

불균질 등방 대수층 내 선형오염원으로부터 기원된 비에르고딕 용질 이동에
 관한 몬테카를로 시뮬레이션

서 병 민*

충남대학교 기초과학 연구소

Monte-Carlo Simulations of Non-ergodic Solute Transport from Line Sources in
 Isotropic Mildly Heterogeneous Aquifers

Byong-min Seo*

Research Institute of Basic Sciences, Chungnam National University

ABSTRACT

Three dimensional Monte-Carlo simulations of non-ergodic transport of a non-reactive solute plume by steady-state groundwater flow under a uniform mean velocity in isotropic heterogeneous aquifers were conducted. The log-normally distributed hydraulic conductivity, $K(x)$, is modeled as a random field. Significant efforts are made to reduce the simulation uncertainties. Ensemble averages of the second spatial moments of the plume and plume centroid variances were simulated with 1600 Monte Carlo runs for three variances of $\log K$, $\sigma_Y^2 = 0.09, 0.23, \text{ and } 0.46$, and three dimensionless lengths of line plume sources normal to the mean velocity. The simulated second spatial moment and the plume centroid variance in longitudinal direction fit well to the first order theoretical results while the simulated transverse moments are generally larger than the first order results. The first order theoretical results significantly underestimated the simulated dimensionless transverse moments for the aquifers of large σ_Y^2 and large dimensionless time. The ergodic condition for the second spatial moments is far from reaching in all cases simulated, and transport in transverse directions may reach ergodic condition much slower than that in longitudinal direction. The evolution of the contaminant transported in a heterogeneous aquifer is not affected by the shape of the initial plume but affected mainly by the degree of the heterogeneity and the size of the initial plume.

Key words : Groundwater, Isotropic, Monte-Carlo, Non-ergodic transport

요 약 문

일정한 평균 지하수 유속을 가진 불균질한 등방성 삼차원 대수층 내에서 정류상태로 흐르는 지하수의 흐름과 함께 이동해가는 비반응성 오염물질에 대한 몬테카를로 시뮬레이션이 시행되었다. 대수-정규적으로 분포되어 있는 수리전도도 $K(x)$ 가 임의장으로 설정되었으며 시뮬레이션 동안에 발생할 수 있는 불확실성을 감소하기 위해 여러 가지 방법들이 시도되었다. 1600개 오염운들에 대한 이차공간적률의 집합적평균(ensemble average) $\langle S_{ij}^2(t, l) \rangle$ ($i, j = 1, 2, 3$), 그리고 오염운중심분산 $R_{ij}^2(t, l)$ 이 각기 다른 세가지 불균질도 $\sigma_Y^2 = 0.09, 0.23$ 및 0.46 에 대해서 시뮬레이션 되었으며 또한 각기 다른 크기의 평균속도에 수직방향인 선형초기오염원($l = 1, 2, 4$)에 대해서 입자추적이 행하여 졌다. 시뮬레이션된 무차원 종적률들은 일차근사법에 의한 비에르고딕 이론적 결과와 비교적 잘 일치하나 시뮬레이션된 무차원 횡적률들은 일차근사법에 의한 이론적 결과들 보다 더 큰 값을 보인다. 일차근사법에 의한 비에르고딕 이론적 결과는 특히 불균질도가 큰 대수층에 대해서 그리고 큰 무차원 시간에 대해서 시뮬레이션된 무차원 횡적률들을 과소평가 했다. 시뮬레이션된 집합적 평균이차적률은 에르고딕 상태에 도달하지 못했으며 횡방향으로의 오염운 확장이

*Corresponding author : byongseo@hotmail.com

원고접수일 : 2005. 4. 19 게재승인일 : 2005. 7. 12

질의 및 토의 : 2006. 2. 28 까지

중방향보다 훨씬 느리게 에르고딕 상태에 접근하는 것으로 관찰되었다. 불균질한 대수층 내에서의 오염원의 진화는 초기 오염원의 모양이나 배열상태 보다는 주로 대수층의 불균질도와 초기 오염원의 크기에 영향을 받는 것으로 밝혀졌다.

주제어 : 지하수, 등방성, 몬테카를로, 비에르고딕 이동

1. 서 론

농업용 비료나 살충제, 지하 유류저장 탱크 또는 생활 폐기물 매립지등의 각종 오염원에 의한 지하수 오염은 이미 잘 알려진 환경문제들의 예이다. 이런 환경문제들이 발생했을 때 지하수학자들은 오염원(contaminant plume)의 크기나 농도분포에 대해서 예측 또는 추정해야 할 필요가 있는데 이는 그런 자료들이 오염된 지역을 정화하기 위해 매우 효과적으로 사용될 수 있기 때문이다. 그러나 오염원의 이동 매체 역할을 하는 각종 지질단위들의 불균질한 특성으로 인해, 그리고 그 불균질한 특성을 자세히 알아낼 수 없기 때문에, 지하수 유동에 의해 이동 확장된 오염원의 크기와 농도분포를 예측하기란 매우 어려운 일일 것이다. 지하수에 의해 이동된 용질은 일반적으로 불규칙한 모양을 하거나 또는 농도분포가 불규칙하여 그것을 예측 또는 추정함에 상당한 어려움이 따른다는 것은 이미 야외 추적자 실험을 통해 입증된 바 있다(e.g. Mackay et al., 1986; Killey and Moltz, 1988; Garabedian and Leblanc, 1991; Hubbard et al., 2001). 불균질한 지질단위 내에서의 용질의 이동에 관한 정확한 예측방법에 대해서는 1970년대 이후에 활발히 연구되어 오고 있지만 여전히 지속적으로 연구해야할 중요한 과제중의 하나로 남아있다.

불균질한 대수층 내에서의 비에르고딕(non-ergodic) 오염원 이동에 관한 많은 이론적인 연구들이 있었으며(e.g. Kitanidis, 1988; Dagan, 1990, 1991; Rajaram and Gelhar, 1993; Cushman et al., 1994; Zhang and Nueman, 1995; Selroos, 1995; Zhang et al., 1996; Zhang and Zhang, 1997; Zhang and Federico, 1998, 2000; Federico and Zhang, 1999) 그들 중 이 연구와 가장 밀접하게 관련된 연구는 Kitanidis(1988), Dagan(1990, 1991) 그리고 Zhang et al.(1996) 등 이다. Kitanidis(1988)는 최초로 비에르고딕 오염원의 불균질한 대수층 내에서의 이동에 관한 연구를 수행하였으며 오염원의 농도분포에 관한 일, 이차 적률(moment)을 유도해냈다. Dagan(1990)은 라그랑주(Lagrangian) 접근에 의해 그들 적률들을 두 개의 입자들의 이동에 관해 해석하였는데 그 후에 Dagan(1991)은 자신의 이론적인 결과를 2차원 불균질 등방성 대수층에 관

한 해석에 이용하였고, 일치근사법에 의한 입자 이동의 실분산계수(effective dispersion coefficients)에 관한 식을 발표하였다. 그 후에 Dagan(1991)의 이론은 Zhang et al.(1996)에 의해 전점근적국면(pre-asymptotic regime)으로 확장되었으며 그들은 시간중속적 이차공간적률(time-dependent second spatial moments)과 그에 따른 일치근사법에 의한 비에르고딕 오염원에 관한 실분산(effective dispersivity)을 체계적으로 평가하였다. 그들의 연구 결과 중 가장 주목해야 할 점은, 오염물질 이동 후기에, 오염원의 중방향 길이가 횡방향 길이보다 더 길게 유지되는 동안에 나타나는 음의 실횡분산(effective transverse dispersivity)이다.

앞에서 언급된 비에르고딕 이동에 관한 이론적인 해석은 입자이동에 관한 일치근사법에 의해 유도 되었으나 그 결과들이 실제로 이용되기 위해서는 야외추적자 실험에 의해 증명되어야 한다. 그러나 야외 추적자실험은 많은 비용과 긴 시간을 필요로 한다는 단점이 있기 때문에 현재 까지 몇몇 실험(e.g. Mackay et al., 1986; Killey and Moltz, 1988; Garabedian and Leblanc, 1991; Hubbard et al., 2001)만 행해진 바 있으며, 그 이론들을 증명해 보이기 위해, 대체적인 방법으로, 수치시뮬레이션(numerical simulation)이 행해지고 있다. 그러나 현재까지 행해졌던 수치시뮬레이션들은 대부분 에르고딕 이동(e.g. Rubin, 1990; Chin and Wang, 1992; Salandin and Fiorotto, 1993; Burr et al., 1994; Selroos and Cvetkovic, 1994; Cvetkovic et al., 1996; Dentz et al., 2002; Hassan et al., 2002), 적은 수(백개 미만)의 임의대수층(e.g. Tompson and Gelhar, 1990; Quinodoz and Valocchi, 1990; Burr et al., 1994), 이차원적(Zhang and Lin, 1998; Hassan et al., 1998, 2002), 또는 종분산(Quinodoz and Valocchi, 1990; Salandin et al., 1991; Salandin and Fiorotto, 1993)에 국한되어 행하여졌다. 최근에 Zhang and Seo(2004)는 1600개의 임의대수층을 이용하여 정사각형모양의 초기오염원으로부터 기원된 종적률과 횡적률을 시뮬레이션 한 바 있다. 현재까지 에르고딕이든 아니든 오염원의 발달시 수반되어 일어나는 횡분산에 대해서는 종분산의 경우보다 그 실체가 덜 밝혀져 있는 것이 사실이다.

