動電学的土壌浄化処理の数値モデル化 —土壌酸性化について—

新 苗 正 和¹・青 木 悠 二^{2,3}
青 木 謙 治¹

Numerical Modeling for Electrokinetic Soil Processing —Acidification of Soil—

Masakazu NIINAE¹, Yuji AOKI^{2,3} and Kenji AOKI¹

¹Department of Urban and Environmental Engineering, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

²Graduate student, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

³Sumitomo Metal Mining Co., LTD., Tokyo 105-8716, Japan

Electrokinetic soil remediation by electroosmosis and ionic migration is restricted to soluble substances. At a higher pH, the soil particles sorb more heavy metals than at a lower pH and the precipitation reactions of heavy metals are promoted. Both mechanisms make heavy metals immobile, rendering cleanup more difficult and electrokinetic extraction inefficient. Therefore, the acidification of soils is very important to increase the cleanup efficiencies of heavy metals by electrokinetic method from contaminated soils. In the present study, acidification of soils are predicted with a numerical method in which electrical flow is coupled with hydraulic flow, and the effects of some factors such as electrode configuration, electric field strength and electrode spacing for the saturated soils are investigated. The results obtained this study are summarized as follows:

The two-dimensional electrode configurations containing cathode surrounded by three or more anodes rapidly acidify the soils compared with one-dimensional electrode configuration. However, two-dimensional electrode configurations develop spots of inactive electric field between cathodes. A larger electrode spacing increases the processing time required. Meanwhile, a larger electric field strength reduces the processing time required.

Key words: Eelectrokinetics, Soil Remediation, Acidification of Soil, Electrode Configuration, Numerical Modeling

1. 緒 言

平成 15 年 2 月 15 日に施行された土壌汚染対策法では、第二種特定有害物質（重金属等）は、直接摂取リスクと地下水摂取リスクの両方の対象となっており、各々土壌含有量基準および土壌溶出量基準が設定され、人体への有害性が強く認識されている。土壌汚染対策法の施行により、土壌汚染が確認された土地に対して盛土措置や原位封じ込め措置を取ることも考えられるが、指定区域に指定されないため、あるいは指定区域から解除されるためには、汚染土壌の浄化措置（掘削除去を含む）をとる必要がある。

キーワード：動電学，土壌浄化，土壌酸性化，電極配列，数値モデル化

¹ 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻

² 京都大学大学院学生

³ 現)住友金属鉱山(株)

平成 17 年 6 月 22 日受理

原位置で汚染土壌を浄化する対策技術に動電学的土壌浄化法（Electrokinetic Soil Remediation）がある。動電学的土壌浄化法は地盤中に電極を配置し、微弱な直流電流を流すことにより電気浸透やイオン移動（電気泳動）といった界面動電現象を誘起し、汚染物質を電極方向に移動させて電極井戸に除去を行う方法である。重金属の場合、次のようなプロセスで浄化が進行する。陽極における水の電気分解により発生した酸前線（Acid Front）が陰極方向に進行するのに伴い、土壌に吸着している重金属が間隙水中に溶解・脱着してくる。次に、溶出した重金属はその電荷に応じて陰極もしくは陽極方向に移動し、陰極または陽極井戸に除去されることになる。本手法は、粘土やシルトといった透水性の低い地盤に適用できること、汚染物質の処理ゾーン外への拡散がほとんどないこと、他の浄化修復技術との組み合わせが容易という利点を有し、重金属汚染土壌を原位置で浄化できる技術として期待されている。

イオン移動や電気浸透流によって地盤中を移動できる

のは、間隙水中に溶存している物質だけであり、土壌に収着した、あるいは、沈殿物として存在している重金属は、それらが溶出しないうり、効果的に除去されることはない。大部分の重金属の間隙水への溶解性は pH の上昇とともに減少する。したがって、重金属汚染土壌に動電学的手法を適用するにあたって、土壌の酸性化は浄化効率を左右する重要なプロセスとなる。

動電学的手法を実際の汚染サイトへ適用する場合、実規模スケールでの事前の浄化予測解析が重要である。しかし、実規模スケールで浄化を予測できる数値解析手法は確立されていないのが現状である。

本研究では、電流（電位）によって誘起されるイオン移動や電気浸透流による物質移動を、電氣的に発生する移流と考え、流量（水頭）に置き換えることにより、動電学的手法を実規模レベルの汚染サイトに適用して浄化予測が可能な数値解析手法を提案し、重金属汚染土壌を浄化する場合に、特に重要な因子となる土壌の酸性化にこの解析手法を適用し、操作因子として重要な電極配列などが土壌の酸性化に与える影響について検討したので、その結果について報告する。

