

(76) NAPLプール推定へ向けた時間モーメントの 空間変動特性評価

井上 一哉^{1*}・正木 一平²・鈴木 章世³・田中 勉¹

¹神戸大学大学院農学研究科 (〒657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台町1)

² (株) 日水コン環境事業部 (〒163-1122 東京都新宿区西新宿6-22-1新宿スクエアタワー)

³神戸大学大学院自然科学研究科 (〒657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台町1)

* E-mail: mornel@kobe-u.ac.jp

本研究では、NAPLプールがトラップされた飽和均質地盤を対象として移流分散実験を実施し、NaCl水溶液の破過曲線に対する時間モーメント解析により時間モーメント量の空間変動特性とNAPL規模の関連性を検討する。NAPLプール規模と浸透流速を変えた実験の結果、NAPLプールの直下流領域にある観測点の2次および3次モーメント量はNAPLを含有しない地盤に比して1から2オーダー増加し、横分散の影響を受ける領域においてはNAPLプール規模に応じた時間モーメント特性が観察されることが明らかとなった。また、NAPLプールの影響を受けない観測点を基準とした変動比の導入ならびに時間モーメントの空間変動特性に関する総合的評価はNAPLプール規模の推定に向けた有益な手段となり得ることが示唆された。

Key Words : napl, temporal moment, transport experiment, breakthrough curve, spatial variation

1. 結論

難水溶性物質 (Nonaqueous phase liquids: NAPL) による汚染サイトを修復する際には帯水層に存在するNAPLの量やその存在位置を推定し、汚染源の除去や地下水へ溶解した汚染ブルームを浄化することが望まれる。特に、汚染領域の掘削除去や封じ込めにおいてはNAPLの存在量や分布状況に関して、より詳細な把握が必要となる。

汚染サイトの調査を考えた場合、コアサンプリングや地下水サンプリングから得られる情報だけに基づいて帯水層内に分布するNAPLプールを捉えるのはかなり困難であり、コスト面を鑑みるとサンプリング数や濃度計測地点は限られることからフィールド調査の実効性に疑問が生じる。そのような技術的・経済的課題を払拭し、原位置調査結果を有効に活用するため、トレーサ実験に基づく種々のアプローチが実験室あるいはフィールドレベルにおいて実施されている¹³⁾。トレーサ実験より得られる情報はモデルパラメータの決定を目的としたサイトの水理特性評価⁴⁾のみならず、NAPLの空間分布特性評価⁵⁾や平均的なNAPL飽和度の推定⁷⁾、浄化対策結果の評価⁹⁾などに応用され得る材料であり、トレーサ実験の有益性が大いに示唆されている。

一方、時間モーメント解析⁹⁾はトレーサ実験や自然状態において観測井にて得られる時系列濃度データを基に統計的モーメント量を求める手段であり、物質移動特性の評価¹⁰⁾に加えて吸着性物質の遅延係数同定^{11,12)}や崩壊定数の推定¹³⁾に適用されている。しかしながら、コスト的あるいは物理的な側面からサイトにおけるトレーサ実験の実施方法や獲得情報の解釈手段を鑑みると、吸着性や崩壊性を有するトレーサよりも非吸着かつ保存性のトレーサを活用の方が水質サンプリングや水質分析は容易であり、実行可能性の高い手段であると考えられる。そのため、NAPLプールの存在により水理学的な影響を受ける浸透場を対象として、保存性物質の時間モーメント特性に関する空間変動について検討することは、NAPLプールの存在量や存在位置推定への応用を図る上で有意義な事項である。特に、トラップされたNAPLの規模に応じて観測点における時間モーメント量は変化することが予想され、トレーサ実験と連携した時間モーメント解析の実効性と定量的評価が期待される。

そこで本研究では、移流卓越状態にある均質地盤を対象にNaCl水溶液を用いた二次元トレーサ実験をラベルで実施し、浸透領域内にトラップされたNAPLプールが領域内の各観測点における破過曲線の変化に与える

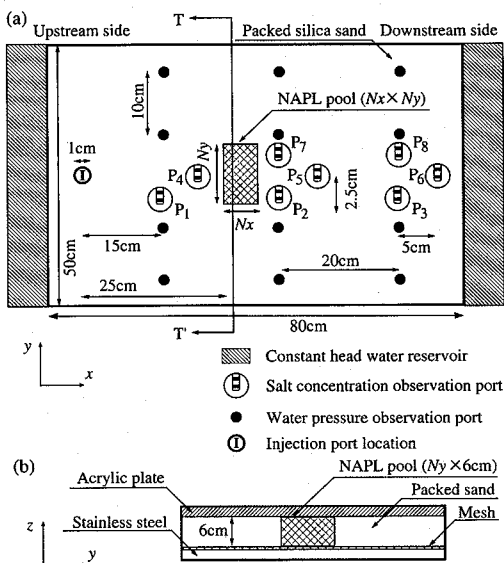


図-1 物質移動実験装置概略図：(a)平面図，(b)T-T'断面図

影響について検討する。また、時間モーメント解析を導入することで、領域内に配置した複数の観測点における時間モーメント量の空間変動特性を評価することにより、NAPLプールの存在規模推定に向けた基礎情報として活用する指標を見出すことを目的とする。

2. NAPL含有地盤における物質移動実験

(1) 実験装置と試料

本研究では図-1に示す長さ80 cm、幅50 cm、深さ6 cmの実験装置を使用し、 x 方向成分のみを有する浸透場を形成することで物質移動実験を実施する。実験装置の上流側と下流側には貯水槽が設けられており、供試体への導水路ならびに供試体からの排水部を構成するとともに動水勾配の調整と排水部における定常流量の計測を兼ねている。また、実験装置の基盤部と側面部はステンレス材で作成されており、これらをアクリル板で密閉することにより浸透場の観察と平面二次元流れ場の形成が可能になっている。さらに、最上流部に直径1 cmのトレーサ導入口を設けることで、シリコン栓とシリンジポンプを組み合わせたトレーサの注入を可能にしている。

領域内には8本のNaClセンサーを深さ方向の中心部に設置し、所定の時間間隔でNaClトレーサの濃度変動を計測可能である。図-1に示すようにトレーサ注入源を原点として、トレーサ注入源と同一の y 軸成分、すなわち流下方向に沿って3本のセンサーを配置し、流れ方向と垂直方向に5本のセンサーを配置している。各センサーの

表-1 観測点の配置位置

観測点番号	設置座標 (x cm, y cm)	観測点番号	設置座標 (x cm, y cm)
P ₁	(15, -2.5)	P ₅	(40, 0)
P ₂	(35, -2.5)	P ₆	(60, 0)
P ₃	(55, -2.5)	P ₇	(35, 2.5)
P ₄	(20, 0)	P ₈	(55, 2.5)

設置座標を表-1に示す。またピエゾ水頭を測定するため、装置基盤に12個のピエゾメータ孔を取り付けており、マノメータの値を読み取ることで水頭値を計測するとともに動水勾配を算定している。

透水場には平均粒径0.050 cm、均等係数1.25、飽和透水係数0.268 cm/sのケイ砂を使用し、実験装置内に均質に充填することにより、飽和浸透場を形成している。実験では密度流の影響が生じないように初期濃度を0.5 mg/cm³に調整したNaCl水溶液を保存性トレーサとして利用し、物質移動現象の可視化を目的として青系水溶性色素であるBrilliant Blue FCFを混合して用いている。また、NAPLプールの形成にはサラダ油に赤系油溶性色素であるSudan IVを混合し、所与の規模で領域内に埋設することでトラップされた状況を創生しており、NAPLプール周辺の浸透流路に変化が生じるようにしている。

