

移流ランダムウォークモデルによる土壌中の 溶質移動の解析

藤巻晴行*・取出伸夫**・山本太平*・井上光弘*

A Convective Random-Walk Model for Solute Transport in Soils

Haruyuki FUJIMAKI*, Nobuo TORIDE**, Tahei YAMAMOTO*, Mitsuhiro INOUE*

* Arid Land Research Center, Tottori University

** Faculty of Agriculture, Saga University

Abstract

The convection-dispersion equation (CDE) is widely used to predict solute transport in soils. The mechanical dispersion is described with the mathematically identical equation to the Fick's law for molecular diffusion. Physically unrealistic backward solute mixing may occur for the CDE when a high concentration gradient exists in a soil. We propose a convective random-walk model (CRWM) which only allow solute particles to move in the convective direction. Solute particles move randomly according to an asymmetric probability density function (pdf) having identical mean and variance to the normal Gaussian pdf for the CDE. The CRWM is firstly applied to a solute leaching for a Dirac delta initial distribution. The CRWM can avoid backward mixing as was observed for the CDE during the early stages of leaching. The solute distribution for the CRWM converges to the distribution for the CDE regardless of the shape of the pdf for sufficiently large travel distances because of the central limit theorem. A stochastic input method for the CRWM assuming an additional hypothetical soil outside of the boundary is employed to describe solute input at the boundary in order not to overestimate the concentration near the soil surface. We then apply the CRWM to predict a salt accumulation process on the surface in a soil column having a shallow salty water table. All the flow and transport parameter values are independently determined. Molecular diffusion and salt crystallization at the surface are included for the model prediction. A good agreement between measured and predicted solute profiles is observed for the CRWM, whereas the CDE overestimates downward solute movement due to backward mixing.

Key Words : Solute transport, Convection-dispersion equation, Mechanical dispersion, Random-walk method, Salt accumulation

1. はじめに

土壌中の溶質移動では、間隙流速が微視的なばらつきを持つため、平均移動速度に対して溶質が前後に広がる物理的分散 (mechanical dispersion) が生じる。土壌中の溶質移動の予測に通常用いられる移流分散方程式 (convection dispersion equation, CDE) では、物理的

分散に対してフィックの拡散法則のアナロジーを適用し、物理的分散フラックスが濃度勾配に比例すると考える。一次元の CDE は次式で表される (Jury *et al.*, 1991)。

$$\frac{\partial(\theta c)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z} \left(-\theta D \frac{\partial c}{\partial z} + q_1 c \right) \quad (1)$$

* 鳥取大学乾燥地研究センター 〒680-0001 鳥取県鳥取市浜坂 1390, ** 佐賀大学農学部 〒840-8502 佐賀市本庄町 2
 キーワード: 溶質移動, 移流分散方程式, 物理的分散, ランダムウォーク法, 塩類集積

ここで、 θ : 体積含水率 (cm^3/cm^3), c : 溶質濃度 (mg/cm^3), t : 時間 (min), z : 位置 (cm, 下向きに正), D : 分散係数 (cm^2/min), q_i : 液状水フラックス (cm/min) である。分散係数は、拡散係数 D_i (cm^2/min) と物理的分散係数 D_m (cm^2/min) の和で与えられる。

$$D = D_i + D_m \quad (2)$$

このCDEは、均一な土壌カラムの溶質移動を良く予測できるのに対し、水分流れが不均一な圃場スケールの溶質移動を適切に予測できないことが知られている (Fogg *et al.*, 1995; 取出, 1997)。圃場では濃度分布の変化から求める分散係数が、観測する時間や大きさのスケールにともない増加することが多い (Gelhar *et al.*, 1992)。これは分散係数のスケール依存とよばれている。

一方、CDEによる溶質移動では、分散フラックスが濃度勾配に比例して与えられるため、移流とは逆方向の溶質移動 (後方混合) が数学的に生じ得る問題が知られている。特に土壌内部に急な濃度勾配を持つ矩形初期濃度分布を与えた初期値問題において、無視できない後方混合が生じることを Toride *et al.* (1993a) は示している。物理的分散が拡散に比べて卓越するとき、流れの方向以外に溶質が移動するメカニズムは存在せず、これは物理的分散に拡散のアナロジーを適用したことによる矛盾である。

藤巻ら (1997) は、このCDEが引き起こす物理的分散による後方混合は、とりわけ蒸発中の土壌面付近における溶質移動予測の際、実測値に対する大きな誤差の原因となり、蒸発速度に影響を与える塩クラスト形成予測も不正確になることを示している。そしてCDEを用いた蒸発中の土壌面付近での予測には、抑制係数を乗じて分散長を小さくすれば実測値と合致することを示した。しかしその抑制係数を求めるためには、塩集積過程の濃度分布を実測しなければならない上、その物理的な意味は現在のところ明らかではない。この物理的分散による後方混合を防ぐためには、フィックの法則以外による物理的分散のモデル化が必要である。

CDEの数値解法の一つであるランダムウォーク法 (Random Walk Method, RWM) では、一定時間増分における移動距離が確率変数で与えられる多数の仮想粒子の移動を考える。そして、ある時間における単位体積あたりの溶質量分布を、それぞれの要素内に位置する粒子数の度数分布図として求める (キンツェルバッハ, 1990; Jury and Roth, 1990; LaBolle *et al.*, 1996)。このRWMは、ブラウン運動のメカニズムを説明する酔歩のモデルとしても知られている (米沢, 1986)。通常、RWMの確率密度関数 (以下、密度関数) には正規分布が用いられる。これは拡散現象がランダムな分子運動に

よって生じていることを反映している。同様に、密度関数が一定時間に土壌中を移動する溶質の分布を反映するものと考えると、物理的な矛盾の生じないRWMを物理的分散に適用することが可能である。しかし正規分布では、移流方向と符号の異なる移動、すなわち負の流速成分による後方混合が生じてしまう。そこで、物理的分散の表現には移流方向と同じ符号領域でのみ定義された密度関数を用いる必要がある。

そこで本研究では、まず負の流速成分を持たない密度関数を設定し、その平均と分散がそれぞれ平均間隙流速と物理的分散係数の条件を満たす関数形を検討した。そしてその密度関数を用いたランダムウォーク法を、物理的分散による後方混合を引き起こさない代替モデルとして提案し、その特性および適用条件について考察した。加えて、土壌面蒸発に伴う塩集積実験における実測値との比較検討を通じて、モデルの信頼性検討を試みた。

2. 移流ランダムウォークモデル (CRWM)

2.1 従来のランダムウォーク法

RWMは差分法、有限要素法、特性曲線法などと並んでCDEの数値解法の一つである。モンテカルロ法 (乱数を用いたシミュレーション) の一種であるため、必然的にその解は粒子数が無限の場合の収束値から若干ばらつく。また、計算時間は一般に差分法、有限要素法などに比べ大きくなるが、数値的分散、すなわち移流項の離散化に伴う分散の過大評価 (Bresler, 1973) が生じないという利点を持っている。

ここではランダムウォーク法を、キンツェルバッハ (1990), Jury and Roth (1990), LaBolle *et al.* (1996) らに基づき概説する。