일치근사법(e.g. Dagan, 1984, 1987, 1988; Gelhar and

Axness, 1983; Neuman et al., 1987)과 이차근사법(e.g. Dagan, 1994; Hsu et al., 1996; Dentz et al., 2000a, 2000b)에 의한 오염원의 이동에 대한 대부분의 이론적인 연구에서는 영 점근적 횡분산(zero asymptotic transverse dispersivity)을 주장하였으나 Corrsin의 추론에 근거한 연구(e.g. Dagan, 1988; Neuman and Zhang, 1990; Zhang and Neuman, 1990; Zhang and Chi, 1995; Zhang, 1995; Dentz et al., 2000a, 2000b)들에서는 비 0 점근적 횡분산을 주장하였다. 최근에 Attringer et al.(2002)은 불균질한 대수층에서의 오염물질 이동에 대해 광역분산계수(macro dispersion coefficient)를 유도해냈으며 점근적횡분산계수가 2차원에서는 0이지만 3차원에서는 유한(finite)임을 주장한 바 있다.

횡분산(e.g. Rubin, 1990; Chin and Wang, 1992; Bellin et al., 1992)에 관한 시뮬레이션 결과 또한 확실하게 결론지어지지 않았다. Chin and Wang(1992)의 추계론적 분산이론에 대한 평가에 관한 연구에서는 Neuman and Zhang(1990)의 준-선형이론(quasi-linear theory)보다 Dagan (1984)의 선형이론(linear theory)을 더 선호하였다. Bellin et. al.(1992)은 몬테카를로 시뮬레이션을 이용해 일차근사법에 의해 예상되었던 결과보다 훨씬 작은 에르고딕 오염원의 이차공간적률 X_{22} 를 구해낸 바 있다. Chin and Wang(1992)과 Bellin et al.(1992)의 연구결과와는 달리 Rubin(1990)과 Zhang and Lin(1998)은 그들이 시뮬레이션한 X_{22} 가 일차근사법에 의한 이론적 결과보다 훨씬 높고 오히려 Corrsin의 추론에 근거를 둔 값에 더 가까움을 발견한 바 있다.

근래에는 기존의 이론을 증명하기 위해 많은 임의 대수층을 이용한 삼차원 몬테카를로 시뮬레이션과 같은 좀 더 정교한 수치시뮬레이션의 필요성이 강조되고 있다. 그러나 삼차원시뮬레이션은 정밀한 격자, 수두계산시 높은 정확성, 그리고 많은 수의 임의대수층 등으로 인해, 특히 불균질도가 높은 대수층에 대해서는 오랜 계산시간을 필요로 하는 등의 어려운 점이 있기 때문에 이전까지 적은 수(100개 안팎)의 임의 대수층을 이용한 수치시뮬레이션이 시도 되어왔을 뿐이다. 이 연구에서는 1600개의 각기 다른 3차원 임의대수층을 통해 이동되는 비에르고딕 오염원에 대한 시뮬레이션을 행하고 그 오염원에 대한 이차공간적률(second spatial moment)과 중심점분산도(plume centroid variance)가 계산될 것이다. 그 계산 결과들은 특히 오염원의 종, 횡적인 분산도와 같은 이론적 결과를 평가하는데 사용될 것이다. 비록 이 시뮬레이션이 비에르고딕 오염원에 관해서 시행될 지라도 시뮬레이션 결과들은

(1)의 관계식에 의해 에르고딕 상태 하에서 유도된 이론들을 평가하기 위해 사용될 수 있다.

이 논문은 다음의 단계로 구성된다: 1) 먼저 이론적인 배경이 소개되고, 2) 이 연구의 주된 실험단계에 해당되는 몬테카를로 시뮬레이션에 대한 이론적 소개 3) 시뮬레이션시 사용된 모델구성과 그 모델의 타당성, 4) 시뮬레이션 결과와 토론, 그리고 5) 요약과 결론이 마지막에 소개될 예정이다.

2. 이론적 배경

불균질한 대수층내에서의 오염원의 이동에 관한 추계론적 접근시(Dagan, 1989; Cushman, 1990; Gelhar, 1993)에는 수리전도도의 불균질성으로 인한 삼출속도의 불균질성 때문에 오염물질의 농도분포 또한 불균질하다. 따라서 임의대수층 내에서의 오염물질의 분포에 대한 그 확률적 분포를 구해내는 것은, 비록 가능하다 할지라도, 어려운 일일 것이다. 그리하여 그 공간적인 적률, 특히 오염원의 이차공간적률이 그 오염원의 크기와 확장정도를 평가하기 위하여 사용되어져 왔다. Kitanidis(1988)와 Dagan(1990)은 비에르고딕 오염원 이동에 대한 초기값이 l 크기인 이차공간적률의 집합적평균(ensemble average of second spatial moment), $\langle S_{ij}'(t, l) \rangle$ ($i, j = 1, 2, 3$), 에르고딕 오염원의 이차공간적률 또는 입자 하나에 대한 이동분산도(one particle displacement covariance), $X_{ij}(t)$, 그리고 오염원 중심 분산도(plume centroid variance), $R_{ij}'(t, l)$, 등의 관계식을 정의하였고, 국부적인 소규모 확산을 무시할 경우엔 이들의 관계는 다음과 같다.

$$Z_{ij}'(t, l) \equiv \langle S_{ij}'(t, l) \rangle - S_{ij}'(0, l) = X_{ij}(t) - R_{ij}'(t, l) \quad (1)$$

여기서 “ $\langle \cdot \rangle$ ”은 무차원, $\langle \cdot \rangle$ 은 집합적평균, $Z_{ij}'(t, l)$ 는 $S_{ij}'(t, l)$ 와 $S_{ij}'(0, l)$ 의 차이값, t 는 시간, l 은 초기 오염원의 크기, 그리고 $S_{ij}'(0, l)$ 은 $S_{ij}'(t, l)$ 의 초기값이며 시뮬레이션 동안 일정한 값을 갖는다. 식 (1)의 무차원은

$$\begin{aligned} S_{ij}'(t, l) &= \frac{S_{ij}(t, l)}{L^2}; X_{ij}(t) = \frac{X_{ij}(t)}{L^2}; R_{ij}'(t, l) \\ &= \frac{R_{ij}(t, l)}{L^2}; t' = \frac{\mu t}{L}; l' = \frac{l}{L} \end{aligned} \quad (2)$$

와 같이 정의되며 μ 는 지하수 평균 유속, L 은 임의대수층의 상관거리(correlation length)를 의미한다. Dagan (1990)에 의해 오염원 중심 분산도 $R_{ij}'(t, l)$ 는 두입자 이동분산도 및 속도분산도와 밀접하게 관계됨이 밝혀진 바

있으며, $S_{ij}'(t, l')$ 와 $R_{ij}'(t, l')$ 는 초기 오염원의 크기 l' 의 함수이나, $l' \rightarrow \infty$ 에 따라 $R_{ij}'(t, l') \rightarrow 0$ 이 되므로 $X_{ij}'(t)$ 는 $Z_{ij}'(t, l')$ 과 같아지게 되기 때문에 l' 의 함수가 아니다. 입방형 오염원(l'_1, l'_2, l'_3)으로부터 이동된 오염원은 균일한 평균속도 하에서 일차근사법에 의해 다음과 같이 표현될 수 있다(Zhang et al., 1996).

$$R_{ij}'(t, l) = \frac{8\delta_{ij}\sigma_y^2}{l'_1 l'_2 l'_3} \int_0^{l'_1} \int_0^{l'_2} \int_0^{l'_3} \int_0^t (l'_1 - x)(l'_2 - y)(l'_3 - z)(t - \tau) [u'(\tau + x, y, z) + u'(\tau - x, y, z)] d\tau dx dy dz \quad (3)$$

여기서 σ_y^2 은 임의 대수층의 log K, $u'_{ij}(=u'_{ij}/\mu^2)$ 은 무차원 속도공분산, 그리고 δ_{ij} 는 크로네커델타(Kronecker delta)이다. 식 (3)에서 $R_{ij}'(t, l')$ 와 그에 따른 오염원의 분산에 관하여 Zhang et al.(1996)이 여러가지 선형 및 입방형 오염원에 대해서 이론적으로 평가한 바 있다. 또한 최근에 Zhang and Seo(2004)는 몬테카를로 시뮬레이션을 이용하여 정사각형 모양의 오염원에 대해서 실험적인 평가를 한 바 있다.

