

## 시간 모멘트식을 이용한 상분할추적자의 해석

조 종 수\*

가톨릭대학교 환경공학전공

## Partitioning Tracer Analysis with Temporal Moments Equations

Jong Soo Cho\*

Department of Environmental Engineering, the Catholic University of Korea, Bucheon Si, Kyunggi Do, Korea

### ABSTRACT

Partitioning tracers have been used with non-partitioning, inert tracer such Br<sup>-</sup>, for detection, estimation, and monitoring of remediation performance of the subsurface contaminated with nonaqueous phase liquids (NAPLs). Various partitioning tracers with different partition coefficients between aqueous and nonaqueous phase liquids can be used to determine the hydraulic conductivity, dispersivity, and residual mass of NAPLs in the subsurface soil matrices. Temporal moment-generating equations were used to analyze the field pilot-scale test results. The pilot-scale tests included conservative tracer tests and partitioning tracer tests. Analyses of nonaqueous phase liquid distribution and characteristics of groundwater bearing soil media were performed.

**Key words:** Partitioning tracer, NAPL, Temporal moment, Pilot test

### 1. 서 론

지하수층 내 토양에 존재하는 비수용성 액체(Nonaqueous phase liquid, NAPL) 오염물질의 분포와 체적을 알기 위해 상분할 추적자(Partitioning Tracer)를 사용할 경우, 2종 이상의 추적자를 오염원 유역에 1개 이상의 위치에 주입한 후 대수층을 흘러 보낸다. 선택된 추적자들은 상이한 분할 특성을 가지고 있어 상이한 지연 효과를 나타내게 되며, 결과적으로 추적자들이 관측정이나 취수정에 도달하는 평균 시간은 분할 흡착 상수와 지하수의 흐름 경로 상에 분포하는 NAPL의 포화도에 따라 결정된다. 대수층에서의 상분할 추적자 실험은 지하 토양에서 NAPL의 포화도와 분포를 추적하는데 사용되어 왔다(Jin et al., 1995). 이러한 추적자 실험에서 얻어진 결과는 대수층에 대한 지구화학적 정보와 NAPL의 분포 및 질량 추산에 사용되며 오염 지하수의 정화 공법 선정과 정화 작업의 경과에 대한 평가에 사용된다(Annable et al., 1995; Augustijn et al., 1994).

Jin et al.(1997)은 상분할 추적자 실험의 설계 지침서를 발표하였고, 이와 관련된 응용 특허도 도출된 바 있다(Pope and Jackson, 1999a, b; Pope and Jackson, 2001). 이 기술은 현장 내 화학적 세척과 관련해 사용된 경우가 다수 보고되었으며(Brooks et al., 2002; Falta et al., 1999; Jawitz et al., 1998a; Jawitz et al., 2000; Meinardus et al., 2002; Rao et al., 1997; Rao et al., 2000), 미국 유타주 소재 Hill 공군기지에서 NAPL에 의해 오염된 대수층 분석을 위해 응용되었다(Annable et al., 1995; Annable et al., 1998a, b). Dwarakanath et al.(1999)에 의하면 40군데 이상의 현장에서 NAPL 오염 지하수층의 분석에 상분할 추적자가 사용되었다고 보고하고 있으며, Nelson and Brusseau(1996), Hayden and Linnemeyer(1999), Young et al.(1999), Cain et al.(2000), Jawitz et al.(2000) 등도 이 기술을 활용한 Dense Nonaqueous Phase Liquid(DNAPL)의 추적자 시험에 대해 보고한 바 있다.

