

(40) 水分不飽和多孔体におけるトリクロロエチレン原液の浸透挙動
に関する実験的研究

THE BEHAVIOR OF PURE TRICHLOROETHYLENE LIQUID IN WATER UNSATURATED/SATURATED
POROUS MEDIA: A EXPERIMENTAL STUDY

石井一英* 田中信寿* 松藤敏彦* 東條安匡*

Kazuei Ishii*, Nobutoshi Tanaka*, Toshihiko Matsuto*, Yasumasa Tojo*

ABSTRACT: To investigate the behavior of non-aqueous phase liquid (NAPL) such as trichloroethylene (TCE) in soil and ground water, one-dimensional column experiments are carried out with pure TCE as a contaminant and four kinds of glass beads (particle size: 1mm, 0.5–0.6mm, 0.18–0.212mm, 0.074–0.125mm) as porous media. In the column, pseudo ground water table is set. In the experiment, the behavior of TCE in the glass column is observed visually and recorded by a video camera. In the experiment with a stainless steel column, a vertical distribution of water and TCE is measured after TCE movement stops. From these experiments it is found that TCE injected into the column initially stagnates at the capillary fringe, and then some of TCE penetrates the capillary fringe and infiltrate to saturated zone. It is confirmed quantitatively that much of injected TCE remains above the pseudo ground water table in the experiment with 0.5–0.6mm and 0.18–0.212mm glass beads. To remedy contaminated soil and ground water, the behavior of TCE around the capillary fringe and ground water table is very important.

KEYWORDS: soil and ground water pollutions, TCE, capillary fringe, ground water table, vertical distribution

1. はじめに

1982年の環境庁による全国レベルでの井戸水の調査により、トリクロロエチレン (TCE)、テトラクロロエチレン等の有機塩素化合物による地下水汚染が発見された¹⁾。その後の調査でも国内のかかなりの広範囲で高レベルの汚染が存在することが明らかになった。このような土壌・地下水汚染が、全国レベルで進行していたことは、社会的に大きな問題となった。また一方で水質環境基準の改正 (平成5年3月)、排水基準の改正 (平成5年12月)、特別管理産業廃棄物の追加及び最終処分基準の改正 (平成7年4月) 等の規制の強化により、有害物質の不法投棄の増加、新たな汚染の発覚²⁾や汚染発生の可能性が懸念されている。

地下水層も含む土壌層内は、一旦汚染が生じてしまうと気圏や水圏に比べてその対策・修復の困難さから、汚染が長期に長引くことになる。一般に井戸水の水質を飲料水基準にまで修復するためには、莫大なコストと膨大な時間がかかってしまう³⁾。この原因の一つには、土壌層内での汚染物質、特に汚染物質原液の挙動が不明確であることが挙げられる。汚染物質原液の挙動を明らかにすることができれば、より効率的な汚染修復作業が行え、また有害廃棄物管理のための有益な情報が得られる。そこで本研究は、土壌層内での難水溶性汚染物質原液 (水と非混合性の液体、NAPL, Non-Aqueous Phase Liquid) の挙動に注目することにした。

NAPLの土壌層内における挙動に関しては、主として水よりも比重の小さい物質を対象に研究されてきた⁴⁻⁷⁾。しかしTCEなどの有機塩素化合物は水よりも比重が大きく、その研究はまだ多くはない。村岡、平田は有機塩素化合物の鉛直移動に関する研究⁸⁾を行っているが、結果は定性的であり定量的なデータは乏しい。またParkerら⁹⁾は、水よりも比重の小さい物質に対して研究されてきたモデルを用い、地下水面に到達したTCEが地下水を難透水層上部まで浸透し、そこに溜まって地下水流れの方にTCEが移動するという結果を得ている。しかし、地下水面付近や帯水層内がTCEで高濃度に汚染されている場合が多い¹⁰⁻¹¹⁾とのTCEによる汚染現場の測定結果とは一

*北海道大学 工学部 衛生工学科

Dept. of Environmental and Sanitary Eng. Hokkaidou Univ.

致せず、Parkerらのモデルはよいモデルであるとは言えない。そこで、本研究では汚染物質として、水より比重の大きいTCEを用い、その浸透現象を実験的に把握し、解析のための基礎的な実験データを得ることを目的とした。

2. ガラスカラム実験

2.1 実験方法

(1) 実験装置

まず、TCEの浸透挙動を視覚的に把握するために、内径47mm、長さ500mmのガラス製のカラムを用いて実験を行った(図1)。多孔質媒体としてガラスビーズ(粒径1mm, 0.5-0.6mm, 0.18-0.212mm, 0.074-0.125mmの4種)、そして汚染物質としてTCE(比重1.4649)をズダンIVで赤色に着色して用いた。なおガラスカラムの横には、カラム左右の側面も同時に観察できるように高さ30cmの鏡を置いた。ガラスカラム内には排水口高さに地下水面(自由水面)が模擬されている。一方村岡、平田⁸⁾は、メスシリンダー内にガラスビーズ(粒径1mm, 3mm, 5mm)を充填し、メスシリンダー内の半分まで水を注入することで地下水面を模擬し、メスシリンダー上部からTCEを注入し実験を行っている。その結果、水面に達したTCEは地下水面上で一旦停滞するが、粒径の大きい場合(5mm, 3mm)は飽和帯の間隙を縫うように浸透し、粒径の小さい場合(1mm)はほとんどのTCEは水面上に停滞したと報告している。定性的ではあるが、水よりも比重の大きいTCEが水面上に停滞するという結果を観察している。しかし実際の地下水面を考えた時、地下水面上に重いものが存在するとその付近の水は側方または、鉛直方向に移動するはずであり、メスシリンダー内の水が移動できない条件での村岡、平田の実験は、完全に地下水面を模擬しているとは言えない。本実験では、実験装置図(図1)からも分かるように、TCEがカラム上部から注入されると排水口から水が排出される。つまりカラム内の水が移動できる条件に設定しており、この点でより実際の地下水面に近い状態を模擬していると考えられる。