2. 物質輸送方程式および数値解析手法

2.1 Eulerian-Lagrangian法を用いた移流分散方程式の定式化

本研究で解析に用いた物質輸送方程式を下記に示す。

$$R_d \theta \rho \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij} \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - \theta \rho V_i \frac{\partial C}{\partial x_i} - R_d \theta \rho \lambda C - Q_c \quad (1)$$

ここで、 R_d は遅延係数、 θ は体積含水率、 ρ は流体密度 (kg/m^3)、 C は物質濃度 (mol/m^3)、 t は時間 (s)、 x は距離 (m)、 D_{ij} は分散テンソル (m^2/s)、 λ は減衰定数 ($1/\text{s}$) および Q_c は源泉項を示す（ただし、本研究では土壌内での物質の分解あるいは新たな生成がないことから、式 (1) の右辺第 3 項および第 4 項は無視できる）。ここでは化学的分解や自然崩壊を等価な半減期と考えた。また、実流速 V_i (m/s) は次式で示される。

$$V_i = -(u^* + k_e) \frac{\partial E}{\partial x_i} - k_h \frac{\partial h}{\partial x_i} \quad (2)$$

ここで、 u^* は有効イオン移動度で、イオン移動度 u ($\text{m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$) と次の関係がある。

$$u^* = u \tau \theta \quad (3)$$

また、 k_e は電気浸透係数 ($\text{m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$)、 E は電位差 (V)、 h は水頭 (m)、 k_h は透水係数 (m/s) を示している。 τ は屈曲性を表す要素で、物質が土壌内を移動する直線長さを L_s (m)、物質が実際に移動する経路長を L_r (m) とすると、 $\tau = L_s^2/L_r^2$ で表される。

分散テンソル D_{ij} は、Bear が示した拡散係数も含めた流

速に依存する次式を用いる¹⁾。

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

ここで、 α_T は横分散長 (m)、 α_L は縦分散長 (m)、 $\|V\|$ は実流速のノルム、 D^* は有効拡散係数 ($D^* = D \tau \theta$ で表される。 D は拡散係数 (m^2/s) を示す)、 δ_{ij} はクロネッカのデルタとする。

一般に分散長は巨視的な地盤の不均質性による流速のばらつきにより、移行距離に依存することが知られている。Neuman は室内及び原位置での測定結果を取りまとめ、亀裂性媒体及び多孔質媒体に関わらず、縦分散長 α_L (m) は移行距離が 0.1 m から 3.5 km の範囲で以下の回帰曲線により表されるとしている²⁾。

$$\alpha_L = 0.017 L^{1.5} \quad (5)$$

ここで、 L は移行距離 (m) とする。また横分散長は縦分散長の 1/10 倍程度と一般に言われている。

本研究では式 (1) で示される物質輸送方程式を用いて物質移動のシミュレーションを行った。

動電学的土壌浄化技術の解析においては、土壌中における物質移動の複雑さから、1 次元を対象としたものが多く、これまで 2 次元解析による検討は皆無に等しいというのが現状で、汎用的な解析コードの開発までには至っていない。しかし、実際の問題として実規模の浄化にこれまでの解析モデルを適用するには限界がある。したがって、実規模スケールの浄化に適用できる数値解析モデルの開発が必要となる。そこで、本研究では電流（電位）によって誘起されるイオン移動や電気浸透流による物質移動を、電氣的に発生する移流と考え、流量（水頭）と置き換えて考える簡便な解析手法を提案する。すなわち、式 (2) で表されるように、電気による移流を実際の動水勾配等による移流と等価なものと考え、それぞれを足し合わせた流量または水頭を用いることによって物質輸送解析および浸透流解析を行うことができる。

従来の地下水中の物質移動の解析手法を検討すると、差分法、オイラー法は分散卓越問題に有効であるが、移流卓越問題に適用する場合には解の安定性を保つためにメッシュサイズを細かくする必要がある、実規模の解析を行うことが困難な場合がある。これに対して、特性曲線法（ラグランジュ法）は移流卓越問題に有効であるが、移動粒子の扱いの難しさや分散卓越問題における分散項に対する解析誤差が問題となる。実際の解析では地盤の不均質性から、部分的に分散卓越であったり、移流卓越であったりするため、問題を特定することが難しく、どのような問題に対しても精度よく安定に解析を行うことのできる手法が望ましい。

このため、分散と移流卓越の両問題に対してオイラー法とラグランジュ法を併用するオイラリアン-ラグラジ

アン法 (Eulerian-Lagrangian Numerical Method, 以下 EL 法) が有効である^{3,4)}。この方法は、移流項を特性曲線法でラグランジュ的に求め、分散項を有限要素法によって求める手法である。以下では、EL 法を用い、物質輸送方程式 (式 (1)) の定式化を行う。

