

地下水流動を考慮した地球統計学的手法による汚染物質濃度分布の推定

高井静霞*・島田太郎*・武田聖司*・小池克明**

Estimation of contaminated materials concentration by a geostatistical method with groundwater flow

Shizuka Takai*, Taro Shimada*, Seiji Takeda* and Katsuaki Koike**

* 日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirakata, Tokai, Naka, Ibaraki 319-1195

** 京都大学大学院工学研究科, Graduate School of Engineering, Kyoto University, Kyoto University Katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8540

キーワード: 汚染物質, 地球統計学, 地下水流動, ギブスサンプリング

Key words: Contaminated materials, Geostatistics, Groundwater flow, Gibbs sampling

1. はじめに

放射性核種や化学物質による汚染が地下で発生した場合、適切かつ効率的な環境修復のため、汚染濃度分布の解明が必要となる。しかし汚染が帯水層に移行していると、限られた測定データの単なる内外挿では適切に濃度を推定できない可能性がある。さらに、汚染の放出時刻歴は明らかでない場合も多い。このような場合に対し、これまで地下水流動を考慮した地球統計学的手法による汚染分布推定が提案されている (Shlomi and Michalak, 2007)。

本研究ではこれよりも物理的に適切で高精度な解を求めるために、地下水流動を考慮した地球統計学的手法にギブスサンプリングによる非負の制限を設け、適用可能性を仮想的なモデルおよび実際の地下汚染事例に対して検証した。

2. 手法

2.1 地下水流動を考慮した地球統計学的な汚染分布推定

本手法では汚染源が既知かつ定常な流れを前提条件に用い、限られた測定濃度 \mathbf{z}^* から未知の放出量 \mathbf{s} を逆解析し、これを用いて領域全体の濃度分布を推定する。

$$\mathbf{z}^* = \mathbf{H}^* \mathbf{s} + \mathbf{v}, \quad \mathbf{v} \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \mathbf{R}) \quad (1)$$

$$\mathbf{s} = \mathbf{X}_s \boldsymbol{\beta}_s + \boldsymbol{\varepsilon}, \quad \boldsymbol{\varepsilon} \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \mathbf{Q}_s(\boldsymbol{\theta}_s)) \quad (2)$$

ここで \mathbf{H}^* は感度行列、 \mathbf{v} は誤差を表す。上式のように各変数が平均0の正規分布 \mathcal{N} に従うと仮定すると、放出量は事後確率分布

$$p(\mathbf{s} | \mathbf{z}^*) \propto p(\mathbf{z}^* | \mathbf{s}) p(\mathbf{s}) \quad (3)$$

を最大とする \mathbf{s} として求められる。以下では、 $\mathbf{R} = \sigma_R^2 \mathbf{I}$ (σ_R^2 は測定誤差分散、 \mathbf{I} は単位行列)、ドリフト \mathbf{X}_s ・共分散 \mathbf{Q}_s は時間 t (m は時間方向の分割数) に対し(4)式のように設定した。

$$\mathbf{X}_s = \begin{bmatrix} 1 & \dots & 1 \\ t_1 & \dots & t_m \end{bmatrix}^T, \quad \mathbf{Q}_s(t_i, t_j | \boldsymbol{\theta}_s) = \boldsymbol{\theta}_s |t_i - t_j|^3 \quad (4)$$

2.2 ギブスサンプリングによる非負の制限

ギブスサンプリングでは、2.1で求まる推定放出量を初期値とし、時刻ごとに式(5)・(6)の切断正規分布からサンプリングを繰り返すことで、非負の制限を設けた条件付き事後確率分布を求める (Michalak, 2008)。

$$p(\mathbf{s}_i | \mathbf{z}^*) \propto p(\mathbf{z}^* | \mathbf{s}_i) p(\mathbf{s}_i) \mathcal{H}(\mathbf{s}_i) \quad (5)$$

$$\mathcal{H}(s_i) = \begin{cases} 1 & s_i > 0 \\ 1/2 & s_i = 0 \\ 0 & s_i < 0 \end{cases} \quad (6)$$