(2) 実験方法

本実験では飽和の被圧流れ状態を形成するため、十分に飽和させたケイ砂を水中落下法により5 cmずつ上流側から下流側へ締め固め、間隙率が0.44となるように均質に充填する。また最上流部から $x=25$ cmの地点まで試料を充填した後に、予め間隙率を調整してケイ砂とともに所定規模の直方体形状で冷凍させておいた色素混合のサラダ油を重心位置が $y=0$ の軸に合うように設置する。本実験では、冷凍NAPLを水中に浸すことによる油分の溶解と直方体形状の極端な変化を可能な限り防止するため、ケイ砂とともにサラダ油を冷凍している。これにより、油の溶解時には土粒子表面に油が吸着することより油分の移動が防止され、直方体形状を大きく変化させることなく所定の規模でNAPLプールの形成することが可能である。また、二次元の浸透流状態を創り出すため、NAPLプールの厚さは6 cmに設定して深さ方向に一様に埋設し、実験終了時に地盤を切り出すことで埋設状態を確認している。NAPLプールの埋設後は同様に5 cmの層ごとに最下流端まで密度を管理しながらケイ砂を充填することで、ケイ砂単独の均質地盤内にNAPLプールが存在する浸透場が形成される。

試料とNAPLの充填完了後、空気混入を防ぎながら装

置を密閉し、給水装置と排水装置の水位差を調整することで一方流れを作り出している。また、排水装置からの流量およびマノメータの計測により透水地盤内が定常状態にあることを確認した後に、流れ場を大きく乱さないように20 cm³のNaCl水溶液をシリジポンプを用いて注入し、8つの観測点において2秒間隔で濃度を計測している。トレーサ注入時には鉛直方向に一定濃度となるように深さ方向へ均一に20秒で注入することで、半径が約2 cmの円柱形状をなすものの、注入時の間隙内移動に伴い完全な円柱ではなく角柱に近い形状になっている。この点は定期的にトレーサ注入直後に流れを止めて地盤を切り出し、直接内部状態を観察することで確認している。なお、すべてのNaClセンサーは予めキャリブレーションを施しており、所定の位置において時系列での濃度計測を可能にしている。

(3) 実験ケース

本研究では、NAPLプールの規模が各観測点におけるNaCl濃度推移に及ぼす影響を検討するため、NAPLプールを埋設しない実験をケース1とし、図-1に示すNAPLプールの長さ N_x と幅 N_y を $(N_x \times N_y) = (6 \text{ cm} \times 6 \text{ cm})$ と $(6 \text{ cm} \times 9 \text{ cm})$ 、 $(6 \text{ cm} \times 12 \text{ cm})$ の3種類に設定して実験を実施し、それぞれケース2、ケース3、ケース4とする。いずれの実験においてもNAPLプールの厚さは実験装置の深さに合致させて6 cmに設定し、均質地盤を含めた4種類の各浸透場に対して動水勾配を種々に変化させて物質移動実験を実施する。また、実験ケース1を基準ケースとして扱うことでNAPLプールの影響下にあるNaClの移行挙動を評価し、NAPLプールの規模と観測される破過曲線形状について検討する。なお、比重計による計測の結果、トレーサ比重は1.0044であることと透水性の高い浸透場での物質移動実験であることから、本実験においては密度流の影響ならびに重力の影響は無視できると考える。また、実験の観測状況から判断してNAPLプールから浸透水への溶出量は極めて小さくNaCl計測に影響を及ぼさないと考えられる。

3. 時間モーメントと物質移動特性

(1) 時間モーメント解析

NAPLプールの影響を受ける浸透地盤の場合、観測点によっては物質の移行に伴い破過曲線がテーリングの形状を示す。これは不均質地盤のみならずNAPLがトラップされた地盤の特性であり、破過曲線のテーリングに対する1つのアプローチとして時間モーメント解析を適用することでNAPLプール規模と時間モーメント量の関係

について考察する。

ある観測点において計測された破過曲線に対する j 次絶対時間モーメント m_j は式(1)で表される^{9,10}。

$$m_j = \int_0^{\infty} t^j c_m(x, y, z, t) dt \quad (1)$$

ここに、 c_m は濃度(mg/cm³)、 x, y, z は座標(cm)、 t は時間(s)である。また、0次時間モーメント量により標準化した j 次標準化絶対時間モーメント μ_j は式(2)となる。

$$\mu_j = \frac{m_j}{m_0} \quad (2)$$

さらには、1次標準化絶対時間モーメント μ_1 を用いることで、 j 次標準化中心時間モーメント μ_j' は式(3)で定義される。

$$\mu_j' = \frac{\int_0^{\infty} (t - \mu_1)^j c_m(x, y, z, t) dt}{m_0} \quad (3)$$

これらの時間モーメント量を各観測点の破過曲線に基づいて算定することにより各実験ケースの物質移動挙動について検討する。

(2) NAPLが存在しない浸透場の分散特性推定方法

移流分散現象は浸透場に応じて様々な様相を呈することから、本研究において対象とする浸透場の分散特性を把握することを目的として、NAPLプールの存在しない均質地盤にて得られた破過曲線に基づいて逆解析により分散長を推定し、ペクレ数を算定する。逆解析手法として本解析では遺伝的アルゴリズム(GA)¹⁵を適用し、縦・横分散長と遅延係数を逆推定する。GAに組み込む順解析には式(4)から式(6)に示す移流分散方程式を採用する。

$$R \frac{\partial c}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} + D_y \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - \lambda c \quad (4)$$

$$D_x = \alpha_L v + D_e, D_y = \alpha_{TH} v + D_e, D_z = \alpha_{TV} v + D_e \quad (5)$$

$$v' = \frac{v}{R}, D_x' = \frac{D_x}{R}, D_y' = \frac{D_y}{R}, D_z' = \frac{D_z}{R} \quad (6)$$

ここに、 c は濃度(mg/cm³)、 t は時間(s)、 x, y, z は座標(cm)、 v は x 方向流速(cm/s)、 D_x, D_y, D_z は分散係数(cm²/s)、 R は遅延係数、 λ は反応定数(s⁻¹)、 α_L は縦分散長(cm)、 α_{TH} は水平方向横分散長(cm)、 α_{TV} は鉛直方向横分散長(cm)、 D_e は有効拡散係数(cm²/s)である。これを領域濃度ゼロの初期条件と式(7)と式(8)で示される境界条件下で解くことによって得られる式(9)と式(10)を解析解¹⁶として用いる。解析解は分散係数を分散長と実流速を用いて式(5)でモデル化しており、式(6)に示す変