이 연구에서는 평균흐름의 수직방향인 수평적회방향($0, l'_2, 0$) 그리고 수직적회방향($0, 0, l'_3$)의 두가지 다른 선형 오염원에 대해서 몬테카를로 시뮬레이션을 이용한 실험적인 평가를 시도 하였으며 이들 오염원에 대한 이론적인 일차근사법에 의한 방정식은 (3)으로부터 Zhang et al.(1996)이 유도하였다. 평균흐름방향의 수직방향이며 수평적회방향($0, l'_2, 0$)인 선형오염원의 경우엔 (3)의 식이

$$R_{ij}'(t, l') = \frac{R_{ij}}{L^2} = \frac{4}{l'_2} \int_0^{l'_2} \int_0^{l'_3} (l'_2 - y)(t - \tau) u'_{ij}'(\tau, y, 0) dt dy \quad (4)$$

와 같이 되며, 수직적회방향($0, 0, l'_3$)의 경우에는

$$R_{ij}'(t, l') = \frac{R_{ij}}{L^2} = \frac{4}{l'_3} \int_0^{l'_3} \int_0^{l'_1} (l'_3 - z)(t - \tau) u'_{ij}'(\tau, 0, z) dt dz \quad (5)$$

와 같이 된다. 이 연구에서는 이들 일차근사법에 의해 계산된 이차적률들의 결과와 시뮬레이션에 의해 계산된 결과가 서로 비교 검토되었다.

3. 몬테카를로 시뮬레이션

시뮬레이션 영역은 x, y, z 방향으로 128×64×64개의 입방체들로 이루어진 3차원 유한차분격자이며 단위입방체들은 x, y, z 방향의 단위길이를 갖는다(Fig. 1). 고정수 두경계조건이 영역의 양쪽 끝면에 위치하며 불투수 경계

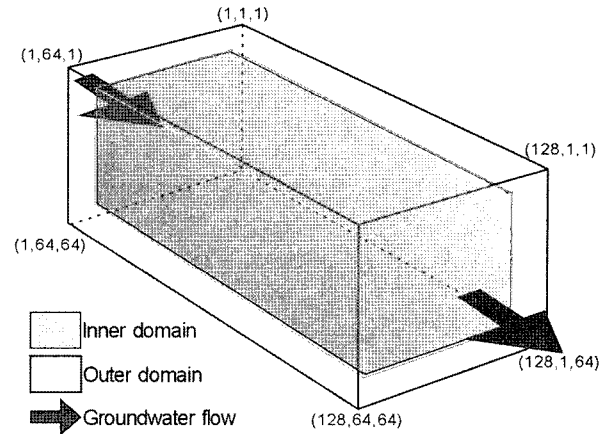


Fig. 1. A schematic diagram of the model domain.

조건이 영역의 다른 네 끝면에 위치하여 전체적으로 x 방향으로의 균일한 지하수흐름을 갖는다. Log K의 상관거리는 3으로, 각 단위격자의 길이는 0.3333 L과 같다. 시뮬레이션시 이용된 대수층들은 불균질하나 통계학적 등방성(statistically isotropic)을 보이며 지하수가 양쪽 고정수 두경계를 통해 균일한 평균속도로 흐른다. Bellin et al., (1992)의 연구결과에 의하면 설정된 경계조건에 의해 영향을 받는 영역은 경계로부터 3 L 이하이기 때문에 이 연구에서는 오염물질 입자들이 이동하며 머무는 내부영역을 따로 설정하였다. 내부영역의 한계는 각 경계로부터 3 L의 거리에 위치하며 이는 시뮬레이션 결과를 정류상태를 기준으로 산출된 일차근사법의 결과와 비교 검토하기 위한 것이다. 시뮬레이션 결과 불균질도가 더 큰(더 높은 σ_y^2) 대수층에서는 더 많은 오염물질 입자들이 더 빨리 내부영역을 벗어남을 확인할 수 있었다. 시뮬레이션 과정에서 설정된 시뮬레이션 영역으로부터 연구목적에 합당한 오염원의 최대 이동시간을 구하기 위해 설정 가능한 불균질도(σ_y^2)는 0.5로 밝혀졌다. 따라서 이번 연구에서는 세가지 각기 다른 등급의 불균질도(i.e. $\sigma_y^2 = 0.1, 0.25, 0.5$)에 대해서 시뮬레이션이 행해졌다.

시뮬레이션은 log K의 평균값과 분산도, 그리고 등방지수공분산함수(isotropic exponential covariance function)를 이용하여 임의대수층을 산출함으로써 시작된다.

$$C(s) = \sigma_y^2 \exp(-s/L) \quad (6)$$

앞의 식 (6)에서 s는 분리거리(separation distance)이다. 그리고 산출된 임의 대수층들을 대상으로 정류상태의 지하수흐름 방정식을 이용하여 block centered finite difference scheme에 의한 각 절점에서의 수두를 계산한다.

수두계산은 3차원 유한차분 지하수 모델링 프로그램으로 널리 사용되고 있는 MODFLOW(McDonald and Harbaugh, 1988)가 사용되었다.

수두계산후 다음단계는 입자추적(particle tracking)이다. 입자추적을 위해서 잘 알려져 있는 입자추적 코드인 MODPATH(Pollock, 1994)가 이용되었다. 세가지 자기 다른 길이($l' = 1, 2$, 그리고 4)의 선형초기모양의 비반응성(non-reactive) 오염원이 시물레이션 되었다. 선형 초기오염원은 평균 흐름방향에 수직방향으로 나열되었으며 경계효과(Ababou et al., 1989)를 피하기 위해 좌측 고정수두 경계에서 $3L$ (9셀) 만큼의 거리에 위치했다. 초기 오염원은 길이에 따라 자기 다른 수의 오염물질 입자로 구성되며 각 셀에 4개씩의 입자들을 가진다. 이전의 연구에서 Zhang and Lin(1998)은 셀 내의 입자의 수가 4개 이상일 경우에는 시물레이션 결과에 영향을 미치지 않음을 밝힌바 있다. 초기 오염원으로부터 기원된 오염원은 지하수의 흐름을 따라 이동해 가며 그 오염원을 형성하는 입자들이 추적되었다. 입자들의 추적은 하나의 입자라도 내부영역을 벗어나게 되면 중지되도록 설정하였다. m 개의 임의대수층에 대해 입자추적이 시행된 후, 각 임의대수층에 대해서 오염원 중심위치, $R_{ij}^m(t, l)$ ($i, j = 1, 2, 3$)와 이차공간적률, $R_{ij}^m(t, l)$ 이 계산되었으며 식은 다음과 같다.

$$R_{ij}^m(t, l) = \frac{1}{N} \sum_{p=1}^N x_i^{m,p}(t) \quad (7)$$

$$S_{ij}^m(t, l) = \frac{1}{N} \sum_{p=1}^N [x_i^{m,p}(t) - R_i^m(t, l)][x_j^{m,p}(t) - R_j^m(t, l)] \quad (8)$$

여기서, $x_i^{m,p}(t)$ 는 m 번째 임의 대수층에서의 t 시간 경과 후 p 번째 입자의 위치를 의미하며 N 은 총 오염물질 입자수를 지시해 준다. M 은 시물레이션에 이용된 총 임의대수층의 수를 의미하며 이 연구는 자기 다른 세 등급의 불균질도($\sigma_y^2 = 0.1, 0.25$, 그리고 0.5)에 대해서 시물레이션이 행해졌으며 각 불균질도에 대해서 1600개의 서로 다른 임의대수층이 이용되었다. 오염원 중심의 평균값, $\langle R(t, l) \rangle$, 오염원들의 평균이차공간적률, $\langle S_{ij}(t, l) \rangle$, 그리고 오염원 중심공분산, $R(t, l)$ 은 식 (9), (10) 및 (11)에 의해서 계산되었다.

$$\langle R(t, l) \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M R_i^m(t, l) \quad (9)$$

$$\langle S_{ij}(t, l) \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M S_{ij}^m(t, l) \quad (10)$$

$$R_{ij}(t, l) = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M [R_i^m(t, l) - \langle R(t, l) \rangle] [R_j^m(t, l) - \langle R(t, l) \rangle] \quad (11)$$

일단 $\langle S_{ij}(t, l) \rangle$ 과 $\langle R(t, l) \rangle$ 이 계산되면, 에르고딕 오염원의 이차공간공분산, $X_{ij}(t)$ 이 적률들 간의 관계식 (1)에 의해 얻어질 수 있다.