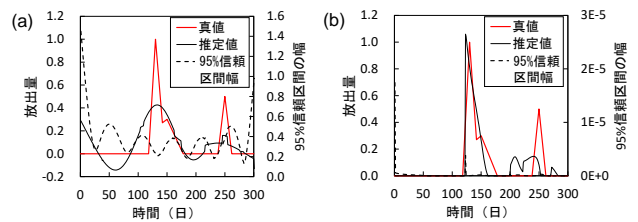
3. 核種移行 (仮想モデル) に対する適用性検討

3.1 評価条件

^3H (半減期 12.33 y) を対象に、2次元均質媒体中 ($300 \times 60 \text{ m}^2$) の一様な流れ (1 m/day) による汚染を仮定した。 ^3H は300日間に複数のピークをもって原点から放出されるとし、330日後に ^3H 濃度を等間隔に18点で測定するとした。分散長は縦1 m, 横0.1 m, 遅延係数は1と設定した。

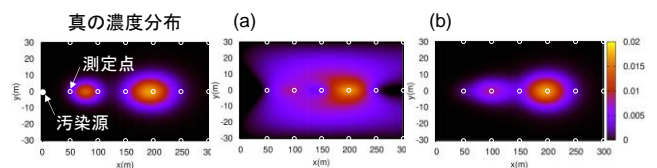
3.2 計算結果

各時刻の放出量の推定結果を第1図に示す。非負の制限により推定精度が向上し、不確かさが 10^{-5} まで低減した。



第1図 放出量の真値および推定値 ((a)非負の制限無, (b)有)

濃度分布の推定結果を第2図に示す。測定値の内挿のみ (トレンド付きクリギング) では再現性が低いが、本手法では絶対誤差平均 2.8×10^{-9} と高精度で測定値を再現できた。



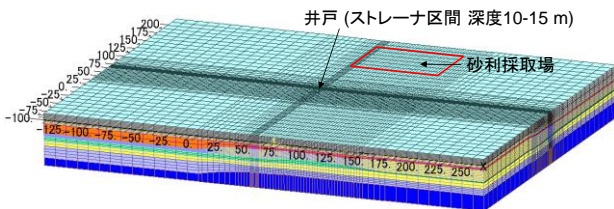
第2図 濃度分布(330日後)の真値および推定値 (左図: 真の濃度分布, (a)トレンド付きクリギング, (b)本手法 (非負の制限有))

4. 実際の汚染事例に対する適用性検討

実際のケースとして、茨城県神栖市における地下汚染事例を対象に選んだ。汚染物質は有機ヒ素 (As) 化合物のジフェニルアルシン酸 (DPAA) であり、1993 年以降に深度数 m に投棄されたコンクリート塊が汚染源であると推測されているが、放出量の時間変化は明らかでない。本研究では汚染源から周辺の揚水井までの範囲を対象に、初期調査時 (2004 年) の濃度分布および汚染放出総量の推定を行った。

4.1 評価条件

水理地質構造は、環境省 (2007) でのボーリング調査と揚水試験に基づく検討に基づき、第 3 図および第 1 表のように設定した。境界条件は、上面は降雨浸透量 0.92 mm/y (1993~2009 年の有効雨量の平均値 (浸透率 50%))、側方境界は平均的な地下水位 (2005 年 6 月)、砂利採取場は周囲より 9 cm 低い水位、底面は不透水とした (環境省, 2013)。揚水量は 1993~2003 年の平均値 5.3 m³/day と設定した。浸透流・物質移行解析には Dtransu-3D を使い、1993~2004 年までの非定常解析を行った。DPAA の比重は 3200 ppm で 1.012 とし、既往評価と同様収着は考慮しなかった。



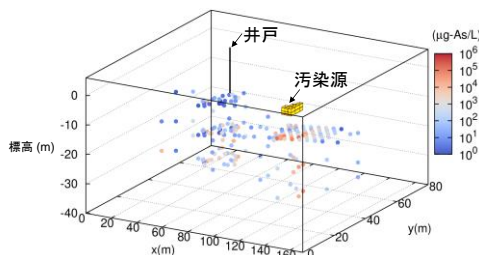
第 3 図 地質構造モデル

第 1 表 水理特性および移流分散特性

地層	透水係数 (cm/s)	比貯留係数 (1/m)	有効間隙率 (-)	分散長 (m)		分子拡散係数 (m ² /s)
				縦	横	
Dc	1.00E-06	2.00E-03	0.2	1	0.01	1.00E-09
Dg2	1.00E-01	5.00E-05	0.2	1	0.01	1.00E-09
Ds	3.00E-03	4.00E-03	0.2	1	0.01	1.00E-09
Dg1	5.00E-03	1.00E-04	0.2	1	0.01	1.00E-09
Ag	7.00E-03	1.00E-04	0.2	1	0.01	1.00E-09
As	5.00E-03	2.00E-03	0.3	1	0.01	1.00E-09
B2	1.00E-03	2.00E-03	0.4	1	0.01	1.00E-09
B1	5.00E-04	2.00E-03	0.4	1	0.01	1.00E-09

