研究論文

飽和浸透流中における水の分散係数に及ぼす
流速および粒径分布の影響小川弘道*¹, 山本忠利*¹, 和達嘉樹*¹

(1987年6月1日受理)

(1987年7月16日再受理)

Influence of Flow Velocity and Particle Size Distribution on Dispersion
Coefficient of Water in Saturated FlowHiromichi OGAWA, *¹ Tadatoshi YAMAMOTO *¹ and Yoshiki WADACHI *¹

The influence of flow velocity and particle size distribution on the dispersion coefficient of water in saturated flow has been studied experimentally. The dispersion coefficient of water was determined by means of the comparison of theoretical effluent curve with effluent concentrations of tritium through porous medium. As the results of measurements, it was found that the dispersion coefficient was proportional to the 1.2th power of flow velocity in all cases of particle size distribution. The dispersion coefficient in the porous medium with a given size distribution agreed sufficiently with the volume mean of that of each particle size, and it was found that the dispersion coefficient was almost all proportional to the mean particle size of the porous medium.

KEY WORDS : dispersion coefficient, porous medium, ³H, flow velocity, size distribution, radionuclide transport

I 緒 言

放射性廃棄物の陸地処分における安全性を評価するため、放射性核種の地中移動に関して種々の研究が行われている^{1~4)}。放射性核種の地中移動を評価する場合に重要とされるパラメータは、水流速、分配係数（または遅延係数）、分散係数等であるが、分散係数は、水流速および分配係数に比べて放射性核種の地中移動に及ぼす影響が小さく、放射性核種の地中移動についての詳細な検討が行われていないのが現状である。しかし、土壌への吸着性が非常に小さな放射性核種（たとえば、¹³¹I に代表される陰イオン性放射性核種⁵⁾、有機錯体となった

⁶⁰Co⁵⁾、水として移動するトリチウムのような放射性核種など）が地中を移動する場合には、放射性核種の移動性は分散効果に大きく依存するものと考えられ、分散係数が重要なパラメータとなる。

原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる主要な放射性核種（⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs 等）は土壌への吸着性が大きいいため、その分散係数を直接測定することは困難である。したがって、溶質ごとの分散係数には差がないものと仮定して、土壌への吸着性が小さい他の溶質の分散係数で放射性核種の分散係数を代用する方法がとられる。溶質の分散係数は、ガラスビーズ等を充填した均質な多孔質媒体の他に、土壌等を充填した不均質な多孔質媒体に対しても測定されており、溶質の分散係数は水流速のべき乗に比例することが報告されている^{6~9)}。また、溶質の分散係数を理論的に計算しようとする試みも行われ、任意の方向を向いた微小な円筒状流路内を移動する溶質の流路差および流速分布から推定さ

*¹ 日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部；茨城県那珂郡東海村白方 2-4 (〒319-11)
Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, Japan Atomic
Energy Research Institute; Shirakata 2-4, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki 319-11.

れる分散係数は、その測定結果と同様に、水流速のべき乗に比例することが明らかにされている^{10,11)}。D.A. ROSE¹²⁾ は、分散係数に関する従来の研究結果を比較し、溶質の分散係数の測定値は、理論的に計算される流体の分散係数とほぼ一致し、分子拡散係数を D' 、水流速を V 、多孔質媒体の粒径を d とすると、ペクレ数 $(=Vd/D')$ が大きくない場合、分散係数 D は、 $D/D' = A(Vd/D')^B + T$ で表されることを報告している。しかし、理論計算の際に用いられる微小流路の半径および長さや実際の多孔質媒体の性質を表すために用いられる粒径、比表面積等との関係が明確ではないため、理論的に計算した分散係数により放射性核種の地中移動を予測することは困難である。また、実際に測定した分散係数を用いる場合においても、分散係数は水流速、土壌の種類、粒径、形状等によってかなり変動し、不均質な多孔質媒体である地層中における放射性核種の移動を予測するためには、水流速、粒径分布、比表面積等の影響を考慮することが必要となる。

本研究は、トリチウムをトレーサとして飽和浸透流中における水の分散係数を測定して、水の分散係数に及ぼす流速の影響および多孔質媒体の粒径の影響を検討するものであり、水の分散係数に関する検討は、ほぼ同じ分散係数を有するとされる ^{60}Co 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 等の主要放射性核種の場合についても利用できるものとする。

