

鉛直に挿入した TDR プローブを使って測定した 土壌の溶質輸送特性

登尾浩助*・徳本家康**・向井田善朗***

Solute Transport Properties of Soil Measured with a Vertically-Installed Time Domain Reflectometry Probe

Kosuke NOBORIO*, Ieyasu TOKUMOTO** and Yoshiaki MUKAIDA***

*** Faculty of Agriculture, Iwate University, Morioka 020-8550, Japan

** United Graduate School, Iwate University, Morioka 020-8550, Japan

* Present address : School of Agriculture, Meiji University, Kawasaki 214-8571, Japan

Abstract

It is crucial to know transport properties of solute in soil when contaminants are spilled into soil. In 1990's a procedure using a vertically-installed time domain reflectometry (TDR) probe was developed to estimate solute transport properties for the input of the Dirac delta function. We proposed a procedure for a step function input, equivalent to a contaminant breakthrough in case of a broken barrier at a final deposal site. With soil column experiments with sand, relative concentrations measured with TDR and effluent were analyzed to estimate the retardation factor, R , and the diffusion coefficient, D . For the step function input, R and D values estimated with TDR agreed well with those from effluent. For the Dirac-delta function, the R value estimated with TDR agreed with that from effluent. The proposed procedure using a vertical TDR probe to measure solute properties of soil was validated under the step function input.

Key words : break through curve (BTC), electrical conductivity, diffusion coefficient, retardation factor, time domain reflectometry (TDR)

1. はじめに

土壌中に漏洩した汚染物質や圃場に還元された家畜ふん尿の土壌における動態を把握するためには、土壌中における溶質の移動特性である拡散係数や遅延係数を知る必要がある。これらの係数の推定には、原位置においては直接採土により得られた土壌水や素焼きカップ吸引法を使って採水した土壌水の濃度を経時的に測定することで行われる。採土による方法は破壊的でしかも多大な労力を要するので、多くの地点における測定には向きである。一方、素焼きカップ吸引法では、非破壊的な経時測定が可能であるが、土壌のマトリックポテンシャル

が一般に -30 kPa以上である(即ち、圃場含水量より湿っている)必要がある(Rhoades and Oster, 1986)。

Kachanoski *et al.* (1992) は、土壌水分量と電気伝導度の非破壊的な測定が可能な TDR (time domain reflectometry) 法を使って、溶質フラックスを測定する方法を開発した。彼らは、地表面から鉛直方向に挿入した TDR プローブを使って、定常水分フラックス条件下で測定を行った。近年では、彼らの開発した測定法は、非定常水分フラックス条件下での溶質フラックス測定に拡張されている (Noborio *et al.*, 2005)。これらの測定では、溶質はディラックのデルタ関数として地表面に入力されると仮定している。鉛直に挿入した TDR プローブ

*** 岩手大学農学部 〒020-8550 盛岡市上田 3-18-8

** 岩手大学大学院連合農学研究科 〒020-8550 盛岡市上田 3-18-8

* 現住所: 明治大学農学部 〒214-8571 川崎市多摩区東三田 1-1-1

キーワード: 破過曲線 (BTC), 電気伝導度, 拡散係数, 遅延係数, TDR 法

を使ったデルタ関数入力による溶質移動において、TDR ロッド長さ L の下端から流出する溶質の相対濃度は、ステップ関数入力による溶質が長さ L の土壌カラムから流出する相対濃度を 1 から差し引いた値と等価であることが Elrick *et al.* (1992) によって証明されている。

ところが、鉛直に挿入した TDR プローブを使ってステップ関数入力による溶質移動を測定した例は報告されていない。ステップ関数入力による溶質移動は、ごみ最終処分場の遮水シートが損傷して汚染物質を含む溶液が土壌中に漏洩した場合に相当する。従って、この場合の解析法を検討しておくことは重要であると思われる。本研究では、定常水分フラックス条件下で土壌カラムを用いた室内実験を行い、鉛直に挿入した TDR プローブを使ってステップ関数入力による溶質移動を解析した。