4.2 測定データ

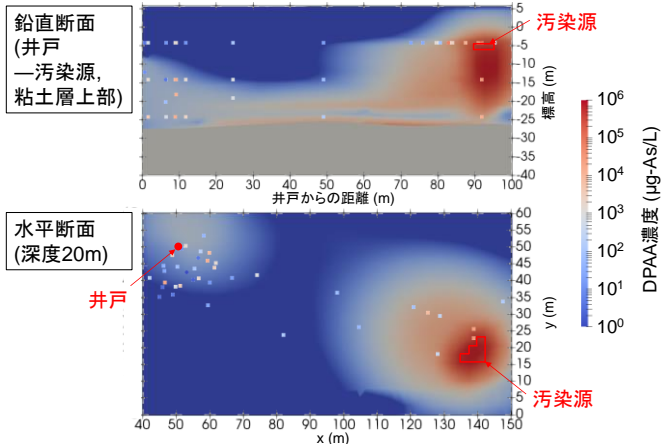
2004 年初期に測定された地下水中 DPAA 濃度を第 4 図に示す。地下水中 DPAA 濃度は、電気伝導度と pH が安定した段階で深度約 10m ごとに採水した約 10mL に対し、液体クロマトグラフ-誘導結合プラズマ質量分析法により四半期ごとに測定されている。DPAA 濃度は汚染源および井戸周辺で高く、その中間で低い傾向が見られる。ただし、深度 10m では採水時の濃度が安定しない (環境省, 2003)。また、測定濃度には隣接する位置・測定時期であっても数桁以上のばらつきがみられる。そこで本検討では、汚染源が除去される 2004 年冬季までの変動が 2 桁以内 (20m 以深) の測定値 (計 32 点) に限定して、計算を実行した。



第 4 図 地下水中の DPAA 濃度 (µg-As/L)

4.3 計算結果と考察

汚染源から井戸までの範囲 (110×60×40 m³) における濃度分布の推定結果を第 5 図に示す。感度行列は初期濃度を 10⁵ mg-As/L として計算した。濃度分布の推定結果は、汚染源直下および井戸周辺での高い測定値の傾向を再現していることがわかるとともに、評価に用いた 32 点の測定値に対する絶対誤差平均は 3.0 mg-As/L に抑えられた。



第 5 図 濃度分布の推定結果

また環境省 (2007) では地下水中の総ヒ素量を、測定濃度 (≥1 µg-As/L) と地下水体積の積として、2004 年初期で 40.89 kg と推定している。本評価では地下水に放出した汚染総量は 2.9 kg と推定された。推定結果のずれは、隣接する位置であっても測定濃度にばらつきが生じたことに加え、季節変動に伴う経時変化を地下水流動解析の境界条件では考慮していないこと、および収着特性の不確かさなどに起因すると考えられる。

5. まとめ

本研究では、地下水流動を考慮した地球統計学的手法により、地下の 3 次元汚染分布推定を行った。仮想的な汚染分布での評価から、測定値の不確かさが小さく水理地質構造が適切に把握されていれば、少ないデータから精度良く濃度分布が推定できることを確認した。

一方、実際の汚染事例では測定された濃度分布の傾向を定性的に再現したが、総量の推定結果は測定値との乖離が見られた。今後の課題は、水理地質構造の不確かさを計算で考慮することである。

なお本研究は、原子力規制庁「令和 2 年度廃止措置・クリアランスに関する検討」の成果の一部を含んでいる。

文 献

Shlomi, S. and Michalak, M. A. (2007) A geostatistical framework for incorporating transport information in estimating the distribution of a groundwater contaminant plume, *Water Resources Research*, vol. 43, pp. 1-12.
 Michalak, M. A. (2008) A Gibbs sampler for inequality-constrained geostatistical interpolation and inverse modeling, *Water Resources Research*, vol. 44, pp. 1-14.
 環境省 (2003) (2007) (2013) 国内における毒ガス弾等に関する総合調査検討会、茨城県神栖町における汚染メカニズム解明のための調査。(2003) 中間報告書、(2007) 地下水汚染シミュレーション等報告書、(2013) 高濃度汚染対策等報告書。