数変換により記述される変数から構成されている。

$$c(0, -y_0 \leq y \leq y_0, z_1 \leq z \leq z_2, t) = c_0(t) \quad (7)$$

$$c(\infty, y, z, t) = 0, \quad c(x, \pm\infty, z, t) = 0, \quad \frac{\partial c}{\partial z}(x, y, 0, t) = 0 \quad (8)$$

$$c = \frac{x}{4B\sqrt{\pi D_e}} \int_0^t c_0(t-\xi) \frac{1}{\xi^2} \exp\left(-\lambda\xi - \frac{(x-v\xi)^2}{4D_e\xi}\right) d\xi$$

$$\left(\operatorname{erfc}\left(\frac{y-y_0}{2\sqrt{D_y\xi}}\right) - \operatorname{erfc}\left(\frac{y+y_0}{2\sqrt{D_y\xi}}\right) \right) \left((z_2-z_1) + \frac{2}{G} \sum_{n=1}^{\infty} H \right) d\xi \quad (9)$$

$$G = \frac{n\pi}{B}, \quad H = (\sin(Gz_2) - \sin(Gz_1)) \cos(Gz) \exp(-D_z G^2 \xi) \quad (10)$$

ここに、 c_0 は汚染源濃度(mg/cm^3)、 $2y_0$ は y 軸方向の汚染源長さ(cm)、 $z_1 - z_2$ は z 軸方向の汚染源長さ(cm)、 B は帯水層厚さ(cm)である。実験状況を反映して解析に用いる既知パラメータは、 $z_1 - z_2 = 6 \text{ cm}$ 、 $B = 6 \text{ cm}$ 、 $D_e = 0 \text{ cm}^2/\text{s}$ 、 $\lambda = 0 \text{ s}^{-1}$ に設定する。また、本実験は均質場の物質移動のため、鉛直方向横分散長と水平方向横分散長は等方とみなし、 α_T と表記する。さらに、間隙率と有効間隙率は等しいと仮定し、流量計測より算定されるダルシー流速を浸透場の間隙率で除した結果を実流速とする。加えて、本解析は場の分散性評価が主目的であり、NAPL プールの存在しない浸透場を対象としているため、分散係数テンソルは対角成分のみを扱っており、NAPL プールにより浸透経路が様々に変化する状況を対象とする場合には非対角成分を考慮する必要がある。

GA 解析に要するパラメータ群は経験的に個体数を 100、最終世代交代数を 200 と設定し、自然淘汰にはトーナメントサイズを 3 に設定したトーナメント選択を適用する。交叉確率は 0.80 に設定した一様交叉を採用し、突然変異の確率は 0.10 とする^{17,18)}。また GA 探索において、その特性上、候補となる解群は 2 進数で表現しており、表-2 に推定対象となるパラメータとそれらの定義域を記す。トレーサが浸透場を移行する際に吸着が生じる可能性を踏まえて遅延係数を未知パラメータとして扱っているが、ほぼ 1 となる結果が得られている。

遺伝子進化の過程では最適解の候補となるパラメータ群を用いて、実測された破過曲線と解析解により再現される破過曲線に基づいて観測点ごとに両者の時間モーメント量を求めることで環境への適合性に対する指標とする。すなわち、両者の 1 次から 4 次までの時間モーメント量に対して残差をとり、重み付けによる残差量が最小となるパラメータ群を探索する。以上より、本解析で採用する評価関数 F は式(11)で表される。

$$F = \sum_{i=1}^{MP} \left(w_1 \left| \frac{\mu_{1,i}^{Exp} - \mu_{1,i}^{Com}}{\mu_{1,i}^{Exp}} \right| + w_5 \left| \frac{c_{p,i}^{Exp} - c_{p,i}^{Com}}{c_{p,i}^{Exp}} \right| \right) + \sum_{i=1}^{MP} \sum_{j=2}^4 w_j \left| \frac{\mu_{j,i}^{Exp} - \mu_{j,i}^{Com}}{\mu_{j,i}^{Exp}} \right| \quad (11)$$

ここに、 MP は観測点数、 $\mu_{1,i}^{Exp}$ は観測点 i において計測

表-2 決定変数の定義域設定

決定変数	下限値	上限値	間隔	ビット数
縦分散長 $\log_{10} \alpha_L$	-2.00	0.52	0.04	8
分散長比 α_T / α_L	0.05	0.80	0.05	4
遅延係数 R	0.80	1.55	0.05	4

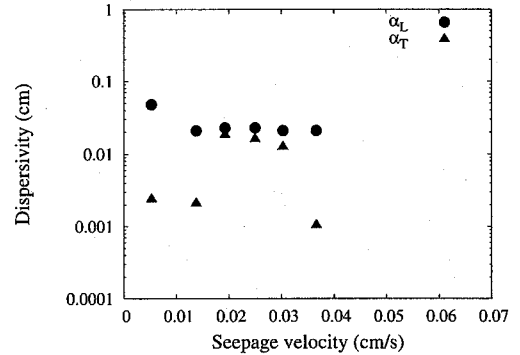


図-2 縦・横分散長の推定結果

された破過曲線の 1 次標準化絶対時間モーメント、 $\mu_{1,i}^{Com}$ は観測点 i において算定された破過曲線の 1 次標準化絶対時間モーメント、 $\mu_{j,i}^{Exp}$ と $\mu_{j,i}^{Com}$ は観測点 i における計測・算定破過曲線の j 次標準化中心時間モーメントをそれぞれ表す。また、 w_k は各物理量に対する重みであり、試行錯誤により、 w_1 と w_2 、 w_3 を 0.3、 w_4 と w_5 を 0.05 に設定する。さらに、 $c_{j,i}^{Exp}$ と $c_{j,i}^{Com}$ はそれぞれ観測点 i における計測時と解析時の破過曲線に対するピーク濃度を表し、逆解析の精度を向上させるために導入している要素である¹⁹⁾。また本解析では、評価関数値が 10^6 以下あるいは 200 世代の世代交代終了時点のいずれかを収束判定基準としている。

通常のカラム試験では縦分散が評価項目となるが、本実験では二次元場の現象把握が可能であり、観測点を二次元的に配置することで横分散についても評価される。しかしながら、1 つの観測点情報のみに基づく横分散の評価は困難であるため、本研究では推定精度を向上させる目的で流れに垂直な方向へ観測点を配置して逆推定に供している。さらには、本解析の目的は浸透場の分散特性を把握することにあるため、NAPL プールの存在しない均質地盤のみを解析対象としており、領域内の観測点 P_1 と P_4 の観測データを逆推定に用いている。

(3) 分散特性評価

図-2 に縦分散長 α_L と横分散長 α_T の GA による逆解析

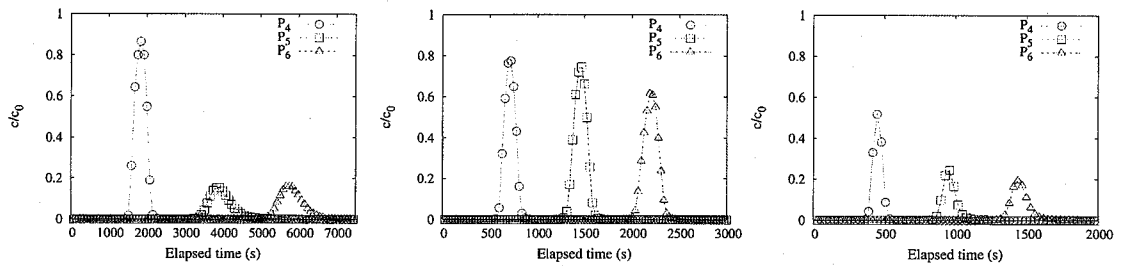


図3 種々の浸透場における汚染源直下領域の破過曲線：（左）実験ケース3（実流速0.0123cm/s），（中）実験ケース1（実流速0.0288cm/s），（右）実験ケース4（実流速0.0465cm/s）

