

論 文

Amplitude Domain Reflectometry 法による不飽和砂地盤中の NAPL 含有量と誘電率に関する基礎的研究

諸泉利嗣^{1*}・佐々木裕美²・三浦健志¹¹岡山大学 環境理工学部 環境管理工学科, 〒700-8530 岡山市津島中 3-1-1²日化エンジニアリング株式会社, 〒552-0001 大阪市港区波除 3-12-4

(平成 20 年 12 月 2 日受理)

Fundamental study on NAPL content and permittivity in unsaturated sandy soil using amplitude domain reflectometry

Toshitsugu Moroizumi^{1*}, Yumi Sasaki², and Takeshi Miura¹Department of Environmental Management, Faculty of Environmental Science and Technology, Okayama University, 3-1-1, Tsushima-Naka, Okayama-shi 700-8530, Japan¹Nikka-Engineering Corp., 3-12-4 Namiyoke, Minatoku, Osaka-shi 552-0001, Japan²

Abstract: Subsurface contamination by non-aqueous phase liquid (NAPL) has become a serious environmental issue. Therefore, it is necessary to estimate the NAPL content (θ_{NAPL}) in unsaturated soil to detect and monitor the NAPL contaminations in soil and groundwater. The objective of this study was to investigate the relationship between θ_{NAPL} and permittivity (K) in unsaturated sandy soil as a fundamental study to estimate the θ_{NAPL} . An ADR (Amplitude Domain Reflectometry) method was used to measure the K in the soil including the NAPL which was a castor oil as light NAPL or a HFE-7100 as dense NAPL. The experimental study indicated the linear relation between θ_{NAPL} and \sqrt{K} in unsaturated soil with soil-NAPL-air. Using this relationship, we can estimate the θ_{NAPL} . On the other hand, although we obtained the relationship between θ_{NAPL} , θ_w and \sqrt{K} in unsaturated soil with soil-NAPL-water-air, it was not possible to estimate the θ_{NAPL} using this relationship.

Key words: NAPL, Permittivity, Amplitude Domain Reflectometry, Soil and groundwater contamination

1. 緒 言

近年, 石油系炭化水素や揮発性有機化合物などの水に溶けにくい NAPL (Non-aqueous phase liquid) による土壌・地下水汚染が深刻な問題となっており, 効率的な調査・修復技術の確立が求められている。現在, 地盤の汚染度の測定法としては, サンプルングによる方法が一般的であるが, この方法で原位置において汚染度の経時的な変化を把握することは, 人的労力や経費がかかるなどの問題がある。また, サンプルングの際に NAPL が人体に曝露される危険を含んでいる [1, 2]。汚染の現況や将来的な広がり, さらに修復状況を把握するためには, 原位置で比較的容易にこれらを測定する手法の確立が必要不可欠である。

これまでに, 土壌・地下水中の NAPL 汚染度の非破壊測定法として, 誘電率法が研究されてきた [3, 4,

5, 6]。この方法は, 土壌・地下水の誘電率を出力情報としてとらえ, その出力情報から水と NAPL の誘電率の差を利用して, 土壌の内部情報としての NAPL 含有量を推定するという逆解析的方法と考えることができる [2]。誘電率法を用いた NAPL 汚染地盤の評価法に関する研究は, 土-NAPL-水の飽和 3 相系地盤に関する研究に比べて, 土-NAPL-空気 3 相系および土-NAPL-水-空気 4 相系の不飽和地盤に対する研究はそれほど多くはない。

誘電率法には, 干渉反射波の伝播時間から土壌の誘電率を求める TDR (Time Domain Reflectometry) 法 [7] や, 干渉反射波の周波数領域におけるインピーダンス応答の特性から土壌の誘電率を求める FDR (Frequency Domain Reflectometry) 法 [8] などがある。しかし, これらの方法は, 高価なオシロスコープやスペクトロアナライザーといった機器が必要であり, また, 測定から得られる波形の解析を行う必要がある。一方, 誘電率法の一つである ADR

*連絡先, Corresponding author

(Amplitude domain reflectometry) 法 [9] では、高価な機器は必要とせず、簡単なインピーダンスの測定により土壌の誘電率を求めることができる。

