

1,4-ジオキサン濃度データを用いた 地下水汚染シミュレーションのパラメータ 決定に関する研究

石井 一英¹・藤山 淳史²・佐藤 昌宏²・古市 徹²・宍戸 佑美果²・

¹正会員 北海道大学准教授 大学院工学研究院 (〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

E-mail: k-ishii@eng.hokudai.ac.jp

²正会員 北海道大学特任助教 大学院工学研究院 (〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

E-mail: fujiyama@eng.hokudai.ac.jp

³正会員 北海道大学助教 大学院工学研究院 (〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

E-mail: satomasahiro@eng.hokudai.ac.jp

⁴正会員 北海道大学客員教授 大学院工学研究院 (〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

E-mail: t-furu@eng.hokudai.ac.jp

⁵非会員 北海道大学学部生 工学部 (〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目)

本研究では、不法投棄現場の1,4-ジオキサン地下水汚染修復シミュレーションのためのパラメータの決定を試みる。地下水位と1,4-ジオキサン濃度の観測データの両方を用いて、複数地層の透水係数、有効間隙率、縦分散能を同時推定するCoupled estimation method (CEM)に基づくアルゴリズムを開発し、模擬場にてその推定精度を検証した。次に、実不法投棄現場に適用し、不法投棄行為から6年後に設置された鉛直遮水壁を考慮し、3つの帯水層に及ぶ78箇所の地下水位と90箇所の濃度データを用いて、帯水層間の粘土層も含む5つの地層の透水係数及び縦分散能の合計10個のパラメータの同時推定を行ったところ、濃度値 (mg/L) の±1オーダーの精度にまで予測精度を向上することができた。

Key Words : 1,4-dioxane, groundwater contamination, numerical simulation, parameter estimation

1. 研究背景と目的

有害廃棄物の不法投棄等など廃棄物に起因する土壌・地下水汚染が、未だ問題として残っている。日本政府は、平成15年に「特定産業廃棄物に起因する支障の除去等に関する特別措置法」により平成24年度末までに、いわゆる平成10年以前に投棄された特定産業廃棄物による生活環境上の支障またはそのおそれの除去を目的に補助金による修復事業を展開してきた。しかしながら、多くの汚染現場では、平成24年度末までに汚染修復が終了せず、平成25年度から特措法が延長され、各修復事業も修復計画の大臣同意を得て、平成34年度末の修復完了を目指して修復対策を行っている所である。

修復延長の理由は様々であるが、その主な理由の一つに、平成21年度に新規に環境基準項目に追加された汚染物質である1,4-ジオキサンによる汚染が発覚したことがあり、平成34年度末の修復完了が望まれている。そこで

本研究では、汚染機構の解明や修復対策の改善のため、1,4-ジオキサン汚染現場を対象として、数値シミュレーションの開発を行っている。

1,4-ジオキサンは、土壌の性質にもよるが、土壌への吸着、揮発、微生物分解による作用がほとんど無視できる。従って、1,4-ジオキサンは地下水流れと共に移動するが、特に複雑な地形・地質条件に起因する複雑な地下水流れを有する汚染現場では、1,4-ジオキサンの挙動も複雑となり、調査や数値解析による予測や修復を困難なものとしている。そこで今池ら¹⁾は、通常使われているTwo-stage method (透水係数の逆推定による地下水流れ場を決定した後に、移流分散解析により有効間隙率や分散能を決定) よりも、Coupled estimation method (CEM, 地下水位及び濃度データの両方を一度に用いて、透水係数、有効間隙率、分散能の3つのパラメータを同時に決定) の方が、推定精度が改善されることを示した。しかしながら、濃度の観測値と計算値では、2オーダー(mg/L)以

上の差があり、十分な推定精度ではなかった。その原因として、下記の2つが考えられた。

一つ目は、手法上の問題である。CEMでは、値の大きさや感度が異なる透水係数、有効間隙率、分散能の3つのパラメータを複数の帯水層に渡って推定することになる。例えば、透水係数は、砂や粘土など構成物質により、その値はオーダーで変化する。一方、有効間隙率は、 10^1 のオーダー、分散能は、スケール依存性はあるが、当該不法投棄現場であれば、 $10^0 \sim 10^1$ のオーダーであろう。すなわち、探索範囲が大きく異なる上、その値の変化が結果に及ぼす感度が異なる複数のパラメータを同時推定することが果たして可能であるかという課題がある。

もう一つは、現場のモデル化の問題である。これまでのモデルでは、1996年に1,4ジオキサンを含む廃棄物が不法に投棄され、2011年までの15年間の計算値と観測値を比較し、パラメータ推定を行っていた。その際、2002年に設置された鉛直遮水壁についてはソフトウェアの制約上、1996年、つまり不法投棄直後から設置されたと仮定して計算を行っていた。そのため、1,4ジオキサンの分布に違いが生じたと考えられる。このような修復履歴の変化を考慮することは、解析上極めて重要である。ソフトウェア上の制約を克服して、修復履歴を考慮した解析により、新たにパラメータを推定する必要がある。

そこで、本研究の目的を、上記2つの問題に対応し、1) CEMによって、オーダーや感度が異なる複数のパラメータを同時推定できることの確認を単純モデルを用いて検証すること、及び2) 当該汚染現場の修復履歴を考慮し、1,4ジオキサン濃度の推定精度を向上させることとした。

2. 基本方程式とCoupled estimation method

(1) 基本方程式

式(1)に、一般的な地下水流れ方程式を示す。

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(k_{ij} \frac{\partial h}{\partial x_j} \right) = S_s \frac{\partial h}{\partial t} + Q \quad (1)$$

