 2.9%, R = 1, 31, 4.85%, R = 1, 44), H:無次元ヘンリーの定数(20°C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3に示す。

$$\text{初期条件: } C = 0 \text{ (t=0, } 0 \leq x \leq L) \quad \text{境界条件: } C = C_0 \text{ (x=0), } \frac{\partial C}{\partial x} = 0 \text{ (x=L)}$$

初期濃度 C_0 は理想的には飽和蒸気密度(520mg/l)であるが、気液界面の濃度は測定できないから、汚染源界面から上方1cmの位置の実験値(260mg/l)を飽和濃度として計算を行った。

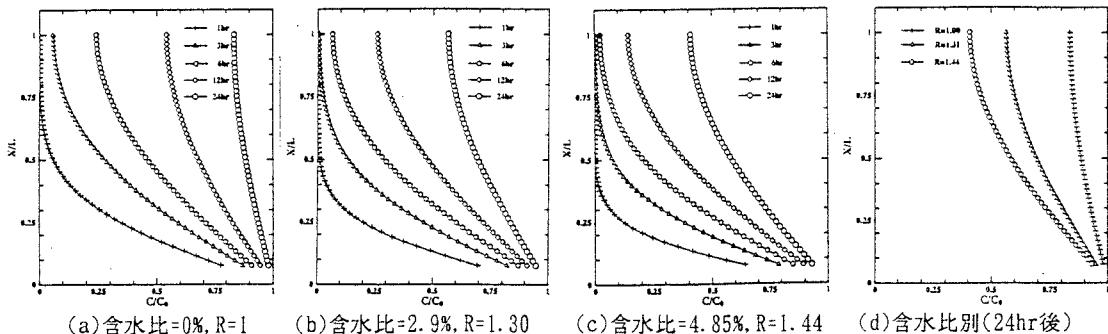


図3. 計算結果

5. 考察 濃度分布は実験・計算結果とも土壤中の含水比の増加に伴い低下する。上端部の濃度変化については実験結果が計算結果より遅いのは、実験では正確に土壤表面での測定が困難なため、表面下3cmで採ガスを行っていること、実験では理論のように $dc/dx=0$ という境界条件が果たして満足されているかどうか不明であることによる。

6. 参考文献

- 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