(2) 実験手順

- 1) ガラスカラムに充填高さが50cmになるようにガラスビーズを充填し、水タンクに給水する(ビーズを均質に充填するために、ビーズを少し充填し振動を加える操作を繰り返しながら充填した)。そしてガラスビーズ層の間隙中の空気を排出するために、水タンクからカラム内へ水をゆっくりと流れ込ませガラスビーズ層の水で飽和させる(粒径1mmで3h程度、その他の粒径で12h-24h)。
- 2) カラム内が水で飽和された後、三方コックを切り替え、水タンク及びカラム内の水を排水口から排水する。
- 3) 排水が終了(約1日程度)した後、TCEをカラム上部から注入しTCEの浸透挙動をビデオ撮影し、また時々刻々排水量を測定する。

またTCEの注入方法には、20mLのピッカーを用いカラム断面になるべく均一になるように一気に注入する方法(注入方法A)と、TCEの入った50mLのバイアルに空気を送り込むことによってステンレス管よりカラム断面の中央一点でTCEを注入する方法B(図2)の2通りとした。注入方法AはNAPLが一気に土中に投棄された場合を想定し、注入方法BはNAPL貯蔵容器からゆっくりと土中に浸透する場合を想定している。なお注入方法BのTCE注入流量は、すべての実験を通して約1mL/minである。

カラム内の模式的な水の分布を図3に示す。自由水面の位置が実験装置図(図1)の排水口に相当し、実験を通してこの位置は一定に保たれている。そして自由水面からビーズ層最下端までを「飽和帯」、自由水面からビーズ層最上端までを「毛管飽和帯」と「不飽和帯」に分けて呼ぶことにした。毛管飽和帯は水分で飽和かほとんど飽和に近い状態の部分と定義し、その最上端を「見かけの水面」と呼ぶことにした。さらにそれより上部を水飽和度が急激に減少する部分を「毛管不飽和

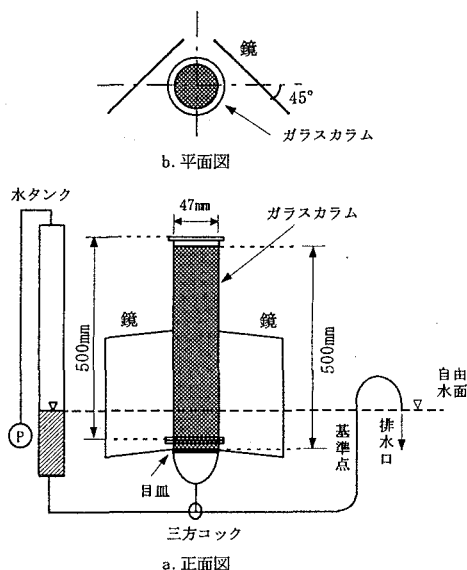


図1 ガラスカラム実験装置図

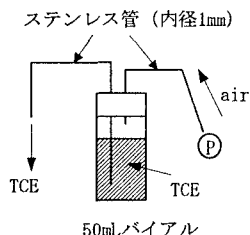


図2 注入方法B

帯」と呼び、残りの不飽和帯を「懸水帯」と分けて呼び、合わせて不飽和帯とした。

2.2 実験条件及び実験結果

表1に実験条件と平均浸透速度の測定結果を示す。自由水面高さで見かけの水面の高さは、それぞれガラスビーズ充填層の最下部を基準点とした時の距離であり(図1参照)、またガラスビーズ層最上端から見かけの水面までの距離をTCEの先端が到着するまでの時間で除すことにより平均浸透速度を求めた。表より当然ではあるが、粒径の大きい方が平均浸透速度は速く、またTCEを一気に注入した注入方法Aの方がビーカーで注入した注入方法Bより平均浸透速度は速いことが分かる。なお以下の図とRunNo. の対応が容易にできるように表1にRunNo. に対応する図番号を示した。

次に、得られたビデオ画像の模式図を図4～図9に示す。ただし色の濃淡は示していない。RunG3(図6), G4(図7)及びG8(図9)については、鏡に映ったカラム左右側面のTCEの様子を、またRunG7(図8)については、カラムを回転させることによって得られたカラム左右側面のTCEの様子を同時に示した。またTCE先端部の位置の経時変化を図10～図18に示した。縦軸は基準点からの高さであり、横軸は時間を対数で示している。図にはそれぞれカラム正面、左右側面、又はカラム後方においてビデオで確認されたTCE先端部の位置をプロットしてある(RunG1, G2は鏡が設置されていないので、側面での観察結果がない)。RunG2(図11)のみプロット点を線で結ぶことにより、浸透するTCEがカラムの後方又は側面を通ったためビデオで観察されなかった軌跡を区別した。その他の図はビデオ画像図(図4, 6～9)から分かるように、TCEの浸透がほぼ連続して観察されたのでプロット点間の線は省略してある。また設定した自由水面位置、測定された見かけの水面と見かけの水面移動の大きさ、及び別に土柱法により求めた毛管不飽和帯、懸水帯も示した。なお見かけの水面移動とは、TCEが見かけの水面を貫くまでの間に、TCEと水との境界線が移動する距離と定義した。

土柱法による測定方法は後述の図19に示すように、内径35mm、高さ25mmと50mmの2種類の輪切りのステンレス製カラムを積み重ねカラムを組み立て、カラム内間隙をカラム下方から水飽和する。排水口の高さを設定し、カラム及び水タンク内の水を排出する。排出する水がなくなったことを確認(約2日程度)してから、カラムを上方から分解、乾燥(105℃、最低6h)し、カラム毎の水分量を測定した。