II 分散係数の測定法

1. トリチウムの流出濃度測定

トリチウムの流出実験には、Fig.1 に示したような多孔質充填カラム（飽和状態）を用い、水温を約 18°C に維持して行った。カラムは内径 2.7 cm、長さ 49 cm のアクリル製カラムで、下部のバルブにより流量を調節することができる。マイクロチューブポンプを用いてタンク（容量 5 l）からトリチウム水（トリチウム濃度：370 Bq/ml）をオーバーフロー機構付き容器（容量 100 ml）内に導入し、オーバーフローにより液面を一定に保つことにより、オーバーフロー機構付き容器の液面とカラム流出部のヘッド差は一定（動水勾配は約 1.4）となり、一定流量でトリチウム水を流入することができる。

カラム内にはガラスビーズおよび砂を充填した。ガラスビーズは東芝パロティニー（株）より購入したプラスチックビーズであり、JIS 標準篩により 125～149、250～297、420～500、500～590、1000～1190 および 1,410～1,680 μm に篩分けて用いた。また、砂は日本原子力研究所東海研究所の敷地内（海岸より 500 m）から採取した海岸砂を調整したものであり、JIS 標準篩により

Fig. 1 Experimental apparatus for collection of the effluent through porous layer.

840 μm 以上および 210 μm 以下の砂を除き、水で十分洗浄し、乾燥した後、所定の粒径範囲（210～250、250～350、350～420、420～500、500～710、710～840 μm ）に篩分けて使用した。これらのガラスビーズおよび砂を必要に応じて混合し、空隙率 0.36～0.40 でカラム内に充填し、下部よりマイクロチューブポンプを用いて蒸留水を徐々に流入することにより（1 ml/min 程度）多孔質充填カラム内部の間隙を水で飽和させた。

上記の実験装置を用いて、トリチウム水をオーバーフロー機構付き容器からシリコンチューブ（内径 2 mm）を通じて多孔質充填カラム内に一定流量で流入した。トリチウム水の流入前には蒸留水で飽和されていたカラム内部が、トリチウム水の流入とともにトリチウム水で置換され、カラムからトリチウム水が徐々に流出する。流出液を一定流量ずつ連続的にフラクションコレクターで採取し、トリチウムの流出濃度測定試料とした。

流出液中のトリチウム濃度は、液体シンチレーション測定システム（アロカ製 LSC-700）により測定した。流出濃度測定試料のうち、適量を採取して 4 ml の試料とし、12 ml の液体シンチレータ（AQUASOL-2）とともに 20 ml 低カリガラス製バイアルに封入、混合した後、5 分間の計数によりトリチウム濃度を求めた。

粒径分布、空隙率、流量等の実験条件をレイノルズ数 $(=dV/\nu)$ 、 d ：粒径、 V ：流速、 ν ：動粘性係数）とともに Table 1 に示す。均一粒径における分散係数を測定する場合には、ガラスビーズ ($G_1 \sim G_6$) および砂 ($S_1 \sim S_6$) を単独でカラム内に充填したのを用いた。粒径分布の影響を調べる場合には、6 種類の粒径の調整砂をすべて混合して作成した異なる 3 種類の粒径分布 (A～C、ただし B は東海研究所の敷地内より採取した砂から 210 μm

Table 1 Experimental conditions.