RWMでは他の数値計算法と同様、位置および時間を離散化して扱う。時刻 t_j における各要素の単位体積あたりの溶質量は、要素番号を i 、離散時間番号を j とすると、次式で与えられる。

$$(\theta c)_j^i = \frac{N_j^i M}{\Delta z} \quad (3)$$

ここで、 N_j^i : 要素 i 内に位置する粒子の数, M : 1個の粒子の質量 (mg/cm^3), Δz : 要素の厚さ (cm) である。なお、本研究では Δz を一定とする。

粒子の Δt 秒間の移動距離を X_j^k (cm) とすると、ある時刻 t_j における粒子 k の位置 z_j^k (cm) は、図-1に示すように、前の時刻 t_{j-1} における位置 z_{j-1}^k と X_j^k の和である。

$$z_j^k = z_{j-1}^k + X_j^k \quad (4)$$

ここで、 k : 粒子番号である。以下、粒子の Δt 秒間の移動を「ステップ」とよぶことにする。

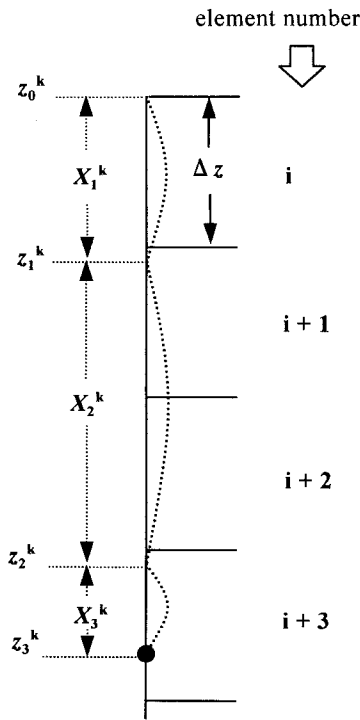


図-1 仮想粒子の一次元ランダムウォークの概念図
 Fig. 1 Schematic of one-dimensional random walk of a hypothetical particle.

粒子 k の時刻 t_j における 1 ステップの長さの平均値 m_j^k (cm) は、その位置 z_{j-1}^k を包含する要素 i の平均間隙流速 V_j^i と時間増分 $\Delta t (=t_j - t_{j-1})$ の積で与えられる。

$$m_j^k = V_j^i \Delta t \quad (5)$$

また、密度関数 $F(X_j^k)$ の分散 $\text{Var}(X_j^k)$ は粒子の広がり の程度を与え、分散係数との関係は次式で与えられる。

$$\text{Var}(X_j^k) = 2D_j^i \Delta t \quad (6)$$

また、密度関数の総和は 1 であり、密度関数の 1 次モーメントである平均 m と 2 次の中心モーメントである分散 Var の関係は次式で与えられる。

$$\int_0^\infty F(X) dX = 1 \quad (7)$$

$$\int_0^\infty XF(X) dX = m \quad (8)$$

$$\int_0^\infty (X-m)^2 F(X) dX = \text{Var}(X) \quad (9)$$

以下では特に必要がない限り添え字を省略する。

式(5)-(9)を満たす正規分布は、次式で与えられる。

$$F(X) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D \Delta t}} \exp\left\{-\frac{(X-m)^2}{4D \Delta t}\right\} \quad (10)$$

この正規分布を密度関数に用い、粒子数が無限大の場合、RWM は CDE と厳密に等価なものとなる (キンツェルバッハ, 1990)。一方、Jury and Roth (1990) は平均移動距離が十分大きいとき、すなわち時間が十分経過した場合は、次に示す一様分布を用いると、正規乱数を発生させるのに比べ計算時間を節約できるとしている。

$$F(X) = \begin{cases} 0 & X < m - \sqrt{6D \Delta t} \\ \frac{1}{\sqrt{24D \Delta t}} & m - \sqrt{6D \Delta t} \leq X \leq m + \sqrt{6D \Delta t} \\ 0 & m + \sqrt{6D \Delta t} < X \end{cases} \quad (11)$$

任意の密度関数に従う確率変数の和の分布は、中心極限定理により正規分布に収束する (伏見, 1987)。そのため、RWM においていかなる密度関数を用いても、粒子の移動距離分布は、 $t \rightarrow \infty$ において正規分布となる。

いま仮に、 $V=0.1$ cm/min, $D=0.05$ cm²/min, $\Delta t=10$ min とした場合の、正規分布および一様分布を図-2a に示す。1 ステップの長さ X が X_a から X_b の間の値をとる確率は、 $F(X)$ の X_a から X_b までの積分で与えられる。どちらの密度関数も負の成分を含んでおり、移流と反対方向に移動する粒子が存在する。この負の領域は後方混合の原因となる。ところで、密度関数を Δt の間の移動距離と定義すると、分布形は Δt に依存する。図-2b は図-2a と同じ V と D に対し $\Delta t=50$ min としたときの密度関数である。正規分布の負の部分がかかなり減り、一様分布では負の部分がか完全に無くなっている。式(11)から明らかのように、一様分布の場合 $\Delta t > 6DV^2$ であれば負の領域は生じない。したがって、負の部分が消滅するような大きな Δt を用いれば、後方混合は回避される。しかしその場合は、その Δt 以下のより小さな時間の解が得られない。また、大きな水分勾配が存在する土壌中では、 Δt が大きすぎると溶質移動パラメータの空間分布を適切に表現できない問題が生じる。

2.2 確率密度関数の改良

物理的分散現象は間隙流速のばらつきが原因で生じるが、移流と反対方向の負の流速成分は存在しない。そのため RWM において、流れ方向のみの成分を持つ密度関数を定義すれば、正規分布や一様分布を用い、かつ時間増分の小さな場合に見られる後方混合を回避することができる。このように、負の流速成分が存在しない移流移動の特徴に沿うように修正を加えた RWM を、移流ランダムウォークモデル (Convective RWM, 以下 CRWM と略) とよび、RWM と区別することにする。以

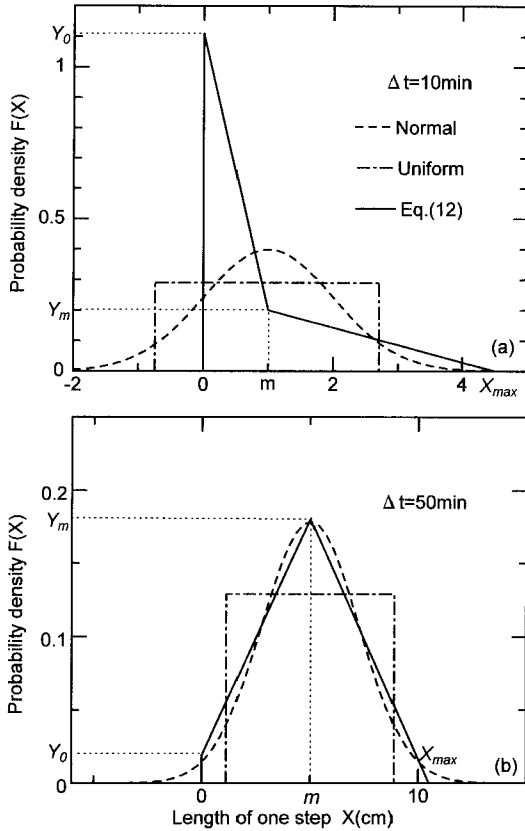


図-2 $V=0.1$ cm/min および $D_m=0.05$ cm²/min の場合の異なる時間増分 Δt に対する正規分布 (normal distribution), 一様分布 (uniform distribution) および式 (12) による分布

Fig. 2 Normal, uniform and presented pdfs for $V=0.1$ cm/min and $D_m=0.05$ cm²/min with (a) $\Delta t=10$ min and (b) $\Delta t=50$ min.