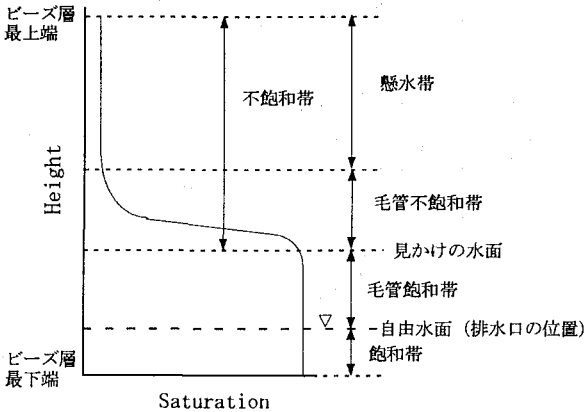


図3 カラム内の水分分布の模式図

表1 実験条件及び測定結果

実験条件						測定結果		図番号	
Run No.	粒径 (mm)	注入TCE量 (mL)	注入方法	自由水面高さ (cm)	実験終了時間 (h)	見かけの水面の高さ (cm)	平均浸透速度 (cm/min)	ビデオ画像図	先端部位置図
G1	1	20	A	5.0	18	9.5	127	4	10
G2	1	10	A	20.8	92.5	25	139	5	11
G3	0.5-0.6	20	A	9.0	90	23	9.8	6	12
G4	0.5-0.6	20	A	10	60.5	26	7.2	7	13
G5	0.18-0.212	20	A	9.5	177	40	1.3	—	14
G6	0.074-0.125	20	A	14	188	確認できず	値無し	—	15
G7	1	9.4	B	20	37	25	20	8	16
G8	0.5-0.6	38	B	9.5	120	24	1.2	9	17
G9	0.18-0.212	47	B	7.5	188	36	0.3	—	18

注1: 注入方法Bの注入流量 Run7: 0.86mL/min Run8: 0.99mL/min Run9: 1.07mL/min

注2: 高さは充填層下端からの距離

注3: RunG6の“値無し”は、平均浸透速度を見かけの水面に達するまでの平均的な速度と定義したため値無しとした

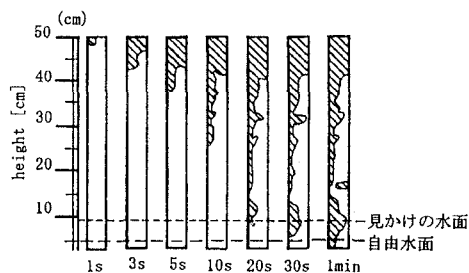


図4 ビデオ画像図

(Run G1: 粒径1mm, TCE量20mL, 注入方法A)

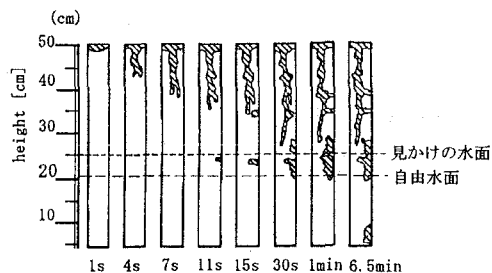


図5 ビデオ画像図

(Run G2: 粒径1mm, TCE量10mL, 注入方法A)

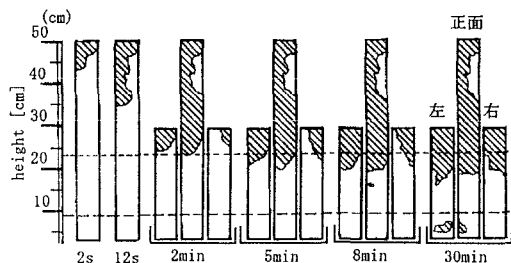


図6 ビデオ画像図

(Run G3: 粒径0.5-0.6mm, TCE量20mL, 注入方法A)

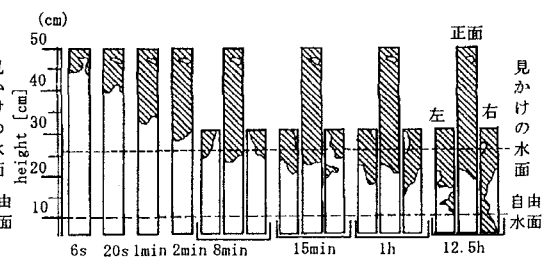


図7 ビデオ画像図

(Run G4: 粒径0.5-0.6mm, TCE量20mL, 注入方法A)

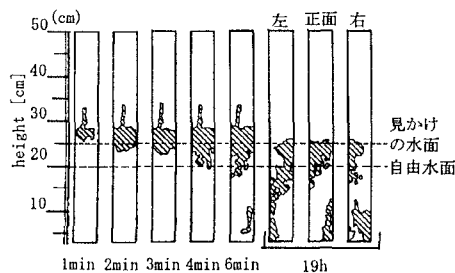


図8 ビデオ画像図

(Run G7: 粒径1mm, TCE量9.4mL, 注入方法B)



図9 ビデオ画像図

(Run G8: 粒径0.5-0.6mm, TCE量38mL, 注入方法B)

2.3 考察

(1) 粒径による違い

全体的な傾向としては、注入されたTCEは懸水帯を容易に浸透し、毛管不飽和帯で浸透速度が減少する。見かけの水面に到達した後一旦停滞し、それから見かけの水面を貫き毛管飽和帯、飽和帯へと浸透することが分かった。しかし粒径1mm、注入方法Aの場合(RunG1:図4, 10; RunG2:図5, 11)は、見かけの水面にTCEが到達した後すぐに見かけの水面を貫き飽和帯にまで浸透した。この点で、粒径1mmの場合にほとんどのTCEが水面上に停滞したと報告されている村岡、平田の実験⁸⁾とは異なる挙動をしており、カラム内の水に移動可能な条件を与えたことが一因であると考えられる。