4. 모델평가

몬테카를로 시물레이션 동안에는 여러 가지 오차가 발생할 수 있다. 그중 첫 번째로 임의대수층 산출동안에 발생할 수 있는 난수생성기(random number generator)에 의한 오차를 생각해 볼 수 있다. 이 연구에서 사용된 난수생성기는 Robin et. al.(1993)에 의해 발표되었으며 Burr et al.(1994)에 의해 최초로 3차원 이방성대수층에 대한 시물레이션에 이용되었다. 기존에 사용되었던 몇 가지 난수 생성기들이 통계학적으로 입력자료와 출력자료가 같지 않은 경우가 있었기 때문에(Dagan, 1995; Sudicky and Naff, 1995) 이 연구에서는 난수 생성기에 대한 검토가 선행되었다. 입력자료에서 임의대수층의 $\log K$ 에 대한 상관거리는 3이었고, $\log K$ 값들에 대한 분산도는 0.1, 0.25 그리고 0.5였으나 출력결과에서는 모든 임의대수층에 대해서 $\log K$ 에 대한 상관거리가 3.3, 그리고 $\log K$ 에 대한 분산도는 각각 0.09, 0.23 그리고 0.46이었다. 세가지 다른 $\log K$ 의 분산도에 대한 시물레이션된 변동도(variogram)가 Fig. 2(흑색점)에 표시되었으며 시물레이션된 변동도들은 지수모델변동도(실선), $\gamma_r = \sigma_y^2 [1 - \exp(-3r/L)]$ 와 잘 일치함을 보이고 있다. 이는 생성된 임의대수층들의 통계가 비록 기대했던 입력자료와는 약간 차이가 있지만 출력자료들이 일률적인 차이를 보이고 분포가 이론과 잘 일치하기 때문에 시물레이션에 이용될 수 있음을 지시해 주는 것이다.

두번째로 생각할 수 있는 오류의 근원은 방정식을 푸는 과정 중에 생기는 오차를 들 수 있다. 각 셀에서의 수두는 선적인 방정식을 풀어감으로써 얻어진다. 지하수유동 방정식의 수치해는 버림오차(rounding off error)와 단절오차(truncation error)를 포함하고 있다. 따라서 수치오차가 클수록 수두해가 덜 정확하고, 오염원 입자의 위치를 부정확하게 하고 그들의 공간적률을 부정확하게 하는 부정확한 속도분포를 갖게 한다. 질량평형(mass balance)이나 수리량(water budget)이 전체적인 수치해의 만족도를 지시해준다. 반복적해법(iterative solver)을 이용함에 있어서 수치해의 정확도는 반복과정동안에 모든 결절점(node)에서

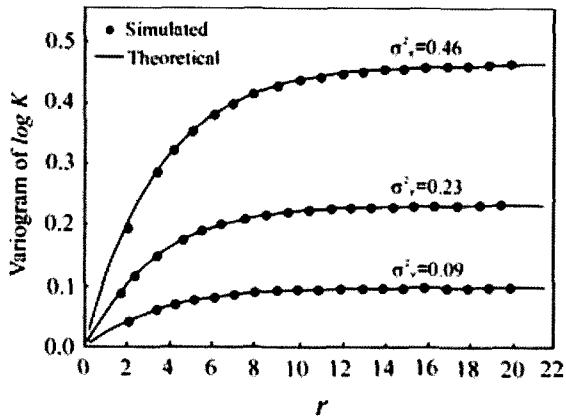


Fig. 2. The simulated (the solid dots) and theoretical (the curves) variogram of log hydraulic conductivity, log K, as a function of the separation distance, r .

의 변화할 수 있는 수두의 최대절대값 수렴조건(convergence criterion), ϵ 에 의해 결정된다. 만약 너무 큰 수렴 조건이 사용된다면 반복계산은 해에 가까운 근사값에 도달하기 전에 멈추게 된다. Zhang and Lin(1998)의 실험 결과와 같이 정확한 이차공간적분, 특히 횡방향의 적분을 얻기 위해서는 아주 작은 수렴조건을 이용해야 한다 ($\epsilon = 10^{-6}$). 따라서 이 연구에서 행한 모든 시뮬레이션에서 수렴조건, $\epsilon = 10^{-6}$ 이 사용 되었으며 이에 따른 모든 임의

대수층에서의 질량평균 오류는 0.1% 이하이다.

몬테카를로 시뮬레이션 오류의 세 번째 근원은 충분치 못한 수의 임의대수층을 이용함으로써부터 기인될 수 있다. Zhang and Seo(2004)는 시뮬레이션에 필요한 임의대수층의 수, M 을 알아보기 위해서 적물들이 안정될 때까지 M 을 증가시며 관찰한 결과 종방향의 적물은 안정되기 위해서 최소 800개 이상의 임의 대수층이 필요하며 횡방향으로의 적물은 1600개 이상의 임의대수층이 필요함을 밝힌 바 있다. 따라서 이 연구에서는 종, 횡방향의 적물들을 안정시키기 위해 각 불균질도에 대한 1600개의 임의 대수층을 사용하였다.

5. 결과 및 토론

5.1. 수평 선형 오염원에 대한 시뮬레이션

1600개 임의대수층에서의 지하수흐름에 직교하는 수평 선형오염원(l_2')에 대한 시뮬레이션 결과인 무차원 종평균 이차공간적분, $Z'_{11}(t', l')$ 과 무차원 종오염원중심분산, $R'_{11}(t', l')$ 이 Fig. 3에 심별로써 표시되었다. 시뮬레이션은 서로 다른 세가지 오염원 크기($l_2' = 1, 2$ 및 4)와 세가지 서로 다른 불균질등급($\sigma_y^2 = 0.09, 0.23$ 및 0.46)에 대해서 행해졌으며 산출된 종방향의 적물들이 무차원 시간(t')에 대해서 Fig. 3에 표시되어졌다. 또한 그에 따른 Dagan

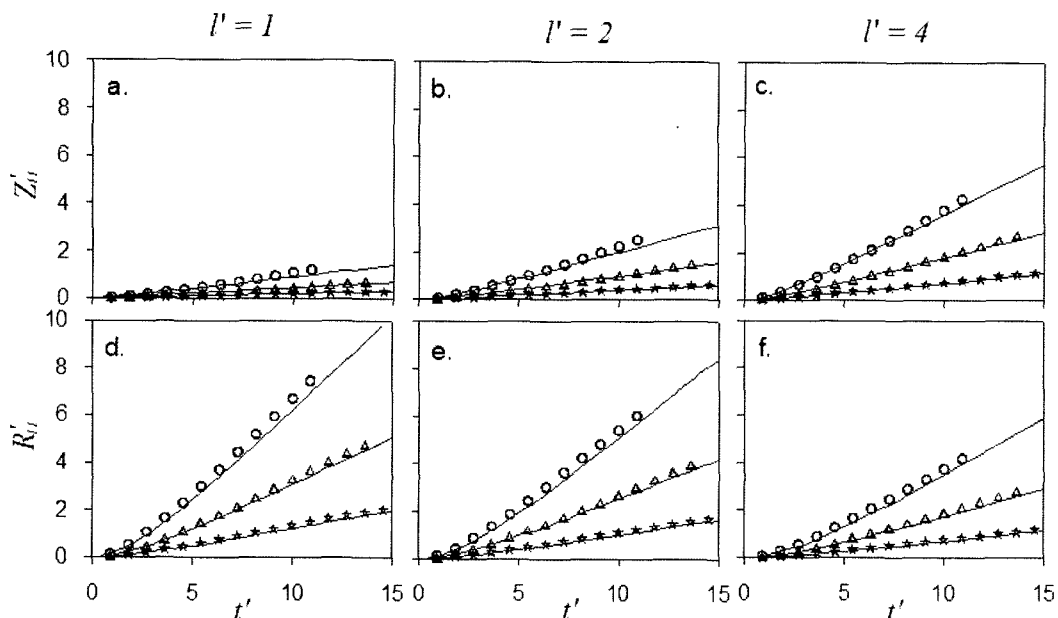


Fig. 3. The simulated dimensionless longitudinal second spatial moments, $Z'_{11}(t', l')$ and the dimensionless plume centroid variance, $R'_{11}(t', l')$ as functions of the dimensionless time, t' , for $\sigma_y^2 = 0.09$ (the stars), 0.23 (the triangles), and 0.46 (the circles); a) $Z'_{11}(t', l')$ for $l' = 1$; b) $Z'_{11}(t', l')$ for $l' = 2$; c) $Z'_{11}(t', l')$ for $l' = 4$; d) $R'_{11}(t', l')$ for $l' = 1$; e) $R'_{11}(t', l')$ for $l' = 2$; f) $R'_{11}(t', l')$ for $l' = 4$. The curves are the corresponding first order solutions obtained by Dagan (1988).