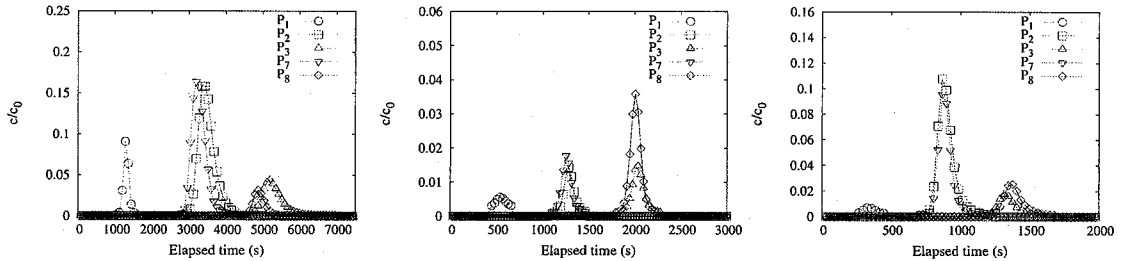


図4 種々の浸透場における観測点P₁からP₃ならびにP₇とP₈の破過曲線：（左）実験ケース3（実流速0.0123cm/s），（中）実験ケース1（実流速0.0288cm/s），（右）実験ケース4（実流速0.0465cm/s）

結果を示す。流速に関わらず縦分散長の値はほぼ一定となっており、平均値は0.02cmである。一方、横分散長の平均値は0.008cmであるものの、縦分散長とは異なり約1オーダーの範囲でばらつく結果となっている。浸透場の流れ方向が単一方向であるため、二次元的な観測点の配置であっても縦分散長と同様の精度で横分散長を推定することは困難であり、また縦分散長に比して横分散長はパラメータとしての感度が鈍い点¹⁹⁾が推定値のばらつきに影響する要因であると考えられる。

結果として、ペクレ数を式(12)で定義した場合、対象となる浸透地盤のペクレ数は0.05/0.02=2.5となる。

$$P_e = \frac{v_x L}{D_x} = \frac{v_x L}{\alpha_L v_x} = \frac{L}{\alpha_L} \quad (12)$$

ここに、 v_x はx方向浸透流速、 D_x はx方向分散係数、 α_L は縦分散長、 L は代表経路長であり、平均粒径の値を採用する。なお、逆解析の計算条件と同様に、拡散係数の影響は無視できると見なしている。また、推定分散長とレイノルズ数の関係はHarlemanとRumerの経験式²⁰⁾に合致することから、対象となる浸透場の縦分散長は適切に導出されていると言える。

$$\frac{q_x \alpha_L}{\nu} = 0.66 R_e^{1.2} = 0.66 \left(\frac{q_x L}{\nu} \right)^{1.2} \quad (13)$$

ここに、 R_e はレイノルズ数、 ν は動粘性係数、 q_x はx方向ダルシー流速である。算定されたペクレ数から判断して、本実験場は分散よりも移流現象が卓越した浸透場であることがわかる。よって、NaCl水溶液を用いた本実験にて

算定される時間モーメント量は移流卓越条件下における評価となることを示している。

4. NAPLプールの影響

(1) 破過曲線の変化

実験ケース1と3、4においてすべての観測点で計測された濃度変動を初期濃度で正規化した破過曲線の結果を図-3と図-4に示す。実際には2秒間隔でデータを取得しているが、見易さのためプロットの時間間隔を大きくしている。図-3は汚染源直下領域に位置する観測点P₄からP₆、図-4は観測点P₁からP₃ならびに観測点P₇とP₈の時系列濃度変動である。実験ケース2を含めて、各実験では浸透流速を10パターン以上変化させて実験しており、種々の実流速条件下にある破過曲線の状態を代表的にプロットしている。また、濃度計測における計測下限値はNaClセンサーごとに異なるため、図-4の観測点P₁において、低濃度部分が示されておらず、平均的には初期濃度の約0.002倍が探査限界値となっている。

図-3と図-4に示すように、NAPLプールが存在しない場合は観測点P₄からP₆の濃度減衰割合はほぼ同一となり、また観測点P₁からP₃の順にピーク濃度は高くなる。一方、NAPLプールの存在により、汚染源と同じ軸上の観測点P₃とP₆ではNAPLプールが無いケースに比して移行距離が増加することでピーク濃度が観測点P₄よりも大きく減

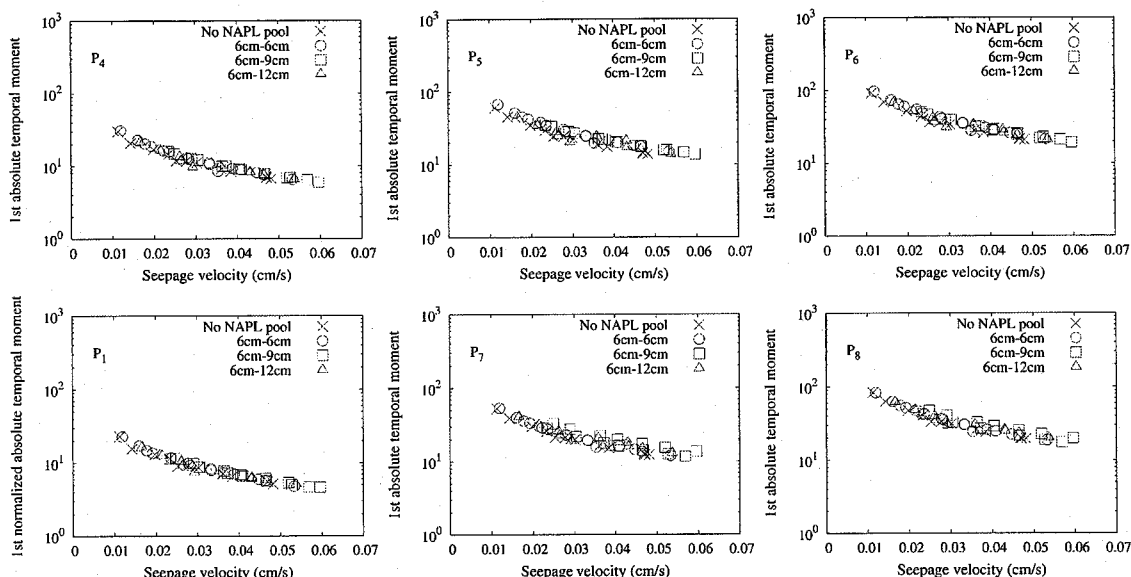


図-5 各観測点の1次標準化絶対時間モーメント結果

衰し、それに伴い汚染源と異なるy軸成分を有する各観測点での濃度が上昇する。したがって、NAPLプールの有無は観測点の濃度推移に直接的に影響すると言える。

しかしながら、同一のx軸成分を有する観測点 P_2 と P_3 あるいは観測点 P_3 と P_8 の破過曲線形状は完全には一致せず、ピーク時間やピーク濃度に差異が生じている。これはトレーサ注入時に形成される形状の重心位置と原点の微小なずれに加えて、冷凍されたNAPLを埋設した後の溶融に伴い直方体形状がわずかに変形することでNAPLプール重心位置がy軸からずれることが原因であると推察される。すなわち、トラップされたNAPLプールは冷凍された原型を保つのではなく、溶融によりNAPL分布が変形した状態で存在するため、NaCl水溶液がNAPLプールを回り込む様態に左右でわずかに差異が生じる結果、トレーサ源からの流下距離が同じ位置にある観測点であっても計測される破過曲線に相違が見られることとなる。