懸水帯でのTCEの挙動を整理してみると、粒径1mm(図4, 5)の場合ではガラスビーズ層断面の一部を部分的に浸透する傾向が見られた。特にRunG2(注入TCE量10mL)ではTCE注入直後から筋状に浸透する現象が見られた(図5)。このように部分的に又は筋状に浸透する現象は、注入方法、注入量とガラスビーズの粒径が密接に関係して生じる現象であると思われる。また後述するように、間隙が大きく、ビーズ層最上端の間隙に存在する水分が少ないと注入されたTCEは横方向に広がらずに下方へ浸透する傾向を示す。一方その他の粒径では、ガラスビーズ層断面に対してほぼ均一に浸透した。特に粒径が0.18-0.212mm、及び0.074-0.125mmで注入方法Aの場合は、注入されたTCEが、ガラスビーズ層の上に一旦溜まり、それから下方に浸透する現象が見られた(図14, 15)。これらの現象は

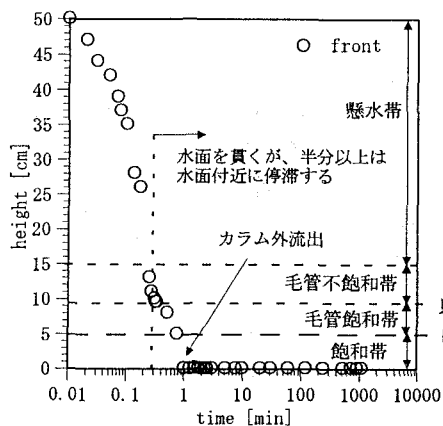


図10 TCE先端部位置の経時変化

(Run G1: 粒径1mm, TCE量20mL, 注入方法A)

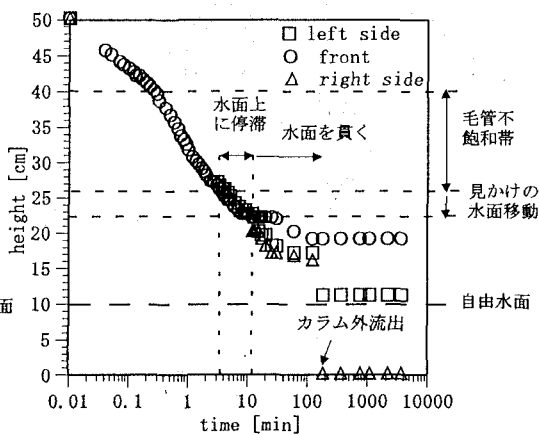


図13 TCE先端部位置の経時変化

(Run G4: 粒径0.5-0.6mm, TCE量20mL, 注入方法A)

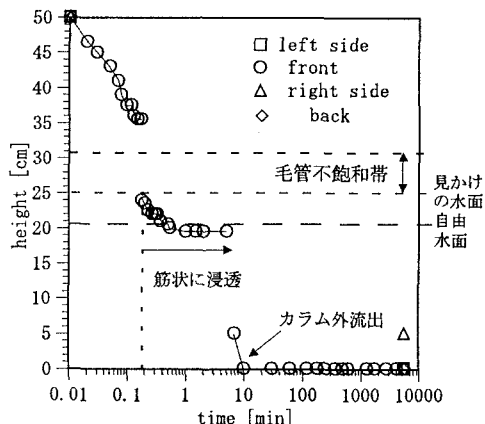


図11 TCE先端部位置の経時変化

(Run G2: 粒径1mm, TCE量10mL, 注入方法A)

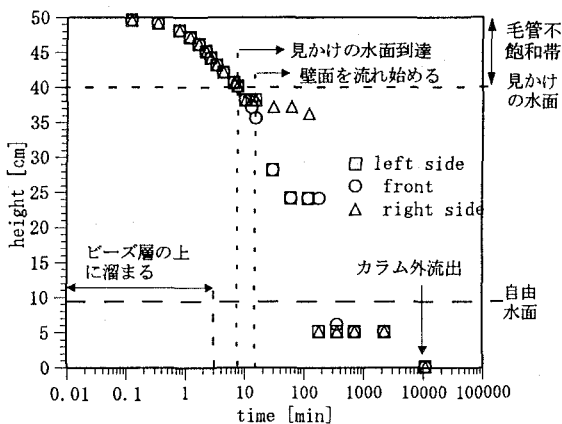


図14 TCE先端部位置の経時変化

(Run G5: 粒径0.18-0.212mm, TCE量20mL, 注入方法A)

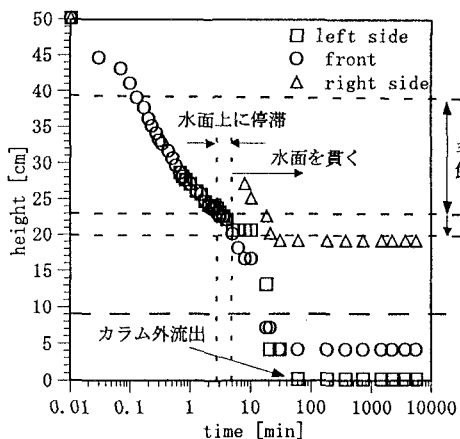


図12 TCE先端部位置の経時変化

(Run G3: 粒径0.5-0.6mm, TCE量20mL, 注入方法A)

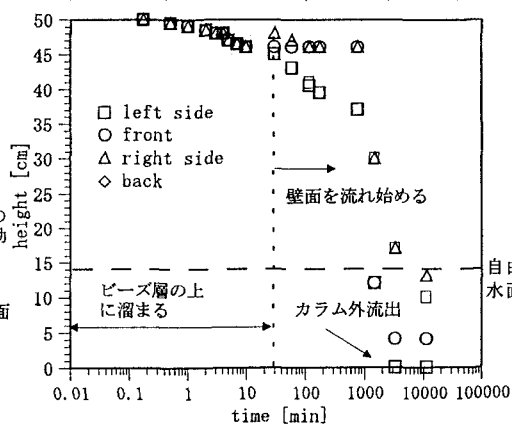


図15 TCE先端部位置の経時変化

(Run G6: 粒径0.074-0.125mm, TCE量20mL, 注入方法A)