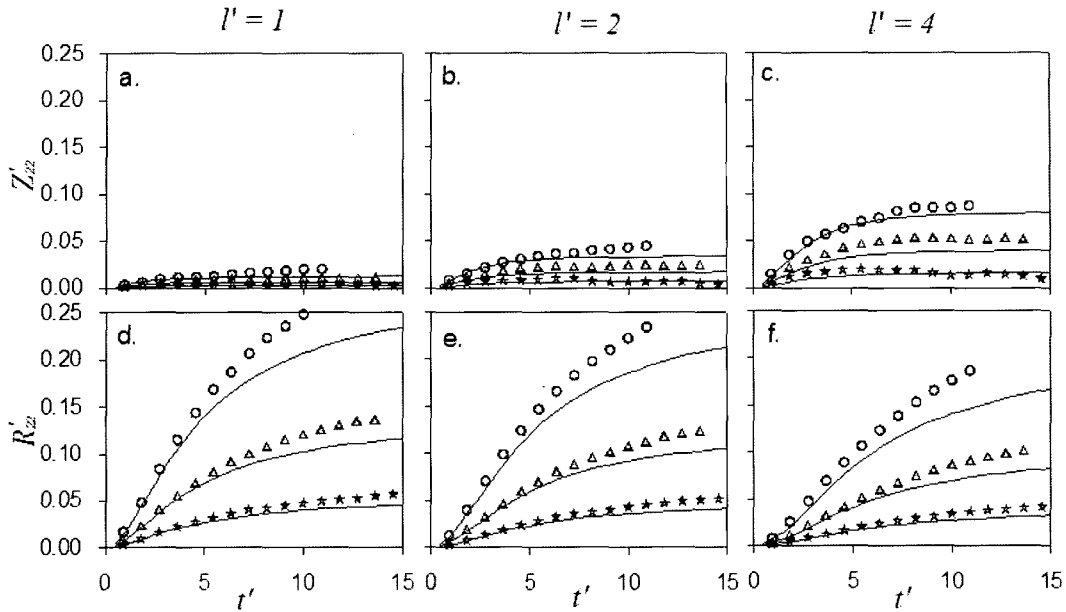


Fig. 4. The simulated dimensionless horizontal transverse second spatial moments, $Z'_{22}(t', l')$ and the dimensionless plume centroid variance, $R'_{22}(t', l')$ as functions of the dimensionless time, t' , for $\sigma_y^2 = 0.09$ (the stars), 0.23 (the triangles), and 0.46 (the circles); a) $Z'_{22}(t', l')$ for $l' = 1$; b) $Z'_{22}(t', l')$ for $l' = 2$; c) $Z'_{22}(t', l')$ for $l' = 4$; d) $R'_{22}(t', l')$ for $l' = 1$; e) $R'_{22}(t', l')$ for $l' = 2$; f) $R'_{22}(t', l')$ for $l' = 4$. The curves are the corresponding first order solutions obtained by Dagan (1988).

(1988)과 Zhang et al.(1996)에 근거한 일차근사법에 의한 이론적 결과가 곡선으로서 Fig. 3에 함께 표시되었다. σ_y^2 가 큰 대수층에서의 오염물질의 이동은 비교적 오염물 입자가 내부영역을 빨리 벗어나 경계근처 비정류대로의 접근속도가 빠르기 때문에 무차원시간이 짧은 부분에서만 시뮬레이션 결과를 얻을 수 있었다. Fig. 3에 보여진 바와 같이 σ_y^2 가 큰 대수층에서의 시뮬레이션 결과(원부호) σ_y^2 가 가 작은 대수층에서의 시뮬레이션 결과(별부호)보다 무차원시간이 작은 결과들만을 얻었음을 알 수 있다. Fig. 3에서는 다음과 같은 주목할 점들이 관찰된다. 첫째, 모든 세 가지 등급의 불균질도에서, 시뮬레이션된 종적률 $Z'_{11}(t', l')$ 과 $R'_{11}(t', l')$ 은 모두, 특히 $\sigma_y^2 = 0.09$ 에서, 이론적 결과와 잘 일치됨을 보이고 있다. 이는 발표된 이론의 적합성을 지시해주는 것이다(e.g. Chin and Wang, 1992). 둘째로, 시뮬레이션된 $Z'_{11}(t', l')$ 와 $R'_{11}(t', l')$ 는 Fig. 3의 여섯도표에서 모두 σ_y^2 이 증가함에 따라 함께 증가하며 이는 대수층이 더 불균질할수록 오염운은 더 넓게 퍼지며 오염운의 중심점에 대한 불확실성이 커짐을 의미하는 것이다. 셋째, 고정된 σ_y^2 에서는, 예를 들면 $\sigma_y^2 = 0.46$ 에서, 시뮬레이션된 $Z'_{11}(t', l')$ (Fig. 3a, 3b, 및 3c에서의 원)은 무차원시간이 증가함에 따라 증가하며 시뮬레이션된 $R'_{11}(t', l')$ (Fig. 3d, 3e 및 3f에서의 원)은 무차원 초기 오염원의 크기가 증가함에 따라 감소함을 보인다. 달리 말

하면, 초기오염원의 크기가 증가할수록 비에르고딕 오염운의 퍼짐($Z'_{11}(t', l')$)은 증가하며 오염운중심의 분산도($R'_{11}(t', l')$)는 감소함을 의미한다. 마지막으로, $Z'_{11}(t', l')$ 에 대한 에르고딕 상태는 $R'_{11}(t', l')$ 이 $Z'_{11}(t', l')$ 보다 훨씬 작을 때 도달할 것으로 생각되는데(Dagan, 1990), 이 연구를 위한 시뮬레이션에서는 에르고딕상태에 도달하지 못하였다.

Fig. 4는 Fig. 3과 비슷하나 시뮬레이션된 무차원 수평 횡적률, $Z'_{22}(t', l')$ 와 $R'_{22}(t', l')$ 에 관한 결과이다. 여기서 $Z'_{22}(t', l')$ 는 수평횡이차공간적률이며 $R'_{22}(t', l')$ 는 수평횡중심분산을 의미한다. 종적률들에 대한 시뮬레이션결과와 마찬가지로, $\sigma_y^2 = 0.09$ 에 대한 $Z'_{22}(t', l')$ 와 $R'_{22}(t', l')$ 는(Fig. 4에서의 별) 일차근사법에 의한 이론적 결과와 비교적 잘 일치함을 보인다. $\sigma_y^2 = 0.23$ 과 1.46(Fig. 4에서의 삼각형과 원)에 대한 $Z'_{22}(t', l')$ 와 $R'_{22}(t', l')$ 는 오염운의 이동 초기에는 일차근사법에 의한 이론적 결과와 비교적 잘 일치하나, 이동이 진행될수록 시뮬레이션 결과는 이론적결과로부터 벗어나는 경향을 보이며 이런 결과는 σ_y^2 이 클수록 더 분명히 관찰된다. 또한 Fig. 3과 비슷한 몇몇 결과들이 관찰되고 있다: 1) σ_y^2 이 증가할수록 $Z'_{22}(t', l')$ 와 $R'_{22}(t', l')$ 는 증가한다; 2) l' 이 증가할수록 $Z'_{22}(t', l')$ 는 증가하고 $R'_{22}(t', l')$ 는 감소한다; 3) $Z'_{22}(t', l')$ 는 에르고딕상태에 상당히 도달하지 못하였다.