2. 測定原理

2.1 排出溶液による測定

従来、土壌の溶質移動特性は、土壌カラムを用いて溶質投入口から一定距離における溶液濃度、一般的には排出溶液濃度の変化を測定することによって得られる。定常水分フラックス条件下におけるデルタ関数入力に対して、溶質入力口から x (cm) 離れた位置での溶液の相対濃度の経時変化 $C_{r,\delta}(t)$ は、次式で表される (Skaggs and Leij, 2002)。

$$C_{r,\delta}(t) = \frac{x}{2\sqrt{\pi Dt^3/R}} \exp\left[-\frac{(Rx-vt)^2}{4DRt}\right] \quad (1)$$

ここで、 D は溶質の拡散係数 (cm^2/min)、 R は遅延係数、 t は経過時間 (min)、 v は間隙水流速 (cm/min) で、 J_w/θ で表される。 J_w は水分フラックス (cm/min) で給水量 Q (cm^3) を土壌カラム断面積 A (cm^2) と経過時間 t (min) の積で除した値であらわされる。さらに θ は土壌の体積含水率 (cm^3/cm^3) である。

一方、ステップ関数入力に対する x (cm) 位置における相対濃度の経時変化 $C_{r,s}(t)$ は、

$$C_{r,s}(t) = \frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{Rx-vt}{2\sqrt{DRt}}\right) + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{vx}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{Rx+vt}{2\sqrt{DRt}}\right) \quad (2)$$

と表される (Skaggs and Leij, 2002)。ここで、 erfc は余誤差関数である。

2.2 鉛直 TDR プローブによる測定

TDR 法では、パルス発生器から放出された電磁波が測定対象物質に埋設されたプローブと呼ばれるアンテナ線の先端まで行って測定器に戻って来る往復の伝播時間から物質の比誘電率を、また電磁波の減衰具合から物質

の電気伝導度を測定する。測定原理の理論背景については堀野・丸山 (1992) に詳しい。また、実践的な測定法に関しては登尾 (2003) を参照されたい。

土壌表面から鉛直に土壌に挿入した TDR ロッド長さ L 内に存在する土壌溶液によるバルク電気伝導度の経時的な相対変化 $C_r(t)$ は次式で表される (Kachanoski *et al.*, 1992)。

$$C_r(t) = \frac{\sigma(t) - \sigma_i}{\sigma_o - \sigma_i} \quad (3)$$

ここで、 $\sigma(t)$ は経過時間 t における TDR プローブで測定した土壌のバルク電気伝導度 (mS/m)、 σ_i は初期状態における土壌のバルク電気伝導度 (mS/m)、 σ_o は溶液交換後に平衡値に達したときの土壌のバルク電気伝導度 (mS/m) である。

デルタ関数入力に対する TDR ロッド長さ L 内の土壌中における溶液の相対質量変化 $M_\delta(t)$ は、Elrick *et al.* (1992) と van Genuchten and Wierenga (1986) の研究から、次式のような解析解で表される

$$M_\delta(t) = 1 - \left[\frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{RL-vt}{2\sqrt{DRt}}\right) + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{vL}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{RL+vt}{2\sqrt{DRt}}\right) \right] \quad (4)$$

ここに、 L は TDR プローブのロッド長さ (cm)。

一方、ステップ関数入力に対する TDR ロッド長さ L 内の土壌中における溶液の相対質量変化 $M_s(t)$ は、式 (2) を 0 から TDR ロッド長さ L まで積分することで得られる。

$$M_s(t) = \frac{1}{L} \int_0^L \left[\frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{Rx-vt}{2\sqrt{DRt}}\right) + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{vx}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{Rx+vt}{2\sqrt{DRt}}\right) \right] dx \quad (5)$$