降の議論は、断らない限りは、物理的分散が拡散に対し卓越した状態 ($D \approx D_m$) を考える。なお拡散の効果が無視できない場合については、3章で触れる。

密度関数の関数形としては、式(7)-(9)を満たすのが条件である。そのため、負の流速成分を持たずに同じ分散をもつ密度関数は、非対称な分布となる。そこでまず、不均一な圃場の間隙流速分布によく用いられる対数正規分布 (Biggar *et al.*, 1976) の適用を試みた。しかし対数正規分布では、非常に速い流速をもつ粒子の移動の評価が難しく、数値解析が可能ではあるものの計算時間を非常に要することが判明した。

そこで本研究では、対数正規分布と同様な非対称性を持ち、しかも扱いの容易な関数形として、 X の正の領域における2直線で与える関数を密度関数として用いた。

$$F(X) = \begin{cases} 0 & X \leq 0 \\ \frac{Y_m - Y_0}{m} X + Y_0 & 0 < X \leq m \\ \frac{Y_m}{m - X_{max}} (X - X_{max}) & m < X \leq X_{max} \\ 0 & X > X_{max} \end{cases} \quad (12)$$

ここで X_{max} , Y_0 , Y_m は定数で、図-2 に示した位置関係を持つ。これらの定数は、前述した3つの密度関数の条件式を3元連立方程式とし、式(8)に式(5), 式(9)に式(6)を代入して解くと、 V , Δt および D_m の関数として与えられる。

$$X_{max} = 6 \frac{D_m}{V} + 1.5 V \Delta t \quad (13a)$$

$$Y_m = \frac{4 V \Delta t}{\{6(D_m/V) + 1.5 V \Delta t\}^2} \quad (13b)$$

$$Y_0 = \frac{12(D_m/V) - V \Delta t}{6 D_m \Delta t + 1.5 (V \Delta t)^2} \quad (13c)$$

図-2 には、正規分布、一様分布と同じ平均と分散を持つ式(12)によるL字状の分布も示した。また、図-3に3つの物理的分散係数 D_m の値に対する式(12)による密度関数の形状を示した。 Δt が大きくなると (図-2b), あるいは D_m が小さくなると (図-3), L字状から二等辺三角形状に変化し、対称形の正規分布に近づくことがわかる。

なお非定常流の下では V および D_m が時間とともに変化する。そのため、式(13)は各離散時間において各要素に

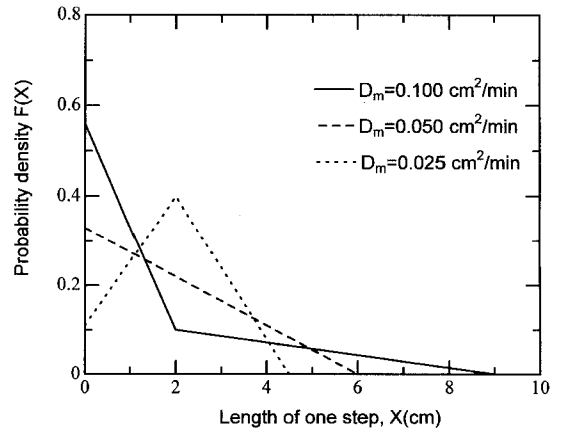


図-3 $V=0.1$ cm/min および $\Delta t=20$ min の場合の様々な物理的分散係数に対する式 (12) による密度関数の形状

Fig. 3 Pdfs expressed by eq. (12) for $V=0.1$ cm/min and $\Delta t=20$ min with different D_m values.

ついて V および D_m を定めた後に求める。また平均間隙流速が負の場合は、絶対値に対して密度関数を用いる。

各離散時間における各粒子の移動距離 X は、 $0 \leq RN \leq 1$ で定義された一様乱数 RN が、超過確率すなわち X 以上の値が発生する確率に等しいとして、以下のように逐次求める。

$$RN = \int_X^\infty F(X) dX = \begin{cases} -\frac{Y_m}{2(m-X_{max})} (X-X_{max})^2 & \dots X > m \\ \frac{1}{2} \left(\frac{Y_m - Y_0}{m} X + 2Y_0 \right) X - 1 & \dots 0 \leq X \leq m \end{cases} \quad (14)$$

したがって、

$$X = \begin{cases} \frac{m(-Y_0 + \sqrt{Y_0^2 - \frac{2(Y_m - Y_0)}{m}(RN - 1)})}{Y_m - Y_0} & \dots 0 \leq RN < \frac{Y_m}{2}(X_{max} - m) \\ X_{max} - \sqrt{\frac{2RN(X_{max} - m)}{Y_m}} & \dots \frac{Y_m}{2}(X_{max} - m) \leq RN \leq 1 \end{cases} \quad (15)$$

となる。

2.3 初期値問題への適用

前節で提示した式 (12) による密度関数を用いた CRWM の特性を調べるため、まず急な初期濃度勾配の存在するときのリーチングを考える。いま、深さ $z = z_0$ に単位面積あたり Ω (mg/cm²) の初期塩分が土壌水中に存在するときの初期条件は、

$$c_0 = \frac{\Omega}{\theta} \delta(z - z_0) \quad (16)$$

である。ここで、 δ ：ディラックのデルタ関数で、次式で定義される。

$$\delta(z - z_0) = 0 \quad z \neq z_0 \quad (17a)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta(z - z_0) dz = 1 \quad (17b)$$

CRWM のパラメータでこの初期条件を表すと、次のようになる。

$$z_0^k = z_0 \quad 1 \leq k \leq \frac{\Omega}{M} \quad (18)$$

したがって、

$$N_0^i = \frac{(\theta_0^i c_0^i) \Delta z}{M} = \begin{cases} \frac{M}{\Omega} & i = \left[\frac{z_0}{\Delta z} + 1 \right] \\ 0 & i \neq \left[\frac{z_0}{\Delta z} + 1 \right] \end{cases} \quad (19)$$