ここで、 i, j ($= 1, 2, 3$) は総和規則による表示、 k : 透水係数 [m/s], h : 地下水位 [m], S_s : 比貯留係数[1/m], Q : 湧きだし項 [1/s], x : 空間軸 [m], t : 時間 [s]である。なお、本研究では、地下水流れを定常状態として扱った。汚染物質の輸送方程式は、式(2)から(5)に示す移流分散方程式を用いた。

$$nR \frac{\partial c}{\partial t} = -v_i \frac{\partial c}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(nD_{ij} \frac{\partial c}{\partial x_j} \right) - nrc - Q_s \quad (2)$$

$$R = 1 + \rho_d / n K_d \quad (3)$$

$$D_{ij} = \alpha_T \|V\| \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_i V_j}{\|V\|} + \alpha_m \tau \delta_{ij} \quad (4)$$

$$\alpha_T = \frac{1}{10} \alpha_L \quad (5)$$

ここで、 n : 有効間隙率[-], R : 遅延係数[-], c : 濃度 [mg/L], v : ダルシー速度[m/s], D : 分散係数 [m²/s], r : 減衰定数[1/s], Q_s : source and sink項[mg/L/s], ρ_d : 土壌粒子密度 [kg/L], K_d : 分配係数 [L/kg], V : 間隙速度[m/s], α_L : 縦分散能[m], α_T : 横分散能, α_m : 分子拡散係数 [m²/s], τ : 屈曲率, δ_{ij} : クロネッカーのデルタである。

(2) Coupled estimation method (CEM)

本研究では、従来良く用いられてきたTwo-stage methodではなく、Coupled estimation methodを用いた。Two-stage method^{2,3)}は、式(1)中の透水係数を地下水位の観測値と合うように推定した後、今度は推定された透水係数を用いて式(2)中の有効間隙率と分散能を濃度の観測値と合うように推定する方法である。しかし、Two-stage methodには、式(2)からも分かるように、濃度分布は地下水流れに依存するにも関わらず、濃度観測値の情報が透水係数の推定に活用されていないという課題がある。一方、CEM⁴⁾は、地下水位及び濃度の観測値と計算値の差の二乗和を線形結合させた目的関数を用いて、その目的関数が最小になるように、式(1)と式(2)の両方の透水係数、有効間隙率及び分散能のパラメータを同時推定する方法である。これにより、透水係数の推定にも濃度情報が活用されることになるので、Two-stage methodの課題は改善される。しかしながら、計算に時間がかかりすぎるなど、実際の汚染現場での、しかも3次元、複数帯水層の問題への適用例はほとんどない。これは、式(2)の解を求めるときに、長期間の計算を何度も繰り返す必要があるからである。

本研究で用いた目的関数を式(6)に示す。

$$F(k, n, \alpha_L) = H^r + \lambda C^r \quad (6a)$$

$$H^r = \sum w_h (h_{cal}^r - h_{obs}^r)^2 \quad (6b)$$

$$C^r = \sum w_c (c_{cal}^r - c_{obs}^r)^2 \quad (6c)$$

$$h_{obs}^r = \frac{h_{obs} - h_{min}}{h_{max} - h_{min}} \quad (6d)$$

$$c_{obs}^r = \frac{c_{obs}}{c_{max}} \quad (6e)$$

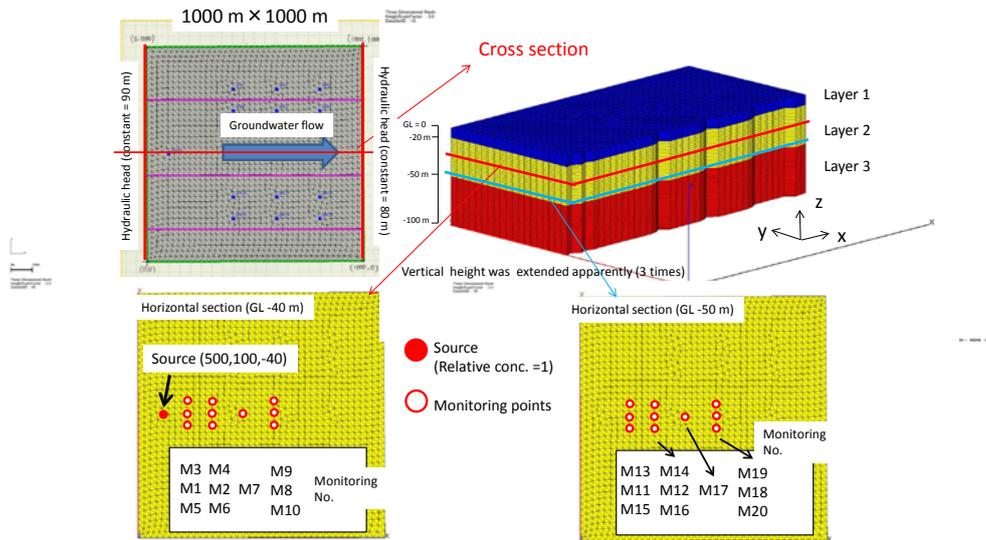


図-1 単純モデルの概要

$$h_{cal}^r = \frac{h_{cal} - h_{min}}{h_{max} - h_{min}} \quad (6f)$$

$$c_{cal}^r = \frac{c_{cal}}{c_{max}} \quad (6g)$$

ここで、 h_{cal} 及び c_{cal} は地下水位と濃度の計算値、 h_{obs} 及び c_{obs} は地下水位と濃度の観測値、上付文字の r は相対値を示しており、 h_{max} 及び h_{min} は観測地下水位の最大値と最小値、 c_{max} は観測濃度の最大値、 w_h and w_c は、各観測データの重み付け（本研究では、両者共に1としている）であり、 λ は地下水位情報に対してどの程度濃度情報を考慮するかを表現する重み付けの値である。