Run No.	Medium	Diameter (μm)	Fraction	Porosity	Flow rate (ml/min)	Reynolds number
G ₁	Bead	125 ~ 149	1.0	0.360	0.12 ~ 4.5	0.0013 ~ 0.05
G ₂	Bead	250 ~ 297	1.0	0.367	0.09 ~ 9.7	0.0020 ~ 0.21
G ₃	Bead	420 ~ 500	1.0	0.371	0.23 ~ 16.0	0.0083 ~ 0.57
G ₄	Bead	500 ~ 590	1.0	0.372	0.15 ~ 17.3	0.0064 ~ 0.73
G ₅	Bead	1000 ~ 1190	1.0	0.368	0.17 ~ 15.3	0.015 ~ 1.3
G ₆	Bead	1410 ~ 1680	1.0	0.372	0.05 ~ 40.3	0.0060 ~ 4.9
S ₁	Sand	210 ~ 250	1.0	0.380	0.20 ~ 5.0	0.0035 ~ 0.08
S ₂	Sand	250 ~ 350	1.0	0.377	0.31 ~ 9.3	0.0072 ~ 0.22
S ₃	Sand	350 ~ 420	1.0	0.393	0.08 ~ 13.2	0.0023 ~ 0.38
S ₄	Sand	420 ~ 500	1.0	0.393	0.22 ~ 20.1	0.0075 ~ 0.68
S ₅	Sand	500 ~ 710	1.0	0.393	0.36 ~ 18.3	0.016 ~ 0.82
S ₆	Sand	710 ~ 840	1.0	0.373	0.10 ~ 17.3	0.0060 ~ 1.1
SS ₁	{Sand Sand}	{350 ~ 420 420 ~ 500}	{0.33 0.67}	0.397	0.22 ~ 22.1	0.0070 ~ 0.71
SS ₂	{Sand Sand}	{350 ~ 420 420 ~ 500}	{0.67 0.33}	0.395	0.25 ~ 22.1	0.0075 ~ 0.67
GS ₁	{Bead Sand}	{420 ~ 500 420 ~ 500}	{0.85 0.15}	0.365	0.29 ~ 15.5	0.011 ~ 0.57
GS ₂	{Bead Sand}	{420 ~ 500 420 ~ 500}	{0.60 0.40}	0.376	0.35 ~ 16.7	0.012 ~ 0.59
GS ₃	{Bead Sand}	{420 ~ 500 420 ~ 500}	{0.30 0.70}	0.386	0.32 ~ 18.1	0.011 ~ 0.63
A	Sand	210 ~ 250	0.30	0.371	0.29 ~ 10.1	0.0079 ~ 0.27
		250 ~ 350	0.37			
		350 ~ 420	0.13			
		420 ~ 500	0.07			
		500 ~ 710	0.10			
B	Sand	710 ~ 840	0.03	0.366	0.24 ~ 14.5	0.0081 ~ 0.49
		210 ~ 250	0.06			
		250 ~ 350	0.33			
		350 ~ 420	0.19			
		420 ~ 500	0.19			
C	Sand	500 ~ 710	0.17	0.366	0.27 ~ 17.8	0.011 ~ 0.74
		710 ~ 840	0.06			
		210 ~ 250	0.02			
		250 ~ 350	0.09			
		350 ~ 420	0.12			
		420 ~ 500	0.29			
		500 ~ 710	0.37			
		710 ~ 840	0.11			

以下および 840 μm 以上の砂を除いた場合の粒径分布)の他に, 350~420 μm の砂と 420~500 μm の砂を混合したもの (SS₁, SS₂) および 420~500 μm の砂と 420~500 μm のガラスビーズを混合したもの (GS₁~GS₃) についても測定した (粒径が極端に異なると均一に混合しないが, 同程度の粒径の粒子ならば均一に混合するため, これらの粒径を選択した)。

2. 分散係数の決定

土壌中におけるトリチウムの移動は, C をトリチウムの水中濃度, t を時間, D を分散係数, x を位置, V を

水流速として, 次の拡散輸送方程式で記述される¹³⁾。

$$\partial C / \partial t = D \partial^2 C / \partial x^2 - V \partial C / \partial x \quad (1)$$

この拡散輸送方程式は, 初期条件および境界条件を仮定し, V および D を与えることにより, 解析的または数値的に解くことが可能である。

本測定では, 最初, 砂層の間隙は蒸留水で飽和されているため, トリチウム濃度は 0 であり, 初期条件は次式で表される。

$$t=0 \text{ で, } C=0 \quad (2)$$

また, 一定濃度のトリチウム水を連続的に流入するた

め, 境界条件は次のとおりである。

$$x=0, t>0 \text{ で, } C=C_0 \quad (3)$$

$$x=\infty, t>0 \text{ で, } C=0 \quad (4)$$

拡散輸送方程式(1)を(2)~(4)の条件の下で解くと, ラプラス変換により次の解が得られる¹³⁾。

$$C=0.5C_0[\exp(Vx/D)\operatorname{erfc}\{(x+Vt)/(2\sqrt{Dt})\} + \operatorname{erfc}\{(x-Vt)/(2\sqrt{Dt})\}] \quad (5)$$