상분할 추적자의 성능에 대해 토양 및 지하수의 시료

\*Corresponding author : jangscho@catholic.ac.kr

원고접수일 : 2011. 1. 10 심사일 : 2011. 6. 7 게재승인일 : 2011. 6. 8  
질의 및 토의 : 2011. 8. 31 까지

분석과 같은 다른 전통적인 특성 분석 방법과 비교하여 평가된 바 있으며, 그 결과의 일치도는 양호하다고 판단되나, 평가 방법의 신뢰성과 상분할 추적자 실험 결과에 불확실성이 존재하고 있음이 보고되고 있다(Rao et al., 1997; Annable et al., 1998; Jawitz et al., 1998a, b; Falta et al., 1999; Meinardus et al., 2002). 이런 불확실성은 분할 추적자의 비선형성(Wise, 1999; Wise et al., 1999), 비정상 상태의 분할(Dwarakanath et al., 1999; Willson et al., 2000), 배경 추적자의 지연(Jin et al., 1997), 불량한 청소 효과(Jin et al., 1997; Nelson et al., 1999), 다양한 NAPL의 성분(Dwarakanath et al., 1999), 추적자의 분해(Annable et al., 1998b; Brusseau et al., 1999), 그리고 불균질한 NAPL의 분포(Nelson et al., 1999; Rao et al., 2000)등에 기인한다. 여러 보고서들(Rao et al., 2000; Brusseau et al., 1999)에서 상분할 추적자를 이용한 NAPL의 특성 분석의 신뢰성을 높이기 위해서는 더 많은 현장 규모의 증거 수집이 필요하다고 결론을 내리고 있다.

본 논문은 미국 Utah주 Hill 공군 기지에서 실시한 폐쇄된 실험 단위(test cell)에서 실시한 상분할 추적자 실험 결과에 대하여 시간 모멘트 방법(method of temporal moments)을 이용한 분석 결과를 제시한다. 파일럿 규모의 실험 단위에서 상분할 추적자와 비활성 추적자 (inert tracer)를 주입정을 통해 주입하고, 추출정에서 얻어진 추적자의 돌파 곡선들(breakthrough curves, BTC)을 시간 모멘트를 이용하여 분석을 시도하였다. 돌파 곡선의 분석을 통한 인자의 도출 방법으로는 CXTFIT(Toride et al., 1995)과 같은 곡선근사모델을 이용하는 방법이 많이 사용되고 있다. 국내에서는 실험실에서의 추적자 실험이 보고되고 있으나, 현장에서의 NAPL 오염 지하수에 대한 추적자 실험과 그에 대한 분석이 많이 보고되지 않고 있어(최경민 · 김현기, 2004, 김만일 외, 2004, 이성수 외, 2006), 본 연구결과는 국내 오염부지의 현장조사와 평가에 기여할 수 있을 것으로 판단된다.

## 2. 지하수 흐름에 따른 물질 전달과 시간 모멘트의 유도

지하수의 흐름 중에 이동상에 포함된 물질이 비이동상과 접촉하여 흡탈착을 할 경우 대체로 지하수의 흐름이 느리므로 흡탈착하는 물질간의 순간적인 평형을 가정할 수 있으며 대류-확산-흡탈착에 의한 물질 전달 방정식은 다음과 같이 된다.

$$L(C) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( D \frac{\partial C}{\partial x_j} \right) - v_i \left( \frac{\partial C}{\partial x_i} \right) = R \frac{\partial C}{\partial t} \quad (1)$$

여기서  $R$ 은 지연 상수 (retardation factor)이다.  $v_i$ 는 방향의 속도 벡터이고  $D_{ij}$ 는 확산 계수 matrix이다. 적용 가능한 경계 조건은

$$C = 0, \frac{\partial C}{\partial \eta} = 0, C - \frac{D_{\eta\eta}}{v_\eta} \frac{\partial C}{\partial \eta} = 0 \quad (2)$$

여기서  $\eta$ 는 경계와 수직 방향을 뜻하며, 위 경계 조건식들은 농도가 0, 농도 구배가 0, 그리고 flux가 0의 경우를 의미한다.