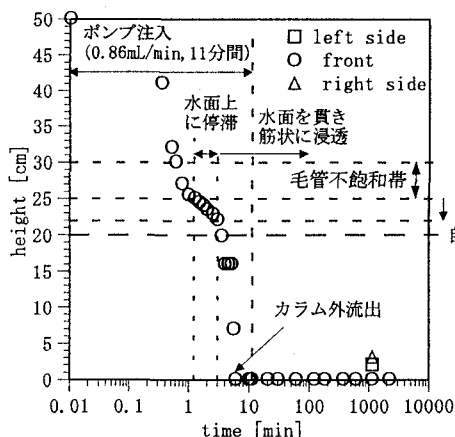


図16 TCE先端部位置の経時変化

(Run G7: 粒径1mm, TCE量9.4mL, 注入方法B)

単に粒径の違いから生ずるだけではなく、間隙中に存在する水分も大きな影響を与えていると考えられる。例えば粒径0.18-0.212mmの場合、ガラスビーズ層最上端も毛管不飽和帯にあり(図14)、ガラスビーズ層最上端でもかなりの水分が存在することになる(土柱法で測定した結果、水飽和度で約0.4~0.5であることが確認されている)。

次に毛管飽和帯、飽和帯内では、どの粒径の場合も、ガラスビーズ層を部分的、選択的に浸透する傾向が見られた。また粒径0.18-0.212mm(図14)や0.074-0.125mm(図15)では、ガラスカラム壁面間隙を浸透する現象が見られた。

(2) 注入方法による違い

見かけの水面付近のTCEの挙動は、注入方法の違いにより異なった。それはTCEが見かけの水面上に停滞している時間、すなわちTCEが見かけの水面に到達してから貫くまでの時間は、注入方法Bの方がA

よりも長いことである。例えば粒径1mmの場合で注入方法Aが1分以下(図10, 11)、注入方法Bが2分弱(図16)、粒径0.5-0.6mmの場合で注入方法Aが約2~10分(図12, 13)、注入方法Bが40分程度(図17)であった。またこの停滞期には、見かけの水面の高さが下方に移動しており、注入方法Bのほうがより下方に移動していることも分かる。例えば粒径0.5-0.6mmの場合で注入方法Aで約3cm(図12, 13)、注入方法Bで9cm(図17)である。

(3) 見かけの水面付近のTCE挙動の機構

以上に述べたようにTCEが見かけの水面に到着した後、すぐに水面を貫いてしまうパターン(RunG1, G2)や、水面上に一旦停滞し、見かけの水面を貫く(その他のRun)といった現象を説明するための因子として、上記のガラスビーズの粒径、注入方法(注入流量)の他に、注入TCE量(RunG1とRunG2の比較)やガラスビーズ層最上端から見かけの水面までの距離(後述する)など考えられるが、筆者は見かけの水面に到達するときのTCEの浸透速度と粒径の違いから生ずる毛管帯の高さに注目するべきだと考えている。つまり、浸透速度が大きいことはTCEが水面を貫く方向に寄与し、毛管帯の高さつまり毛管力の強さはTCEの浸透を阻止する方向に働く。結局、この浸透速度と毛管力との大小関係がTCEの水面付近の挙動を決定していると思われる。このことは、表2より粒径が大きい、つまり毛管力が小さく、また浸透速度が大きい注入方法Aの方がTCEは容易に水面を貫いていることから分かる。以上の結果より、TCEは静的な力によって水面を貫くというよりも、動的な力のバランス関係で水面を貫いていると思われる。よって水よりも比重の大きい物質の挙動、特に水面付近での挙動を説明するためには、静

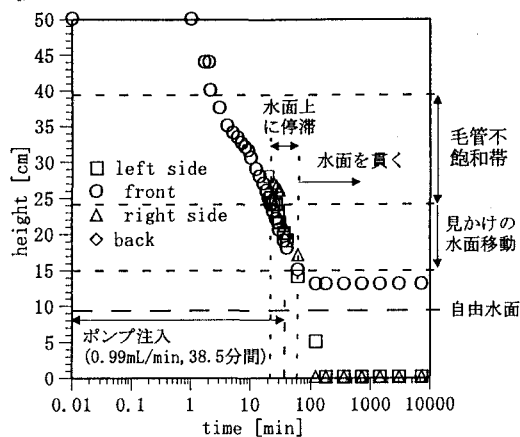


図17 TCE先端部位置の経時変化

(Run G8: 粒径0.5-0.6mm, TCE量38mL, 注入方法B)

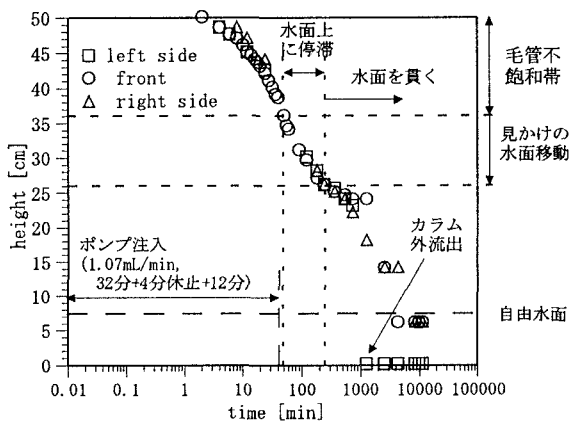


図18 TCE先端部位置の経時変化

(Run G9: 粒径0.18-0.212mm, TCE量47mL, 注入方法B)

的な関係である毛管力と飽和度の関係を示す特性曲線を基にした平衡論的な考え^{6,9)}ではなく、動的な力のバランスを考える必要性のあることが分かった。

しかし、不飽和帯（カラム最上端から見かけの水面までの距離）が長くなるに従いTCEが浸透する慣性力が小さくなったり、なくなってしまうことも考えられ、動的な力の影響がどの程度TCEの見かけの水面付近での挙動に影響を与えるのか確かめる必要がある。