実験上、完全な直方体状のNAPL分布を形成することは極めて困難であるものの、後述するように本研究では0次時間モーメントで標準化された時間モーメントを興味の対象としており、また、NAPLプール迂回量の非対称性は小さいことから、対象物理量に及ぼす影響は小さいと考えて検討を進める。

図-3と図-4において実験ケース1の破過曲線結果が示すように、NAPLプールが存在しない浸透場を対象とした場合、横分散現象により物質が到達する観測点 P_1 から P_3 ならびに観測点 P_7 と P_8 ではピーク濃度がかなり低く、低濃度領域で濃度が推移していくこととなる。一方、領域内にNAPLプールがトラップされることで浸透経路に変化が生じ、NAPLプールを回り込むように物質は移動

していく結果、観測濃度は変動する。実験ケース3では、NAPLプールの右岸側を迂回する物質量が左岸側よりもわずかに多いことが図4より見て取れる。他方、実験ケース4ではほぼ同じ物質量がNAPLプールを境に分岐して移動していることがわかる。

さらには、浸透場内にNAPLプールを有する場合、均質地盤における左右対称の破過曲線形状とは異なり、下流部ほど破過曲線のテーリング現象が見られる。よって、テーリングは不均質地盤に特有の現象²¹⁾ではなく、領域内にNAPLがトラップされることで濃度推移にぶれが生じることを示唆している。したがって本研究では、直接的に破過曲線を評価可能な手法である時間モーメント解析を導入することにより各観測点における濃度変動特性について考察することでNAPLプールと時間モーメント量の関連性について検討する。

(2) 1次時間モーメント量の空間的变化

すべての実験ケースに対して、式(2)に基づいて各観測点にて得られた1次標準化絶対時間モーメントの結果を浸透流速の関数として図-5に示す。なお、前述のように同一のx軸成分を有する観測点における破過曲線の形状は実験状況に応じてわずかに異なるものの、標準化モーメント量としての差異は小さく、結果として観測点 P_2 と P_7 ならびに観測点 P_3 と P_8 はほぼ同じ傾向を示すことから観測点 P_7 と P_8 の結果を示している。また、時間モーメント量を導出する際、秒ベースに基づく算定ではなく、分ベースのモーメント量に変換した結果を表示している。これは浸透場の流速が小さいほど、あるいは破過に要する時間が長いほど得られるモーメント量のオーダーが極

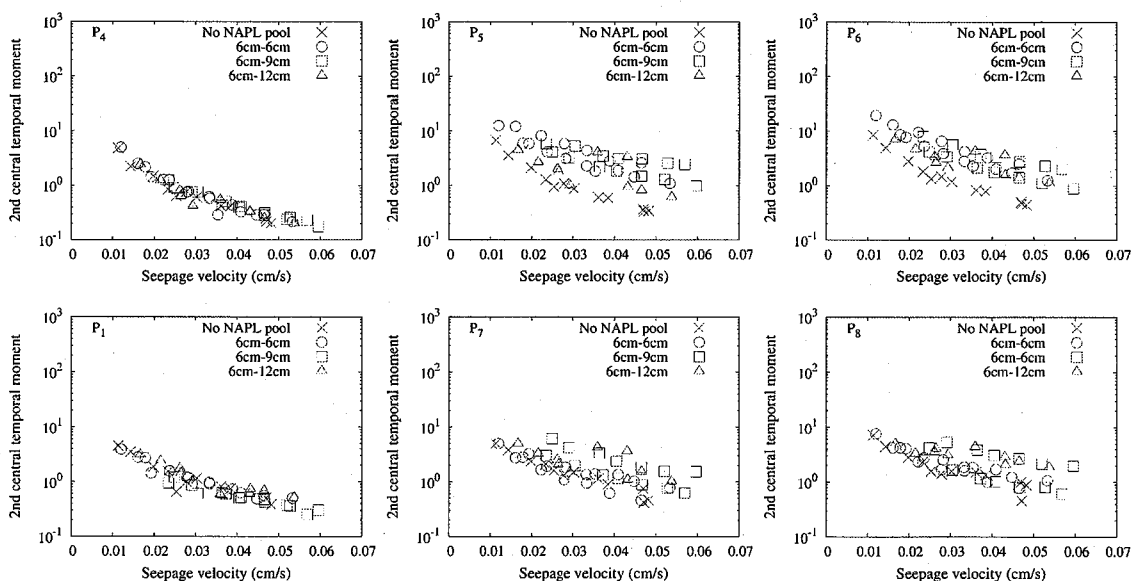


図-6 各観測点の2次標準化中心時間モーメント結果

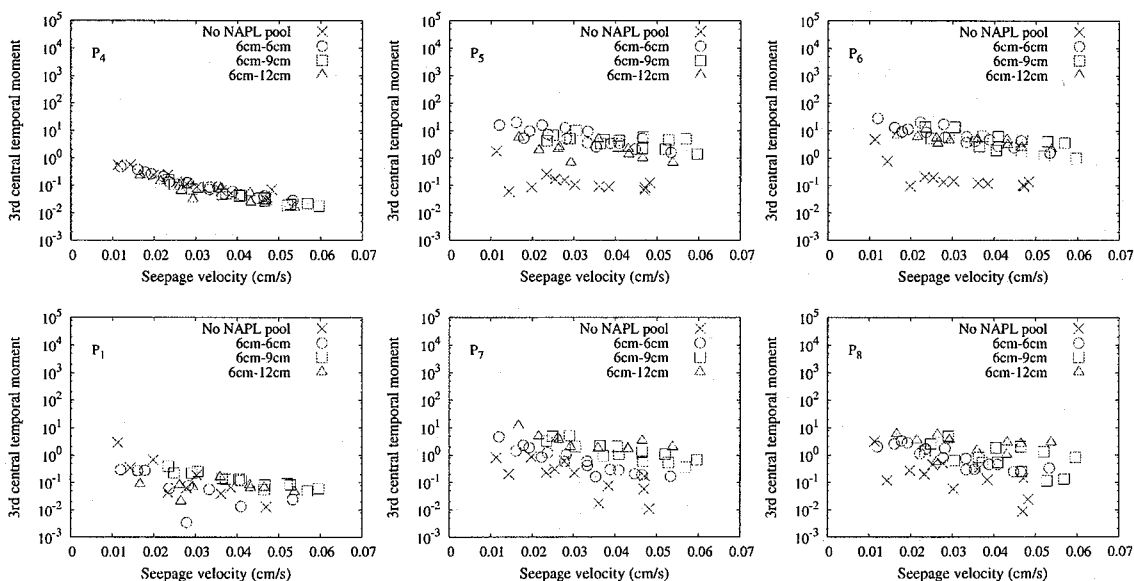


図-7 各観測点の3次標準化中心時間モーメント結果

めて大きくなる点を踏まえたものであり、結果の解釈を容易にするために分ベースのモーメント量を示している。モーメント量の算定上、秒単位で得られる2次モーメント量を60で除すことにより分単位に変換することができる。なお、NAPL無しのケースを除いて、図の凡例部分には図-1に示すNAPL長さ N と幅 M を明記している。