2.2 移流項と分散項の分離

まず、式 (1) に Neuman の手法³⁾を用いて移流項と分散項を分離するため、次式に示すラグランジュ微分を用いる。

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \frac{V_i}{R_d} \frac{\partial}{\partial x_i} \quad (6)$$

式 (1) に式 (6) を適用すると次式となる。

$$R_d \theta \rho \frac{dC}{dt} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - \theta \rho \lambda R_d C - Q_c \quad (7)$$

ここで、濃度 C を移流に関する濃度 $\bar{C}$ と分散に関する濃度 $\hat{C}$ に分ける。

$$C(x_i, t) = \bar{C}(x_i, t) + \hat{C}(x_i, t) \quad (8)$$

式 (7) より、移流項に対する次式が得られる。

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = -\lambda C \quad (9)$$

また、式 (8) より、移流による濃度を除いた分散方程式は次式となる。

$$R_d \theta \rho \left(\frac{dC}{dt} - \frac{d\bar{C}}{dt} \right) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - \theta \rho \lambda R_d (C - \bar{C}) - Q_c \quad (10)$$

2.3 移流分散の初期条件および境界条件

式 (9) および式 (10) で分離された移流項と分散項に対して、各々次の初期条件および境界条件を与える。

(a) 移流項の初期条件および境界条件

式 (9) に関する初期条件は、移流による濃度は全濃度の初期分布と等しいとする。

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = 0 \quad (11)$$

$$\bar{C}(x_i, t) = C_0(x_i, 0) \quad (12)$$

境界条件は次式のように与える。

$$V_i - \hat{n} \bar{C}(x_i, t) + \xi \{ \bar{C}(x_i, t) - C_b(x_i, t) \} = Q_b(x_i, t) \quad (13)$$

ここで、 $\hat{n}$ は法線方向の単位ベクトル、 C_b は濃度既知のディレクレ境界で、 Q_b が濃度フラックス既知のノイマン境界を表し、 $\xi \rightarrow \infty$ で濃度既知境界となり、 $\xi = 0$ となると流量既知境界となる。

(b) 分散項の初期条件および境界条件

式 (10) の初期条件は次式のように与える。

$$R_d \theta \rho \frac{d\hat{C}}{dt} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial \hat{C}}{\partial x_j} \right) - \theta \rho \lambda R_d \hat{C} - Q_c + \bar{g} \quad (14)$$

ここで、

$$\bar{g} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial \bar{C}}{\partial x_j} \right) - \theta \rho \lambda R_d \bar{C} \quad (15)$$

$$\bar{C} = 0 \quad (16)$$

また、境界条件は移流項と同様に考える。

$$-\left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial \hat{C}}{\partial x_j} - V_i \hat{C} \right) \hat{n} + \xi \hat{C} = \left(\theta \rho D_{ij}^* \frac{\partial \bar{C}}{\partial x_j} \right) \hat{n} \quad (17)$$

このように、移流項に対して式 (11) ~ (13) を先に満足させてから、式 (14) ~ (17) を分散項に与えることで順次移流分散方程式を移流と分散それぞれの初期値・境界値問題に分離して解いて行く。

2.4 移流方程式の定式化

移流による濃度を求めるため、節点後退粒子追跡法 (Single-Step Reverse Particle Tracking, 以下 SRPT 法)⁴⁾を用いる。以下に、その手順を示す。

まず、各節点の移流による濃度変化を求めるため、時間 t^{k+1} の時、節点 n に一致する座標 x_n^{k+1} に位置する粒子は、時間 t^k においてどの位置から移流してきたかを考えると、その初期座標 x_n^k は次式で与えられる。

$$x_n^k = x_n^{k+1} - \int_t^{t^{k+1}} \frac{V}{R_d} dt \quad (18)$$

式 (18) は、 dV/dt が一定と考えると、ルンゲ・クッタ法 (Runge-Kutta Method) により積分が可能になり、 x_n^k を求めることができる。次に、座標 x_n^k を内包する要素に着目し、形状関数 N を用いた補間により初期濃度 C_n^k を求めることができる。

$$C_n^k(x_i, t) = \sum_{m=1}^M C_m(t) N_m(x_i) \quad (19)$$

しかし、上記の補間法では、メッシュサイズにより補間制度が依存するため、粗いメッシュ部では高精度な補間が望めない。このため、Cady の連動移動粒子追跡法 (Continuous Forward Particle Tracking, 以下 CFPT 法)⁵⁾を併用した。CFPT 法では濃度変化がシャープなフロントを持つ領域に初期濃度を持たせた移動粒子を配置し、濃度フロントとともに移流させ、移動後の移動粒子を含めた解析領域全体の有限要素メッシュの細分割により、式 (19) の補間を用いることで精度の高い補間が可能になる。本研究では基本的に Cady の方法を用いたが、後述の理由により細分割単位を要素ごとに行うよう修正を行った。