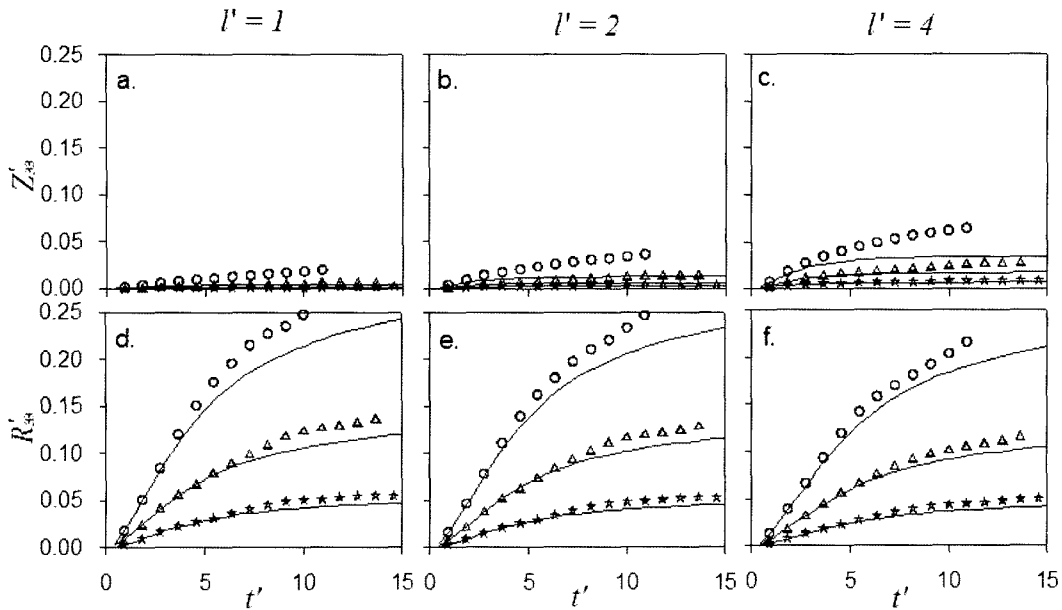


Fig. 5. The simulated dimensionless vertical transverse second spatial moments, $Z'_{33}(t', l')$ and the dimensionless plume centroid variance, $R'_{33}(t', l')$ as functions of the dimensionless time, t' , for $\sigma_y^2 = 0.09$ (the stars), 0.23 (the triangles), and 0.46 (the circles); a) $Z'_{33}(t', l')$ for $l' = 1$; b) $Z'_{33}(t', l')$ for $l' = 2$; c) $Z'_{33}(t', l')$ for $l' = 4$; d) $R'_{33}(t', l')$ for $l' = 1$; e) $R'_{33}(t', l')$ for $l' = 2$; f) $R'_{33}(t', l')$ for $l' = 4$. The curves are the corresponding first order solutions obtained by Dagan (1988).

Fig. 5는 시뮬레이션된 무차원 수직횡적률 $Z_{33}(t', l')$ 과 $R_{33}(t', l')$ 에 관한 결과이다. 여기서 $R_{33}(t', l')$ 는 수직횡이차공간적률이며 수직횡중심분산을 의미한다. 수평횡적률들에 대한 시뮬레이션결과와 비슷하게, σ_y^2 이 증가함에 따라 $Z_{33}(t', l')$ 와 $R_{33}(t', l')$ 는 오염원의 이동 초기에는 일치근사법에 의한 이론적 결과와 비교적 잘 일치하나, 이동이 진행될수록(t' 이 증가할수록) 시뮬레이션 결과는 이론적 결과로부터 벗어나는 경향을 보이며 이런 결과는 σ_y^2 이 클수록 더 뚜렷하게 관찰된다. 종적률(Fig. 3) 및 수평횡적률(Fig. 4)들에 관한 시뮬레이션 결과와 다른 점은 수직횡이차공간적률(Fig. 5a, 5b 및 5c)에서 관찰됨과 같이 σ_y^2 이 큰(Fig. 5a, 5b 및 5c에서의 원) 대수층에 대한 시뮬레이션에서 특히 이론적 결과와 큰 차이를 보인다는 점이다. 여기서도 또한 Fig. 3 및 Fig. 4에서와 비슷한 몇몇 결과들이 관찰되고 있다: 1) σ_y^2 이 증가할수록 $Z_{33}(t', l')$ 와 $R_{33}(t', l')$ 는 증가한다; 2) l' 이 증가할수록 $Z_{33}(t', l')$ 는 증가하고 $R_{33}(t', l')$ 는 감소한다; 3) $Z_{33}(t', l')$ 는 에르고딕상태에 상당히 도달하지 못하였다.

식 (1)에 근거하여 에르고딕 오염원의 무차원이차공간적률 또는 단일입자이동분산, $X_{ij}'(t', l')$ ($i, j = 1, 2, 3$)가 $Z_{ij}'(t', l')$ 와 $R_{ij}'(t', l')$ 의 합에 의해 얻어질 수 있다. $X_{ij}'(t')$ 는 단일입자의 이동에 관한 적률이기 때문에 $Z_{ij}'(t', l')$ 나 $R_{ij}'(t', l')$

와는 달리 초기 오염원의 크기에 따라 변화하지 않는다. 따라서 각각의 σ_y^2 에 대하여 세 개의 다른 크기의 오염원으로부터 얻어진 값이 거의 같은 세 쌍의 시뮬레이션 결과가 얻어져야 한다. Fig. 6에서 별부호는 시뮬레이션된 $\sigma_y^2 = 0.09$ 에 대한 $X_{ij}'(t')$ 이며, 삼각형은 시뮬레이션된 $\sigma_y^2 = 0.23$ 에 대한 $X_{ij}'(t')$, 그리고 원은 $\sigma_y^2 = 0.46$ 에 대한 $X_{ij}'(t')$ 이다. Fig. 6에서는 같은 심벌들이 거의 같은 위치에 위치함을 알 수 있는데 이는 앞에서 언급된 바와 같은 이유의 결과이며 또한 시뮬레이션의 이론적 타당성을 뒷받침해주는 결과이기도 하다.

시뮬레이션된 무차원 단일입자중이동분산, $X_{11}'(t')$ (Fig. 6a)은 세가지 다른 등급의 σ_y^2 에서 모두 일치근사법에 의한 이론적 결과(Dagan, 1988)와 비교적 잘 일치한다. 낮은 불균질 등급($\sigma_y^2 = 0.09$)에서의 $X_{22}'(t')$ 와 $X_{33}'(t')$ (Fig. 6b 및 6c에서의 별) 또한 이론적결과와 비교적 잘 일치함을 보여준다. 그러나 더 높은 불균질등급($\sigma_y^2 = 0.23$ 및 $\sigma_y^2 = 0.46$)에서의 $X_{22}'(t')$ 와 $X_{33}'(t')$ 는 이동시간이 증가할수록 이론적결과로부터 분리되어 멀어지는 경향을 보이고 있으며 σ_y^2 이 크면 클수록 더 크게 분리됨을 보인다. Fig. 6에서 보여 지는 결과에 의하면, Dagan(1988)의 일치근사법에 의한 이론은 종적률 $X_{11}'(t')$ 에 대해서 불균질 등급 $\sigma_y^2 = 0.46$ 이하에서는 상당히 정확한 근사값을 제공

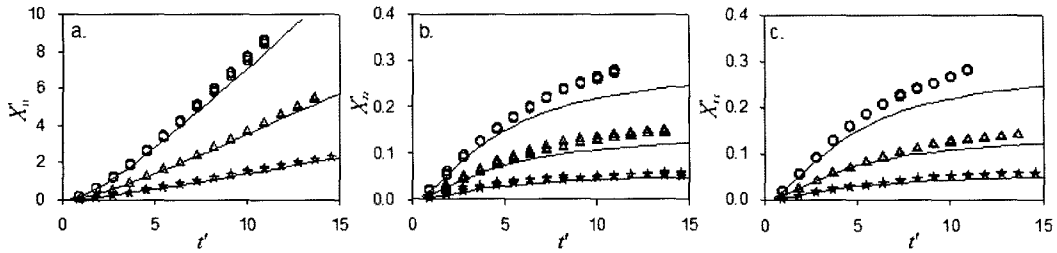


Fig. 6. The simulated dimensionless second spatial moments of an ergodic plume or the one-particle displacement variances, $X''_{ii}(t')$, as functions of the dimensionless time, t' , for $\sigma_y^2 = 0.09$ (the stars), 0.23 (the triangles), and 0.46 (the circles); a) $X''_{11}(t')$; b) $X''_{22}(t')$; c) $X''_{33}(t')$. The curves are the corresponding first order solutions obtained by Dagan (1988).

하고 있음을 알 수 있으며 이 결과는 이전의 몇몇 연구 (e.g. Barry et al., 1988; Rubin, 1990; Chin and Wang, 1992; Bellin et al., 1992; Zhang and Lin, 1998; Zhang and Seo, 2004)에서의 결과와 일치하는 것이다. 그러나 Fig. 6b 및 6c에서 보여진 바와 같이, 일차근사법에 의한 이론은 높은 등급의 불균질도를 가진 대수층에서의 긴 이동시간 후에 대한 횡적률들에 대해서 상당히 저평가 했음을 알 수 있다. 이 결과는 Rubin(1990), Zhang and Lin (1998), Hassan et al.(2002) 그리고 Zhang and Seo (2004)에서 행해졌던 시뮬레이션 결과와 일치하는 점이다.