ここで、 $[]$ はガウス記号である。

また、半無限大の土壌に純水を与えるときの境界条件は、流入フラックスゼロおよび無限の深さにおける濃度勾配の消滅で与えられる。

$$q_{ss} = [-\theta D \frac{\partial c}{\partial z} + qc]_{z=0^+} = 0 \quad (20)$$

$$\frac{\partial c(\infty, t)}{\partial z} = 0 \quad (21)$$

ここで、 q_{ss} ：土壌面における溶質フラックス (mg/(cm² min)) である。

この初期値問題に対する CDE の解析解は次式で与えられる (Toride, et al., 1993 b)。

$$c(z, t) = \frac{\Omega}{2\theta} \left\{ \sqrt{\frac{1}{\pi Dt}} \exp\left[-\frac{(z - z_0 - Vt)^2}{4Dt}\right] + \sqrt{\frac{1}{\pi Dt}} \exp\left(\frac{Vz}{D}\right) \exp\left[-\frac{(z + z_0 + Vt)^2}{4Dt}\right] - \frac{V}{D} \exp\left(\frac{Vz}{D}\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{(z_0 + Vt)}{\sqrt{4Dt}}\right] \right\} \quad (22)$$

図-4 は $z_0 = 10.0$ cm, $V = 0.1$ cm/min, $\Omega = 1.0$ mg/cm², $\theta = 0.2$ とした場合の CDE の解析解、および $\Delta t = 10$ min で 10^4 個の粒子を用いた CRWM の計算結果である。 D_m は 0.2 cm²/min と 0.05 cm²/min の 2 つの値を与えた。なおこの条件の場合、表面境界の影響が小さいため、式 (22) 右辺第 2, 第 3 項は無視でき、濃度分布は分散が $2Dt$ の正規分布とほぼ等しい。なお、図-4 では解を一般化するため諸変数を以下のように無次元化して表記した。

$$P = \frac{Vl}{D}, T = \frac{Vt}{l}, Z = \frac{z}{l}, C = \frac{\theta l}{\Omega} c \quad (23a, b, c, d)$$

ここで、 P ：ペクレ数、 T ：無次元時間、 Z ：無次元の深さ、 l ：任意の長さ (cm)、 C ：相対濃度である。ここでは、 $l = 10$ cm とし、 $Z = 1.0$ に初期塩分があるものとした。

CDE では $T = 0.2$ において $Z = 1$ より上流への溶質の逆流、すなわち後方混合が生じている。上流へ逆流している溶質の割合は、 P の小さい図-4a の方が、分散項が卓越するため多い。

一方、CRWM の場合、 $T = 0.2$ のとき $P = 5$ では L 字状、 $P = 20$ では直角三角形に近い非対称分布となっており、後方混合が生じていない。

$T = 1$ になると $P = 20$ の CRWM は、CDE とほぼ一致している。 $P = 5$ の CRWM も $T = 0.2$ の時点よりは CDE に近づいている。ここで、濃度分布を溶質量で正規化した移動距離分布 $f(z, t)$ (travel distance probability

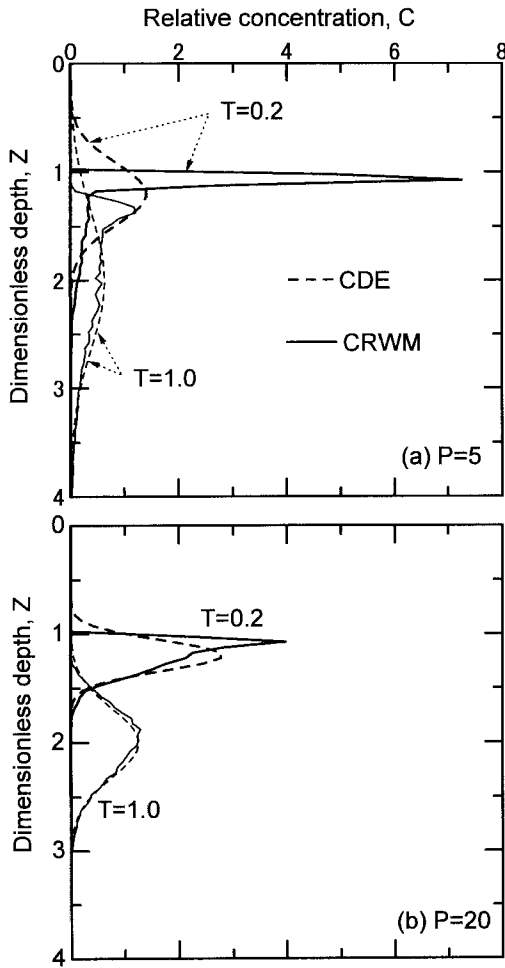


図-4 Dirac delta 初期分布をもつ土壤に純水を供給した場合の異なる時間における2つのペクレ数に対するCDEとCRWMによる濃度分布. 用いた粒子数は 10^4 個.

Fig. 4 Concentration profiles calculated with the CDE and the CRWM at different time for two values of the Peclet number assuming solute-free input to a soil having a Dirac delta initial distribution at $Z=1.0$. (10^4 particles for the CRWM).

density function) を次式で定義する (Jury and Roth, 1990)。

$$f(z, t) = \frac{\theta c(z, t)}{\Omega} \quad (24)$$

そしてCRWMによる濃度分布が、時間の経過とともに平均間隙流速と分散係数の等しいCDEの濃度分布に近づいていく過程を、 $f(z, t)$ のひずみ度 (skewness, ζ)

を用いて評価した。

$$\zeta = \frac{\int_0^\infty (z-Vt)^3 f(z, t) dz}{\left[\int_0^\infty (z-Vt)^2 f(z, t) dz \right]^{3/2}} \quad (25)$$

ひずみ度と経過時間の関係を図-5に示す。ひずみ度は経過時間とともに急減し、0に漸近する。なおCDEの場合は、経過時間にかかわらず分布はほぼ対称形で、ひずみ度はほぼゼロであった。これはCDEでは、表面境界の影響が無視できる時、移動距離分布がほぼ正規分布であることによる。そしてCRWMのひずみ度が減少してCDEに漸近するのは、前述の中心極限定理により、いかなる密度関数を用いても移動距離分布が時間の経過に伴って正規分布と漸近する性質をRWMは持っているためである。また、 P が小さい方が正規分布への収束、すなわちCDEへの漸近に時間がかかることがわかる。

2.4 表面境界での粒子の投入法

CRWMの適用にあたっては、塩溶液が供給される境界における粒子の投入法を検討する必要がある。塩溶液の供給境界においては、時間増分内に供給される溶質質量に相当する数の粒子を投入することにより、質量収支は充足される。しかし時間が離散化されているため、粒子を一度に表面に与えてしまうと、表面濃度が大きく過大評価されてしまう。そのため、物理的な矛盾が生じない粒子の投入法を定める必要がある。

まず最も単純な投入法として考えられるのは、 Δt の間はピストン流として浸潤したものとして、粒子を $z=0 \sim V\Delta t$ の間に均等に投入する方法 (矩形投入法, rectangular input) である。いま、初期濃度ゼロの定常浸潤カラムで $t=0$ に塩溶液に切り替え、一定濃度の溶

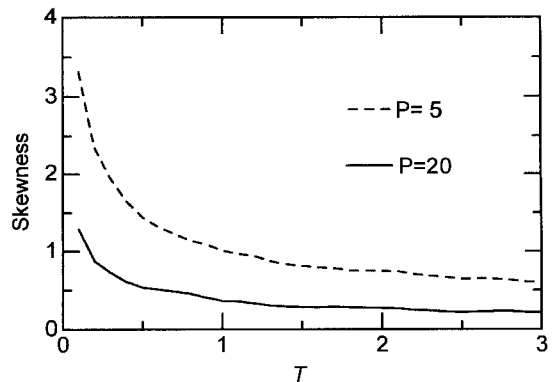


図-5 $P=5$ および $P=20$ におけるCRWMによる移動距離分布のひずみ度と無次元時間の関係

Fig. 5 Skewness of the travel distance pdf by the CRWM with $P=5$ and $P=20$.