本研究では、不飽和砂地盤における NAPL 汚染度の評価法を確立するための基礎的研究として、誘電率の測定に ADR 法を用いて不飽和砂地盤中の NAPL 含有量と誘電率の関係について実験的に検討した。なお、本論文で用いられている誘電率とは、既往の研究 [1, 3, 4, 5, 6] と同様、比誘電率のことである。

2. ADR 法の原理 [9]

ADR 法に基づく土壌水分センサーは、100 MHz の正弦波発振器、同軸ケーブル、センサープローブから成る。同軸ケーブルは一定の電気抵抗をもち、センサープローブは同軸ケーブルの延長部分として振る舞い、土壌の誘電率に依存する電気抵抗をもつ。

同軸ケーブルにおけるインピーダンス(Z)は、その物理的特性と絶縁体(本研究の場合、土壌)の誘電率に依存する。

$$Z = \frac{60}{K^{1/2}} \ln \left(\frac{r_1}{r_2} \right) \quad (1)$$

ここで、 r_1 は内側の導体の半径、 r_2 はシールド導体の半径、 K は誘電率である。

発振器からの信号は、同軸ケーブルに沿って、センサープローブへ伝えられる。プローブの電気抵抗が同軸ケーブルの電気抵抗と異なれば、ある大きさの信号が反射し戻る。反射する信号の割合は、反射係数と呼ばれ、プローブと同軸ケーブルの電気抵抗で表すことができる。

$$\rho = \frac{Z_p - Z_l}{Z_p + Z_l} \quad (2)$$

ここで、 Z_p はプローブのインピーダンス、 Z_l は同軸ケーブルのインピーダンスである。

反射された信号は、入射する信号と衝突し、同軸ケーブル上で電圧定在波、すなわち同軸ケーブルの長さに沿った電圧振幅の変化を引き起こす原因となる。入射信号と反射信号は正弦の波形をもつため、定在波の波形も正弦である。

発振器が同軸ケーブルの初めの部分で信号 V_0 を与えるとすると、

$$V_0 = a \sin 2\pi ft \quad (3)$$

ここで、 a は発振器出力における電圧の振幅、 f は発振器の周波数、 t は任意の瞬間からの時間である。同軸ケーブルの初めの部分における反射信号は、次式となる。

$$V_o = a \sin 2\pi ft + a\rho \sin 2\pi f \left(t - \frac{2l}{v_p} \right) \quad (4)$$

ここで、 l は同軸ケーブルの長さ、 v_p はケーブルに沿って伝わる信号の速度である。同軸ケーブルの長さが $v_p/4f$ であれば、 V_0 は次式で表される。

$$\begin{aligned} V_0 &= a \sin 2\pi ft - a\rho \sin 2\pi ft \\ &= a(1 - \rho) \sin 2\pi ft \end{aligned} \quad (5)$$

この最大値は、

$$\hat{V}_0 = a(1 - \rho) \quad (6)$$

である。この値は、発信器のどんな周波でも到達する値である。同様に、同軸ケーブルとプローブの接続部での最大電圧は、

$$\hat{V}_j = a(1 + \rho) \quad (7)$$

となる。この2点間の振幅の差は、次式で表される。

$$\hat{V}_j - \hat{V}_0 = 2a\rho = 2a \left(\frac{Z_p - Z_l}{Z_p + Z_l} \right) \quad (8)$$

この振幅の差を測定することで土壌中のプローブの相対的なインピーダンス Z が評価され、 Z_l が既知であれば式(2)より Z_p が求められる。これから、式(1)により土壌の K が求められる。

3. 実験方法

3.1 実験装置の概要

実験装置は、ADR センサーに Theta Probe ML2x、データロガーに HH2 Moisture Meter をそれぞれ用いた (両製品ともに Delta-T Device 社製)。ADR センサーのプローブは本体部に 100 MHz 正弦波発振器、同軸ケーブル、測定電子回路を内蔵し、センサー部は 4 本の平行なステンレス製のロッドから成り立っている。ロッドは、中央の 1 本が信号ロッド、外側の 3 本がシールドロッドで信号ロッドの周囲に電氣的な遮断を形成する。

ADR センサーのマニュアル [10] には、予め出力電圧 (V) と誘電率の平方根 (\sqrt{K}) の関係式が与えられているが、この関係式を用いて水の誘電率を求めたところ、文献値よりも 15 ほど低かった。そこで、水、空気などの誘電率が既知の物質を用いて、次式に示す新たな校正式を求めた。

$$\sqrt{K} = 1 + 12.574V - 50.48V^2 + 118.04V^3 - 123.31V^4 + 47.923V^5 \quad (9)$$