図-5に見られるように、トレーサ源から離れた地点ほど物質の到達に時間を要するため、1次標準化絶対時間モーメントは流下距離に応じて大きくなる。また、NAPLプールの上流部に位置する観測点 P_1 と観測点 P_4 は

NAPLの影響をさほど受けず、両観測点の1次時間モーメントは浸透流速に関わらず実験ケース間で相違は見られない結果となっている。一方、同一の浸透流速条件を対象とした場合、他の観測点においてはNAPLプールが存在することによりNAPLプールを含有しない浸透場よりも1次モーメント量がわずかに増加している。この点はNaCl水溶液がNAPLプールを回り込むことによる移行経路の増加を示しており、NAPLプール規模と観測位置に応じて数十秒から数百秒の増加となっている。

さらに、すべての観測点において浸透流速が大きくな

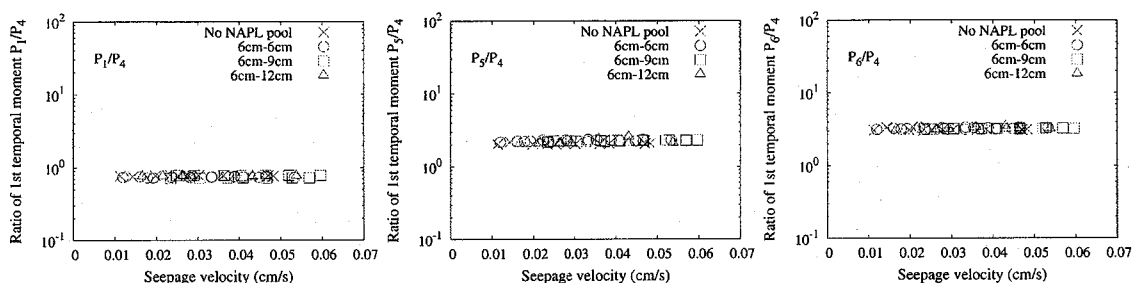


図-8 観測点 P_1 , P_3 , P_6 の1次標準化絶対時間モーメントの変動比結果

るにつれて1次時間モーメント量は減少するものの、NAPLの規模に応じた明らかな違いは観察されない。これはNAPLプールの存在により浸透経路に変化が生じる一方で、本実験場においては浸透路長が極端に大きく変化していない点が反映された結果である。したがって、流下距離が比較的短く、NAPLプール規模の変化が小さい浸透場においては、NAPLプールを回り込む物質移動経路を有するものの、1次時間モーメント量の空間変動はNAPLプールの存在を特定する決定的な指標にならないと言える。

(3) 多次時間モーメント量の空間的变化

前述のように、NAPLプールの下流域においては破過曲線のテーリングが見られることから、この点は2次時間モーメント量に大きく反映されると考えられる。浸透流速が小さいほど2次絶対時間モーメントの値はかなり大きくなるため、式(3)より1次時間モーメント量を軸とした中心量を算定し、各観測点の2次標準化中心時間モーメントの結果を図-6にプロットする。

トレーサ源が位置する $y=0$ の軸上から離れた地点では、横分散現象により物質が到達するNAPL無しのケースに対して、NAPL規模の増大とともに物質到達状況に変化が生じるため、2次時間モーメント量が増加する。特に、実験ケース3や4においてはNAPLプールの有無に対応した差異が見て取れ、NAPLの存在により2次モーメント量は2倍から5倍の増加傾向にある。同時に、NAPL規模の増大とともに均質地盤にて得られる2次モーメント量との対比が明確になり、この点から観測点 P_7 や観測点 P_8 はNAPLプール規模の影響を受ける領域と言える。

一方、観測点 P_3 と観測点 P_6 における時間モーメントの増加量は均質地盤に比して約1オーダー程度となり、横分散の影響を大きく受ける観測点よりもNAPLプールの有無が際立っているものの、NAPLプール規模に応じた相違は明確ではない。NAPLプールの両側に分岐した物質は迂回した後NAPLプールの直下流部で融合し、観測点 P_3 と観測点 P_6 に到達することとなる。NAPLプール存在形状に依存して左右に分岐した物質の迂回量は異なってくるため、迂回による移行経路の増大とNAPL両側

でミクロの移行経路に差異が生じる点が観測点 P_3 と観測点 P_6 における破過時間領域の増大につながると推察される一方で、本実験において対象とするNAPLプール規模においては浸透路長が極端に大きく異なることから、NAPLプール規模への依存性が低いモーメント増加量となったと考えられる。したがって、縦分散の影響を受ける領域ではNAPLの存在が判定され、同時に横分散に依存して物質が通過する領域では存在するNAPLの体積を判別できる可能性を有していると言える。

さらに、破過曲線形状についてより詳細に検討するため、左右対称性の指標である3次標準化中心時間モーメントを式(3)に基づいて導出し、得られた結果を図-7に示す。破過曲線の形状が完全に左右対称の場合には3次時間モーメントの値はゼロとなり、テーリングの延伸に応じて数値は正の方向に増加することとなる。図-7より観測点 P_4 を除いて、NAPLプールの規模に依存した3次時間モーメント量が得られており、NAPLの存在は3次モーメント量の増加につながることがわかる。特に、観測点 P_3 と P_6 に関してはNAPLプールの有無が3次モーメント量の変化に及ぼす影響が明白であり、浸透流速に関係なく約2オーダー程度増加する傾向にある。また、観測点 P_7 や観測点 P_8 など時系列濃度変動が横分散に依存する領域にて求められる3次時間モーメント量の情報はNAPLの存在を判別する材料となり得ると言える。

以上の議論より、3次時間モーメントでは観測点に応じてNAPLの影響が顕著に現れることから、本実験場のように均質地盤内にトラップされたNAPLプールの規模を推定の対象とする場合、種々の観測点における1次から3次時間モーメントを評価することでNAPLの有無と体積を判別する1つの指標になる可能性があると言える。

(4) 時間モーメントの変動比

これまでの議論から、NAPLプールの上流部に位置する観測点 P_4 はいずれの時間モーメントに関してもNAPLプールの影響を受けていないことがわかる。そこで、観測点 P_4 の時間モーメントに対する他の観測点のモーメントを変動比として算定し、NAPLプールと時間モーメント変動比の関係について考察する。

