

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420483

研究課題名(和文) 熱流体注入による有機溶剤汚染地盤の浄化機構に関する研究

研究課題名(英文) Study on remediation mechanism to contaminated ground by organic solvent injection fluids with temperature controlled

研究代表者

椋木 俊文 (Mukunoki, Toshifumi)

熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・准教授

研究者番号：30423651

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、油などに代表される有機溶剤によって汚染された地盤を浄化する方法として、熱流体を注入することにより、地盤内間隙構造内に残留する汚染流体の分布をX線CTスキャナを使って評価する研究である。地盤材料の温度(T1)と注入流体の温度(T2)条件に着目し、T1=T2のとき、T1<T2のとき、T1>T2の3つの条件を想定して、どの条件が有機溶剤の回収に適切な条件かを画像解析により評価した。その結果、この研究では注入流体の温度を20℃、対象地盤材料の温度を60℃にして熱流体を注入すると、注入流体の毛管現象を抑制し、即ち局所的な流動挙動を抑制するため、油の回収量が増える(浄化促進)ことが分かった。

研究成果の概要(英文)：This study has discussed that effectiveness of injecting fluids with temperature controlled into the contaminated soil by organic solvents like fuels and residual organic solvent in the pore structure was analyzed by image analysis using X-ray CT scanner. In this study, three different temperature conditions were prepared on the temperature T1 for soil and T2 for injection fluids such as T1=T2, T1<T2 and T1>T2. In fact, when T1 was 60°C and T2 was 20°C, the organic solvent in the pore structure was collected well because capillarity of injection fluid was restricted by low temperature condition and besides, local path of organic solvent was not formed under this temperature condition.

研究分野：地盤工学

キーワード：油汚染・浄化 熱流体 地盤

## 1. 研究開始当初の背景

ガソリンやディーゼル燃料などの軽比重難水溶性液体(Light non-aqueous Phase liquids 通称: LNAPLs)は水とは分離するため、地盤中の輸送現象は、自重による流動と不飽和帯における毛管圧力が支配的要因となって浸透する複合流動現象である。前者は LNAPL の位置水頭が地盤中への流入圧力を上回るような条件の場合であり、LNAPL が地下水表面で貯留するような現象を引き起こす。また、後者の場合、地中に浸透するほど、水の飽和度が高くなり、LNAPL が地下水面に到達する前に不飽和帯中で滞留する浸透現象である。さらに、地下水位の変動が生じると、間隙水と LNAPL が同時に移動する多相流動現象となり、その挙動は地盤材料の空隙径、空隙形状および空隙の接続性に加え、流体間に生じる粘性比、そして濡れ特性などが非線形に相関する複雑な現象となる。したがって、LNAPL による地盤汚染問題解決のためには、LNAPL が地盤中をどのように浸透して、どの程度残留するか、また、それをどのように浄化可能かが課題となる。

一方、浄化工法について考えると、近年では浄化費用や環境負荷を抑えられることから、比較的深部まで拡がった汚染に対しては原位置浄化工法を用いるケースが増えている。代表的なものとして空気の圧入により LNAPL を押し出し、強制的に揮発させて回収するエアースパーキング法などがある。さらに、加熱による LNAPL の揮発性及び流動性を高めることに着目し、汚染土壌に対して蒸気や加熱空気を注入する工法も開発、実施されている<sup>4)5)</sup>。また、石油工学の分野では岩石の空隙に残留した石油を回収するために、水を圧入し石油を押し出す水攻法が用いられてきた。岩石と土、重油と軽油という差異はあるが、多孔質体内に残留した難水溶性流体の回収という点

では同様である。この手法を地盤汚染浄化の分野でも適用することで、これまで気体の圧入だけでは回収出来なかった間隙構造に残留した LNAPL の回収が可能となる。各相の流動は、間隙管内の流動であり、ミクロスケールにおける現象観察が不可欠となる。このニーズに応えられる手法の一つとして、非破壊試験法として確立している X 線 CT の適用が注目されつつある。