ここで, $\operatorname{erfc}(Z)$ は余誤差関数である。

トリチウム流出実験で測定されるトリチウムの流出濃度は, 流出し始める時間が流量により異なるものの, 時間とともに増加して流入濃度に近づく (Fig.2 参照)。

(5)式の値も同様に時間とともに増加し, その形状は分散係数 D と水流速 V により決定される。分散係数 D を変化させると, 濃度上昇の傾きが変化し, 水流速 V を変化させると, 濃度上昇の傾きが変化するとともに, 流出曲線が時間軸方向に移動する。したがって, (5)式の値と測定したトリチウムの流出濃度を比較することにより分散係数および水流速を決定することができる。本研究では, (5)式とトリチウムの流出濃度の比較を最小二乗法により行い, その結果, 実際の流出濃度に最も近い(5)式が計算され (Fig.2 の実線), 分散係数および水流速が決定される。なお, (5)式の計算および最小二乗法による比較は, 日本原子力研究所の大型計算機 システム FACOM M-380 により行った。

III 結果および考察

6種類の粒径のガラスビーズおよび6種類の粒径の篩分け砂に関して得られた水流速 $V(\text{cm/min})$ と分散係数 $D(\text{cm}^2/\text{min})$ の関係をそれぞれ Fig. 3 および Fig. 4 に示す (ただし, Fig. 4 ではオーバーラップを避けるために, 420~840 μm の粒径の篩分け砂に対する分散係数の測定値を縦軸に関して1桁ずらして表示した)。水流速が小さい場合 ($V<0.1 \text{ cm/min}$) のガラスビーズでは, 分子拡散の影響で分散係数の流速依存性が小さくなり, 一定値に近づく¹²⁾が, 分散係数はガラスビーズの場合も篩分け砂の場合も, 水流速のべき乗にほぼ比例する結果が得られている。それゆえ, 粒径ごとの分散係数の水流速依存性を $D=D_0V^k$ とし, Fig. 3 および Fig. 4 の結果に対して回帰分析を行った。ガラスビーズおよび篩分け砂に対して得られた D_0, k の値を平均粒径に対する D_0 の比 ($=\alpha$) とともに Table 2 の $G_1\sim G_6$ および $S_1\sim S_6$ の項に示す。Table 2 から分散係数は多孔質媒体の粒径に依らず水流速の約1.2乗に比例することがわかる。しかし, ガラスビーズの場合には D_0 が粒径にほぼ比例する ($D_0=1.17 d^{1.04}$, 相関係数=0.998) のに

Fig. 2 Concentration profiles of ^3H in the effluent through the layer of sieved sand (350~420 μm in diameter) and their fitted curves.

Fig. 3 Dispersion coefficients of water in the layer of glass bead.

比べて, 篩分け砂の場合には粒径の大小と D_0 の大小は 420~500 μm を境に逆転している。これは水の分散係数が粒径により影響を受ける他に, 粒子形状によっても影響されるためである。すなわち, 粒子形状が同じガラスビーズの場合には, 流体力学における相似則が成立して分散係数が粒径に比例するが, 篩分け砂では粒子形状が一定ではないため相似則が崩れるものと考えられる。本測定範囲における篩分け砂は, 球形粒子であるガラスビーズに対して最大3.3倍 (420~500 μm), 最小で1.1倍 (710~840 μm) の D_0 をもっており, 実際の土壌の場合には同粒径のガラスビーズに比べて, 分散効果が助長されることが示されている。

次に, 2種類の粒径の粒子を混合して分散係数を測定し, 回帰分析を行った結果について, Table 2 の SS_1 ,

Fig. 4 Dispersion coefficients of water in the layer of sieved sand.

SS₂ および GS₁~GS₃ の項に示す。表に示したように、得られた分散係数は、均一粒径の場合と同様に、水流速の約 1.2 乗に比例している。したがって、各粒径の D_0 およびその混合の比率は、混合物の D_0 にのみ影響し、流速依存性には影響しないものと考えられる。Fig. 5 に D_0 に対する混合比の影響を示す (Fig. 5 において、横軸 a は 420~500 μm の篩分け砂の割合である)。Fig. 5 から明らかのように、 D_0 は 420~500 μm の篩分け砂の割合とともに直線的に変化し、 D_0 と 420~500 μm の篩分け砂の割合は線形関係にあることがわかる。Fig. 5 の測定値に対する回帰直線は、420~500 μm の篩分け砂に 350~420 μm の篩分け砂を混合した場合、 $D_0 = 0.146a + 0.101(1-a)$ 、420~500 μm の篩分け砂に 420~500 μm のガラスビーズを混合した場合、 $D_0 = 0.142a + 0.043(1-a)$ である。これらの回帰直線の第一項の係数は、420~500 μm の篩分け砂の D_0 にほぼ一致しており、さらに第 2 項の係数は、それぞれ 350~420 μm の篩分け砂および 420~500 μm のガラスビーズの D_0 にほぼ一致している。したがって、異なる D_0 を有する粒子を混合した場合、混合物の D_0 は各粒子の D_0 の体積平均であると判断される。