3.2 試料の作成と実験手順

供試土には、土粒子の密度が 2.64 の豊浦砂を用いた。NAPL には、LNAPL (比重の軽い油)としてヒマシ油を、DNAPL (比重の重い油)として HFE-7100 の 2 種類を使用した。Table 1 にこれらの NAPL の基本的な物性値を示す。HFE-7100 が地下水汚染の原因として取り上げられている TCE (トリクロロエチレン) に物性が類似していることや、ヒマシ油、HFE-7100 ともに人体に無害であることなどから、この 2 つの NAPL を選定した。実験は、以下の 2 種類の不飽和系実験について行った。

(1) 不飽和 3 相系実験 (砂-NAPL-空気)

間隙率一定の条件で、加える NAPL の量を変化させて土壌の誘電率を測定した。

(2) 不飽和 4 相系実験 (砂-NAPL-水-空気)

間隙率一定の条件で、加える水と NAPL の量を変化させて土壌の誘電率を測定した。

試料は、豊浦砂と NAPL または水が均一になるように混ぜ、300ml のガラス製ビーカーに間隙率が 0.45 になるように充填した。なお、HFE-7100 は、揮発性

Table 1 Physical properties of materials used in experiments

	Density ($\times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$)	Viscosity ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)	Permittivity (-)
Castor oil	0.961	0.7	4.40
HFE-7100	1.520	5.8×10^{-4}	6.87
Distilled water	0.998	0.001	80.1
Toyoura sand	2.64	—	4.27

に富み、かつ密度が水よりも大きいため、試料作成後できるだけ速やかに測定を行った。

試料を充填したビーカーに ADR センサーを試料表面より鉛直に挿入し、誘電率の測定を行った。測定は同一の試料に対して 3 回実施し、結果の整理にはその平均値を用いた。実験は、約 25°C の室温下で行った。

4. 結果と考察

4.1 砂・NAPL・空気の不飽和 3 相系

Fig.1 に NAPL 含有率 (θ_{LNAPL} および θ_{DNAPL}) と \sqrt{K} の関係を示す。図中には、比較のために体積含水率 (θ_w) と \sqrt{K} の関係も示した。水の場合と比較すると、LNAPL、DNAPL ともに誘電率は小さい。これは、LNAPL と DNAPL の誘電率がそれぞれ 4.4 および 6.87 であり、水の誘電率である 80.1 に比べると非

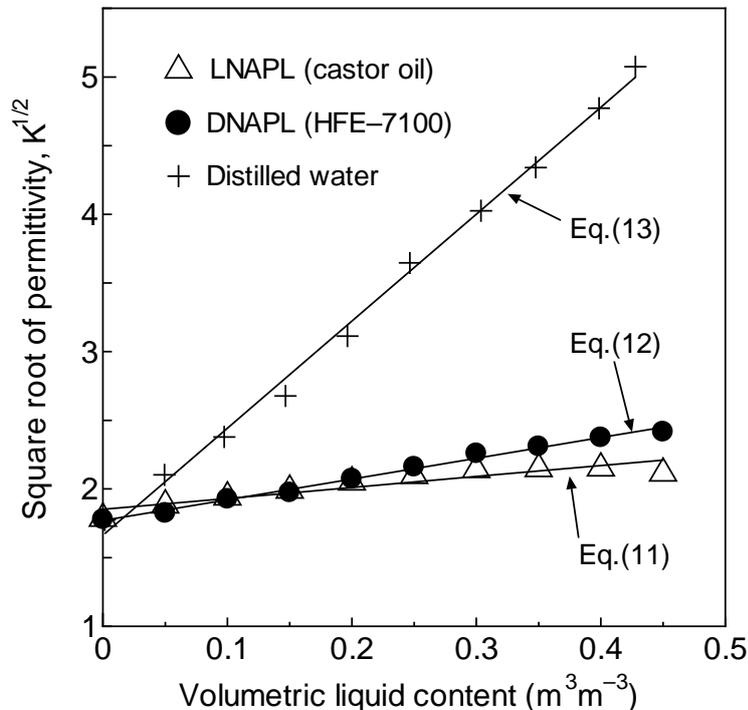


Fig. 1 Relationship between volumetric liquid contents (θ_{LNAPL} , θ_{DNAPL} , and θ_w) and \sqrt{K} in unsaturated soil which is a 3 phases system of soil-NAPL-air.