液を供給し続ける場合を考える。この場合、初期条件は次式で表される。

$$c(z, 0) = 0 \tag{26}$$

また、表面境界条件は

$$q_{ss} = q_l c_{iw} \tag{27}$$

となる。ここで、 c_{iw} ：供給水の溶質濃度 (mg/cm^3) である。式(27)をCRWMのパラメータで表すと、時刻 t_j において投入される粒子の数 ($\Delta \Sigma N_j^i$) は次式で与えられる。

$$\Delta \sum_{i=1}^n N_j^i = \frac{q_l c_{iw} \Delta t}{M} \tag{28}$$

ここで、 n ：要素数、 ΣN_j^i ：計算領域内の粒子の総数である。下部境界条件は式(27)で表される。

図-6は $P=20$ の場合のCRWMによる $T=1.0$ における濃度分布である。CRWMでは前述した矩形投入法の場合、一点鎖線や点線のように、土壌面付近において溶質濃度が供給溶質濃度を大きく上回っている。この過大評価は、時間増分を $1/10$ にしてもほとんど改善されず、 ΔT の大きさに依存しなかった。

そこで、別の投入方法として、上端の要素と同じ水分量及び液状水フラックスをもち、溶質濃度が供給塩溶液と等しい土壌が、境界の上方に連続していると仮想し、そこに位置していた粒子が移動してくるものと考えてみた。ただし、計算効率を良くするため、具体的には以下のアルゴリズムで粒子を投入した。

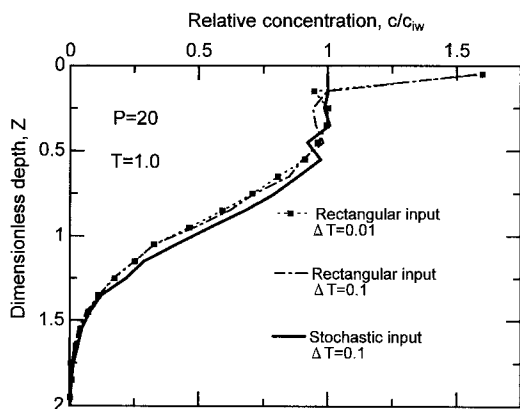


図-6 初期濃度ゼロの土壌へ一定溶質フラックスを供給した場合の矩形 (rectangular) および確率的 (stochastic) 投入法によるCRWMの濃度分布の数値解。用いた粒子数は 10^4 個。

Fig. 6 Concentration profiles predicted with the CRWM (10^4 particles) with rectangular and stochastic input for continuous solute application to an initially solute-free soil.

まず、 Δt 間に進入する可能性のある領域は $-X_{max} < z < 0$ である。この領域内のランダムな位置に粒子を発生させる。ここでランダムに粒子を発生させるのは、実際に土壌面の上に要素を継ぎ足して解析するのとは比べ、計算時間が節約できるためである。次にその粒子の1ステップの距離 X を上端要素の V と D_m から決定する。その結果 $z_{j-1} + X_j > 0$ であればその粒子はその位置に投入され、そうでなければ破棄される。以上の試行を時間増分毎に、投入数が時間増分内に供給される溶質質量に相当する数になるまで行う。

この処理をここでは確率的投入法 (stochastic input) とよぶことにする。確率的投入法を用いた場合は図-6の実線のように、表面濃度過剰の問題はなくなり、物理的な矛盾は生じなくなった。

間隙流速が局所的に不均一な場での表面境界条件に関しては、Stream tube model (STM) とよばれる確率モデルに対して議論が行われている (Dagan and Bresler, 1979; Jury and Scotter, 1994; Toride *et al.*, 1996)。流入溶質フラックスが間隙流速に比例するとき、間隙流速に応じて流入溶質フラックスも不均一に分布することになる。粒子の移動距離が確率分布で与えられるRWMにおいても、表層の間隙流速に応じた溶質の流入が物理的には妥当と考えられる。しかし本研究で対象としているRWMの場合、移動距離 X は時間増分内の時間平均移動距離 (Δt で除せば時間平均移動速度) であり、間隙流速とは異なる量である。そのため、STMのように間隙流速に比例して溶質フラックスを与えることはできない。そこで以下の計算では、物理的な矛盾の生じない上述の確率投入法を採用することとした。

2.5 時間増分の検討

CRWMは、各粒子の移動距離 X が時間増分 Δt ごとに密度関数により独立に与えられる。これはある時刻 t_j と Δt 秒後の時刻 t_{j+1} における粒子の時間平均移動速度が無相関、すなわち確率過程である、という仮定である。この仮定は、 Δt が非常に小さい場合、現実の溶質の挙動としては正しくない。土壌中の微視的な間隙流速は、徐々にかつ連続的に変化している。すなわち、流速の速い粒子は、比較的速い移動をある程度継続し、逆に流速の小さな粒子は、比較的遅い移動をしばらく継続する。しかし、 Δt がある程度大きければ、過去の履歴によらずに、どの溶質粒子も等しい確率で様々な間隙流速を経験するとみなすことができる。

しかしCRWMは間隙流速の空間的および時間的な相関を無視した確率モデルである。そのため、 Δt の大きさに関する物理的根拠を、モデルの計算結果から論じることとはできない。そこで、CRWMの適用に際する実用的

な問題として、 Δt の計算結果に及ぼす影響と、大きさの計算上の制約について検討する。

式(10~12)の初期値問題のCRWMについて、20倍異なる Δt での数値解の比較を図-7に示す。 $\Delta t=1\text{ min}$ ($\Delta T=0.01$)の濃度分布すなわち移動距離分布は、 $\Delta t=20\text{ min}$ ($\Delta T=0.2$)に比べひずみが若干大きくなっているが、時間増分は、濃度分布に大きな影響は及ぼしていないことがわかる。

Δt の増加は、当然のことながら計算時間を減少させる効果がある。しかし Δt が大きくなると、分散係数がそれほど小さくなくとも、式(13a)や図-2bからわかるように X が5cmを越えるような粒子が生じ始める。現実の溶質は、通過する位置の平均間隙流速や分散係数に支配されながら移動するが、CRWMにおける仮想粒子はステップのスタート地点の状態のみに支配される。そのため、1ステップで飛び越える区間の溶質移動パラメータは計算結果に影響を与えない。それゆえ、溶質移動パラメータが空間的に均一でない水分勾配のある土壌や成層土では誤差の原因となる。また、非定常水分移動では、 Δt が水分変化の速度に比べて大きすぎる問題も生じる。したがって、1ステップ(X)が大きすぎることによる誤差を小さくするように、 Δt の上限を決める必