式 (3) の $C_r(t)$ と式 (4) の $M_\delta(t)$ あるいは式 (5) の $M_s(t)$ は、一定土壌水分条件下における比較的薄い溶液に対しては等価であると仮定できる (Kachanoski *et al.*, 1992)。既存のデータから濃度差が約 10 倍以内の範囲 (例えば、 $0.005 \leq C \leq 0.1 \text{ mol}/\text{kg}$) であれば、溶液濃度 C (mol/kg) と溶液電気伝導度 σ (mS/m) の間には線形関係がある (日本化学会, 1975)。したがって、溶質の分散係数 D と遅延係数 R は、式 (3) で表される測定データに式 (4) または式 (5) を適合することで推定可能である。また、式 (1) および式 (2) の相対濃度も排出水の電気伝導度を測定することによって同様に推定可能である。

3. 実験材料と方法

供試土として豊浦砂 (KS-63, 豊浦珪石鉱業, 山口県) を使った。土粒子密度は 2.65 Mg/m^3 であった。内径 3.5 cm, 長さ 13.9 cm のプラスチック製円筒土壌カラムに風乾供試土を高さ 10.8 cm まで充填した後, カラム下方から逆浸透膜 (RO) 水をゆっくり供給して供試土を飽和させた。使用した RO 水の電解質含量は, 電気伝導度で $8.2 \mu\text{S/m}$ 相当であった。その後, 土壌表面から 2 線式 TDR プローブ (ロッド長さ 8.9 cm, ロッド直径 1.6 mm, ロッド間隔 1.5 cm) を鉛直に挿入した。TDR ケーブルテスター (テクトロニクス社製 1502C) は, PC 上で動作するソフトウェア WinTDR (Or *et al.*, 2004) を使って制御し, 3 分毎に体積含水率とバルク電気伝導度を測定した。また, カラム下端からの排水はフラクションコレクターで 3 分毎に採水し, 採水の質量と電気伝導度を測定した。カラム上部からは定流量ポンプを使って RO 水を供給した。土壌カラム内の水分フラックスが定常状態に達した後, デルタ関数入力に際しては, シリンジで土壌表面に 0.1 mol/L NaCl 溶液 5 mL を瞬時に供給した。また, ステップ関数入力に際しては, 定流量ポンプの RO 水タンクを 0.1 mol/L NaCl の溶液タンクに交換した。

TDR で測定した相対濃度データに式 (4) または式 (5)

を, また, 排水水から得られた相対濃度データに式 (1) または式 (2) を非線形最小二乗法で適合して, R と D の値を推定した。非線形最小二乗法による当てはめは, Mathcad ver. 12 (Mathsoft, 2004) を使った。

4. 実験結果

図-1 にディラックのデルタ関数として溶質を入力した際に得られた相対濃度の時間変化を示す。鉛直に挿入した TDR プローブ (●印) と排出溶液 (○印) によるデータである。非線形最小二乗法から得られた R と D を使って描いた曲線も併せて示した。Kachanoski *et al.* (1992) の理論どおり, $t > 15 \text{ min}$ に TDR ロッド長さから溶質が漏れ始めると, TDR で測定した相対濃度の減少が始まり, それと同時に排出溶液の相対濃度が増加し始めた。非線形最小二乗法による当てはめ曲線と測定値は, どちらのデータに対しても良く一致している。

次に, ステップ関数を入力した際に鉛直に挿入した TDR プローブで測定した相対濃度と排出溶液の相対濃度の時間変化を示す (図-2)。ここでは, 式 (5) を TDR で測定した相対濃度データに, 式 (2) を排出溶液から得られた相対濃度データに対して非線形最小二乗法を適用して R と D を得た。TDR はロッド長さ L 内の溶質分布状態に関わりなく, ロッド長さ L 内に存在する溶質を総量