5.2. 수직 선형 오염원에 대한 시뮬레이션

수직선형오염원으로 부터 기원된 오염운의 이동에 관한 시뮬레이션 결과와 일차근사법에 의한 이론적 결과는 앞에 보여진 수평선형오염원에 대한 결과들과 큰 차이가 없으므로 따로 표시하지 않았다. 주목할 점은, 수직선형오염원에 대한 모든 수평횡적률들과 앞에서 보여친 수평선형오염원에 대한 모든 수직횡적률들이 거의 같고, 수직선형오염원에 대한 수직횡적률들과 수평선형오염원에 대한 수평횡적률들이 거의 같다는 점이다. 이는 시뮬레이션에 사용된 임의대수층의 외형(geometry)과 초기오염원의 모양을 감안할 때 그 타당성이 인정되는 것이며, 이 또한 시뮬레이션의 타당성을 뒷받침해 주는 증거이다.

6. 결 론

평균 지하수 유속이 μ 인 불균질한 등방성 대수층 내에서 안정상태로 흐르는 지하수의 흐름과 함께 이동해가는 비반응성 오염물질에 대한 삼차원 몬테카를로 시뮬레이션이 시행되었다. 지수공분산을 가지고 대수-정규적으로 분포되어 있는 수리전도도 $K(x)$ 가 임의장으로 설정되었으며 시뮬레이션 동안에 발생할 수 있는 불확실성을 감소하기

위해 여러 가지 방법들이 시도되었다. 시뮬레이션 모델은 $\log K$ 임의장의 시뮬레이션된 변동도와 이론적인 모델 변동도가 아주 잘 일치되는 점, 매우 작은 수렴한계로부터 기인된 아주 작은 균형오차, 그리고 몬테카를로 시뮬레이션에 사용된 많은 수의 임의 대수층 등으로부터 그 타당성이 확인되었다.

1600개 오염운들에 대한 이차공간적률의 집합적평균 $\langle S_{ij}'(t', l) \rangle$ ($i, j = 1, 2, 3$), 그리고 오염운중심분산 $R_{ij}'(t', l)$ 이 각기 다른 세가지 불균질도 $\sigma_y^2 = 0.09, 0.23$ 및 0.46에 대해서 시뮬레이션 되었으며 또한 각기 다른 크기의 평균속도에 수직방향인 선형초기오염원($l = 1, 2, 4$)에 대해서 입자추적이 행하여 졌다. 시뮬레이션 결과에 근거하여 다음과 같은 주된 결론을 얻을 수 있다:

1. 세가지 다른 등급의 σ_y^2 에 대해서 시뮬레이션된 무차원 이차중공간적률 $Z_{11}'(t', l)$ 과 시뮬레이션된 무차원 중오염운중심분산 $R_{11}'(t', l)$ 는 일차근사법에 의한 비에르그딕 이론적 결과와 잘 일치함을 보인다. 시뮬레이션된 무차원 횡적률 $Z_{TT}'(t', l)$ ($T=2, 3$)과 $R_{TT}'(t', l)$ 은 오염원 이동 초기에 일차근사값과 잘 일치하나 무차원시간이 증가할수록 이론적결과로부터 분리되어 차이를 보인다. 일차비에르그딕 이론적결과는 특히 높은 등급의 σ_y^2 의 경우 시뮬레이션된 무차원 횡적률 $Z_{TT}'(t', l)$ 와 $R_{TT}'(t', l)$ 을 과소평가 했다.
2. 시뮬레이션된 $Z_{ij}'(t', l)$ ($i, j = 1, 2, 3$)와 $R_{ij}'(t', l)$ 는 σ_y^2 이 증가할수록 증가하며 초기오염원의 크기 l 이 증가할수록 시뮬레이션된 $Z_{ij}'(t', l)$ 는 증가하고 $R_{ij}'(t', l)$ 는 감소한다. $Z_{ij}'(t', l)$ 는 에르그딕상태에 도달하지 못했으며 횡방향으로의 오염운 이동이 종방향보다 훨씬 느리게 접근하는 것으로 관찰된다.
3. 시뮬레이션된 에르그딕 오염운의 무차원 이차중공간적률 $X''_{11}(t')$ 는 Dagan(1984, 1988)의 일차근사법에 의한 이론적 결과와 세가지 약하게 불균질한 대수층의 경우에

서 잘 일치하며, 횡적률 $X_{22}'(t')$ 와 $X_{33}'(t')$ 는 높은 무차원 시간에 대해서 이론적결과보다 약간 높은 결과치들을 보이는데 이러한 불일치는 σ_y^2 가 커질수록 더 뚜렷하게 나타난다. 따라서 Dagan의 일차 근사법에 의한 이론은 종적률 $X_{11}'(t')$ 에 대해서는 아주 정확한 예측을 하였으나 횡적률 $X_{22}'(t')$ 와 $X_{33}'(t')$ 에 대해서는, 특히 불균질도가 높은 대수층에 대해서 그리고 높은 무차원시간에 대해서, 상당히 과소평가 하고 있음을 알 수 있다.

4. 불균질한 대수층 내에서의 오염물질의 이동과 확장은 주로 대수층의 불균질도 σ_y^2 와 초기 오염원의 크기 l 에 영향을 받는다. 이전의 연구(Zhang and Seo, 2004)와 이 연구의 결과에 따르면 초기 오염원의 모양은 오염원의 이동상태를 말해주는 이차공간적률 $Z_{ij}'(t', l')$ 와 오염운중심분산 $R_{ij}'(t', l')$ 에 큰 영향을 주지 않음을 알 수 있다.

참 고 문 헌

- Ababou, R., McLaughlin, D., Gelhar, L.W., and Tompson, A.F.B., 1989, Numerical simulation of three-dimensional saturated flow in randomly heterogeneous porous media, *Transp. Porous Media*, **4**, 549-565.
- Attinger, S., Dentz, M., and Kinzelbach, W., 2002, Exact transversal macro dispersion coefficients for transport in heterogeneous porous media, *ACTA Universitatis Carolinae-Geologica*, **46**(2/3), 117-119.
- Bellin, A., Salandin, P., and Rinaldo, A., 1992, Simulation of dispersion in heterogeneous porous formations: statistics, first order theories, convergence of computations, *Water Resour. Res.*, **28**(9), 2211-2227.
- Barry, D., Coves, A.J., and Sposito, G., 1988, On the Dagan model of solute transport in ground-water application to the Borden site. *Water Resour. Res.*, **24**(10), 1805-1817.
- Burr, D.T., Sudicky, E.A., and Naff, R.L., 1994, Nonreactive and reactive solute transport in three-dimensional heterogeneous porous media: Mean displacement, plume spreading, and uncertainty, *Water Resour. Res.*, **30**(3), 791-815.
- Chin, D.A. and Wang, T., 1992, An investigation of the validity of first order stochastic dispersion theories in isotropic porous media, *Water Resour. Res.*, **28**(6), 1531-1542.
- Cushman, J.H., 1990, *Dynamics of Fluids in Hierarchical Porous Media*, Academic. San Diego, Calif.
- Cushman, J.H., Hu, B.X., and Ginn, T.R., 1994, Nonequilibrium statistical mechanics of preasymptotic dispersion, *J. Stat. Phys.*, **75**, 859-878.
- Cvetkovic, V., Cheng, H., and Wen, X.H., 1996, Analysis of non-linear effects on tracer migration in heterogeneous aquifers using Lagrangian travel time statistics, *Water Resour. Res.*, **32**(6), 1671-1680.
- Dagan, G., 1984, Solute transport in heterogeneous porous formations, *J. Fluid Mech.*, **145**, 151-177.
- Dagan, G., 1987, Theory of solute transport by groundwater. *Ann. Rev., Fluid Mech.*, **19**, 183-215.
- Dagan, G., 1988, Time-dependent macrodispersion for solute transport in anisotropic heterogeneous aquifers, *Water Resour. Res.*, **24**(9), 1491-1500.
- Dagan, G., 1989, *Flow and Transport in Porous Formations*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, Germany.
- Dagan, G., 1990, Transport in heterogeneous porous formations: Spatial moments, ergodicity, and effective dispersion, *Water Resour. Res.*, **26**(6), 1281-1290.
- Dagan, G., 1991, Dispersion of a passive solute in non-ergodic transport by steady velocity fields in heterogeneous formations, *J. Fluid Mech.*, **233**, 197-210.
- Dagan, G., 1994, An exact non-linear correction to transverse macrodispersivity for transport in heterogeneous formations, *Water Resour. Res.*, **30**(10), 2699-2705.
- Dagan, G., 1995, Comment on "Nonreactive and reactive solute transport in three-dimensional heterogeneous porous media: Mean displacement, plume spreading, and uncertainty" by T.D. Burr, E.A. Sudicky, and R.L. Naff., *Water Resour. Res.*, **31**(5), 1439-1441.
- Dentz, M., Kinzelbach, H., Attinger, S., and Kinzelbach, W., 2000a, Temporal behavior of a solute cloud in a heterogeneous porous medium, 1. Point-like injection, *Water Resour. Res.*, **36**, 3591-3604.
- Dentz, M., Kinzelbach, H., Attinger, S., and Kinzelbach, W., 2000b, Temporal behavior of a solute cloud in a heterogeneous porous medium, 2. Spatially extended injection, *Water Resour. Res.*, **36**, 3605-3614.
- Dentz, M., Kinzelbach, H., Attinger, S., and Kinzelbach, W., 2002, Temporal behavior of a solute cloud in a heterogeneous porous medium, 3. Numerical simulations, *Water Resour. Res.*, **38**, 23-1-13.
- Federico, V.D. and Zhang, Y.K., 1999, Solute transport in heterogeneous porous media with long-range correlations, *Water Resour. Res.*, **35**(10), 3185-3192.
- Garabedian, S.P., Leblanc, D.R., Gelhar, L.W., and Celia, M.A., 1991, Large-scale natural gradient tracer test in sand and gravel, Cape Code, Massachusetts. 2. Analysis of Spatial moments for a non-reactive tracer, *Water Resour. Res.*, **27**(5), 911-924.
- Gelhar, L.W. and Axness, C.L., 1983, Three-dimensional stochastic analysis of macrodispersion in aquifers, *Water Resour.*