3. 単純モデルによるCEM推定精度の検証

(1) 単純モデルの構築

ここでは、Coupled estimation methodが、透水係数、有効間隙率及び分散能の3つの異なる範囲で変化するパラメータを同時推定できるか検討するために、単純なモデルを用いて、模擬観測データを生成し、その模擬観測データに合うように、探索初期値を変えながらパラメータを推定することで、元のパラメータにどの程度近づいて推定できたかを評価することにした。

図-1に示すように、3層からなる縦1000 m×横 1000 m×深さ 100 mの3次元の直方体の計算領域を想定した（1層目(Layer 1)：地表面から-20 m、2層目(Layer 2)：-20 m～-50 m、3層目(Layer 3)：-50 m～-100 m）。地下水の上流側に地下水位90 mの水位一定、下流側には地下水位80 mの水位一定条件を与えた。汚染源は、座標（500 m, 100 m, -40 m）に点源として与え、計算時間内で相対濃度1で一

表-1 模擬観測データ生成のためのパラメータ

Layer	Hydraulic conductivity [m/day]	Effective porosity [-]	Longitudinal dispersivity [m]
1	10	0.25	10
2	100	0.25	10
3	1	0.25	10

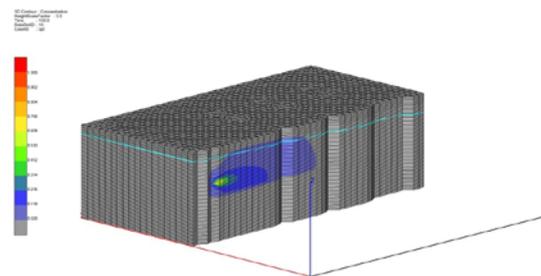


図-2 模擬観測データの一例（100日後、y=500mの断面）

定とした。地表面から-40 mと-50 mの2つの断面に10点ずつ、合計20点の観測点を設けた（M1～M20）。

(2) 模擬観測データの作成

表-1に、模擬観測データを生成するために設定したパラメータの値を示す。地下水流れは定常、汚染物質の移動は非定常で500日間計算を行った。図-2に、模擬観測濃度データの一例を示す。

本解析では、この定常の模擬観測地下水位データ（図などには示していない）及び非定常の模擬観測濃度データの2つを、実際の観測データであると見なして、2層目の透水係数、有効間隙率及び縦分散能の推定を試みる。そして、推定されたパラメータが表-1の2層目の透水係数、有効間隙率及び縦分散能と一致するかどうか検討する。

表-2 パラメータの推定初期値と推定結果

Case no.	Initial value			Estimation result (Estimation error (%))		
	k [m/day]	n [-]	α_L [m]	k [m/day]	n [-]	α_L [m]
1	10	0.2	5	98.87 (-1.13)	0.247 (-1.2)	10.0 (0.0)
2	10	0.2	30	98.17 (-1.83)	0.245 (-2.0)	10.0 (0.0)
3	10	0.35	5	98.21 (-1.79)	0.245 (-2.0)	10.0 (0.0)
4	10	0.35	30	96.59 (-3.41)	0.241 (-3.6)	10.0 (0.0)
5	500	0.2	5	97.85 (-2.15)	0.240 (-4.0)	10.0 (0.0)
6	1000	0.2	30	91.46 (-8.54)	0.227 (-9.2)	10.1 (1.0)
7	1000	0.35	5	118.65 (18.65)	0.300 (20.0)	9.9(-1.0)
8	1000	0.35	30	125.74 (25.74)	0.318 (27.2)	9.9(-1.0)
Given parameter values				100	0.250	10.0

(3) パラメータの推定結果

単純モデルにおける2層目の透水係数、有効間隙率、及び縦分散能を、CEMを用いて推定するにあたり、各パラメータの推定範囲を次のように設定した。

- ・透水係数 10～1000 m/day (真値 100 m/day)
- ・有効間隙率 0.2～0.35 (真値 0.25)
- ・縦分散能 5～30 m (真値 10 m)

さらに、パラメータの推定の初期値として、各推定範囲の最小値と最大値を設定することにした。よって、初期値の組合せは、表-2のように8通り存在する。なお、ケース5の場合は、透水係数1000 m/dayを初期値とすると収束しなかったため、500としてある。このことは後に考察する。

表-2の右段に、各初期値から探索を開始した場合の推定結果を示す。なお、括弧書きは、既知のパラメータからの偏差をパーセンテージで表したものである。透水係数を最小値である10 m/dayから探索を開始したケース1～4では、透水係数は真値よりも小さく推定され、その誤差は-1.13%～-3.41%であった。透水係数とトレードオフの関係にある有効間隙率は小さく推定されており、その後差は-1.2%～-3.6%であった。一方、分散能はほとんど誤差が無く推定されていた。

一方、透水係数の最大値である1000 m/dayから探索を開始したケース5～8では、推定誤差が大きくなる傾向にあった。特に、ケース5では、透水係数1000 m/dayおよび有効間隙率0.2から探索を開始しているが、この場合は収束せずに解析は終了した。このように、物質移動速度が大きくなるような初期値（透水係数であれば最大値、有効間隙率であれば最小値）としたときに、推定誤差が大きくなる傾向にあった。特に、ケース8では、透水係数の誤差が25.74%、有効間隙率の誤差が27.2%、及び分散能の誤差が-1.0%であり、他のケースと比較して大きかった。

次に、最もパラメータ推定誤差が大きかったケース8での模擬観測値と計算値の比較を図-3と図-4に示すが、両者はほぼ一致しており、500日後の模擬観測値と計算値の誤差は、全てモニタリング地点で4.41%～0.54%で