실험실에서의 column 실험이나추적자를 주입하고 관측정이나 추출정에서 주기적으로 시료를 채취해서 추적자의 돌파 곡선(breakthrough curve)을 얻을 수 있으며 돌파 곡선 분석에 시간 모멘트 방법을 이용할 경우 물질 전달 인자들을 구할 수 있다(Goltz and Roberts, 1987). Harvey and Gorelick(1995)은 불균질한 지하수층에서 다양한 초기 조건과 경계 조건을 갖는 지하수 흐름에 따른 물질의 농도에 대한 시간 모멘트를 구하는 효과적인 방법을 제시하였다. 그들의 방법은 그 전의 연구자들(Aris, 1958; Kusera, 1965; Schnider and Smith, 1968; Valocchi, 1985; Valocchi, 1986; Parker and Valocchi, 1986; Goltz and Roberts, 1987; Sardin et al., 1991)이 발표한 연구 결과의 연장선 상에 있었다.

### 2.1. 시간 모멘트의 유도

특정 지점에서의 물질 농도의  $n$ 차 시간 모멘트는 다음과 같이 정의된다.

$$m_n = \int_0^\infty t^n C dt \quad (3)$$

여기서  $C$ 는 농도이고  $t$ 는 시간을 나타낸다. 함수의 Laplace 변형의 정의에 의하면

$$\bar{C} = \int_0^\infty e^{-st} C dt \quad (4)$$

다음과 같은 관계식이 얻어진다.

$$m_n = (-1)^n \left( \frac{\partial^n \bar{C}}{\partial s^n} \right)_{s \rightarrow 0} \quad (5)$$

여기서  $\bar{C}$ 는 시간에 대한 농도의 Laplace 변형이며  $s$ 는 Laplace 인자다. 이 정의식을 직접적으로 물질 전달식에 적용하면 시간 모멘트의 미분 방정식을 구할 수 있다.

물질 전달식(1)을 Laplace 변환하면 아래와 같다.

$$L(\bar{C}) = sRC - RC_o \tag{6}$$

여기서  $R$  과  $C_o$  (초기 조건)는 공간의 함수이다. 경계 조건의 Laplace 변환은 다음과 같다.

$$\bar{C} = 0, \frac{\partial \bar{C}}{\partial \eta} = 0, \bar{C} - \frac{D_{\eta\eta}}{v_\eta} \frac{\partial \bar{C}}{\partial \eta} = 0 \tag{7}$$

식 (4)에 대해  $n$ 이 0일 때를 대입하면 식(6)의 양변은 0차 모멘트의 식으로 표현이 된다.

$$L(m_o) = -RC_o \tag{8}$$

경계 조건은 식(7)로부터 다음과 같이 구할 수 있다.

$$m_o = 0, \frac{\partial m_o}{\partial \eta} = 0, m_o - \frac{D_{\eta\eta}}{v_\eta} \frac{\partial m_o}{\partial \eta} = 0 \tag{9}$$

같은 방법으로 1차 모멘트식은

$$L(m_1) = -Rm_o \tag{10}$$

경계 조건은 같은 방법으로 구해진다.

$$m_1 = 0, \frac{\partial m_1}{\partial \eta} = 0, m_1 - \frac{D_{\eta\eta}}{v_\eta} \frac{\partial m_1}{\partial \eta} = 0 \tag{11}$$

같은 방법으로  $n$ 차 모멘트식은

$$L(m_n) = -Rm_{n-1} \tag{12}$$

$$m_n = 0, \frac{\partial m_n}{\partial \eta} = 0, m_n - \frac{D_{\eta\eta}}{v_\eta} \frac{\partial m_n}{\partial \eta} = 0 \tag{13}$$

다음과 같이 normalized moment를 정의해 준다.

$$\mu_j = \frac{m_j}{m_o} \tag{14}$$

지하수의 흐름에 따른 물질 전달식을 Laplace 변환에 의해 시간 모멘트식으로 전환할 경우 정상 상태(steady state)의 물질 이동식과 같은 형태를 가지게 된다. 시간 모멘트식은 현실적 시간과 공간에서의 계산이 필요치 않으며, 단지 Laplace 공간에서 계산이 요구된다. 여기서 얻어지는 처음 3차의 시간 모멘트(0차, 1차, 2차)는 전체 질량, 평균 도달 시간, 그리고 확산에 의한 분산을 나타낸다. 흡탈착의 순간 평형의 여러 가지 형태의 이동상과 비이동상간의 물질 이동이나 간단한 물질 반응의 경우 역시 시

간 모멘트식으로 변형할 경우 정상 상태의 물질 전달식과 같은 형태가 되며 정상 상태의 해석적 또는 수치적 해에 의해 간단히 구해 줄 수 있다. 다음 표(Table 1)는 Goltz and Robert(1987)가 발표한 3차원 공간의 시간 모멘트 해석적 해의 예를 포함하고 있다.