次に、式 (9) に変数分離を施し、積分することで C_n^k を用いて $\bar{C}_n^{k+1}$ を計算する。

$$\bar{C}_n^{k+1} = C_n^k \exp \left(- \int_t^{t^{k+1}} \lambda dt \right) \quad (20)$$

式 (18) ~ (20) を用いて SRPT 法により、全節点の移流による濃度を計算した後、CFPT 法で配置した移動粒子の t^{k+1} における座標と濃度を同様に求める。

$$x_p^{k+1} = x_p^k + \int_t^{t^{k+1}} \frac{V}{R_d} dt \quad (21)$$

以上のような手順により、各節点の移流による濃度変化をラグランジュ的に処理することが可能になる。

2.5 分散方程式の定式化

分散方程式（式（10））を式（14）～（17）の条件のもとで満足する解を求めるため、Galerkin 法を用いて定式化を行う。

$$W_{nm} \left(\frac{dC_m}{dt} - \frac{d\bar{C}_m}{dt} \right) - G_{nm} C_m + L_{nm} (C_m - \bar{C}_m) - Q C_n = 0 \quad (22)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} G_{nm} &= \sum_{e=1}^M \theta_k \rho_l D_{ij}^* \int_V N_k N_l \frac{\partial N_n}{\partial x_i} \frac{\partial N_m}{\partial x_j} dv \\ W_{nm} &= \sum_{e=1}^M R_{ij}^* \theta_k \rho_l \int_V N_k N_l N_n N_m dv \\ L_{nm} &= \sum_{e=1}^M R_{ij}^* \lambda^e \theta_k \rho_l \int_V N_k N_l N_n N_m dv \\ Q C_n &= \sum_{e=1}^M \int_{\Gamma} \hat{n} N_n \theta_k \rho_l \left(-N_k N_l D_{ij}^* \frac{\partial N_n}{\partial x_i} \right) d\Gamma \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

である。ここで、は形状関数である。また、式（22）の時間項は次式のように差分近似を用いた。

$$\begin{aligned} & \left\{ \omega (G_{nm} + L_{nm}) + \frac{W_{nm}}{\Delta t} \right\} C_m^{k+1} \\ &= -(1-\omega) (G_{nm} + L_{nm}) C_m^k + \left\{ \omega L_{nm} + \frac{W_{nm}}{\Delta t} \right\} \bar{C}_m^{k+1} \\ &+ (1-\omega) L_{nm} \bar{C}_m^k - Q C_n \end{aligned} \quad (24)$$

ここで、 $n, m=1, 2, 3, \dots$ を与える。また、中央差分を適用する場合は $\omega=0.5$ となり、後退差分を適用する場合は $\omega=1$ となる。本研究では、後退差分を適用したので $\omega=1$ となる。

式（22）を用いる場合、CFPT 法による移動粒子濃度に分散項をどのように反映させるかが問題となる。Cady は、移動粒子を含めて解析領域全体の細分割を行い、式（22）を適用することで、移動粒子の分散項の評価を行っている。しかし、Cady の提案する方法では解析領域を一括してメッシュ分割を行うため、材料境界を考慮した分割ができず、また、演算に極めて大きい記憶容量が必要となり、実際の問題に適用することが困難である。このため、本研究では、分割を要素単位で行う修正連続移動粒子追跡法（Modified Continuous Forward Particle Tracking, 以下 MCFPT 法）を用いた。MCFPT 法では、要素単位メッシュの細分割を行うことで材料境界を保つことができ、不均質地盤に適用することも可能である。

2.6 浸透の基礎理論

飽和・不飽和浸透流方程式は、質量保存則とダルシーの方程式から次式で表される。

$$\begin{aligned} & \rho_l \theta \gamma \frac{\partial C}{\partial t} + \rho \{ \beta S_s + C_s(\theta) \} \frac{\partial \phi}{\partial t} \\ &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \rho K_{ij}^* K_r(\theta) \frac{\partial \phi}{\partial x_i} + \rho K_{ij}^* K_r(\theta) \rho_f \right\} \end{aligned} \quad (25)$$

ここで、 ϕ は圧力水頭（m）、 S_s は比貯留係数（1/m）、 $C_s(\theta)$ は比水分容量、 K_{ij}^* は飽和透水テンソル（m/s）、 $K_r(\theta)$ は比透水係数、 ρ_f は溶媒の密度（kg/m³）、 ρ_f は密度比（ ρ/ρ_f ）、 γ は溶質の密度比を示す。また、飽和領域では $\beta=1$ 、不飽和領域では $\beta=0$ である。