- Res.*, **19**(1), 161-180.
- Gelhar, L.W., 1993, *Stochastic Subsurface Hydrology*, Prentice-Hall. EnglewoodCliffs, New Jersey.
- Hassan, A., Cushman, J.H., and Delleur, J.W., 1998, A Monte Carlo assessment of eulerian flow and transport perturbation models, *Water Resour. Res.*, **34**, 1143-1163.
- Hassan, A., Andricevic, R., and Cvetkovic, V., 2002, Evaluation of analytical solute discharge moments using numerical modeling in absolute and relative dispersion frameworks, *Water Resour. Res.*, **38**, 1-1-8.
- Hsu, K.C., Zhang, D., and Neuman, S.P., 1996, Higher-order effects on flow and transport in randomly heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.*, **32**(3), 571-582.
- Hubbard, S., Chen, J., Peterson, J., Majer, E.L., Williams, K.H., Swift, D.J., Mailloux, B., and Rubin, Y., 2001, Hydrogeological characterization of the South Oyster vacterial transport site using geophysical data, *Water Resour. Res.*, **37**(10), 2431-2456.
- Killey, R.W.D. and Molyaner, G.L., 1988, Twin lake tracer tests: setting methodology, and hydraulic conductivity distribution, *Water Resour. Res.*, **24**(10), 1585-1612.
- Kitanidis, P.K., 1988, Prediction by the method of moments of transport in a heterogeneous formation, *Jour. Hydrology*, **102**(1-4), 453-473.
- Mackay, D.M., Freyberg, D.L., Roberts, P.V., and Cherry, J.A., 1986, A natural gradient experiment in a sand aquifer, 1. Approach and overview of plume movement, *Water Resour. Res.*, **22**, 2017-2030.
- McDonald, M.G., and Harbaugh, A.W., 1988, A modular three-dimensional finite-difference groundwater flow model, *Techniques of Water-Resources Investigations* **06-A1**, USGS, 576.
- Neuman, S.P., Winter, C.L., and Newman, C.M., 1987, Stochastic theory of field-scale fickian dispersion in anisotropic porous media, *Water Resour. Res.*, **23**, 453-466.
- Neuman, S.P. and Zhang, Y.K., 1990, A quasi-linear theory of non-Fickian and Fickian sub-surface dispersion, 1, Theoretical analysis with application to isotropic media, *Water Resour. Res.*, **26**(5), 887-902.
- Pollock, D.W., 1994, User's guide for MODPATH/MODPATH-PLOT, Version 3: A particle tracking post-processing package for MODFLOW, The U.S. Geological Survey finite-difference ground-water flow model, *U.S. Geological Survey, Open-File Report*, **94-464**.
- Quinodoz, H.A.M. and Valocchi, J., 1990, Macrodispersion in heterogeneous aquifers: Numerical experiments. In: *Molyaner, G. (ed.) International conference and workshop on transport and mass exchange processes in sand and gravel aquifers: field and modeling studies*, AGU, Ottawa, Ont., Canada.
- Rajaram, H. and Gelhar, L.W., 1993, Plume scale-dependent dispersion in heterogeneous aquifer, 1. Lagrangian analysis in a stratified aquifer, *Water Resour. Res.*, **29**(9), 3249-3260.
- Robin, M.J.L., Gutjahr, A.L., Sudicky, E.A., and Wilson, J.L., 1993, Cross-correlated random field generator with direct Fourier transform method, *Water Resour. Res.*, **29**(7), 2385-2397.
- Rubin, Y. and Dagan, G., 1988, Stochastic analysis of boundaries effects on head spatial variability in heterogeneous aquifers, 1. Constant head boundary, *Water Resour. Res.*, **24**(10), 1689-1697.
- Rubin, Y. and Dagan, G., 1989, Stochastic analysis of boundaries effects on head spatial variability in heterogeneous aquifers, 2. Impervious boundaries, *Water Resour. Res.*, **25**(4), 707-712.
- Rubin, Y., 1990, Stochastic modeling of macrodispersion in heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.*, **26**(1), 133-141.
- Salandin, P., Rinaldo, A., and Dagan, G., 1991, A note on transport in stratified formations by flow tilted with respect to the bedding, *Water Resour. Res.*, **27**(11), 3009-3017.
- Salandin, P. and Fiorotto, V., 1993, Numerical simulations of non-ergodic transport in natural formations, *Proc. XXV IAHR*, Tokyo, 55-62.
- Selroos, J.O. and Cvetkovic, V., 1994, Mass flux statistics of kinetically sorbing solute in heterogeneous aquifer: Analytical solution and comparison with simulation, *Water Resour. Res.*, **30**(1), 63-69.
- Selroos, J.O., 1995, Temporal moments for non-ergodic solute transport in heterogeneous aquifers, *Water Resour. Res.*, **31**(7), 1705-1712.
- Sudicky, E.A. and Naff, R.L., 1995, Reply, *Water Resour. Res.*, **31**(5), 1443-1444.
- Tompson, A.F.B. and Gelhar, L.W., 1990, Numerical simulation of solute transport in three-dimensional, randomly heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.*, **25**(10), 2541-2562.
- Zhang, D. and Neuman, S.P., 1995, Eulerian-Lagrangian analysis of transport conditioned on hydraulic data, 3. Spatial moments, travel time distribution, mass flow rate, and cumulative release across a compliance surface, *Water Resour. Res.*, **31**(1), 65-75.
- Zhang, Q., 1995, Transient behavior of mixing induced by a random velocity field, *Water Resour. Res.*, **31**(3), 577-591.
- Zhang, Y.K. and Neuman, S.P., 1990, A quasi-linear theory of non-Fickian and Fickian sub-surface dispersion, 2. Application

to anisotropic media and the Borden site, *Water Resour. Res.*, **26**(5), 903-914.

Zhang, Y.K. and Chi, J.A., 1995, An evaluation of nonlinearity in spatial second moments of ensemble mean concentration in heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.* **31**(12), 2991-3005.

Zhang, Y.K., Zhang, D., and Lin, J., 1996, Non-ergodic solute transport in three-dimensional heterogeneous isotropic aquifers, *Water Resour. Res.*, **32**(9), 2955-2963.

Zhang, Y.K. and Zhang, D., 1997, Time-dependent dispersion of non-ergodic plumes in two-dimensional heterogeneous porous media, *J. Hydrologic Engineering*, **2**(2), 91-94.

Zhang, Y.K. and Federico, V.D., 1998, Solute transport in three-dimensional heterogeneous media with a Gaussian covariance of log hydraulic conductivity, *Water Resour. Res.*, **34**(8), 1929-

1934.

Zhang, Y.K. and Lin, J., 1998, Numerical simulations of transport of non-ergodic plumes in heterogeneous aquifers, *Stochastic Hydrology and Hydraulics*, **12**(2), 117-140.

Zhang, Y.K. and Federico, D.V., 2000, Nonergodic solute transport in heterogeneous porous media: Influence of multiscale structure, in Zhang, D., and Winter, C.L., eds., Theory, Modeling, and Field Investigation in Hydrogeology: A Special Volume in Honor of Shlomo P. Neuman's 60th Birthday: Boulder, Colorado, *Geological Society of America Special Paper*, **348**, 61-72.

Zhang, Y.K. and Seo, B., 2004, Numerical simulations of non-ergodic solute transport in three-dimensional heterogeneous porous media. *Stochastic Environmental Research and Risk Assessment*, **18**: 205-215.