일차원 공간 경우의 시간 모멘트는 다음과 같이 정리된다.

$$m_0 = \frac{M}{V}, \mu_1 = \frac{l}{v'} + \frac{2D_x'}{v'^2}, \mu_2 = \frac{l^2}{v'^2} + \frac{6D_x'l}{v'^3} + \frac{12D_x'^2}{v'^4} \tag{15}$$

### 3. 시간 모멘트식을 이용한 현장 Data 분석

추적자 실험을 할 경우 보통 2가지 이상의 추적자를 사용하여 실험을 수행한다. Bromide나 chloride와 같이 흡착이나 화학 반응을 하지 않는 비활성 추적자(inert

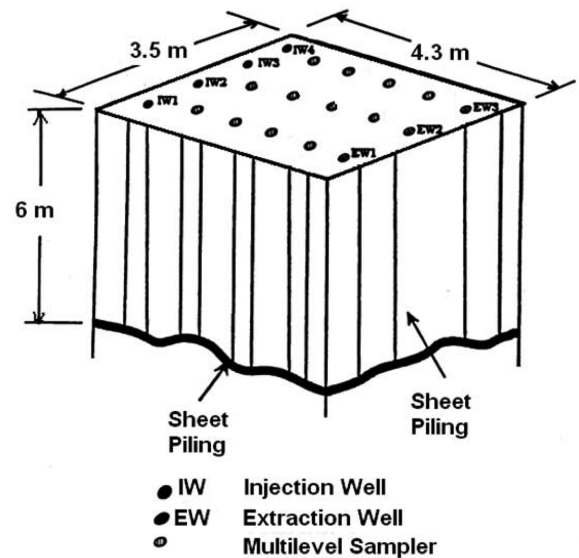


Fig. 1. Pilot Scale Test Plot in Hill Air Force Base, Utah, USA.

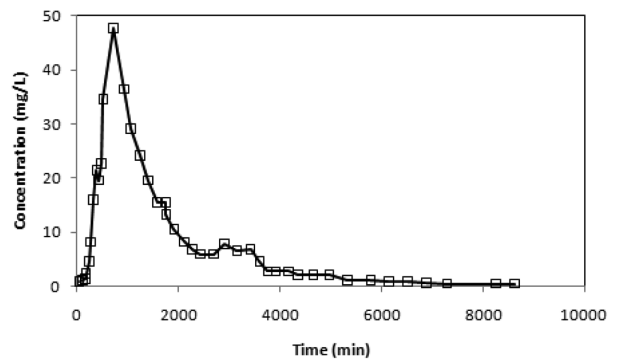


Fig. 2. Breakthrough curve of Br- at extraction well EW1.

tracer)와 화학 반응을 하거나(reactive tracer) 상분할 흡·탈착을 하는 추적자(partitioning tracer)를 사용하여 수행한다. 상분할 흡·탈착 추적자와 비활성 추적자의 도출 실험을 동시에 수행하여 얻어지는 돌과 곡선들을 소수의 저차원의 시간 모멘트식에 의해 분석할 수 있다.