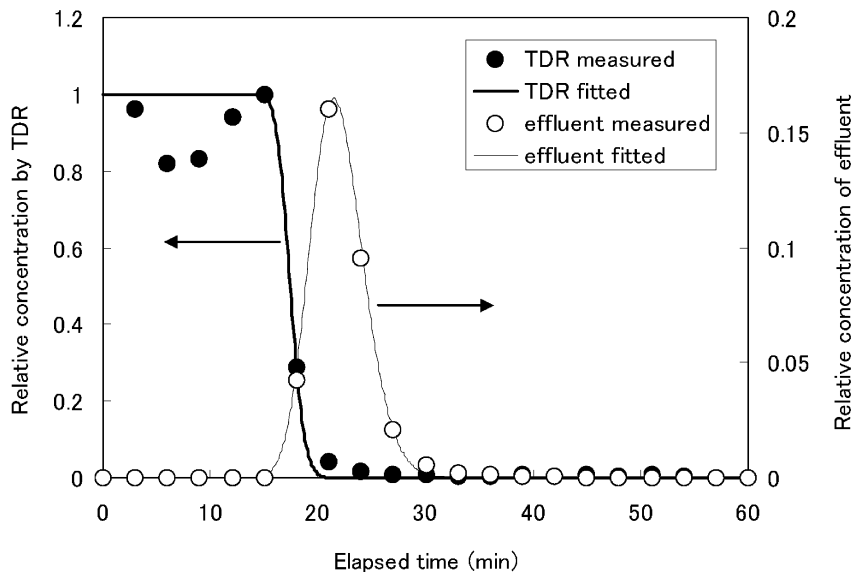


図-1 鉛直に挿入した TDR プローブと排出溶液から得たディラックのデルタ関数入力に対する相対濃度の経時変化。矢印は対応する y 軸の方向を示す。

Fig. 1 Temporal changes in relative concentration measured with a vertically-installed TDR probe and effluent for a Dirac-delta function input. Arrows indicate the direction of corresponding y axes.

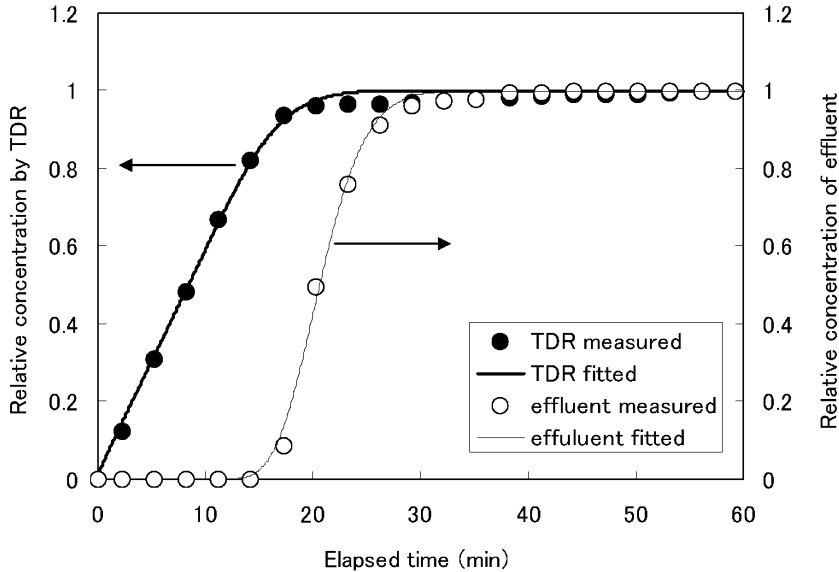


図-2 鉛直に挿入した TDR プロブと排出溶液から得たステップ関数入力に対する相対濃度の経時変化。矢印は対応する y 軸の方向を示す。

Fig. 2 Temporal changes in relative concentration measured with a vertically-installed TDR probe and effluent for a step function input. Arrows indicate the direction of corresponding y axes.

として測定する性質がある。従って、ステップ入力した溶質に対しては、 $t < 15$ min において時間の経過とともに相対濃度が線形的に増加した。また、入力した溶質が TDR ロッド長さ L 内から漏洩することによって線形的増加からずれ始めた時間は、排出溶液の相対濃度が増加し始めた時間と一致している。