一般に X 線 CT には、時間分解能に優れた医療用装置と密度分解能と空間分解に優れた産業用装置とがあるが、間隙構造を高精度で観察可能な装置は、マイクロフォーカス X 線 CT (Micro focused X-ray Computed Tomography: MXCT)である。MXCT 装置は、ミクロン単位の分解能を有しており、砂地盤材料程度であれば、3次元間隙構造を鮮明に可視化することができる。したがって、X 線 CT 画像の特徴を十分に把握し、適切な画像処理を施すことによって、地盤材料内部の間隙構造や粒子形状、流体の残留分布を高精度に3次元的な評価が可能となる<sup>8)</sup>。高解像度の画像は、画像工学においては飛躍的進歩を遂げさせ、間隙構造の3次元分布の可視化評価にとどまらずその定量的な評価まで可能にしつつある

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、異なる温度条件下における、流体注入による地盤内 LNAPL の浄化メカニズムを解明することである。著者が所属する研究室では、2011 年度に MXCT 撮影用の二相流動実験装置と得られた CT 画像を定量的に評価する画像解析手法を開発している。本研究では、この装置を温度制御可能な実験装置に改良し、LNAPL で飽和させた豊浦砂供試体に対して異なる温度条件下で流体を注入する実験を実施する。この実験より LNAPL の回収

量から温度制御による浄化効率を評価するとともに、その供試体の X 線 CT 撮影を実施し、豊浦砂供試体中に残存する LNAPL の残留分布を定量評価する。

### 3. 研究の方法

図 1 は、実験装置の外観写真である。供試体には豊浦標準砂を用い、有機溶剤として揮発性が小さい流動イソパラフィン（以下、IP）を用いた。20℃における IP の比重は、0.746 である。注入する流体は CT 画像の輪郭を強調するために重量パーセント濃度を 30%に調整したヨウ化カリウム水溶液（以下：KI）を用いた。20℃における KI の比重は、1.25 である。供試体内の流体は、供試体圧力容器上部から押し出され、精密天秤により回収量を計測した。作成した供試体の寸法は高さ 18.6cm、直径 0.1cm、体積 14.61cm<sup>3</sup> で乾燥密度  $\rho_d=1.55\text{g/cm}^3$ 、相対密度  $D_r=71.9\%$ 、間隙率 42.8%とした。温度の設定は 20℃、60℃の 2 ケースとした。KI の注入流量は 25ml/h、注入時間は 5000sec とした。質量は精密天秤により 2sec 毎に記録し、実験中の水温、制御層内の気温は温度計により観測した。

基礎実験から得られた知見と改善すべき点を以下に列挙する。

(1) 水を用いた場合でも 20℃と 60℃の温度条件の違いで有意な挙動の変化が表れ、圧力と回収量の変化から内部の大まかな挙動が把握できる。

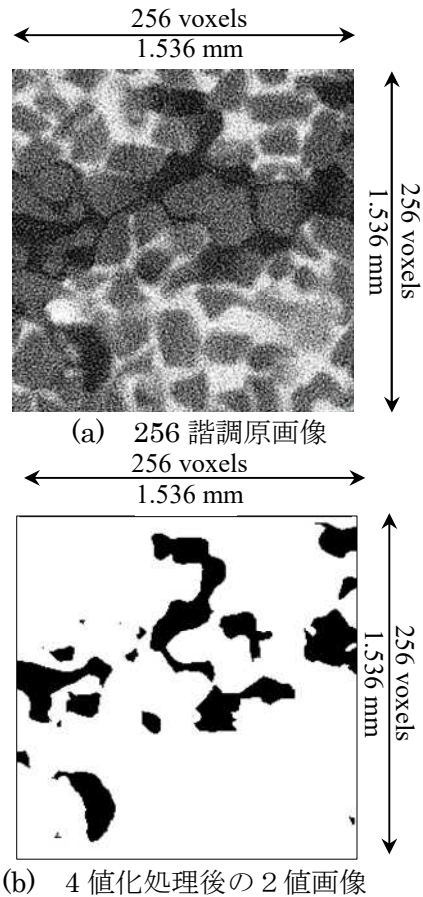
(2) 温度制御層内の温度分布にムラが生じるため、設定した温度に上昇したら変動が少なくなるように高い断熱性を確保する必要がある。