본 논문에서는 저자가 현장에서 pilot scale 규모로 수행했던 상분할 흡착 추적자와 비활성 추적자의 돌과 곡선에 대해 0차, 1차, 2차 모멘트를 구하여 실험 장치 내 토양 중의 확산 계수와 NAPL의 분포를 추정된 결과를 제시하였다. 미국 Utah주의 Hill 공군 기지에서 파일럿 규모의 실험을 실시하였으며 결과는 Pope and Sepehmoori (1994)에 의해 보고되었다. 이 실험이 행하여진 지역의 지하에는 NAPL로 오염된 토양과 지하수가 존재하였다. NAPL 오염물은 TCA, TCE, PCE등과 여러 가지 heavy hydrocarbon의 혼합물이었다. 실험에 사용된 파일럿 규모의 실험 장치는 다음 그림과 같다.

비분할 비흡착 추적자의 경우  $R = 1$ 이 되고 이 경우 얻어지는 0차, 1차, 2차의 모멘트는 이 추적자의 총량, 이동 속도, 확산 계수를 구하는데 사용되었다. 상분할 흡착 추적자의 경우 지연 상수  $R$ 은 다음과 같이 정의 된다.

$$R = 1 + \frac{K_{mw}S_n}{(1-S_n)} = \frac{M_{1pt}}{M_{1n}} \quad (16)$$

$$S_n = \frac{R-1}{K_{mw}+R-1} \quad (17)$$

여기서  $K_{mw}$ 는 상분할 추적자의 NAPL-water 분배 상수이고,  $S_n$ 은 NAPL의 포화도이며,  $M_{1pt}$ 은 상분할 추적자의 1차 시간 모멘트,  $M_{1n}$ 은 비활성 추적자의 1차 시간 모멘트이다.  $K_{mw}$ 값은 현장에서 취한 NAPL 시료를 실험실에서 batch

및 column 실험에 의해 구하였다(Pope and Sepehmoori, 1994). 현장 실험에 사용된 비활성 추적자는  $Br^-$ 이며 KBr 형태로 공급되었다. 상분할 추적자의 NAPL-water 분배 상수는 Table 1과 같다.

실험에서 얻어진 결과 중  $Br^-$ 의 돌과 곡선(BTC)은 Fig. 3, 4, 5와 같고 2,2-Dimethyl-3-Pentanol의 돌과 곡선은 Fig. 6, 7, 8과 같다.

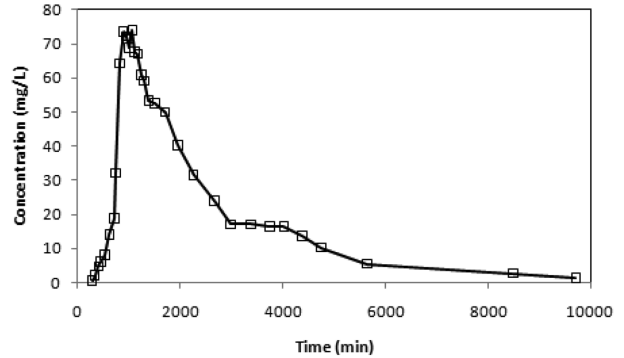


Fig. 3. Breakthrough curve of  $Br^-$  at extraction well EW2.

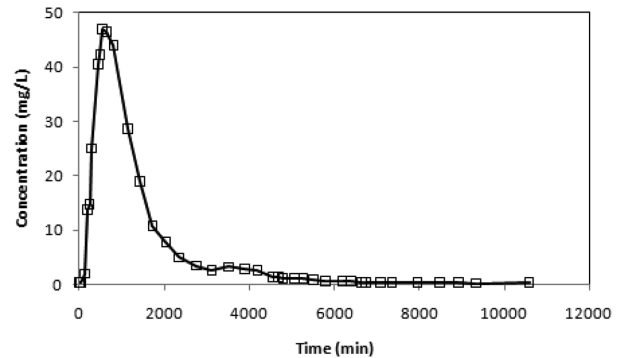


Fig. 4. Breakthrough curve of  $Br^-$  at extraction well EW3.