要がある。

3. 土壌面蒸発に伴う塩類集積過程への適用

CDEが引き起こす物理的分散による後方混合は、とりわけ蒸発中の土壌面付近における溶質移動予測の際、実測値に対する大きな誤差の原因となる(藤巻ら, 1997)。ここでは、CRWMが蒸発中の土壌面付近における溶質移動を、より適切に予測できるかどうかを実験値との比較により検討する。

3.1 実験方法

鳥取砂丘砂を高さ29cmのカラムに、できるだけ均一に充填した。初期土壌水および地下水には 2.0 mg/cm^3 のNaCl水溶液を用いた。飽和排水後24時間経過した後カラム上面を開放し、蒸発を開始させた。地下水位は深さ28cmに設定し、実験中ほぼ一定に保った。気象条件は、恒温室において気温 24.5°C 、湿度34%、風速が高さ2cmにおいて 0.8 m/s 、短波放射エネルギーフラックスが 183 W/m^2 に設定し、実験中ほぼ一定とした。カラムは4本用意し、回転台の上に乗せて、気象条件の均一化を図った。採土は48および240時間後に二本ずつ行った。結晶の析出開始時間は反射照度測定により判定した。その他実験方法の詳細は藤巻ら(1997)を参照されたい。

蒸発速度は 15.2 mm/d から 9.2 mm/d に漸減した。水分分布は48時間後、240時間後ともにほぼ等しく、静的平衡分布($q_t=0$ の場合)とほぼ同じ分布であった。土壌面付近の体積含水率は0.12前後であった。

3.2 土壌面停止処理と拡散の組み込み

前章では平均間隙流速が比較的大きく、拡散が無視できる場合について、移流ランダムウォークモデルの特性を調べた。現実の土壌では移流移動のみならず拡散による移動も同時に進行する。特に蒸発中の土壌面付近では大きな濃度勾配が形成されるため、表層に集積した溶質は、拡散による下方への移動が無視できない。この蒸発過程の溶質移動を正確に予測するためには、物理的分散に加えて拡散を適切に評価する必要がある。

ここまでのCRWMは、負の流速成分のないL字状の密度関数を用いたため、移流方向と反対に移動することが可能な拡散現象を表現できない。そのため、物理的分散と拡散は異なる密度関数を用いる必要がある。拡散移動と移流移動がそれぞれ独立に進行すると考えれば、同じ離散時間に二つの独立な確率変数の和として表現することができる。すなわち、移流によるステップ X の他に、拡散によるステップ W を加える。そして、確率変数 W の密度関数 $F(W)$ は正規分布とする。 $F(W)$ の分散は、拡散移動の時間増分を $\Delta t'$ (min)として、次式で与

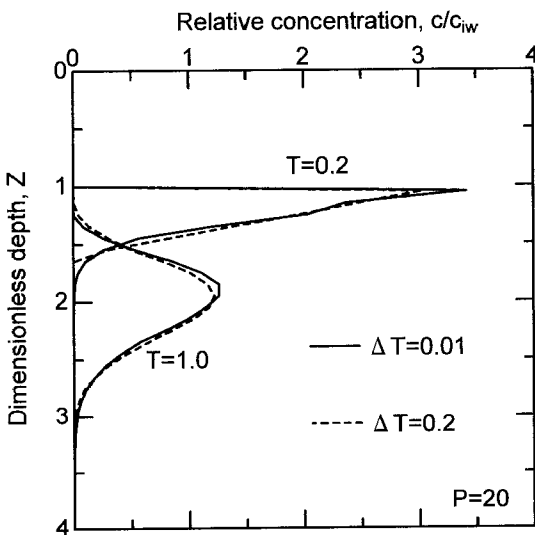


図-7 Dirac delta 初期分布をもつ土壌のリーチングにおける濃度分布に対する時間増分 ΔT の影響 (粒子数は 50,000)

Fig. 7 Effect of the time increment, ΔT , on concentration profiles for the CRWM (50,000 particles) as a result of leaching to a soil having a Dirac delta initial distribution.

えられる。

$$\text{Var}(W) = 2D_i \Delta t' \quad (29)$$

2.5節では移流のステップ X の時間増分 Δt について検討したが、拡散移動の時間増分 $\Delta t'$ は、拡散係数が物理的分散係数に比べてオーダーが小さいため、異なる大きさに設定する必要がある。また、拡散のステップの時間増分 $\Delta t'$ は、次のように地表面のゼロフラックス境界条件を正しく表現できる点にも留意して決定した。

現実の溶質移動では、土壌面に到達した溶質はすぐ下方への拡散移動を開始する。RWMにおけるゼロフラックス境界（土壌面）では、境界をはみ出した粒子を表面近傍に戻すことでそのプロセスを表現する。

$$\begin{aligned} z_j^k &= 0.01 & z_j^k < 0 \\ z_j^k &= z_j^k & z_j^k \geq 0 \end{aligned} \quad (30)$$

このとき Δt が大きいと、はみ出した大量の粒子が Δt ごとに境界近傍に戻されるため、境界近傍に粒子が集積し濃度が過大評価され、境界から離れた場所の濃度は逆に過小評価される問題が生じる。そのため、 Δt を小さくする必要はある。

そして、拡散ランダムウォークをしている間の各粒子の移流移動速度は、次の移流移動に関する時間区切りまで一定であると仮定し、次式を粒子移動式とした。

$$z_y^k = z_{y-1}^k + X_y^k \frac{\Delta t'}{\Delta t} + W_y^k \quad (31)$$

ここで、 $\Delta t'$ ：拡散移動に関する時間増分 (min)、 y ：拡散移動に関する離散時間番号 ($j = [y\Delta t'/\Delta t]$ 、ただし Δt は $\Delta t'$ の整数倍) であり、拡散移動の $\Delta t'/\Delta t$ ステップごとに移流移動のステップを計算した。

3.3 数値計算条件

(1) 土壌水分移動

水分移動は浸透ポテンシャルを考慮した水蒸気移動を含む Richards 式を $\Delta z = 0.1$ cm, $\Delta t = 0.5$ min で一定の陰解型差分法で数値解析した。蒸発速度には実測値を代入した。水分移動特性、数値計算法および計算条件等の詳細は藤巻ら (1997) を参照されたい。

(2) 溶質移動

液状水フラックスおよび体積含水率は、一つ前の時間増分において土壌水分移動解析で得られた値を用いた。

拡散係数は非定常法 (Kemper, 1986; 中野ら 1996) により測定し、次式で体積含水率への依存性を近似した。

$$D_i = D_{i0} \left\{ 0.16 + 0.1 \left(\frac{\theta}{\theta_{\text{sat}}} \right) - 0.16 \exp \left[- \left\{ 16.4 \left(\frac{\theta}{\theta_{\text{sat}}} \right) \right\}^{4.6} \right] \right\} \quad (32)$$

ここで、 D_{i0} ：水中の拡散係数 (cm^2/min) (NaCl の 25°C では $9.12 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{min}$)、 θ_{sat} ：飽和体積含水率 (鳥取