六種類の粒径の篩分け砂を混合した場合においても、Table 2 の A~C の項に示したように分散係数は水流速の約 1.2 乗に比例しており、各粒子の D_0 の体積平均と D_0 の測定値を平均粒径とともに Table 3 に示す。この Table 3 において D_0 の測定値と計算値を比較すると、両者はよく一致している。

各粒径における D_0 の体積平均によって多孔質媒体全体の D_0 が与えられ、また、すべての粒径において分散係数が水流速の約 1.2 乗に比例する ($k = 1.17 \pm 0.04$) こ

Table 2 D_0 , k and α in the layer of glass bead and sieved sand.

Run No.	Mean diameter (μm)	D_0	k	α
G ₁	137	0.0136	1.16	0.99
G ₂	274	0.0278	1.22	1.01
G ₃	460	0.0435	1.17	0.95
G ₄	545	0.0611	1.18	1.12
G ₅	1095	0.121	1.22	1.10
G ₆	1545	0.163	1.15	1.06
S ₁	240	0.0452	1.13	1.88
S ₂	300	0.0843	1.11	2.81
S ₃	385	0.0991	1.14	2.57
S ₄	460	0.144	1.25	3.13
S ₅	605	0.109	1.21	1.80
S ₆	775	0.0888	1.15	1.15
SS ₁	435	0.133	1.12	3.06
SS ₂	410	0.119	1.19	2.90
GS ₁	460	0.0592	1.15	1.29
GS ₂	460	0.0813	1.15	1.77
GS ₃	460	0.106	1.19	2.31
A	345	0.0774	1.20	2.24
B	422	0.0987	1.15	2.34
C	523	0.113	1.17	2.16

Fig. 5 Effect of volume fraction a of mixed sand on D_0 .

○ : sand (350~420 μm in diameter) + sand (420~500 μm in diameter), △ : bead (420~500 μm in diameter) + sand (420~500 μm in diameter).

とから、全体の分散係数 D_{total} は、各粒径の分散係数の一次結合として、次式で表すことができる。

$$D_{\text{total}} = \sum [a_i D_{0i} V^{1.2}] \quad (6)$$

Table 3 Measured D_0 and calculated D_0 for three kinds of size distribution.

Run No.	Mean diameter (μm)	Measured D_0	Calculated D_0
A	345	0.0774	0.0816
B	422	0.0987	0.101
C	523	0.113	0.112

ここで, a_i は i 番目の粒径範囲における粒子の体積分率, D_{0i} は i 番目の粒径範囲の粒子がもつ D_0 である。

したがって, 水の分散係数は(6)式から得られることになる。ガラスビーズのように形状が一定の粒子では D_0 が粒径に比例するため, d_i を粒径として, $D_{0i} = \alpha d_i$ とすれば, D_{total} として次式を得る。

$$D_{\text{total}} = \alpha V^{1.2} \sum [a_i d_i] \quad (7)$$

ここで, $\sum [a_i d_i]$ は平均粒径 d_m であるから, 分散係数は粒径分布に無関係となり, 平均粒径 d_m により(8)式のように表されることになる。

$$D_{\text{total}} = \alpha d_m V^{1.2} \quad (8)$$

また, 実際の土壌のように粒子形状が不均一の場合においても, 極端に偏った粒径分布でない限り, 個々の粒子の $\alpha (=D_{0i}/d_i)$ の差は緩和されるため, **Table 3** に示した3種類の粒径分布の砂層のように, 全体の D_0 が平均粒径に比例するようになり, 分散係数は(8)式で近似できるものと考えられる。