Table 1. Analytical solutions of temporal moments in 3-dimensional space

	Transport equation	0th, 1st, and 2nd temporal moments
	$R \frac{\partial C}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \frac{\partial C}{\partial x}$	$m_0 = \frac{F}{G} \exp(-G[v'/2D'_x]^{1/2})$
Goltz and Robert (1987)	Initial condition $C(x, y, z, 0) = M\delta(x)\delta(y)\delta(z)$	$\mu_1 = \frac{G(D'_x)^{1/2}}{v'}$
	Boundary conditions $C(\pm\infty, y, z, t) = 0$ $C(x, \pm\infty, z, t) = 0$ $C(x, y, \pm\infty, t) = 0$	$\mu_2 = \frac{G^2 D'_x}{v'^2} + \frac{2GD'_x}{v'^3}$

$\delta(x)$  = delta (pulse) function,  $v' = v/R$ ,  $D'_x = D_x/R$ ,  $D'_y = D_y/R$ ,  $D'_z = D_z/R$ ,

$$F = \frac{Me^{xv'/2D'_x}}{4\pi(D'_x D'_y D'_z)^{1/2}}, G = \left( \frac{x^2}{D'_x} + \frac{y^2}{D'_y} + \frac{z^2}{D'_z} \right)^{1/2}$$

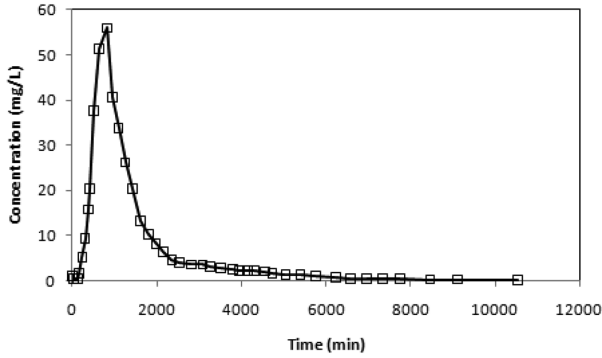


Fig. 5. Breakthrough curve of 2,2-Dimethyl-3-Pentanol at extraction well EW1.

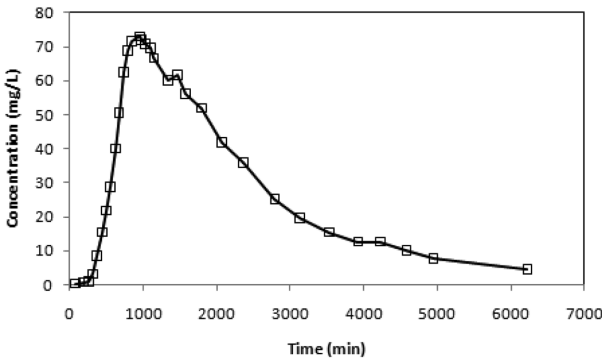


Fig. 6. Breakthrough curve of 2,2-Dimethyl-3-Pentanol at extraction well EW2.

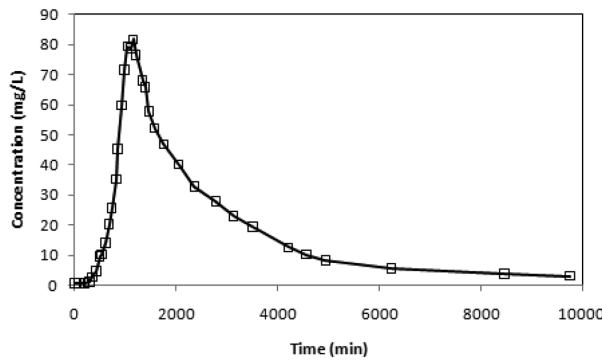


Fig. 7. Breakthrough curve of 2,2-Dimethyl-3-Pentanol at extraction well EW3.

토양 시료 분석 결과에서 공극율은 0.2, 현장에서의 양수 시험 결과에서 수리 계수는 0.57 cm/min을 얻었다. 이 값들이 분석에 사용되었다.