また、式（25）で流体密度 ρ は次式で濃度 C と関連付けられる。

$$\rho = \rho_f (1 + \gamma C) \quad (26)$$

密度依存を考慮した移流分散解析では、濃度変化によって密度が変化する。すなわち、式（25）の左辺第 1 項の C と左辺第 2 項の ρ が変化し密度流が生じるため、式（25）と前述の移流分散方程式を 2 段階に連成させて解析を行う必要がある。しかし、濃度変化による密度変化が生じないとすると、浸透と移流分散は別々の問題として取り扱うことができ、式（25）により定常もしくは非定常浸透解析を行い、流速分布、体積含水率分布を求め、この値を用いて移流分散解析のみを実施することができる。本研究では土壌間隙中の重金属濃度等が密度変化に及ぼす影響は非常に小さいと考え、こちらを適用した。

2.7 浸透の初期条件および境界条件

式（25）を解くための初期条件及び境界条件を次のように定める。

(a) 初期条件

解析領域における初期の圧力水頭分布が既知である。

$$\phi(x_i, 0) = \phi_0(x_i) \quad (27)$$

(b) 境界条件

境界条件としては、次の境界面上で水頭既知の境界条件を考える。

$$\phi(x_i, t) = \phi_b(x_i, t) \quad (28)$$

この境界条件は、境界面上で水頭が一定、あるいは時間の関数で与えられる境界条件である。

ここで、 ϕ_0 および ϕ_b は、初期圧力水頭および既知圧力水頭を示す。

2.8 浸透流方程式の定式化

式（25）を式（27）～（28）の条件の下で満足させる解を求めるために Galerkin 法を用いてオイラー法（有限要素法）によって定式化を行うと次式を得る。

$$A_{nm} \phi_m + F_{nm} \frac{\partial \phi_m}{\partial t} + X_{nm} \frac{\partial C_m}{\partial t} - Q_n + B_n = 0 \quad (29)$$

ここで,

$$\left. \begin{aligned} A_{nm} &= \sum_{e=1}^M \rho_k K_{ij}^S K_f \int_V N_k N_l \frac{\partial N_n}{\partial x_i} \frac{\partial N_m}{\partial x_j} dv \\ F_{nm} &= \sum_{e=1}^M \rho_k \int_V N_n N_k (C_{Sl} N_l + \beta S_s) dv \\ X_{nm} &= \sum_{e=1}^M \rho_f \theta_{ef} \int_V N_n N_k dv \\ Q_n &= \sum_{e=1}^M \int_V n N_k N_n \rho_k u_i d\Gamma \\ B_n &= \sum_{e=1}^M \rho_k K_{ij}^S K_f \int_V N_k N_l \rho_r \frac{\partial N_n}{\partial x_i} dv \end{aligned} \right\} \quad (30)$$

である。また、式 (29) の時間項は次式のように差分近似を行った。

$$\left(\frac{F_{nm}^{k+1/2}}{\Delta t} + \omega A_{nm}^{k+1/2} \right) \phi_m^{k+1} = Q_n^{k+1/2} - B_n^{k+1/2} - \frac{c_m^{k+1} - c_m^k}{\Delta t} X_n^{k+1/2} + \left\{ \frac{F_{nm}^{k+1/2}}{\Delta t^k} - (1-\omega) A_{nm}^{k+1/2} \right\} \phi_m^k \quad (31)$$

ここで、 $n, m=1, 2, 3, \dots$ を与える。また、中央差分を適用する場合は $\omega=0.5$ となり、後退差分を適用する場合は $\omega=1$ となる。本研究では、後退差分を適用したので $\omega=1$ となる。

本研究では、提案した解析手法をもちいて、最初に濃度既知としてオイラー法により飽和・不飽和浸透流解析を行い、要素重心におけるダルシー流速から節点の実流速を求め、次に流れ場既知として EL 法により移流分散解析を行い、各時間ステップにおける酸濃度の分布を求めた。ただし、本研究では動電学的土壌浄化技術が最も効果を発揮できる飽和土壌を対象に、土壌の酸性化について検討を行った。

3. 解析結果および考察

3.1 土壌酸性化挙動の評価方法

2m 四方の土壌酸性化対象領域 (平面) を考え、その対角位置に陽極井戸および陰極井戸を設置した。電極境界条件は、電極にグラファイトのような化学的に不活性物質を使用したと仮定し、水の電気分解反応のみを考える。Faraday の法則によると電極反応による物質の生成割合は土壌内の電流通過量と等価であること、また、水の電気分解反応のみとしているので、陽極では水素イオンの発生のみを、陰極では水酸化物イオンの発生のみを考える。したがって、陽極側での電極反応による物質の生成割合は土壌内の電流通過量と等価であることとすると、Faraday の法則より、陽極において I/F の一定濃度フラックスが適用できる。ここで、 I は電流密度 (A/m^2)、 F は