Symbols (Δ , \bullet , and \times) show experimental data, and solid lines represent equations (11) – (13).

常に小さいためである。しかし、わずかではあるが NAPL の量が増加するとともに、NAPL よりもさらに誘電率が小さい空気が NAPL と置換することによって、NAPL の誘電率は上昇する傾向を示した。これらの傾向は、西垣ら [5] の示した実験結果と同様の傾向となった。また、NAPL の量の増加に伴う誘電率の上昇は、NAPL 含有量が $0.2 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ までは LNAPL と DNAPL にほとんど差がみられないが、 $0.25 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ 以上では DNAPL の方がわずかに上昇率が大きかった。これは、NAPL の誘電率が小さいため、NAPL 含有量が比較的少ない $0.2 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ 付近までは LNAPL と DNAPL の誘電率の差は \sqrt{K} の差にほとんど影響を与えないが、 $0.20 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ 以上の量になると、LNAPL と DNAPL の誘電率の差が \sqrt{K} の差に現れたものと考えられる。

次に、NAPL 含有量と \sqrt{K} の関係式を求める。Whalley [11] は、 θ_w と \sqrt{K} の関係が、次式のように直線近似できることを示した。

$$\sqrt{K} = a_0 + a_1\theta_w \quad (10)$$

ここに、 a_0 と a_1 はフィッティングパラメータである。実験結果を式(10)に適用し、LNAPL、DNAPL および水における関係式を求めると、次式となる。

$$\text{LNAPL} : \sqrt{K} = 1.8516 + 0.7978\theta_{\text{LNAPL}} \quad (11)$$

$$(r^2 = 0.875)$$

$$\text{DNAPL} : \sqrt{K} = 1.7705 + 1.5096\theta_{\text{DNAPL}} \quad (12)$$

$$(r^2 = 0.992)$$

$$\text{水} : \sqrt{K} = 1.6642 + 7.7925\theta_w \quad (13)$$

$$(r^2 = 0.996)$$

Fig.1 にこれらの関係式を実線で示す。LNAPL の $0.45 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ での値に若干ズレが見られるが、いずれの関係式も実測値を十分な精度で表している。

4.2 砂・NAPL・水・空気の不飽和 4 相系

Fig.2 に、体積含水率が一定条件下における NAPL 含有量と \sqrt{K} の関係を示す。また、図中には、式(11)～(13)で表される不飽和 3 相系の場合の NAPL または水の含有率と \sqrt{K} の関係を点線または破線で示している。体積含水率が $0.1 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ と $0.2 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ の場合から分かるように、一定の水分条件下では NAPL 量の増加とともにわずかではあるが誘電率は上昇した。また、NAPL の量が同じである場合には、水分