(3) 室温は地下室であっても気候条件に依存するため、LNAPL 飽和供試体も温度を制御できる環境に置かなければならない。

(4) 制御層内で温度を上昇させること



図 1 実験装置外観写真



(b) 4 値化処理後の 2 値画像

図 2 X 線 CT 画像

で液体が膨張するため、圧力を逃がす機構が必要となる。

(5) 注入実験中の供試体内の温度分布を把握する必要がある。

よって、本実験では以下の様に実験条件を設定し、その条件を満足するように実験装置を改良した。

(1) 供試体内の温度分布を把握することは困難であるため、供試体と注入用のシリンジを温度制御層内に設置する等温条件とする。

表-1 各ヒストグラムの統計的パラメータ

Case		平均値 ( $\mu\text{m}$ )	最頻値 ( $\mu\text{m}$ )	歪度 (-)	尖度 (-)
20°C	before	62.8	66	0.380	-0.09
	after	67.7	66	0.564	0.225
60°C	before	72.7	42	0.519	-0.018
	after	79.8	90	0.172	-0.524

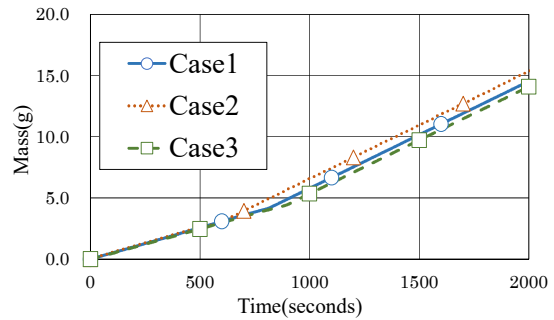
(2) 温度上昇による体積の膨張と圧力の増加を抑えられるように実験装置を組み立てる。

(3) 断熱性を高めるために断熱材の配置を見直し、必要であれば新たに設置する。

#### 4. 研究成果

MXCT 用一次元流動実験の結果を図-15 に示す。図-3 は液体の累積回収量の経時変化であり、注入開始からの 2000 秒間を拡大して表示している。横軸は注入時間(seconds)を表し、縦軸は累積回収質量(g)を表している。

Case1 では Break through までの経過時間が 811sec で、回収質量が 4.106g であった。基礎実験の CaseA は経過時間が 820sec であり、水を用いた場合と KI を用いた場合で挙動に大きな変化がないことが確認できた。続いて Case2 では経過時間が 592sec で回収質量が 3.012g であった。Case3 では経過時間が 896sec で回収質量が 4.440g であった。各 Case で Break through までに回収された LNAPL は Case1 では 88.2%, Case2 では 64.4%, Case3 では 94.9%となる。図-4 は、各 Case の圧力の経時変化を比較したものである。全ての Case において 4000~5000sec 経過したときに圧力の大きな変化が起こっていることが分かる。よって、最終的な LNAPL の回収量の大小を評価するために、5000sec 経過時点の各 Case の回収質量を比較すると、Case1 では 40.807g, Case2 では 41.872g, Case3 では 40.558g であった。最も LNAPL を回収できたのは Case3 で、次いで Case1, Case2 となった。特に Case1, Case3 と比較して Case2 の回収量が少ないことがわかる。また、KI でなく水を使った基礎実験でも、Break through



(b) 0-2000sec

図-3 累積回収質量の経時変化

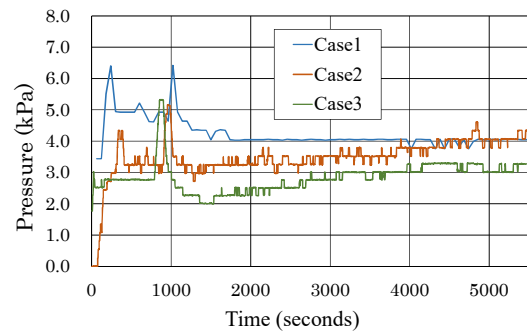


図-4 圧力の経時変化

までの回収量なら本実験と同様に比較できる。Case1, CaseA を基準として粘性と界面張力の変化が LNAPL 浄化挙動に与えた影響を考える。Case2 では KI と LNAPL の粘性と界面張力がともに低下し、粘性力によるフィンガリングが支配的となり、最も低い回収量となったと推測される。Case3, CaseB では供試体を浸透していく過程での KI, 水の温度の変化は分からないが、Case3 では置換される側である LNAPL のみの温度が上昇することで、粘性比の上昇と界面張力の低下によるキャピラリー数の上昇の結果、回収量が最もよい結果となったと推測される。CaseB では、注入する側の KI のみ温度が上がっているため、粘性比が低下しキャピラリー数が上昇することで、回収量が基準より悪くなったものと考えられる。