表-1 では、TDR と排出溶液の相対濃度変化から得られた R と D の値を比較した。 R と D は、デルタ関数入力とステップ関数入力により得たデータに対して非線形最小二乗法を適用して計算した。デルタ関数入力では、TDR と排出溶液による R の推定値がそれぞれ 1.75 と 1.81 となり、比較的良く一致している。一方、 D の推定値は、TDR では 0.014、排出溶液では 0.061 (cm^2/min) となり、TDR による推定値は排出溶液による値の約 1/4 になった。ステップ関数入力に対しては、TDR と排出溶液による R の推定値は、それぞれ 1.42 と 1.40 と極めて良く一致した。また、 D の推定値においても 0.134 と 0.102 (cm^2/min) と TDR と排出溶液による大きな違いは認められなかった。

5. 考 察

ディラックのデルタ関数入力に対して排出溶液法で使った式(1)中の拡散係数 D の変化は、図-1 で示されるパルスのピーク高さの変化として表される。 D が 10%

表-1 ディラックのデルタ関数とステップ関数入力に対して、TDR と排出溶液による相対濃度変化から推定した遅延係数 R と拡散係数 D の比較。

Table 1 Retardation factor, R , and diffusivity, D , for Dirac-delta and step functions input, estimated using changes in relative concentration measured with TDR and from effluent.

procedure	input function		
	Dirac-delta	step	
θ (cm^3/cm^3)	0.39	0.36	
v (cm/min)	0.89	0.72	
TDR	R	1.75	1.42
	D (cm^2/min)	0.014	0.134
effluent	R	1.81	1.40
	D (cm^2/min)	0.061	0.102

大きくなるとピーク高さは約 5% 小さくなる。一方、TDR 法に使った式(4)では 10% の D の変化は同一時刻において最大でも 1.7% 程度の変化としてしか現れない。従って、排出溶液による D の推定では、ピーク付近でのデータ数や溶液濃度の測定精度の影響を受けやすい

と思われる。この事が、表-1 において排出溶液（式(1)）と鉛直 TDR プローブ（式(4)）を使って推定した D 値に約 4 倍の差が生じた一因であると考えられる。

図-2 に示すステップ関数入力に対しては、排出溶液法に使った式(2)では、10%の D の変化に対して同一時刻における出力波形に最大 1.7% 程度の差が生じる。式(2)は、基本的には式(4)と同じである。TDR ロッド長さ L について積分した本提案式（式(5)）では、10%の D の変化に対して同一時刻における出力波形に最大 0.2% の変化が生じる。従って、測定した出力波形から D を逆解析した際にも、式(2)と式(5)による D の推定値間に大きな差が生じなかったと考えられる。

遅延係数 R の推定値は、ディラックのデルタ関数入力とステップ関数入力のどちらの入力に対しても、従来法である排出溶液法と鉛直 TDR プローブ法に大きな差が生じなかった。表-1 のような条件下では、10%の R の変化に対して式(1)ではピーク発生時刻に、また式(2)と式(4)では $C_r=0.5$ の発生時刻に 3 秒程度の明瞭な差が生じる。また、式(5)では図-2 で示される直線の傾きに明らかな違いが生じる。従って、本研究のように明瞭な測定データを使って逆解析を行った場合には、 R の大きな違いにならなかったと考えられる。

D の推定法については、ディラックのデルタ関数入力に対する排出溶液を使った従来法の方がデータ質の影響を受けやすい。ここでデータ質は、採取した測定データに含まれる雑音の大小などを含むデータの信頼性の指標と定義した。一方、データ質の影響を受け難いのは、ステップ関数入力条件下における鉛直 TDR プローブ用いた本提案法であることが分かった。 R の推定については、どちらの入力に対してもどちらの方法も同程度の感度を有すると思われる。

6. おわりに

円筒カラムに充填した土壌試料に鉛直に挿入した TDR プローブを使って溶質輸送の測定を行った。遅延係数 R の値は、ディラックのデルタ関数入力、ステップ関数入力の区別なく、TDR と排出溶液による推定値が良く一致した。ところが拡散係数 D の値は、デルタ関数入力に対しては、TDR による値は排出溶液による値の 1/4 程度となった。ステップ関数入力に対しては、 D の値は両方の測定法による大きな違いは認められなかった。従って、本報で提案したステップ関数入力に対する TDR を使った解析は有効であると考えられる。今後は、データの質と逆解析によって求まる D 及び R の関係を詳細に調べる必要がある。