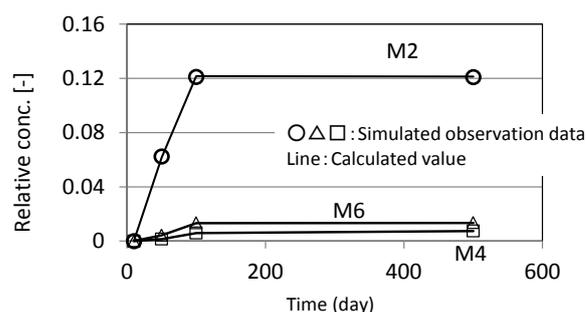


図-3 模擬観測値と計算値の比較
(モニタリング地点 M2, M4, M6)

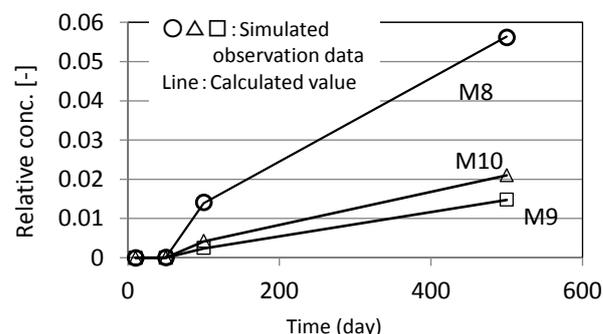


図-4 模擬観測値と計算値の比較
(モニタリング地点 M8, M9, M10)

あった。

以上の結果から、本研究で想定した探索範囲内で、初期値を変えながら、透水係数、有効間隙率、及び縦分散能の3つのパラメータの同時推定を試みた結果、透水係数・有効間隙率・縦分散能の3つのパラメータ自体の推定誤差は決して小さなものではなかったが、濃度分布の計算値は、模擬観測濃度データを良く表現できることから、Coupled estimation methodによる透水係数、有効間隙率及び縦分散能の3つのパラメータの同時推定は有効であることが分かった。

また、透水係数と有効間隙率はトレードオフの関係になることから、片方が決定されると、もう片方が決まりうる。そこで今後は、オーダーで変わりうる透水係数を

表-3 桑名不法投棄現場の修復履歴

年	出来事
1996	1,4 ジオキサン及び揮発性有機化合物を含む有害廃棄物の不法投棄
1997	不法投棄発覚
2002	汚染拡散防止対策としての鉛直遮水壁の設置 揮発性有機化合物の除去を目的とした廃棄物層の浄化（フラッシング）開始
2011	1,4-ジオキサンによる地下水汚染が発覚（新規環境基準指定による調査により） 観測データの取得(2011年1月5日)

優先し、有効間隙率を固定して他のパラメータ推定することとした。

3. 実汚染現場へのCEMの適用

(1) 汚染現場の概要と修復履歴

平成9年に発覚した、三重県桑名市における不法投棄は不法投棄量約30,000m³、不法投棄面積2,906m²の規模で、主に燃え殻、廃油、汚泥等が廃棄されていた。不法投棄された廃棄物からは主にVOCによる土壌・地下水汚染が確認された。桑名市不法投棄現場の地下水は図-5のように、主に第一帯水層、第二帯水層、第三帯水層といった、流れの向きや速さの異なる複雑な三層で構成されている。これまでの修復履歴を表-3に示す。本研究では、1996年に不法投棄行為があり、2002年に鉛直遮水壁を設置し、その後2011年1月5日の濃度観測データ及び2011年1月の地下水位モニタリング値の平均値を、観測値として用いることとした。

(2) 3次元地形・地質モデル

ボーリング柱状図より得られた地質情報に基づき、3次元の地形・地質モデルを構築した。全92のボーリングのデータを用いて、GEOModeler（ジーエムラボ株式会社）により、同一な地質をなめらかな線にて内挿補間し、図-6に示すような3次元地形・地質モデルを構築した。構築の際には、自然地盤9層の他に、廃棄物層及び鉛直遮水壁（難透水性地盤までの深さに応じて18.5 m ~ 25 m）、農業集落水処理施設の地下埋設タンクを人工物として入力した。主な地質構成は、砂層と粘土層の互層構造であり、廃棄物層は第二帯水層にまで達しており、盛り土で覆われている。それから、有限要素メッシュを計算領域東西に250m、南北に200m、深さ50mを計算領域として作成した。平均メッシュサイズは6mであり、要素及び格子数は、それぞれ113,520要素及び60,312点であった。