3. ステンレスカラム実験

3.1 実験方法

次にTCEの各相への分配を知るために、水とTCEの鉛直分布を測定した。実験装置は土柱法で用いたものと同じである（図19）。実験の手順としては、先のガラスカラム実験と同様に、カラムを組み立てた後、ガラスビーズを充填し、カラム内を下方から水で飽和する。排水口の高さを設定した後、水を排出し、排出終了後TCEを注入する。そしてTCEの注入による水の排出がなくなったことと、ガラスカラム実験でのTCEが動かなくなるまでの時間を参考に、カラム内のTCEの動きが停止したと判断し、カラムを上方から分解し水とTCEの鉛直分布を測定した。水とTCE量の測定方法を次に示す。

- 1) カラムを輪切りに分解し、カラム内のビーズ、水及びTCEがこぼれないように気を付けて磁皿に取り出す。
- 2) カラムも含めたサンプルの重量を測定した後、TCE量を測定するためにサンプルの一部を代表試料として取り出し、容量43.4mLの茶色ガラス製のバイアルに入れ、そしてn-ヘキサンを30mLを加え、蓋をかぶせ、手で上下左右に攪拌した後、さらに超音波を30分～60分照射する。
- 3) n-ヘキサン相のTCE濃度を測定し、バイアル内のn-ヘキサンを回収した後、代表試料を乾燥しガラスビーズ量を求め、単位ビーズ量当たりのTCE量を求める。
- 4) 残った磁皿のサンプル中のTCEを揮発させ回収した後、乾燥し、単位ビーズ量当たりの（水+TCE）量を求める。
- 5) 磁皿のビーズ量と代表試料のビーズ量の和よりカラム毎のガラスビーズ量を求め、カラム毎に（水+TCE）量及びTCE量を算出する。
- 6) （水+TCE）量からTCE量を差し引くことにより、カラム毎の水量を決定する。

なおTCEの測定には、ECDが装備された島津12A型ガスクロマトグラフを用いた（カラム：20%シリコンDC-550、クロモソルブWAW DMCA80-100メッシュ、3m×3mm、Int./Det. Temp.：270℃、Column Temp.：100℃、キャリアガス：超高純度窒素ガス）。

またガス相を通してのカラム外へのTCEの揮発量を評価するためにTCE浸透実験期間内に、図20のようにカラム上部に蓋をし、蓋とカラムの間の空間中のTCEガス濃度の経時変化を測定することによりフラックス量として求め（1回の測定は2分間隔のサンプリングで計4～5回）、そのフラックスの経時変化よりカラム上部から揮発するTCE量を求めた。

3.2 実験条件及び実験結果

表2に実験条件を示す。ガラスビーズの粒径は0.5-0.6mmと0.18-0.212mmの2種を用い、注入方法はガラスカラム実験と同様にA、Bの2つの方法を採用し実験を行った。充填高さは、ガラスビーズが充填されたカラムの高さを表し、飽和帯の高さは、

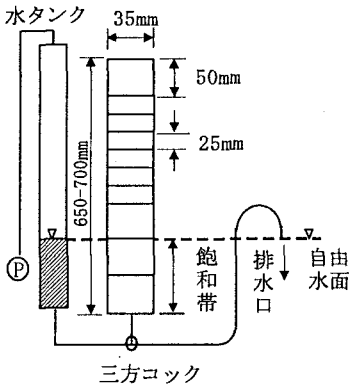


図19 ステンレス

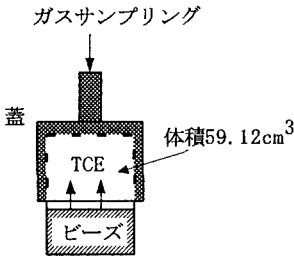


図20 揮発量の測定方法

表2 ステンレスカラム実験条件

Run No.	粒径 (mm)	注入方法	注入TCE量 (mL)	充填高さ (cm)	飽和帯の高さ (cm)	毛管飽和帯の長さ (cm)	不飽和帯の長さ (cm)
S1	0.5-0.6	A	20	65	20	15	30
S2	0.18-0.212	A	20	65	15	32	18
S3	0.18-0.212	A	20	70	15	32	23
S4	0.5-0.6	B	29.1	65	15	15	35
S5	0.18-0.212	B	33.9	65	15	32	18

注1：注入方法Bの流量いずれも0.97mL/min

注2：高さは充填層下部からの距離

注3：長さは土柱法により求めた結果

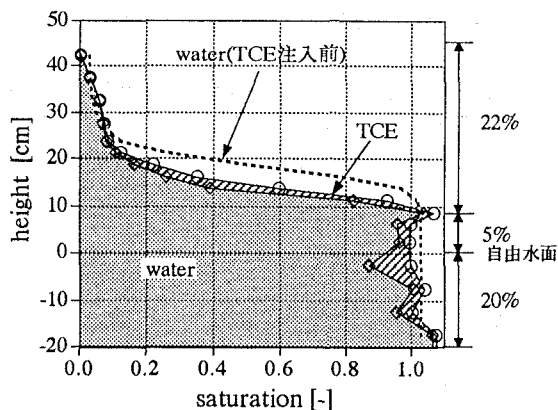


図21 水とTCEの鉛直分布
(Run S1, 0.5-0.6mm, TCE20mL, 注入方法A, 68h後)

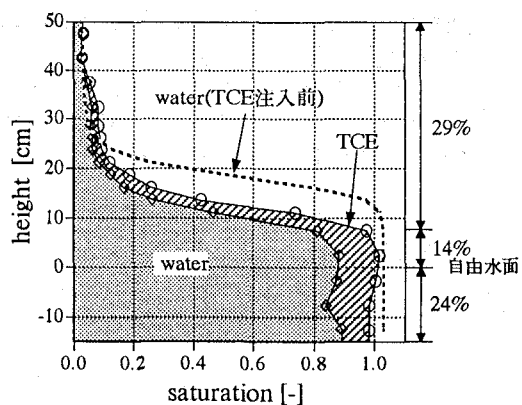


図24 水とTCEの鉛直分布
(Run S4, 0.5-0.6mm, TCE29.1mL, 注入方法B, 85h後)