ファラデー定数 (C/mol) である。ただし、陰極においては水酸化物イオンの土壌への浸透を防止し、陰極近傍での塩基性領域の形成を防止するために、pH7 の固定境界条件を採用した^{6,7)}。これは、カドミウム等の重金属で汚染された土壌を浄化する場合、陰極で発生する水酸化物イオンを硝酸等により中和することにより、陰極近傍での塩基性領域の形成を防止することにより、重金属の陰極近傍での水酸化物等の生成による蓄積を防ぎ、重金属の物質移動をスムーズに進行させるためである⁶⁻⁸⁾。また、解析領域の境界においては不透水境界条件を用いた。対象土壌は、砂に粘土およびシルトが混じった土壌 (砂質粘土土壌) および粘土・シルト土壌とした。各々の土壌の物性値を Table 1 および Table 2 に示す。また、解析に用いたパラメータを Table 3 に示す。ただし、流体密度 ρ は、水を想定して $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ とした。また、体積含水率 (θ) は、飽和土壌を対象としていることから間隙率と等しくなる。ここで、間隙率 (体積含水率 (θ)) および電気浸透係数 (k_e) は、両土壌の代表的な値を用い、屈曲性を表す要素 (τ) は、次式¹⁰⁾を用いて求めた。

$$\tau(\theta) = \frac{H(\lambda)(\Theta)^{n+1}}{(\Theta)_{sat}} \quad (32)$$

$$\Theta = \theta - \theta_r \quad (33)$$

ここで、 Θ は有効 (体積) 含水率、 θ_r は残留 (体積) 含水率を示し、添字の sat は飽和土壌を示す。また、 $H(\lambda)$ および n は、実験で得られた土壌間隙水の電気伝導度と有効 (体積) 含水率の関係から導かれるパラメータである。 $H(\lambda)$ および n の値は経験的に各々 1.0 および 0.5 という値が与えられており、さらに、残留 (体積) 含水率 (θ_r) は零として取り扱えること¹⁰⁾、また、本研究では飽和土壌を対象としていることから、有効 (体積) 含水率 (Θ) を間隙率 (体積含水率 (θ)) に置き換えることができ、これらの値を用いて式 (32) により屈曲性を表す要素 (τ) を求めた。

飽和砂質粘土土壌を対象に解析を行った結果を Fig. 1 に示す。ただし、陽極/陰極間の電位差は、100 V/m 一定とした。通電開始直後から陽極井戸から水素イオンが発生し、土壌を酸性化していく様子が分かる。ここで、土壌の酸性化を判断する基準として酸性化判定基準値

Table 1 Characteristics of sandy/clayey soils

Volumetric water content θ	0.35
Tortuosity factor τ	0.59
Fluid density (kg/m^3) ρ	1.0×10^3
Hydraulic conductivity (m/s) k_h	1.0×10^{-5}
Coefficient of electroosmotic permeability ($\text{m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$) k_e	3.6×10^{-9}

Table 2 Characteristics of clayey/silty soils

Volumetric water content θ	0.45
Tortuosity factor τ	0.67
Fluid density (kg/m ³) ρ	1.0×10^3
Hydraulic conductivity (m/s) k_h	1.0×10^{-7}
Coefficient of electroosmotic permeability (m ² /V·s) k_e	6.5×10^{-9}

Table 3 Model parameters used in numerical analysis for distributions of H⁺

Initial pH	6.0
Diffusion coefficient of H ⁺ (m ² /s) D_{H^+}	9.31×10^{-9}
Ionic mobility of H ⁺ (m ² /V·s) u_{H^+}	3.62×10^{-7}
Retardation factor of H ⁺ R_d	1.0

pH4.4を設定する。すなわち、土壌 pH が 4.4 以下となった土壌を酸性化された土壌とみなすこととする。この判定基準を用いると、約 20 日で解析対象領域のほぼ全てを酸性化できることが分かる。この酸性化判定基準を用いて、解析対象領域に対する酸性化された土壌の面積割合（酸性化土壌割合と呼ぶことにする）の経時変化を示したのが Fig. 2 である。Fig. 2 から分かるように、通電初期段階においては通電時間に比例して土壌が酸性化されているが、通電開始 15 日以降は、その傾きが緩やかになっている。

同様に、飽和粘土・シルト土壌に対して解析を行い、得られた酸性化土壌割合の経時変化を Fig. 3 に示す。飽和砂質粘土土壌と比較して土壌の酸性化が迅速に進行することが分かる。これは、砂質粘土土壌と比べて粘土・シルト土壌のほうが、屈曲率と体積含水率の積が大きく、そのため水素イオンの有効イオン移動度が大きくなるため、水素イオンのイオン移動速度が速いことおよび電気浸透係数が大きいことから水素イオンの電気浸透流による移動速度が速くなることその原因である。

Fig. 2 Time history of percentage of acidification of sandy/clayey soil.