(3) 観測データ

2011年1月の地下水位の測定データの平均値を用いる。第一帯水層24箇所、第二帯水層26箇所、第三帯水層28箇所

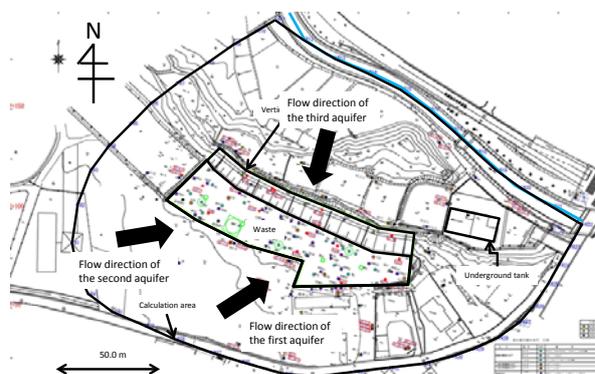


図-5 当該汚染現場の平面図

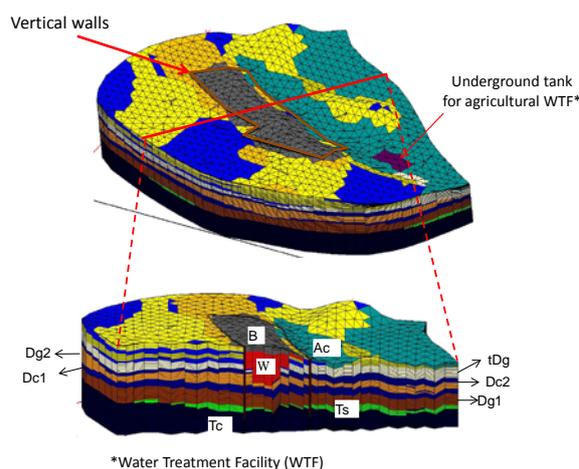


図-6 3次元地形・地質モデル

(B:盛土, W:廃棄物, Ac:粘土層, tDg:砂礫層, Dc2:粘土層, Dg2:砂礫層, Dc1:粘土層, Dg1:砂礫層, Ts:砂層, Tc:粘性土(基盤))

所の合計78の観測データを用いた。一方、1,4-ジオキサン濃度については、2011年1月5日の測定値であり、第一帯水層23箇所、第二帯水層33箇所、第三帯水層33箇所の合計89箇所のデータを用いた。なお、上記の測定値以外の観測値も含めて、 $h_{max} = 56$ m, $h_{min} = 40$ m, $c_{max} = 7.0$ mg/Lと設定した。

(4) 境界条件等の設定

地下水位の境界については、上記観測データを用いて地下水位コンターを作成し、全ての境界について、各帯水層毎に水位一定条件を与えた。一方、濃度については、

各帯水層の流れの上流側に濃度ゼロの条件を与えた。廃棄物層は、層内の1,4-ジオキサン濃度分布に関するデータが乏しいので、廃棄物層全体について、相対濃度1を与えた。汚染源としての濃度の時間変化を考慮すべきであるが、根拠となるデータが無いため、解析期間、相対濃度1で一定として計算を行った。

1,4-ジオキサンは、吸着や微生物分解は無視できる程小さいと考えられるので、 $R = 1, r = 0$ と仮定して計算を行った。

全ての計算は、修復履歴を考慮するため、下記のように2段階で計算を行っている。

a) 1段階目

遮水壁が無い地形・地質構造モデルを用いて、与えられた境界条件の下、地下水流れ場を計算した後に、流れ場は定常として、1996年～2002年までの濃度場の計算を行う。この際、いかなる対策も実施されていない。計算終了後の地下水位と濃度の計算値を一度保存する。

b) 2段階目

鉛直遮水壁を設置した地質・構造モデルに変更し、新たな地下水流れ場を計算する。その後、流れ場は定常として、濃度場の計算を行うが、各節点の濃度の初期値は、1段階目の計算終了時に記録した濃度を用いる。2002年～2011年1月までの計算を行った。

(5) 推定対象のパラメータ

本地形・地質モデルでは、合計16層に遮水壁と農業集落水処理施設タンクを合計18の材質を扱う(表-4)。*印がある地層については、現地での測定データがある。測定データの無い地層については、同等の地層の値を利用することにした。なお、廃棄物層と盛土については想定値であり、鉛直遮水壁とタンクは設計値を根拠にした。有効間隙率及び分散能についても、文献値^{5,6)}を参考にした。

次に、感度の高い帯水層を選択するために、全ての帯水層の透水係数を対象に、感度解析を行った。対象となる透水係数値を1%大きくし、他の透水係数は変化させずに計算し、計算結果への影響を調べたところ、表-4に示すように、 $Dg2$ (第二帯水層) > tDg (第一帯水層) > $tDg2$ (第一帯水層) > $Dg1$ (第三帯水層) > $Dc2$ > $tDg3$ > ... > Ac > $tDc3$ となった。本研究では、上位5つの透水係数、すなわち、 k_{Dg2} , k_{Dg} , k_{Dg2} , k_{Dg1} , k_{Dc2} を変数として選択し、対応する5つの縦分散能、 α_{LDg2} , α_{LDg} , α_{LDg2} , α_{LDg1} , α_{LDc2} の合計10個を変数とした。なお、有効間隙率を対象にしなかったのは、前述した通りである。

(6) パラメータの推定結果

$\lambda = 1$ として、式(6a)の目的関数が最小になるようにして求めた、合計10個のパラメータの同時推定結果を表-5

表-4 本モデルでの推定すべきパラメータ

Layer	Parameters		P [-]	D [m]
	K [m/day]	Sensitivity, (Rank order)		
1. Waste (W)	8.6×10^{-3}	0.0302 (9)		
2. Backfilled soil (B)	8.6×10^{-1}	0.0079 (13)		
3. Sticky soil (Ac)	2.3×10^{-4}	0.0004 (15)		
4. Gravelly soil (tDg4)	8.2×10^{-1}	0.0158 (12)		
5. Sticky soil (tDc3)	2.3×10^{-4}	0.0000 (16)		10
6. Gravelly soil (tDg3)	8.2×10^{-1}	0.0888 (6)		
7. Sticky soil (tDc2)	2.3×10^{-4}	0.0019 (14)		
8. Gravelly soil (tDg2)	8.2×10^{-1}	0.2263 (3)		
9. Sticky soil (tDc1)	2.3×10^{-4}	0.0197 (10)		
10. Gravelly soil (tDg) (the first aquifer)	8.2×10^{-1} * Variable k_{LDg}	0.2323 (2)	0.25	10 Variable α_{LDg}
11. Sticky soil (Dc2)	2.3×10^{-4} * Variable k_{Dc2}	0.1329 (5)		10 Variable α_{LDc2}
12. Gravelly soil (Dg2) (the second aquifer)	1.2×10^0 * Variable k_{Dg2}	0.2480 (1)		10 Variable α_{LDg2}
13. Sticky soil (Dc1)	6.2×10^{-5} *	0.0802 (8)		10
14. Gravelly soil (Dg1) (the third aquifer)	2.0×10^{-1} * Variable k_{Dg1}	0.2037 (4)		10 Variable α_{LDg1}
15. Sandy soil (Ts)	2.7×10^{-1} *	0.0849 (7)		
16. Sticky soil (base) (Tc)	2.9×10^{-4} *	0.0193 (11)		
17. Vertical wall (Wall)	1.72×10^{-4}	-		10
18. Tank (Ta)	1.0×10^{-7}	-		