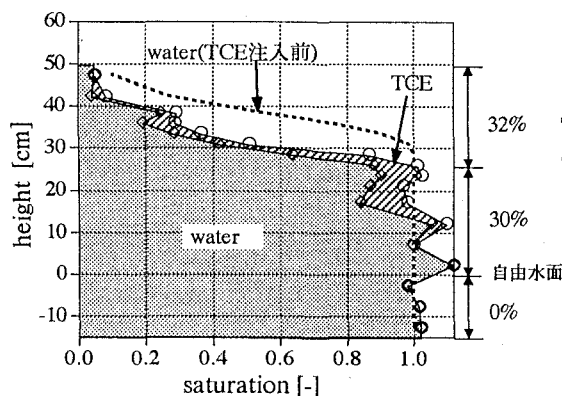


図22 水とTCEの鉛直分布
(Run S2, 0.18-0.212mm, TCE20mL, 注入方法A, 99h後)

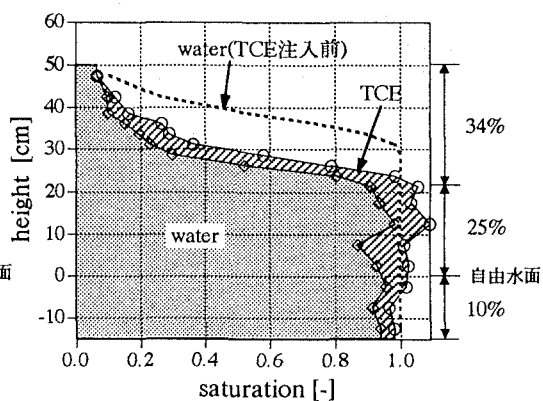


図25 水とTCEの鉛直分布
(Run S5, 0.18-0.212mm, TCE33.9mL, 注入方法B, 94h後)

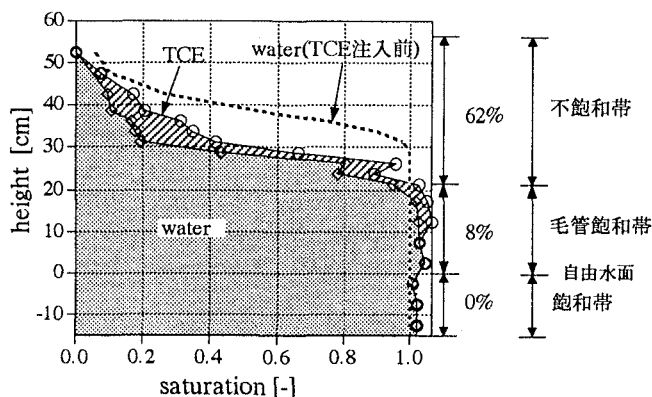


図23 水とTCEの鉛直分布
(Run S3, 0.18-0.212mm, TCE20mL, 注入方法A, 94h後)

ビーズ層最下部から排水口までの高さを表している。また図3のようなTCE注入前の水分特性曲線を別に土柱法により求め、それより求めた毛管飽和帯、不飽和帯の長さをそれぞれ表2に示しておく。

次に図21～図25に実験結果を示す。縦軸には排水口を基準としたときの高さを上向きに正としてとり、横軸には飽和度をとった。また図中の丸印は(水+TCE)量の実測値、菱形は水量を示している。従って図中の斜線部分がTCE量を表すことになる。また点線でTCE注入前の水分特性曲線も示す。それぞれの図の右横には、実験終了後に回収された不飽和帯、毛管飽和帯、飽和帯に存在するTCE量を、注入TCE量に対する割合として示した。なお合計が100%にならないのは、カラム外への揮発、カラム最下端からの流出のためであり、後述する3.3考察の(2)物質収支で詳しく述べることにする。

3.3 考察

(1) 水とTCEの鉛直分布とその影響因子

得られた実験結果よりまず第一に、RunS1とRunS2, S3を比較することにより、注入TCE量が同じならば粒径の小さい方が生じる毛管力が大きいので、TCEの自由水面下への浸透を毛管飽和帯で止めることができることが分かる。

第二に注入条件に関してRunS1とRunS4を比較すると、注入方法がAであるRunS1の場合で、不飽和帯、毛管飽和帯に存在する量の和が27%であるのに対して、注入方法がBであるRunS4の場合は43%も同部分に存在する。つまりTCEをポンプで注入した方が自由水面よりも上方に多くTCEが存在することが分かる。

第三にRunS2, S3は注入条件は同じであるが、不飽和帯の長さがRunS3の方が5cm長い(表2)。そこでTCEが多く存在する場所に注目してみると、RunS2の場合が毛管飽和帯(15-30cm)に多く存在しているのに対し、RunS3は不飽和帯(30-45cm)に多く存在している。つまり、TCEの浸透する経路の長い方がそれだけ毛管力に打ち勝つ力(慣性力)を失うため、毛管飽和帯にまで浸透できないことが分かる。

第四に、注入方法BのRunS5の場合は、水の分布がRunS2, S3に比べて下方に移動していることが分かる。これはポンプで注入した方は、見かけの水面に到達するときの浸透速度が小さく、そのため毛管帯上部に停滞している時間が長く、その間水はTCEの重みで下方へ分布が移動するためである。しかし一気に注入したRunS2, S3は、TCEの見かけの水面に到達するときの浸透速度が大きく見かけの水面を速く貫くので、水の分布がそれほど下方に移動しないと思われる。このことからRunS2, S3とRunS5の分布の違いは、単なる注入されたTCE量の違いだけから生じるのではなく、注入条件の違いも大きく影響していることが分かる。