最終的な回収質量が小さいほど、密度の小さい IP の回収量が多いことになる。注入開始から 5000sec 経過し実験を終了したとき、20°Cでは回収質量は 40.807g であり、60°Cで



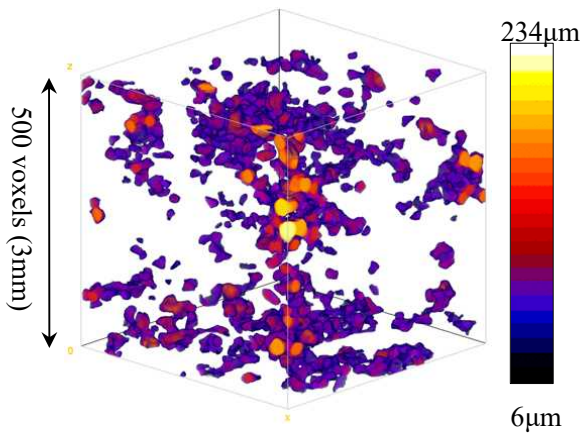


図5 3次元残留 IP CT 画像 (20°C)

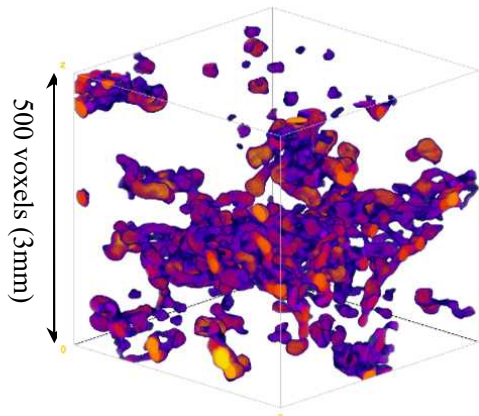


図6 3次元残留 IP CT 画像 (60°C)

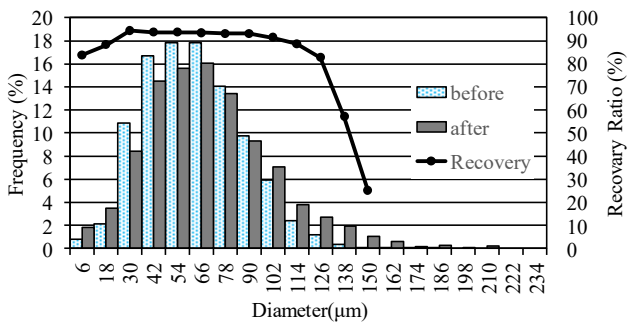


図7 IP を含む間隙径分布 (20°C)

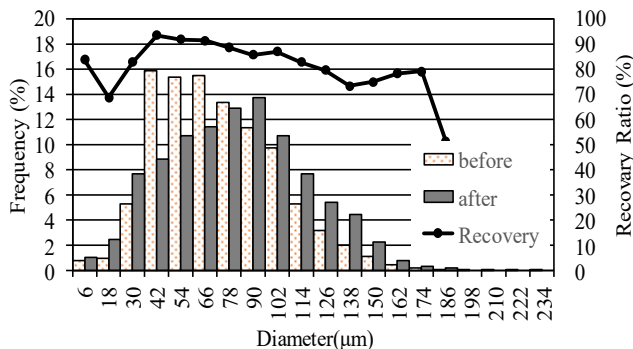


図8 IP を含む間隙径分布 (60°C)

は 41.872g であった。図 5, 図 6 は, KI 注入後に IP が残留した間隙部分を抽出した 3次元 CT 画像である。20°C の画像は, IP が残留