K: Hydraulic conductivity, P: Effective porosity and D: Longitudinal dispersivity

*: Measured values

表-5 パラメータの推定結果 ($\lambda = 1$ の場合)

Layer	Selected parameters			Search range
	K [m/day]	Search range	D [m]	
8. Gravelly soil (tDg2)	1.83×10^{-2}	$1.0 \times 10^{-2} - 1.0 \times 10^1$	1.00	
10. Gravelly soil (tDg)	3.67	$1.0 \times 10^{-2} - 1.0 \times 10^1$	1.00	
11. Sticky soil (Dc2)	1.97×10^{-2}	$1.0 \times 10^{-6} - 1.0 \times 10^1$	1.00	1.0 - 30
12. Gravelly soil (Dg2)	2.28	$1.0 \times 10^{-1} - 1.0 \times 10^2$	1.00	
14. Gravelly soil (Dg1)	0.437	$1.0 \times 10^{-2} - 1.0 \times 10^1$	1.05	

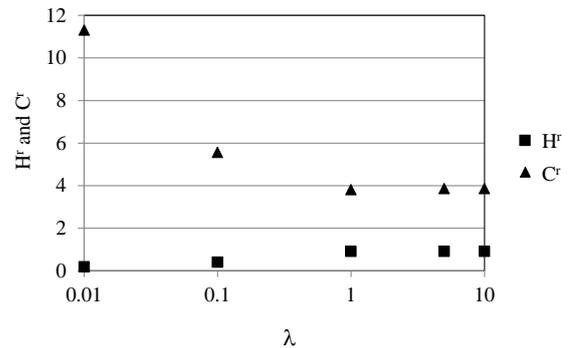


図-7 λと推定誤差の関係

に示す。予め地質の種類に応じて文献値^{5,6)}を参考に定めた探索範囲において推定値が得られたが、分散能のみ、4つの地層において探索範囲の最小値であった。また、粘土層であるDc2層においては粘土層としては比較的大きな値として推定された。これは、実際にはDc2層は、他の粘土層に比べて薄く、かつ不連続に堆積していることを反映していることが理由であると推測される。

次に、 λ を0.01, 0.1, 5, 10と変化させた場合の、地下水位と濃度の観測値と計算値の誤差の大きさ(式(6b)及び(6c)のH'及びC'の値)を図-7示す。 λ が大きくなる、すなわち、濃度情報の考慮の割合を大きくするにつれ、濃度の誤差C'を優先的に小さくするようにパラメータを推定するようになることが分かる。この汚染現場の場合、濃度誤差の観点からは、 $\lambda > 1$ の場合は、H'及びC'共に大

きな変化がなくなり、 $\lambda=1$ の時のCが最小となった。

$$H_i = \frac{1}{n_{hi}} \sum (h_{cal} - h_{obs})^2 \quad (7a)$$

(7) 観測値と計算値との比較

図-8及び図-9に地下水位及び1,4-ジオキサン濃度の観測値と計算値の比較を、 $\lambda=0.01$ と $\lambda=1$ の場合について示す。両図共に、直線は観測値と計算値が等しくなる線を示している。破線については、地下水位は観測データの標準偏差を、濃度は ± 1 オーダーの線を参考に示している。

さらに、各帯水層での推定精度の議論を容易にするために、式(7)に示す観測値と計算値の平均誤差を導入し、図に示した。

ここで、 H_i 及び C_i は、第*i*帯水層の地下水位及び濃度の平均誤差、であり、 n_{hi} 及び n_{ci} は、第*i*帯水層の地下水位及び濃度の観測値数である。

地下水位については、 $\lambda=1$ の場合、第一及び第二帯水層の平均誤差の値が、 $\lambda=0.01$ の場合と比べて大きくなっている。前述した通り、濃度情報をより考慮した結果、地下水位の平均誤差が大きくなる結果となった。