謝 辞

本研究の一部は、2004 年度岩手大学農学部活性化経費「教育研究設備充実費」と日本学術振興会科研費（基盤研究（B）(2) 15380160）からの研究助成によった。データ収集にご協力を賜った岩手大学大学院農学研究科の藻寄まなみ、日景郁江、および岩手大学農学部農林環境科学科の紙谷淳、熊谷徹、兒島聖恵、小林朝子、今野高行、佐藤正明、吉田良子、渡部憲吾の各氏に、そして 1502C ケーブルテスターを貸与していただいた岩手大学農学部の颯田尚哉先生に深謝いたします。

引用文献

- Elrick, D.E., Kachanoski, R.G., Pingle, E.A. and Ward, A.L. (1992): Parameter estimates of field solute transport models based on time domain reflectometry measurements. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**: 1663-1666.
- 堀野治彦・丸山利輔 (1992): TDR による土壌の体積含水率および電気伝導度の測定について。土壌の物理性, **65**: 55-61.
- Kachanoski, R.G., Pingle, E. and Ward, A. (1992): Field measurement of solute travel time using time domain reflectometry. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**: 47-52.
- Mathsoft (2004): Mathcad 12 ユーザーズガイド。マスソフト・エンジニアリング・アンド・エデュケーション・インク。
- 日本化学会編 (1975): 化学便覧基礎編 II 改訂 2 版。丸善(株)。
- 登尾浩助 (2003): 実践 TDR 法活用—土壌中の水分・塩分量の同時測定—。土壌の物理性, **93**: 57-65; **95**: 94.
- Noborio, K., Kachanoski, R.G. and Tan, C.S. (2005): Solute transport measurement under transient field conditions using time domain reflectometry. *Vadose Zone J.* (印刷中)。
- Or, D., Jones, S.B., VanShaar, J.R., Humphries, S. and Koberstein, L. (2004): WinTDR Users guide. Ver. 6.1, Soil Phys. Group, Utah State Univ. Logan, UT, U.S.A.
- Rhodes, J.D. and Oster, J.D. (1986): Solute content. In A. Klute (ed.) *Methods of soil analysis. Part 1.* 2nd ed. *Agron. Monogr.* 9. pp. 985-1006. American Society of Agronomy and Soil Science Society of America, Madison, WI, U.S.A.

- Skaggs, T.H. and Leij, F.J. (2002) : Solute transport : Theoretical background. In W.A. Dick and G.C. Topp (ed.) Methods of soil analysis. Part 4. Physical methods. SSSA Book Ser. No. 5. pp. 1353–1380. Soil Science Society of America, Madison, WI, U.S.A.
- van Genuchten, M. Th., and Wierenga, P. (1986) : Solute dispersion coefficients and retardation factors. In A. Klute (ed.) Methods of soil analysis. Part 1. 2nd ed. Agron. Monogr. 9. pp. 1025–1054. American Society of Agronomy and Soil Science Society of America, Madison, WI, U.S.A.

要 旨

土壌中における汚染物質などの溶質移動を把握するためには、溶質の拡散係数などを知る必要がある。1990年代に土壌表面から鉛直に挿入した TDR (time domain reflectometry) プローブを使った方法が開発され、ディラックのデルタ関数入力に溶質に対して非破壊的に溶質の移動特性を推定することができるようになった。本報では、最終処分場の遮水膜が損傷した場合に相当するステップ関数入力の溶質に対する解析法を提案した。豊浦砂を充填したカラムを用いた実験により、TDR と排出溶液により推定した遅延係数 R と拡散係数 D を比較した。 R の値は、デルタ関数とステップ関数入力に対して、TDR と流出水による推定値が良く一致した。 D の値については、ステップ関数入力に対して両推定法からの値は良く一致した。従って、本報で提案したステップ関数入力に対する TDR を使った解析は有効であると考えられる。

受稿年月日 : 2005 年 3 月 28 日

受理年月日 : 2005 年 6 月 22 日