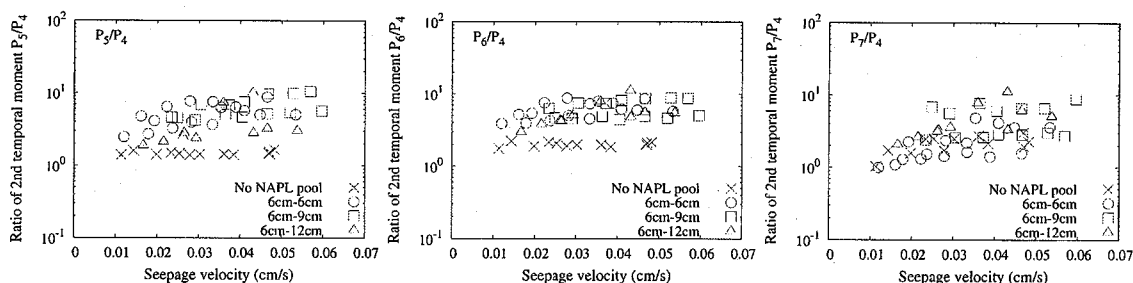


図-9 観測点 P_5 , P_6 , P_7 の2次標準化中心時間モーメントの変動比結果

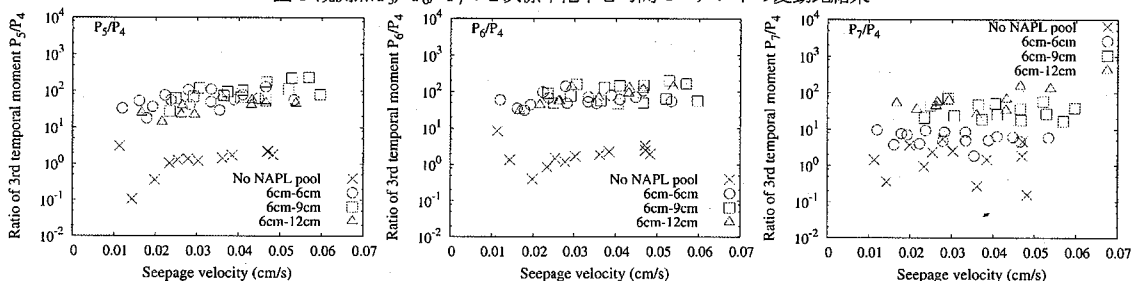


図-10 観測点 P_5 , P_6 , P_7 の3次標準化中心時間モーメントの変動比結果

各浸透流速場を対象として、各観測点の1次標準化絶対時間モーメントを観測点 P_4 にて算定された1次標準化絶対時間モーメントの値で正規化した変動比結果を図-8に示す。変動比の観点から1次時間モーメントを評価するとすべての観測点において、流速に関わらず観測点固有の一定値をとるため、観測点 P_5 , P_6 の状態を示している。したがって、本実験で対象としたNAPLプール規模の範囲においては、4.2節と同様に、1次時間モーメントの変動比を算定したとしてもNAPLプールの規模を把握することは困難であると言える。

次に、各観測点における2次標準化中心時間モーメントを観測点 P_4 で得られるモーメント量で正規化した変動比結果を観測点 P_5 , P_6 , P_7 を代表として図-9に示す。NAPLプールを含有しない地盤の場合は浸透流速に関わらず観測点 P_5 の変動比は約1.5、観測点 P_6 の変動比は約2.0となり、一定で推移するのに対して、観測点 P_7 では流速とともに変動比は増加する傾向にある。これは均質地盤に見られる性質であり、横分散の影響を受ける度合いが変動比として表されている結果である。一方、地盤内にNAPLプールがトラップされると変動比に変化が見られ、汚染源と同じ y 軸上の観測点 P_5 と P_6 にて均質地盤に比して2倍から5倍の増加であり、浸透経路の変化が流速と変動比の関係に大きく影響を及ぼす要因として推察される。

また、観測点 P_7 ではNAPLプールが最も小さい実験ケース2の変動比は均質地盤の値とさほど変わらないものの、NAPLプール規模の拡大とともに回り込みによる物質の到達時間に変化が生じるため、変動比はNAPL規模に対応して増加する傾向にある。これは基準となる観測点 P_4 よりもNAPLプールの影響により物質通過時間帯が

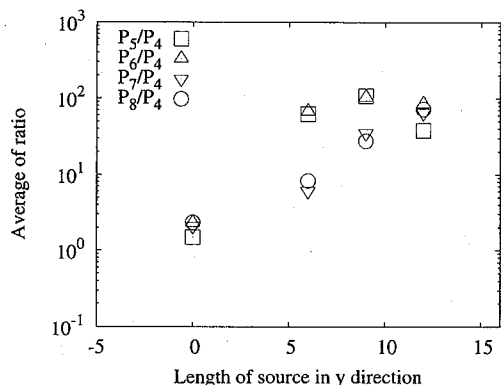


図-11 NAPL プール規模と3次標準化中心時間モーメント変動比の平均値の関係

増加、すなわち均質地盤における破過時間以上に、破過曲線の分布形状が延伸する結果であり、NAPL分布が広いほどテーリング形状が顕著となる点を反映している。この点は回り込みによる移行経路の変化と横分散の影響領域をうまく評価することにより、NAPLプールの存在を推定できることを示唆している。

テーリング形状の変化からNAPLプールの存在を評価するため、図-10に観測点 P_4 の3次時間モーメント量を基準として各観測点の3次標準化中心時間モーメントに関する変動比を示す。図に見られるように、NAPL直下流部の観測点 P_5 と P_6 における3次時間モーメントの変動比は均質地盤よりも約2オーダー異なることから、3次時間モーメント変動比の導入はNAPLプールの有無を判別するにあたり有益な物理量となると言える。しかしながら、中心時間モーメント量に基づく考察と同様に、変動比の観点からもトレーサ源直下流部における観測点では、

NAPLプールの規模を捉えることは困難である。そのため、NAPL規模の差異が変動比として反映されている観測点P₇の結果が示すように、これらの地点の破過曲線がNAPLプールの規模を推定する際に有効となる可能性を示唆している。

そこで、いずれの観測点においても3次時間モーメントの変動比は流速への依存性が低いことから、実験ケースごとに変動比の平均値を算出し、NAPLプール規模との関係について考察する。図-11にはNAPLプールのy軸方向規模と変動比の平均値の関係をプロットしており、観測点P₈の結果も合わせて示している。NAPLプール直下流域の観測点P₅とP₆では、平均値のNAPL規模への依存性は小さいのに対して、観測点P₇とP₈の平均値はNAPLプール規模とともに増加することがわかる。よって前述のように、縦分散領域では均質地盤とNAPL地盤の変動比は大きく異なる点がNAPLの存在判定情報となるものの、NAPL存在量の推定に向けた有力な情報になりにくい一面を有している。対照的に、横分散領域では均質地盤に対する変動比は際立って大きい値とはならないが、NAPLプール規模に応じた変動比をとる傾向にあることから、NAPL存在量の推定に利用できると言える。

以上の議論より、横分散領域と縦分散領域の計測結果を組み合わせた時間モーメント特性評価の導入はNAPLプールの存在量や存在位置推定に向けた有益な基礎情報を提供する手段となり得ることが期待される。

5. 結論

本研究では帯水層におけるNAPLプール規模の推定に向けて、ラボスケールのNaClトレーサ実験を通じて種々の空間位置における時間モーメント量の変動特性を均質地盤を対象に検討した。本研究で得られた成果をまとめると以下ようになる。

1. 実験地盤の分散特性を評価するために逆推定された縦分散長は0.02cmであり、ペクレ数は2.5と算定された。したがって、本研究では比較的分散性が小さく、移流が卓越した均質浸透場に対する時間モーメント特性を評価することを示している。
2. NAPLプールを有する地盤ではNAPLの下流域において破過曲線のテーリングが見られ、NAPLプールが存在しない地盤に比して領域内のピーク濃度ならびに濃度推移状況に大きい変化が生じる。
3. 各観測点の1次標準化絶対時間モーメントは流速の増加とともに減少し、本実験スケールにおいては、NAPLプールの規模に関わらずほぼ同じモーメント量となる。これは変動比の結果からも同様であり、