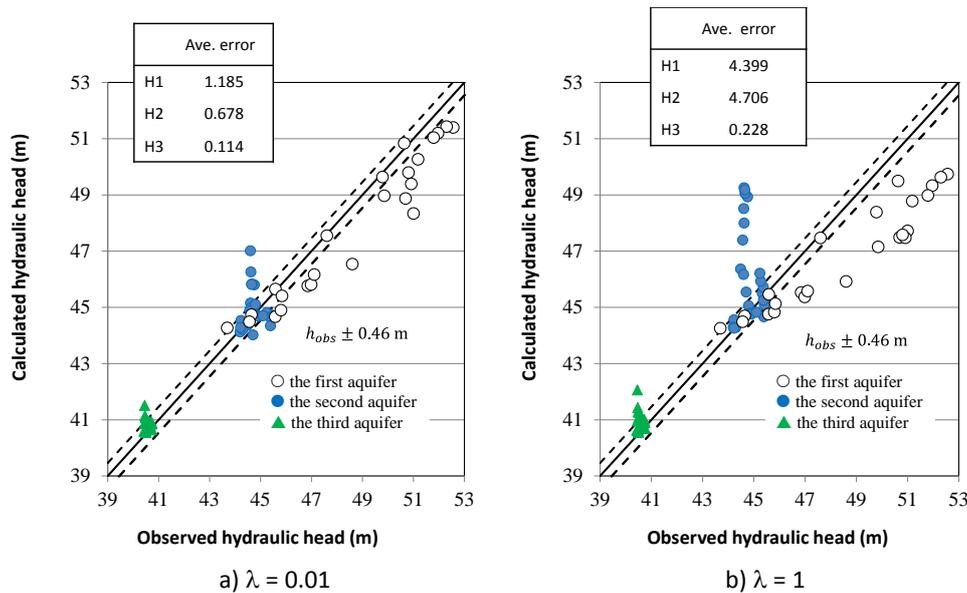


図-8 地下水位の観測値と計算値の比較

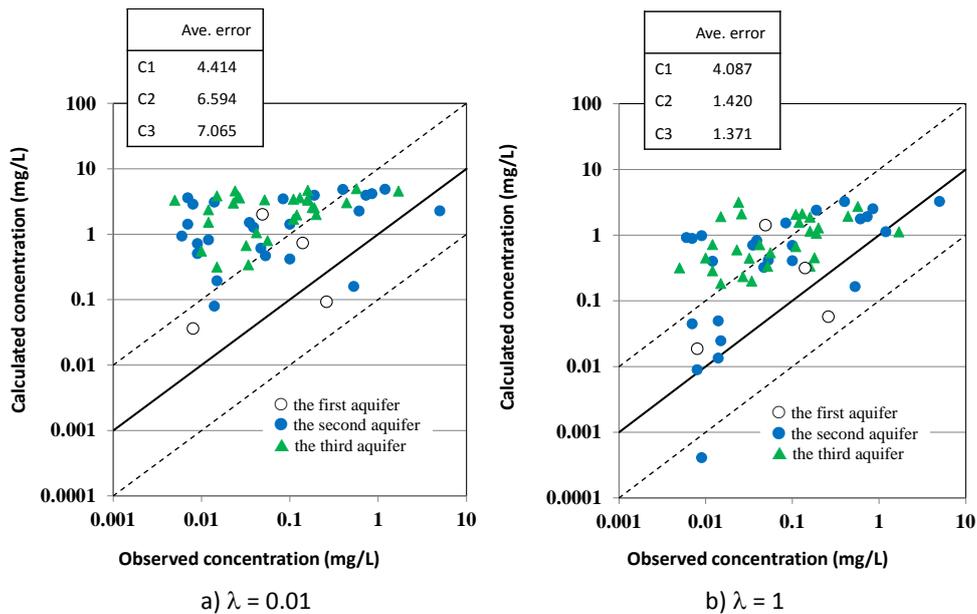


図-9 濃度の観測値と計算値の比較

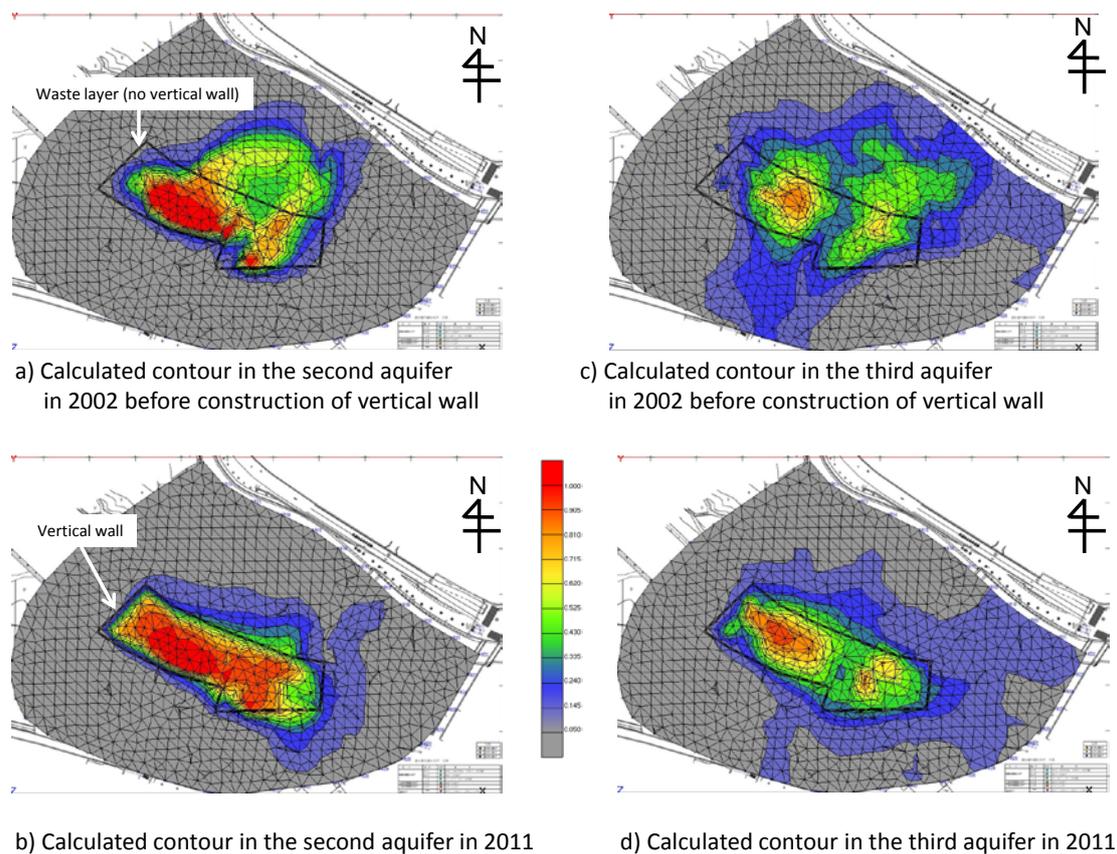


図-10 1,4-ジオキサン濃度分布の推測結果

一方、濃度の場合、 $\lambda=1$ の場合、第二及び第三帯水層の平均誤差の値が、 $\lambda=0.01$ の場合と比べて小さくなっており、濃度の推定誤差が向上したことが分かる。1,4-ジオキサンの環境基準値が、0.05 mg/Lであることを考慮すると、基準値以上の観測点において、濃度が±1オーダーの範囲で推定できていると言える。