した間隙の大きさが小さく, かつ散らばっている印象がうかがえる。一方, 60°C の画像は, IP を含む間隙が比較的大きくかつ固まって分布している様子がわかる。画像解析の結果, 20°C の条件下では KI の注入により 92.8% の IP が回収され, 60°C の条件下では KI の注入により 88.1% の IP が回収されていたということがわかった。図 7, 図 8 は, 画像解析により評価された注入前後の IP の各間隙径ごとの体積を求め, 全 IP 体積に対しての比を表したヒストグラムである。また, 各間隙径ごとの回収率を折れ線で表している。表-1 に, 各ヒストグラムの形状を定量的に評価するための統計的なパラメータを示している。表-1 より, 水注入後における 20°C の歪度は 0.184 増加し, 尖度は 0.1351 増加している。これは平均値付近よりもより大きな間隙径の IP の回収率が高くなったことで, この結果 IP 残留間隙径分布が右に歪み, 平均値付近の割合が他の部分に対して高くなったという現象を説明している。また, 60°C の歪度は 0.347 減少し, 尖度は 0.5062 減少している。これは平均値以下の間隙径の IP の回収率が増加したため, この結果, IP 残留間隙径分布の歪みが小さくなり, 平均値付近の間隙径の割合が他の部分に対して減少したことを説明している。これらの結果は対象領域の高温化により粘性と界面張力が低下することによって毛管力が低下し, より小さな間隙径の IP が優先的に回収され, その結果いわゆる「水ミチ」を形成し, 60°C の条件下の方が IP の回収率が悪い結果を生じたことを示している。今後は, 20°C と 60°C の中間の温度でも同様の研究を行い粘度や界面張力の数値上の変化とその挙動への影響を定量的に検証していく。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- 1) Mukunoki, T., Miyata, Y., Mikami, K., and Shiota, E.(2016): X-ray CT analysis of pore structure in sand, Solid Earth, (査読有) Vol.7(3), 929-942, doi:10.5194/se-7-929-2016.

[学会発表] (計 8 件)

- 1) Toshifumi Mukunoki, Ryo Takenaka and Erika Shiota, Image analysis of LNAPL recovery in sand due to injecting water with different temperatures using X-ray CT, Proc. of 19<sup>th</sup> International Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering, 2017 (in print), Sep. 18-22, 2017, Seoul, Korea
- 2) Laurent Oxarango, Erika Shiota, Luke Chang, Patrice Delmas, Toshifumi Mukunoki. Analysis of unsaturated properties of a sandy soil using X-Ray CT. 13èmes Journées d'études des Milieux Poreux 2016, Oct 2016, Anglet, France. <hal-01394453>, Grenoble, France.
- 3) Erika Shiota, Toshifumi Mukunoki, Anne-Julie Tinet (2016): Estimation of water - LNAPL transfer with different granular materials using X-ray CT image analysis, Proc. of THE 6TH Japan-Korea Geotechnical Workshop, Japanese Geotechnical Society Special Publication, Vol.4 No.7, pp150-153. doi.org/10.3208/jgssp.v04.j11, Sep. 12th, 2017, Okayama.
- 4) Erika Shiota and Toshifumi Mukunoki (2015), "Remediation of LNAPL in sandy soil resulting from air injection", Proc. of the 15th Asian Regional Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering, Japanese Geotechnical Society Special Publication Vol. 2, No. 55, pp.1916-1921, doi.org/10.3208/jgssp.JPN-049, Nov.9<sup>th</sup>-13<sup>th</sup>, 2015, Fukuoka.
- 5) 塩田絵里加, 椋木俊文, 藤木祐作, Oxarango Laurent, CT画像解析とLBM解析による砂の不飽和浸透係数の評価, 第51回地盤工学会研究発表大会, 9月3-15日, 2016, 岡山.
- 6) 椋木俊文, 塩田絵里加, 間隙構造の可視化から考える不飽和地盤の浸透特性の評価, 可視化情報全国講演会, 10月10日 2015, 京都.
- 7) 竹中亮・塩田絵里加・椋木俊文・吉永徹「異なる温度条件下における多孔質体内のLNAPL浄化挙動の評価」平成27年度土木学会西部支部, 3月4日, 福岡
- 8) 塩田絵里加, 椋木俊文, 藤木祐作, 吉永徹, CT画像解析を用いた砂の水分特性曲線における予測評価, 第70回土木学会全国大会, 9月16日-18日, 2015, 岡山.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称 :  
 発明者 :  
 権利者 :  
 種類 :  
 番号 :  
 出願年月日 :  
 国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :  
 発明者 :  
 権利者 :  
 種類 :  
 番号 :  
 取得年月日 :  
 国内外の別 :

[その他]  
 ホームページ等

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者 椋木俊文  
 (Toshifumi Mukunoki)  
 熊本大学大学院・先端科学研究部・

准教授  
 研究者番号 : 3 0 4 2 3 6 5 1

(2) 研究分担者 ( )

研究者番号 :

(3) 連携研究者 ( )

研究者番号 :

(4) 研究協力者 ( )