砂丘砂では $0.4 \text{ cm}^3/\text{cm}^3$) である。式 (6) で用いる物理的分散係数は定常浸潤法 (van Genuchten and Wierenga, 1986; 中野ら 1995) により測定し、次式で平均間隙流速への依存性を近似した。

$$D_m = 0.59 |V| \quad (33)$$

初期条件は地下水濃度と等しい均一濃度であり、要素 i に初めに存在する粒子数 N_0^i は、次式で表される。

$$N_0^i = \frac{(\theta_0^i c_0^i) \Delta z}{M} \quad (34)$$

上部境界条件はゼロフラックス境界で、式 (30) を与えた。また下部境界条件は供給水の NaCl 濃度を地下水濃度 c_{gw} とみなして溶質フラックスで与えた。

$$\Delta \sum_{i=1}^n N_j^i = \frac{q_i^n c_{gw} \Delta t}{M} \quad (35)$$

ここで、 q_i^n ：下端要素の液状水フラックスである。投入に際しては前述した確率的投入法を用いた。ただし、前述の説明とは流れ方向が異なるため、下部境界の下方に仮想の土壌を設定した。

飽和溶液濃度に達すると析出を開始し、濃度はそれ以上上昇しないものとした。そのため表面付近では上端要素の濃度が飽和溶液濃度 c_{max} (mg/cm^3) 以上になったとき、上端要素の濃度が飽和溶液濃度 c_{max} になるように粒子を取り除くことで結晶析出を表現した。

$$N_j^i = \begin{cases} \frac{(\theta_j^i c_{\text{max}}) \Delta z}{M} & N_j^{i*} > \frac{(\theta_j^i c_{\text{max}}) \Delta z}{M} \\ N_j^{i*} & N_j^{i*} < \frac{(\theta_j^i c_{\text{max}}) \Delta z}{M} \end{cases} \quad (36)$$

ここで、 N^{i*} ：補正前の最上端要素に存在する粒子数、 N^i ：補正後の最上端要素に存在する粒子数である。取り除かれた粒子は塩クラストの質量としてストックされる。

$$N_j^0 = (N_j^{i*} - N_j^i) + N_{j-1}^0 \quad (37)$$

$$\Lambda_j = N_j^0 M \quad (38)$$

ここで、 Λ ：塩クラストの質量 (mg/cm^2)、 N^0 ：析出したものとして取り除かれた粒子の総数である。

M は $0.002 \text{ mg}/\text{cm}^2$ 、 $\Delta z = 0.1$ cm とした。移流移動に関する時間増分 Δt は、1 ステップ (X) が大きすぎることによる誤差が小さくなるように、60 min とした。この Δt であれば、 θ の下限値が約 $0.13 \text{ cm}^3/\text{cm}^3$ 、 q_1 の上限値が $-1.53 \text{ cm}/\text{d}$ のため、 m の絶対値の最大は約 0.5 cm であり、大半の粒子の移動距離が 1 cm 以内となる。水分勾配は最大で 0.015 cm^{-1} 程度であったため、その Δt であれば、その間の水分や間隙流速がおおよそ同一とみなせる。

一方、拡散移動に関する時間増分は、これ以上小さくしても結果が変化しない 1.0 min とした。

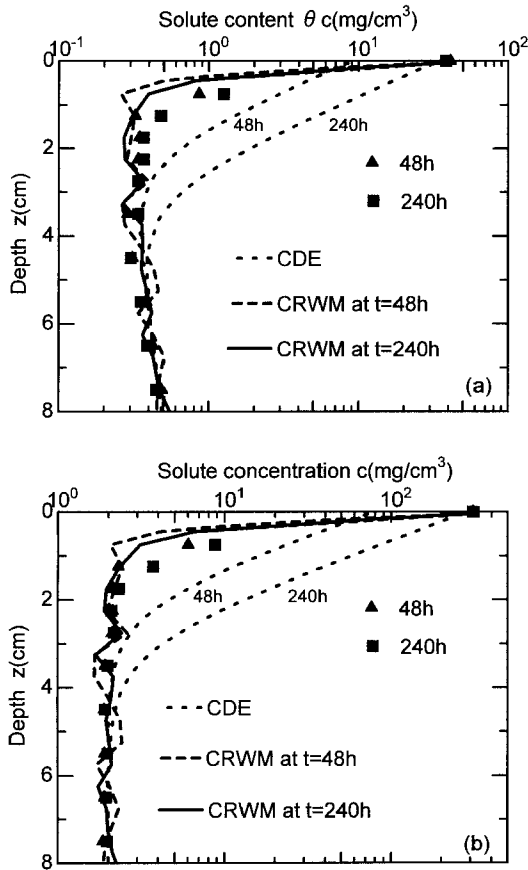


図-8 溶質濃度分布の実測値とCDEおよびCRWMによる数値解の比較。粒子数は21,444個

Fig. 8 Comparison of measured and predicted solute concentrations. 21,444 particles were used for the CRWM.

3. 4 結果と考察

図-8aは単位体積あたりの溶質量(θc)、図-8bは溶質濃度(c)の分布に関するCDEとCRWMの計算値と実測値を示す。表層近辺に著しく塩集積が進行するため、溶質量と濃度には対数軸を用いた。蒸発の結果取り残された溶質は下方にほとんど移動せず、表層0.5cmに集中していた。なお、対数軸の場合、小さな値の相対的なばらつきが強調される。特に有限個の粒子の動きを評価するCRWMでは、下層部分の計算結果にこの効果が強く表れる。しかしここで注目しているのは主に変化の大きい表層付近であるので、CRWMの結果は、深さ0.5cmまでは要素ごとの値を、それより深い部分は0.5cmごとに5つの要素の値を平均してプロットした。 $t=48\text{h}$ 、 $t=240\text{h}$ ともに深さ0.5~1.5cmの溶質濃度が実測値

と若干外れており、下方への拡散移動がやや過小評価されているものの、CDEに比べ改善されている。また、計算による析出開始時間は35時間後であり、反射照度測定により判定した24~36時間後に合致した。塩クラストの質量 Λ は、CRWMが $t=48\text{h}$ において 0.98 mg/cm^2 、 $t=240\text{h}$ において 16.75 mg/cm^2 であったのに対し、CDEでは $t=240\text{h}$ においても0であった。

なお、CRWMが拡散を過小評価した要因の一つは、拡散自体の評価の問題ではなく、実験における過飽和状態の発生にあると思われる。一般に、飽和溶液濃度は析出が始まる濃度の下限であり、析出を引き起こす刺激がない場合、しばしば飽和溶液濃度より上昇する。観察したところ、塩クラストは均一な厚さおよび形状では発生せず、約 $1\sim 5\text{ cm}^2$ のまだら状に発生していた。肉眼観察上の形態も①シート状、②数 mm^2 ごとに高さ $2\sim 3\text{ mm}$ の柱状に成長する霜柱状のものも併存していた。また、240時間後でも析出していない面積が2~3割あり、その部分と霜柱状領域の内部の非析出部分では濃度が飽和溶液濃度以上に上昇していたと考えられる。しかしながら、塩クラストの不均一な発生メカニズム、および過飽和状態の解消メカニズムは不明な点が多く、平均析出開始濃度の推定は今後の課題としたい。