これ以上に誤差を小さくするためには、廃棄物層内の1,4-ジオキサン分布や時間変化を考慮する、さらにゾーニングにより、同一地層に複数の透水係数値を割り当てる必要がある。いずれも技術的には可能であるが、パラメータを無駄に多くしてしまう恐れやパラメータの推定根拠の説明が必要となる。

(8) 当該汚染現場の1,4-ジオキサン汚染機構の考察

図-10に第二及び第三帯水層を対象に、遮水壁を設置する直前の2002年、及び設置して約9年経った2011年の1,4-ジオキサン濃度の推定値 ($\lambda=1$) を示す。

第二帯水層 (図-10a) について、遮水壁が無いので1,4-ジオキサンは、廃棄物層から北東方向に地下水流れと共に移動していることが分かる。また第三帯水層 (図-10c) については、廃棄物層から北東及び南西方向の両方向に移動していることがわかる。特に第三帯水層については、廃棄物層が存在しないことから、第二帯水層に位置する廃棄物層から、第三帯水層への鉛直方向の地下

水流れにより、1,4-ジオキサンが下方へ移動し、さらに、第三帯水層における北東及び南西方向に流れる地下水に沿って、1,4-ジオキサンが移動したものと推測される。

一方、遮水壁設置後の第二帯水層 (図-10b) については、遮水壁が設置されたことから、廃棄物層からの汚染拡散が抑制されたこと、そして鉛直遮水壁北側の地下水流れが西から東へ方向に変化したため、遮水壁北側に存在していた1,4-ジオキサンが、新鮮な地下水に置換され希釈された結果が反映されている。また第三帯水層 (図-10d) についても、第三帯水層下の基盤まで鉛直遮水壁を設置したので遮水壁外への1,4-ジオキサンの汚染拡散は抑制された様子が反映されている。

以上より、修復履歴を考慮することで、当該汚染現場の特有の1,4-ジオキサンの汚染状況が数値シミュレーションによって明らかにすることができた。

6. 結論

本研究では不法投棄現場での1,4-ジオキサン地下水汚染修復のための数値モデルの開発を目標として、パラメータ決定について検討を行った。得られた結論を以下に示す。

1) Coupled estimation methodによって、オーダーや感度が異

なる複数のパラメータを同時推定できることの確認を単純モデルを用いて検証することができた。

今後は、より複雑の地質や地下水流れ模擬場での検証を行う必要がある。

2) 当該汚染現場へCoupled estimation methodを適用し、さらに鉛直遮水壁設置した時期を数値シミュレーションに反映させることにより、1,4-ジオキサン環境基準値以上の観測点において、濃度値 (mg/L) の±1オーダーの精度にまで予測精度を向上することができた。

謝辞：本研究は、環境省の環境研究総合推進費（課題番号5-1505）により実施されました。また、現地データの提供にご協力いただきました三重県担当者に感謝申し上げます。

参考文献

1) 今池祥平, 石井一英, 藤山淳史, 佐藤昌宏, 古市

徹：1,4-ジオキサン地下水汚染予測の精度改善のためのパラメータ決定法に関する研究, 第44回環境システム研究論文発表会講演集, pp.1-8, 2016.

- 2) Strecker, E. W., and Chu, W., 1986. Parameter identification of a groundwater contaminant transport model. *Groundwater*. 24(1), 56-62.
- 3) Keidser, A., and Rosbjerg, D., 1991. A comparison of four inverse approaches to groundwater flow and transport parameter identification. *Waster Resour. Res.* 27(9), 2219-2232.
- 4) Sun, N-Z., and Yeh W.W.-G., 1990. Coupled inverse problems in groundwater modeling, 1. Sensitivity Analysis and Parameter Identification. *Water Resour. Res.* 26(10), 2507-2525.
- 5) Wiedemeier, T.H., Rifai, H.S., Newell, C.J. and Wilson, J.T., 1999. *Natural Attenuation of Fuels and Chlorinated Solvents in the Subsurface*, John Wiley & Sons, Inc., New York.
- 6) Gelhar, L.W., Welty, C., Rehfeldt, K.R., 1992. A Critical Review of Data on Field-Scale Dispersion in Aquifers, *Wat. Resour. Res.*, 28(7), 1955-1974.

(2017.6.21 受付)

STUDY OF PARAMETER ESTIMATION FOR 1,4-DIOXANE GROUNDWATER CONTAMINATION SIMULATION USING CONCENTRATION DATA

Kazuei ISHII, Atsushi FUJIYAMA, Masahiro SATO, Toru FURUICHI
and Yumika SHISHIDO

This study attempted to determine parameters in numerical simulation model for 1,4-dioxane groundwater contamination at an illegal dumping site. An algorithm for coupled estimation method, where hydraulic conductivities, effective porosities and longitudinal dispersivities in multiple layers are estimated simultaneously using both hydraulic head and concentration data, was developed. The accuracy in the parameter estimateion was verified by a simulated simple model. The verified coupled estimation model was applied to the illegal dumping site. Considering a history of remedial action such as construction of vertical walls around the waste layer, hydraulic conductivities and longitudinal dispersivities in five layers including three aquifers was successfully estimated to predict 1,4-dioxane concentration (mg/L) within ± 1 order.