D.A. ROSE¹²⁾ は, 分散係数に関する従来の文献を比較し, 一般的には, $D/D' = A(Vd/D')^B + T$ (D' : 分子拡散係数 $= 1.5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$, d : 粒径) で分散係数が表され, $A=0.51$, $B=1.2$, $T=0.67$ を平均的な文献値として報告している。流速, 粒径が小さい場合以外は重要でない T を無視すると, 上式は $D=2 \times (dV)^{1.2}$ となり, 本測定で得られた分散係数の流速依存性 (流速の約 1.2 乗に比例する) は, 従来の測定結果と一致している。しかし, 分散係数の粒径依存性について考えると, 従来の報告では分散係数が粒径の 1.2 乗に比例するとされていたのに対し, 本測定では分散係数が粒径に比例する結果 (とくにガラスビーズに対する結果) が得られ, その比例定数である α は, ガラスビーズで 1 程度, 篩分け砂のように狭い粒径範囲の砂で 1 ~ 3 程度, また, やや広い粒径範囲の砂で 2 程度であった (**Table 2** 参照)。これは, 従来の報告では, 分散係数をベクレ数またはレイノルズ数のような流速と粒径の積に関連する無次元パラメータで説明することに主眼がおかれたためと考えられ^{8,10-12)}, 本測定の場合でも, ガラスビーズの結果をベクレ数で整理すると, $D/D' = 0.52(Vd/D')^{1.2} + 0.6$ とな

り, 前述の一般式とほぼ同じ結果が得られる。しかしながら, 本測定では, 流速依存性と粒径依存性を別々に検討した結果, 粒径依存性と流速依存性が異なることがわかった。このことは, 分散係数を無次元パラメータで表すことができないことを示しており, 多孔質中における水の移動が厳密には層流理論では解析できないことが考えられ, 今後のデータの蓄積, 理論的な解析が必要である。また, 前述の一般式¹²⁾で示されるように, 平均的には分散係数は流速の約 1.2 乗に比例する (本測定の範囲でも, 分散係数はすべての粒径において流速の約 1.2 乗に比例し, $k=1.17 \pm 0.04$ であった)。したがって, 分散係数が流速に比例すると仮定して, 放射性廃棄物中に含まれる放射性核種の土壌中移動を予測すると, 分散係数測定時の流速と移動評価時の流速との大小関係によっては, 分散効果を過小評価ことがあり, 注意を要する。

IV 結 言

粒径の異なったガラスビーズおよび砂を用いて, 飽和浸透流中における水の分散係数を実験的に検討した結果, 分散係数は媒体の粒径分布に依らず流速の約 1.2 乗に比例することがわかった。また, ある粒径分布をもつ多孔質中の分散係数は, 個々の粒径の有する分散係数の体積平均として, (8)式で表され, 全体の分散係数は, ほぼ平均粒径に比例することが明らかとなった。

したがって, 測定が比較的容易な土壌試料の平均粒径から放射性核種の分散係数を補正することが可能となる。とくに放射性廃棄物の処分場のような広大な地域中における放射性核種の移動を予測する際には, 土壌の平均粒径による分散係数の補正が有効であると考えられる。

参 考 文 献

- 1) H.M. SELIM, J.M. DAVIDSON and P.S.C. RAO; *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **41**, 3 (1977).
- 2) A.H. LU; *Health Phys.*, **34**, 39 (1978).
- 3) H. BACHHUBER, K. BUNZL and W. SCHIMMACK; *Nucl. Technol.*, **59**, 291 (1982).
- 4) R.W.D. KILLY, J.O. MCHUGH, D.R. CHAMP, E.L. COOPER and J.L. YOUNG; *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 148 (1984).
- 5) J.S. FRUCHTER *et al.*: NUREG/CR-3712 (1983).
- 6) D.R.F. HARLEMAN and R.R. RUMER; *J. Fluid Mech.*, **16**, 321 (1963).
- 7) I. HASHIMOTO, K.B. DESHPANDE and H.C. THOMAS; *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **3**, 213

- (1964).
- 8) J.R. CLUFF and S.J. HAWKES; *J. Chromatogr. Sci.*, **14**, 248 (1976).
- 9) M. FUKUI and K. KATSURAYAMA; *Health Phys.*, **28**, 717 (1977).
- 10) P.G. SAFFMAN; *J. Fluid Mech.*, **7**, 194(1960).
- 11) J. BEAR; "Hydrodynamic Dispersion," *In* "Flow through Porous Media" (ed. by R.J.M. de WIEST), p. 109 (1969), Academic Press, New York.
- 12) D.A. ROSE; *Soil Sci.* **123**, 277 (1977).
- 13) L. LAPIDUS and N.R. AMUNDSON; *J. Phys. Chem.*, **56**, 984 (1952).