4. ま と め

本研究では、物理的分散をフィックの法則を用いずに解析することによって、移流分散方程式(CDE)が引き起こす、物理的分散による後方混合を生じないモデルの提案を試みた。

まず、移流と符号の等しい領域で定義された確率密度関数を用いたランダムウォーク法を、移流ランダムウォークモデル(CRWM)として提案した。用いた確率密度関数は、対応するCDEと等しい平均間隙流速と分散を与える非対称なL字状の形状を持つ。このCRWMを急な濃度勾配が存在する初期分布に対するリーチングに適用した。そしてCDEではリーチング初期に無視できない上方への後方混合が生じてしまうのに対し、CRWMでは後方混合を生じないこと、また十分大きな平均溶質移動距離においてCRWMの濃度分布はCDEの分布に収束することを示した。

次に、実際の溶質移動現象に適用するにあたって必要な、表面境界における粒子の投入法、時間増分の大きさ、拡散現象を組み込む方法などについて検討した。

それらの検討を踏まえて、移流ランダムウォークモデルを、浅い地下水面を持つ土壌カラムからの土壌面蒸発に伴う溶質移動に適用した。その際、モデル予測に必要な水分溶質移動特性には、蒸発実験とは別個に測定され

付録	主 な 記 号	
c	溶質濃度	mg/cm ³
c _{max}	飽和溶液濃度	mg/cm ³
D	分散係数	cm ² /min
D _m	物理的分散係数	cm ² /min
D _i	拡散係数	cm ² /min
D _{iw}	水中の拡散係数	cm ² /min
M	1 個の粒子の質量	mg/cm ²
m _j ^k	粒子の 1 ステップの平均移動距離	cm
N _j ⁰	析出したものとして取り除かれた粒子の総数	
N _j ⁱ	要素 i 内に位置する粒子の数	
P	ペクレ数	
q _t	液状水フラックス	cm/min
q _s	溶質フラックス	mg/(cm ² min)
RN	一様乱数	
t	時間	min
T	無次元の時間	
V	平均間隙流速	cm/min
W _j ^k	粒子 k の時刻 t _{j-1} から t _{j-1} +Δt の間の拡散による移動距離	cm
X _j ^k	粒子 k の時刻 t _{j-1} から t _{j-1} +Δt の間の移流による移動距離	cm
x	水平座標	cm
Z	無次元の深さ	
z	深さ	cm
z _j ^k	粒子 k の時刻 j における位置	cm
θ	体積含水率	cm ³ /cm ³
Λ	塩クラストの質量	mg/cm ²
Ω	深さ z ₁ に存在する初期塩分量	mg/cm ²

添 え 字

gw	地下水
i	要素番号
iw	供給水
j	離散時間番号
k	粒子番号
y	拡散移動に関する離散時間番号

略 字

CDE	Convection-Dispersion Equation
CRWM	Convective Random Walk Model
RWM	Random Walk Method
STM	Stream Tube Model

た値を用いた。CRWM では、CDE で生じた後方混合による下方への溶質移動の過大評価が解消され、実験値と計算値は良く一致することが確認された。また、結晶析出開始時間も観察結果とほぼ一致した。特に表層付近の

濃厚な濃度分布の適切な予測が可能となったことは、水分蒸発量に大きな影響を与える塩クラスト形成予測に対して、大きな成果と考える。

今後は、確率密度関数や時間増分に関してさらに物理的な検討を加えることや、大きな時間増分に起因する溶質移動パラメータの空間分布の評価誤差を抑えるための改良が望まれる。

参 考 文 献

- Biggar, J.W., and D.R. Nielsen (1976) : Spatial variability of the leaching characteristics of a field soil. *Water Resour. Res.*, **12** : 78~84.
- Bresler, E. (1973) : Simultaneous transport of solutes and water under transient unsaturated flow conditions, *Water Resour. Res.*, **9** : 975~986.
- Dagan, G., and E. Bresler (1979) : Solute dispersion in unsaturated heterogeneous soil at field scale : I. Theory. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **43** : 461~467.
- Fogg, G.E, D.R. Nielsen and D. Shiberu (1995) : Modeling contaminant transport in vadose zone, *In* L. G. Wilson *et al.* (ed.) *Handbook of Vadose Zone and Characterization & Monitoring*, Lewis publishers : 249~266.
- 藤巻晴行・取出伸夫・山本太平・井上光弘 (1997) : 浅い地下水面を持つ砂丘砂カラムからの土壌面蒸発に伴う溶質移動, *農土論集*, **190** : 77~86.
- 伏見正則 (1987) : 確率と確率過程, 講談社 : 77~82.
- Gelhar, L.W., C. Welty and K.R. Rehfeldt (1992) : A critical review of data on field scale dispersion in aquifers. *Water Resour. Res.*, **28** : 1955~1974.
- Jury, W.A. and K. Roth (1990) : Transfer functions and solute movement through soil, *Birkhauser*, Basel : 140~142.
- Jury, W.A. and D.R. Scotter (1994) : A unified approach to stochastic-convective transport problems. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **58** : 1327~1336.
- Jury, W.A., W.R. Gardner and W.H. Gardner (1991) : *Soil Physics. 5th ed.*, John Wiley & Sons, New York : 222.
- キンツェルバッハ, W. [上田年比古 監訳] (1990) : パソコンによる地下水解析, 森北出版 : 1252~1267.
- Kemper, W.D. (1986) : Solute diffusivity, *In* A. Klute (ed.) *Methods of Soil Analysis. Part 1. Physical and Mineralogical Methods. 2nd ed.* Agronomy **9**, 1007~1024.
- LaBolle, E.M., G.E. Fogg, A.F.B. Tompson (1996) :

- Random-walk simulation of transport in heterogeneous porous media: Local mass-conservation problem and implementation methods. *Water Resour. Res.*, **32**: 583~593.
- 中野政詩・宮崎 毅・塩沢 昌・西村 拓 (1995): 土壌物理環境測定法, 東京大学出版会, 159~176.
- Toride, N, F.J. Leij and M. Th. van Genuchten (1993 a): Flux-averaged concentrations for transport in soils having non-uniform initial solute distributions, *Soil Sci. Soc. Am. J.* **57**: 1406~1409.
- Toride, N., F.J. Leij and M. Th. van Genuchten (1993 b): A comprehensive set of analytical solutions for non-equilibrium solute transport with first-order decay and zeroorder production, *Water Resour. Res.*, **29**: 2167~2182.
- Toride, N., F.J. Leij (1996): Convective-dispersive stream tube model for field-scale solute transport: I. Moment analysis, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **60**: 342~352.
- 取出伸夫 (1997): 不均一な土中水の流れを伴う圃場中の溶質移動, 水文・水資源学会誌, **10**: 485~497.
- van Genuchten, M. Th. and P.J. Wierenga (1986): Solute dispersion coefficients and retardation factors, In A. Klute (ed.) *Methods of soil analysis*. Part 1. Physical and mineralogical methods. 2nd ed. Agronomy **9**, 1025~1054.
- 米沢富美子 (1986): ブラウン運動, 共立出版: 108~121.

受稿年月日: 1998年9月17日
受理年月日: 1999年2月26日