Fig. 3 Time history of percentage of acidification of clayey/silty soil.

Fig. 4 Electrode configuration.

3.2 電極配列が土壌酸性化に与える影響

動電学的土壌浄化法を実汚染サイトに適用する場合、電極材料および電極をどのように配列するかは、重要な操作因子となる。電極材料としては基本的に化学的に不活性で、導電性の良いものが使用される。陽極材料としてはグラファイト、イリジウムでコーティングしたチタン、白金などの酸に対して耐腐食性のある材料が使用される。陰極材料には、塩基に対して耐腐食性があり、導電性の良い材料が使用される。

電極配列は、陽極と陰極が 1 対 1 の配列 (Fig. 4(a)) が基本であるが、Fig. 4(b) ~ Fig. 4(d) に示すような 2 次元的な配列も提案されている¹¹⁾。

ここで、各基本電極配列による土壌の酸性化を比較するために、汚染土壌の規模と総電極（井戸）数をほぼ統一して各電極配列を配置し、対象土壌の酸性化挙動解析を行うことによって、各電極配列の土壌酸性化効率を比較した。汚染土壌面積約 900 m²（約 30 m×30 m）とし、その外側に 2 m の非汚染土壌領域を考えた解析対象土壌に各基本電極配列を Fig. 5 のように配置した。Fig. 5 は、砂質粘土土壌を対象とした場合で、電極配置を圧力水頭で表示しており、圧力水頭が高い地点に陽極井戸を、低い地点に陰極井戸が配置されている（図中に示す A は陽極を、C は陰極を示す。例えば ACAC……とあるのは、図の左より縦列単位で陽極列、陰極列の順で配列されていることを示す）。この場合の各基本電極配列における電極井戸数および電極間隔を Table 4 に示す。

Table 4 Electrode configuration, number of electrodes and electrode spacing used in numerical analysis for distributions of H^+

Electrode configuration	Total number of electrodes (Number of anode)	Electrode spacing (m)
Parallel	121 (66)	3.0
Square	113 (64)	3.0
Triangular	114 (42)	3.2
Hexagonal	114 (78)	3.2

砂質粘土土壌および粘土・シルト土壌に対して解析を行い、酸性化土壌割合と通電時間の関係を求めた。その結果を Fig. 6 および Fig. 7 に示す。Fig. 6 および Fig. 7 から分かるように、土壌に関係なく六角形型電極配列が他の電極配列と比較して最も迅速に土壌を酸性化していることが分かる。特に初期段階での土壌酸性化速度は速く、その後酸性化速度は鈍化している。四角形型配列は、初期の段階では六角形電極配列に次いで迅速に土壌の酸性化が進行するが、最終的には六角形型および三角形型電極配列と同程度の土壌の酸性化を示す。電極配置の基本形である並行型電極配列が最も土壌の酸性化の効率が悪ことが分かる。これは、並列型電極配列では隣接する陽極と陰極間での水素イオンの線的な拡がり为主体で、面的な拡がりが多角形型の電極配列と比較して劣ることが原因である。このように、陰極を中心に陽極を多角形構造になるように配置するほうが、土壌を迅速に酸性化するのに適していると考えられる。Fig. 8 に砂質粘土土壌を対象に、六角形型電極配列での土壌酸性化挙動の経時変化を示す。陽極井戸から酸が発生し、時間の経過とともに陰極方向に酸性化が進行している様子が分かる。しかし、隣接する陰極井戸間の領域の酸性化の進行は遅く、先に述べたように、時間の経過とともに土壌酸性化速度が鈍化する現象は、隣接する陰極井戸間の酸性化の進行が遅く、最終的にはその領域の酸性化のみが進行することになるためである。

3.3 電極間距離および電極間電位差が土壌酸性化に与える影響

3.2 と同様に約 900 m² の汚染された砂質粘土土壌を対象に、三角形型電極配列における電極間電位差が土壌の酸性化に与える影響について検討を行った。ただし、陽極と陰極の設置距離は 3.0 m 一定である。Fig. 9 に、電極間電位差を 50 V/m、100 V/m および 150 V/m に設定した場合の土壌酸性化割合の経時変化を示す。Fig. 9 から分かるように、土壌の酸性化速度は、電極間電位差が増加するほど速くなっている。特に、電極間電位差を 50 V/m から 100 V/m に増加させた場合の方が、電極間電位差を 100 V/m から 150 V/m に増加させ場合より、酸性化速度の大きな改善が見られる。ただし、電極間電位差の設定

Fig. 6 Effect of electrode configuration on acidification of sandy/clayey soil. **Fig. 7** Effect of electrode configuration on acidification of clayey/silty soil. **Fig. 9** Effect of electric field strength on acidification of sandy/clayey soil with triangular electrode configuration.