NAPLプール規模の推定材料になり難いと言える。

4. NAPLプールの直下流にある観測点の方が流れと垂直方向にある観測点よりも2次標準化中心時間モーメントは大きくなり、均質地盤と比してモーメント量の増加割合が大きい。これは3次標準化中心時間モーメントに関しても同様であり、横分散の影響を受ける領域においてはNAPLプール規模に応じたモーメント特性が観察される。
5. NAPL上流部に位置する観測点を基準とした2次標準化中心モーメント量の変動比の観測点より、NAPLプールの直下流部に位置する観測点では変動比と流速の関係が均質地盤と比べて大きく変化する一方で、横分散の影響領域はNAPLプール規模に応じた値となる結果が得られた。
6. また、3次時間モーメントの変動比の導入はNAPLプールの有無を判別するにあたり有益な指標となると考えられ、空間的に広く観測点を配置して横分散領域と縦分散領域の特徴をうまく抽出することでNAPLプールの存在のみならずその規模の推定に向けた情報として活用できると考えられる。

本研究は移流卓越の浸透場を興味の対象としたものの、地質構造により物質の分散性には変化が生じる。特に、不均質地盤に対する時間モーメント解析の展開を図る上で、不均質性とNAPLプール規模あるいはその存在位置が時間モーメント量の変化へ寄与する程度を評価することが望まれる。本実験により得られた知見を基礎として、これらの点に関する検討が今後の課題に挙げられる。

参考文献

- 1) Dai D., Barranco Jr. F.T. and Illangasekare T.H. : Partitioning and interfacial tracers for differentiating NAPL entrapment configuration: column-scale investigations, *Environmental Science and Technology*, Vol. 35, No. 24, pp. 4894-4899, 2001.
- 2) Jawitz J.W., Sillan R.K., Annable M.D., Rao P.S.C. and Warner K. : In-situ alcohol flushing of a DNAPL source zone at a dry cleaner site, *Environmental Science and Technology*, Vol. 34, No. 17, pp. 3722-3729, 2000.
- 3) Divine C.E., Sanford W.D. and McCray J.E. : Helium and neon groundwater tracers to measure residual DNAPL: laboratory investigation, *Vadose Zone Journal*, Vol. 2, pp. 382-388, 2003.
- 4) Zhang Y. and Graham W.D. : Partitioning tracer transport in a hydrogeochemically heterogeneous aquifer, *Water Resources Research*, Vol. 37, No. 8, pp. 2037-2048, 2001.
- 5) James A.L., Graham W.D., Harfield K., Rao P.S.C. and Annable M.D. : Optimal estimation of residual non-aqueous phase liquid saturations using partitioning tracer concentration data, *Water Resources Research*, Vol. 33, No. 12, pp. 2621-2636, 1997.

- 6) Zhang Y. and Graham W.D. : Spatial characterization of a hydrogeochemically heterogeneous aquifer using partitioning tracers: optimal estimation of aquifer parameters, *Water Resources Research*, Vol. 37, No. 8, pp. 2049-2063, 2001.
- 7) Annable M.D., Rao P.S.C., Hatfield K., Graham W.D., Wood A.L. and Enfield C.G. : Partitioning tracers for measuring residual NAPL: results from a field-scale test, *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 124, No. 6, pp. 498-503, 1998.
- 8) Annable M.D., Rao P.S.C. and Kim H. : NAPL source zone characterization and remediation technology performance assessment: recent developments and applications of tracer techniques, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 45, pp. 63-78, 2000.
- 9) Valocchi A.J. : Validity of the local equilibrium assumption for modeling sorbing solute transport through homogeneous soil, *Water Resources Research*, Vol. 21, No. 6, pp. 808-820, 1986.
- 10) Imhoff P.T. and Pirestani K. : Influence of mass transfer resistance on detection of nonaqueous phase liquids with partitioning tracer tests, *Advances in Water Resources*, Vol. 27, pp. 429-444, 2004.
- 11) Kim H., Annable M.D. and Rao P.S.C. : Influence of air-water interfacial adsorption and gas-phase partitioning on the transport of organic chemicals in unsaturated porous media, *Environmental Science and Technology*, Vol. 32, No. 9, pp. 1253-1259, 1998.
- 12) Holman B.A. and Gschwend P.M. : Estimating sorption rates of hydrophobic compounds in iron oxide- and clay-coated aquifer sands, *Environmental Science and Technology*, Vol. 31, No. 1, pp. 105-113, 1997.
- 13) Das B.S. and Kluitenberg G.J. : Moment analysis to estimate degradation rate constants from leaching experiments, *Soil Science Society of America Journal*, Vol. 60, pp. 1724-1731, 1996.
- 14) Goltz M.N. and Roberts P.V. : Using the method of moments to analyze three-dimensional diffusion-limited solute transport from temporal and spatial perspectives, *Water Resources Research*, Vol. 23, No. 8, pp. 1575-1585, 1987.
- 15) Goldberg D.E.: *Genetic algorithms in search, optimization, and machine learning*, Addison-Wesley Publishing, 412p., 1989.
- 16) Woodbury A., Sudicky E., Ulrych T.J. and Ludwig R. : Three-dimensional plume source reconstruction using minimum relative entropy inversion, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 32, pp. 131-158, 1998.
- 17) Inoue K., Masaki I. and Tanaka T. : Parameter estimation and contaminant source characterization in horizontal tracer experiment in two-layered porous media, *Journal of Rainwater Catchment Systems*, Vol. 12, No. 1, pp. 1-6, 2006.
- 18) Inoue K., Kawabata T., Uchida K. and Tanaka T. : An evaluation of dispersion characteristics through a sandy mud soil layer, *Proceedings of the 17th International Offshore and Polar Engineering Conference & Exhibition 2007*, pp. 530-537, 2007.
- 19) Forrer I., Kasteel R., Flury M. and Flühler H. : Longitudinal and transverse dispersion in an unsaturated field soil, *Water Resources Research*, Vol. 35, No. 10, pp. 3049-3060, 1999.
- 20) Harleman D.R.F. and Rumer R.R. : Longitudinal and lateral dispersion in an isotropic porous medium, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol. 16, pp. 385-394, 1963.
- 21) Dagan G. and Fiori A. : The influence of pore-scale dispersion on concentration statistical moments in transport through heterogeneous aquifers, *Water Resources Research*, Vol. 33, No. 7, pp. 1595-1605, 1997.

(2007. 5. 25 受付)

Evaluation of Temporal Moment Variation in Space for Estimating NAPL Pool

Kazuya INOUE¹, Ippei MASAKI², Fumiyo SUZUKI³ and Tsutomu TANAKA¹

¹Graduate School of Agricultural Science, Kobe University

²Nihon Suido Consultants Co., Ltd.

³Graduate School of Science and Technology, Kobe University

In this paper, the method of temporal moment (MOM) formulae is applied to analyze breakthrough data from a laboratory miscible displacement experiments of sodium chloride as a conservative tracer and to investigate the influence of the magnitude of entrapped nonaqueous phase liquid (NAPL) to the spatial variation of one-, two- and three-temporal moments at observation points in a horizontally placed flow field filled with silica sand. The results reveal that breakthrough curves measured at downstream side of NAPL pool reflect the evidence of NAPL pool existence through a comparison with the results obtained under the homogeneous flow condition while change of temporal moments in a region where transverse dispersion affects a time series of concentration data shows the magnitude of NAPL pool. Integrated evaluation of temporal moment variation in space associated with the variation ratio according to a monitoring location suggests that the MOM has a potential to provide an additional useful means of the estimation for NAPL source location and the quantity of NAPL present.