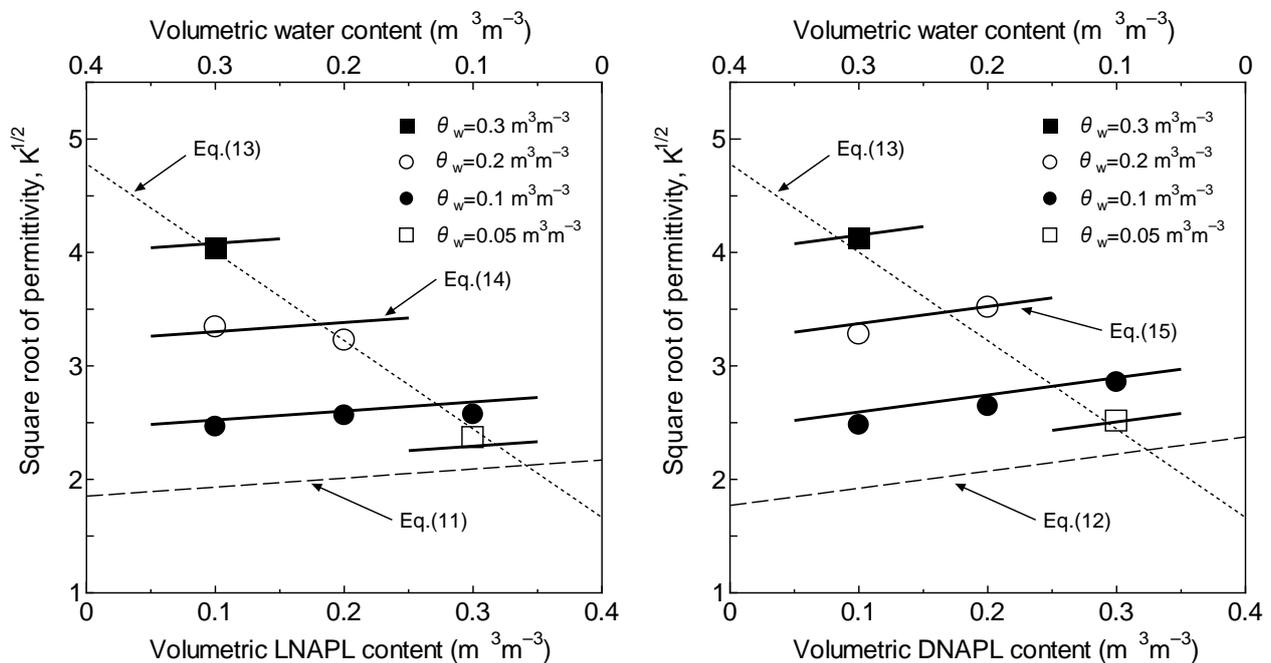


Fig. 2 Relationship between θ_{LNAPL} (or θ_{DNAPL}), θ_w , and \sqrt{K} in unsaturated soil which is a 4 phases system of soil-NAPL-water-air.

Symbols (■, ○, ●, and □) show experimental data under the conditions of constant water content ($\theta_w=0.05, 0.1, 0.2,$ and $0.3 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$). Solid lines represent equations (14) and (15). Dashed and dotted lines also represent equations (11) (or (12)) and (13), respectively.

量が多い方が土壌の誘電率は大きくなった。このように、土壌全体の誘電率は、誘電率の大きい水の含有量でほとんど決まり、それに誘電率の小さいNAPL含有量に応じた誘電率の上昇分が加わることで決定されると考えることができる。

そこで、 θ_w と \sqrt{K} の関係式(13)に式(11)または式(12)の右辺第2項の θ_{LNAPL} の上昇分を加えると、 θ_{LNAPL} と θ_w と \sqrt{K} の関係式は次式で表される。

$$LNAPL : \sqrt{K} = 1.6642 + 7.7925\theta_w + 0.7978\theta_{LNAPL} \quad (14)$$

$$DNAPL : \sqrt{K} = 1.6642 + 7.7925\theta_w + 1.5096\theta_{DNAPL} \quad (15)$$

これらの関係式を Fig.2 に実線で示す。LNAPL, DNAPL とともに式(14)と式(15)は、実測値の傾向をよく表している。このことから、土壌全体の誘電率が誘電率の大きい水の含有量でほとんど決まり、それに誘電率の小さいNAPL含有量に応じた誘電率の上昇分が加わるという考え方が妥当であることがわかる。

4.3 不飽和地盤における NAPL 含有量の推定

ここでは、3 相系および 4 相系不飽和地盤における NAPL 含有量の推定について議論する。

不飽和 3 相系地盤に対しては、式(11) (または式(12)) を右辺の θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) について解くことにより、 K の測定値から θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を推定することができる。

一方、不飽和 4 相系地盤に関しては、式(11) (または式(12)) の右辺に θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) と θ_w の 2 つの未知数があり、 K の測定値から θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を一意的に求めることができない。この場合、誘電率とは別の関係式を用いることができれば、その関係式と式(11) (または式(12)) を連立させることにより、 θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) と θ_w について解を得ることができ、 θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を推定することが可能となる。誘電率とは別の関係式として、例えば、須甲ら [12] は、熱伝導率の関係式を用いている。

4.2 で述べたように、体積含水率による誘電率の変化に比べると NAPL の変化に対する誘電率の変化はそれほど大きくはない。したがって、現地地盤への適用を考えた場合、本研究で提案した手法は不均一性の大きな地盤への適用は難しいと考える。また、比較的均一な地盤へ適用する場合においても、NAPL 含有量を精度良く推定することよりも、NAPL の侵入検知を主目的とした使用を考える方が現実的であると言えよう。

5. 結 論

本研究では、ADR 法を用いて、不飽和砂地盤における NAPL 汚染度の評価法を確立するための基礎的研究として、NAPL 含有量と誘電率の関係について実験的に検討した。以下に、今回得られた知見を要約する。