については、浄化効率だけでなく通電中の地盤温度なども考慮して決定する必要があると考えられる。

次に、陽極と陰極の設置距離が土壌の酸性化に与える影響について検討を行った。解析領域は、16 m × 15 m とし、その内側に 13 m × 13 m の酸性化対象領域を設定した。また、電極間電位差は 100 V/m 一定である。Fig. 10 に、

Fig. 1 Time history of acidification of soil (sandy/clayey soil).

Fig. 5 Electrode arrangement indicated with pressure head (sandy/clayey soil).

電極間距離を 1.2m, 2.0m, 3.0m および 4.0m に設定した場合の土壌酸性化割合の経時変化を示す。陽極と陰極の設置距離が長くなるほど土壌の酸性化に要する時間は増加している。このように、土壌の酸性化に要する時間

Fig. 8 Time history of acidification for sandy/clayey soil with hexagonal electrode configuration.

Fig. 10 Effect of electrode spacing on acidification of sandy/clayey soil with triangular electrode configuration.

は、電極間距離に強く依存することが分かる。ただし、実際に汚染サイトで浄化を実施する場合には、土壌の酸性化を含む浄化効率の面からだけでなく、ボーリングする電極井戸数や使用する電極数など、コスト面も考慮して適切な設置距離を設定する必要がある。

4. 結 言

電流（電位）によって誘起されるイオン移動や電気浸透流による物質移動を、電気的に発生する移流と考え、流量（水頭）に置き換えることにより、動電学的手法を実規模レベルの汚染サイトに適用した場合の浄化予測が可能な数値解析手法を提案し、重金属汚染土壌の浄化で特に重要な因子である土壌酸性化に対してこの手法によ

り電極配列などが及ぼす影響について検討し、以下の結果が得られた。

- 1) 土壌を迅速に酸性化するには、浄化対象サイトに設置する電極を、陰極を中心に陽極を多角形構造になるように配置する必要がある。
- 2) 隣接する陰極井戸間の領域の酸性化が他の領域の酸性化の進行に比較して遅く、時間の経過とともに土壌酸性化速度が鈍化する原因である。
- 3) 土壌の酸性化速度は、電極間電位差が増加するほど速くなる。また、陽極と陰極間の設置距離が長いほど、土壌の酸性化に要する時間は長くなる。

謝 辞

本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金（基盤研究（B）、No.15360475）の補助を受けたことを明記する。

References

- 1) M. Nishigaki, T. Hishiya, N. Hashimoto and I. Kono: Journal of the Japan Society of Civil Engineering, **511**(III-30), pp.135–144 (1995)
- 2) S.P. Neuman: Water Resources Research, **26**, pp.1749–1758 (1990)
- 3) S.P. Neuman: Journal of Computational Physics, **41**, pp.270–294 (1981)
- 4) S.P. Neuman: International Journal for Numerical Methods in Engineering, **20**, pp.321–337 (1984)
- 5) R. Cady and S.P. Neuman: Computational Method in Water Resources, Proceeding of the VII International Conference, MIT, USA, pp.183–193 (1988)
- 6) M. Niinae, T. Aoe, T. Sugano and K. Aoki: Journal of the Mining and Materials Processing Institute of Japan, **117**, pp.127–132 (2001)
- 7) M. Niinae, T. Aoe, T. Sugano and K. Aoki: Journal of the Mining and Materials Processing Institute of Japan, **117**, pp.653–657 (2001)
- 8) M. Niinae, T. Aoe, T. Sugano and K. Aoki: Journal of the Mining and Materials Processing Institute of Japan, **116**, pp.855–860 (2000)
- 9) A.N. Alshawabkeh and Y. Acar: Journal of Environmental Science and Health, **A27**, pp.1835–1861 (1992)
- 10) E.D. Mattson, R.S. Bowman and E.R. Lindgren: Journal of Contaminant Hydrology, **54**, pp.99–120 (2002)
- 11) A.N. Alshawabkeh, A.T. Yeung and M.R. Bricka: Journal of Environmental Engineering, **125**, pp.27–35 (1999)