以上より、水とTCEの鉛直分布は、ガラスカラム実験での考察同様にTCEの浸透速度と水の毛管力のバランスによって決定されることが分かる。従って先のガラスカラム実験同様に動的な力のバランスを考えることにより、本実験で確認されたようなTCEの水面付近の挙動が説明できる。

(2) 物質収支

次にTCEの物質収支に関する結果を表3に示す。カラム外流出量はカラム最下端から流出したTCE量である。RunS2, S3では、収支は不完全であった。RunS2, S3は、ステンレスカラムのつなぎ目(特に毛管帯付近のTCEが停滞する部分)からTCEが漏出しているのが確認されたことから、RunS4, S5でカラム漏出量を確認した結果、1.67mL(RunS4)、1.35mL(RunS5)のTCEが漏出していることが分かった。そこでこの2つの値の平均値である1.5mLをRunS2, S3での漏出量と仮定すると約8割のTCEが回収されたこととなり、TCEの収支はおおよそとれていると判断した。

また、実験期間中のガラスビーズ層間隙から揮発したTCE量は、注入したTCEの3～9%となった。従って解析の際に、ごく短期間のTCEの原液移動を扱う場合は、揮発量は無視できる可能性が示唆された。

表3 TCEの物質収支の結果

Run No.	注入 TCE量	ステンレスカラム内			カラム外 流出量	揮発量	カラム 漏出	回収 TCE量	回収率 [-]
		不飽和帯	毛管帯	飽和帯					
S1	20	4.4	1.1	4.0	9.0	1.03	-	19.53	0.98
S2	20	6.4	6.0	0.0	0.0	1.79	(1.5)	14.19(15.69)	0.71(0.78)
S3	20	12.3	1.7	0.0	0.0	0.95	(1.5)	14.95(16.45)	0.75(0.82)
S4	29.1	8.4	3.9	7.1	7.0	0.90	1.67	28.97	1.00
S5	33.9	11.5	8.6	3.2	6.5	1.29	1.35	32.44	0.96

注1：単位はmL

注2：()は推定値

4. 結論及び今後の課題

本研究は、汚染物質としてTCE、多孔体として4種のガラスビーズを用いて、浸透現象を定量的に把握するために実験を行った。本研究の特徴及び新たに得られた知見をまとめると次のようになる。

- 1) 本実験ではカラム内の水に移動できるような条件を与えることにより、より実際の地下水面に近い地下水面を模擬した。その結果、地下水面が移動できない条件で行われた研究⁹⁾と異なり、粒径1mmのガラスビーズの場合、注入されたTCEは容易に見かけの水面を貫き、毛管飽和帯、飽和帯に浸透する現象が見られた。またさらに粒径の小さい場合も、一旦見かけの水面に停滞するが、その後見かけの水面を貫き、毛管飽和帯、飽和帯にまで浸透することが分かった。またその浸透現象は、粒径、TCE注入量、注入方法によって異なることを確認した。
- 2) Parkerら⁹⁾は、水より比重の小さい物質に対して研究されてきたモデルを用い、地下水面に到達したTCEが地下水中を難透水層上部にまで浸透し、そこに溜まって地下水流れの方にTCEが移動するという結果を得ているが、本研究では実験期間が1週間程度ではあるが、自由水面付近(毛管飽和帯、毛管不飽和帯)にも相当のTCEが停滞することを確認した。

有機塩素化合物による土壌・地下水汚染では、汚染物質原液が大きく関与していることは明らか¹⁰⁾であり、汚染物質原液を土壌層内又は地下水層内から効率よく除去することが望まれている。そのためには、毛管帯、地下水面付近のTCEの挙動が重要であり、それらをより正確に表現できる理論やモデルを開発することが必要である。

今後の課題としては、動的な力のバランスを考慮したモデルを開発すること、2次元的な浸透実験を行うことが挙げられる。またTCE以外の物質やガラスビーズ以外の多孔体を用いる必要がある。

参考文献

- 1) 地下水問題研究会編：地下水汚染論—その基礎と応用—，共立出版株式会社，pp21-38(1991)
- 2) 例えば、中杉修身：廃棄物最終処分場基準の見直し，廃棄物学会誌，Vol. 5, No. 3, pp197-209(1994)
- 3) 例えば、石坂信也：熊本市における地下水汚染とその対策について，水環境学会誌，Vol. 17, No. 2, pp91-95(1994)
- 4) M. C. Leverett: Capillary Behavior in Porous Solids, Trans. Am. Min. Metall. Pet. Eng., 142, pp152-169(1941)
- 5) Shelia F. Kia: Subsurface Multiphase Flow of Organic Contaminants: Model Development and Validation, Wat. Res., Vol. 25, No. 10, pp1225-1231(1991)
- 6) J. C. Parker, R. J. Lenhard, and T. Kuppusamy: A Parametric Model for Constitutive Properties Governing Multiphase Flow in Porous Media, Wat. Resour. Res., Vol. 23, No. 4, pp618-624(1987)
- 7) 藤縄克之：地盤環境汚染の現状とその対策，6地盤環境汚染の解析手法，土と基礎，42-8(439)，pp71-78(1994)
- 8) T. Hirata, and K. Muraoka: Vertical Migration of Chlorinated Organic Compounds in Porous Media, Wat. Res., Vol. 22, No. 4, pp481-484(1988)
- 9) J. C. Parker, R. J. Lenhard, and T. Kuppusamy: Modeling Multiphase Contaminants Transport in Ground Water and Vadose Zones, Proc NWWA/API Conf. Pet. Hydrocrab. Org. Chem. Ground Water Prev. Detect. Restor. 1986, pp189-208 (1986)
- 10) 中杉修身：土壌・地下水における汚染物質の挙動，水環境学会誌，Vol. 17, No. 2, pp76-80(1994)
- 11) トリクロロエチレン等の地下水汚染防止に関する研究，国立環境研究所特別研究報告，SR-15-94' (1994)