- (1)不飽和 3 相系の場合は、水の場合に比べて、NAPL の増加に伴う誘電率の上昇小さかった。また、NAPL 含有量が $0.2 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ までは LNAPL と DNAPL の誘電率にほとんど差がみられないが、 $0.25 \text{ cm}^3\text{cm}^{-3}$ 以上では DNAPL の方がわずかに上昇率が大きかった。
- (2)不飽和 4 相系の場合は、一定の水分条件下では NAPL 量の増加とともにわずかではあるが誘電率は上昇した。また、NAPL の量が同じである場合には、水分量の多い方が土壌の誘電率は大きくなった。
- (3)不飽和 3 相系の場合は、 θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) と \sqrt{K} 関係式から θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を推定することが可能であるが、不飽和 4 相系の場合は K の測定値から θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を推定することはできない。この場合、誘電率とは別の関係式を用いることができれば、 θ_{LNAPL} (または θ_{DNAPL}) を推定できることが示唆された。

本研究では、不飽和系地盤における NAPL 含有量と誘電率の関係について実験的に検討したが、砂-NAPL-水の飽和 3 相系地盤については、Moroizumi et al. [13] に詳しい。

謝 辞

本研究の一部は、文部科学省科学技術振興調整費「廃棄物処分場の有害物質の安全・安心保障」(平成 16~18 年度、代表者：岡山大学 小野芳朗 教授)により実施されました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

1. Persson, M. and R. Berndtsson, Measuring nonaqueous phase liquid saturation in soil using time domain reflectometry, *Water Resour. Res.*, 38(5), 1064, doi:10.1029/2001WR000523 (2002)
2. 諸泉利嗣, 繁澤和佳子, 佐々木長市, 双極熱パルス法による飽和砂土の NAPL 汚染度の推定, *地下水学会誌*, 50(1), 17-24 (2008) .
3. Redman, J.D. and S. M. DeRyck, Monitoring non-aqueous phase liquids in the subsurface with multilevel time domain reflectometry probes. *Proceedings of the Symposium on Time Domain Reflectometry in Environmental, Infrastructure, and Mining Applications*, Spec. Publ. SP19-94, NTIS PB95-105789, 207-215, U. S. Bur. of Mines, Washington. D. C. (1994).
4. Ajo-Franklin, J. B., J. T. Geller, and J. M. Harris, The

- dielectric properties of granular media saturated with DNAPL/water mixture. *Geophys. Res. Lett.*, 31, L17501 10, 1029/2004GL020672 (2004).
5. 西垣 誠・小松 満・金 萬鎰, FDR 法による土壌・地下水汚染のモニタリング手法に関する基礎的研究, *地下水学会誌*, 46(2), 145-157 (2004).
 6. 登尾浩助, サーモ TDR プローブによる不飽和土壌中の有機汚染物質濃度の測定, *土木学会論文集 No.783/VII-34*, 33-38 (2005).
 7. Topp, G.C., J.L.Davis, and A.P.Annan, Electromagnetic determination of soil water content: Measurements in coaxial transmission lines, *Water Resour. Res.*, 16, 574-582 (1980).
 8. Dirksen, C, *Soil Physics measurements*, Catena Verlag GMBH, 56 (1999).
 9. Gaskin, G. J. and J. D. Miller, Measurement of soil water content using a simplified impedance measuring technique, *J. agric. Engng, Res.*, 63, 153-160 (1996).
 8. Miller, J. D. and G. J. Gaskin, *ThetaProbe ML2x - Principles of operation and applications*. MLURI Technical Note (2nd ed). Macaulay Land Use Research Institute. Aberdeen. U.K. (1999).
 11. Whalley, W. R., Consideration on the use of time-domain reflectometry (TDR) for measuring soil water content, *Journal of Soil Science*, 44, 1-9 (1996).
 12. 須甲武志, 望月秀俊, 小岩崎真, 熱伝導率と比誘電率を用いた油汚染土壌の汚染度予測法の改良, 第 49 回土壌物理学学会講演要旨集, 28-29 (2007).
 13. Moroizumi, T and Y. Sasaki, Estimating the Nonaqueous-Phase Liquid Content in Saturated Sandy Soil Using Amplitude Domain Reflectometry, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 72(6), 1520-1526 (2008).