3.1. 실험 결과 분석

비활성 추적자와 상분할 추적자의 돌파 곡선을 비교해

Table 2. NAPL-water partition coefficients of partitioning tracers

Tracer	$K_{nw}$	Tracer	$K_{nw}$
Ethanol	0.1	2,2-Dimethyl-3-Pentanol	12.9
n-Pentanol	1.4	n-Heptanol	20.0
n-Hexanol	4.6	n-Octanol	97.0

Table 3. Zeroth, first and second moments at extraction wells

Br <sup>-</sup>			
Extraction Well	Zeroth Moment (g/min-cm <sup>3</sup> )	First Moment (g/min <sup>2</sup> -cm <sup>3</sup> )	Second Moment (g/min <sup>3</sup> -cm <sup>3</sup> )
EW1	$8.75 \times 10^{-3}$	26.9	$2.20 \times 10^5$
EW2	$9.98 \times 10^{-3}$	20.4	$1.41 \times 10^5$
EW3	$8.34 \times 10^{-3}$	18.4	$1.46 \times 10^5$
2,2-Dimethyl-3-Pentanol			
EW1	$2.51 \times 10^2$	119	$8.48 \times 10^5$
EW2	$2.77 \times 10^2$	110	$5.93 \times 10^5$
EW3	$3.22 \times 10^2$	177	$1.65 \times 10^6$

보면 상분할 추적자가 비활성 추적자에 비해 이동이 많이 지연됨을 알 수 있었다. 상분할 추적자의 회수율은 95%에 달했다. 나머지 5%는 돌파 곡선의 tailing 현상에 의한 손실이었다. 현장의 기후 조건 등 여러 정황 때문에 추적자의 장시간의 테일링 현상을 추적하기 위한 장시간에 걸쳐 시료를 채취하는데 한계가 있었다. 이런 장시간의 테일링이 일어나는 추적자의 문제는 분석의 불확실성에 기여하게 된다(Das et al., 2005). 이런 테일링에 대해 외삽 모사가 사용되는 경우도 있으나 본 논문의 분석에는 사용하지 않았다. 추출정(EW1, EW2, EW3)의 돌파 곡선에서 얻어진 0차, 1차, 2차 모멘트값은 Table 2에 나열되어 있다. 시간 모멘트 값들은 trapezoidal rule integration 방법(Haas, 1996)으로 구하였다.

Br<sup>-</sup>의 2차 모멘트 결과에서 얻어진 평균 확산 계수는 9300 cm 이었으며 NAPL의 포화도는 평균 0.28이었다. 여기서 얻어진 값은 주입정과 추출정 사이에 분포하는 평균값으로 자세한 분포도를 얻기 위해서는 여러 개의 다층 시료 채취정을 설치하여 각 시료 채취정의 돌파 곡선을 분석할 경우 가능하다(Annable et al., 1998b).

4. 결 론

대류-확산-흡착에 의한 지하수 흐름 중의 물질 전달식에 대한 Laplace 변형에 의한 시간 모멘트식을 유도하였다. 보편적인 3차원 해석적 해에서 실험실에서의 column 실험 자료의 분석에 필요한 1차원 해석적 해까지 정리하였다.

실제 현장에서 파일럿 규모로 실시한 상분할 흡착 추적자와 비활성(비분할 비흡착) 추적자의 실험 결과를 모멘트식을 이용하여 분석하였다. 결과는 현장에서 얻어진 추출정에서의 돌과 곡선 분석에 이용되었으며 주입정과 추출정 사이의 평균 NAPL 포화율을 산출할 수 있었다.

일정 위치에서의 시간에 따른 물질 농도 변화 곡선 또는 돌과 곡선의 해석에 시간 모멘트식을 이용할 경우 곡선 근사법을 이용한 인자의 산출보다 간단하다. 시간 모멘트식은 추적자 실험 결과 분석에 매우 유용한 도구로 이용될 수 있다.

## 사 사

본 연구는 가톨릭대학교 교비연구비로 수행 되었으며 이에 감사를 드립니다.

## 참 고 문 헌

김만일, 김형수, 정교철, 2004, 지하수 검증을 위한 새로운 유전율 추적자 시험법의 개발, *the Journal of Engineering Geology*, **14**(3), 301-311.

이성수, 조상연, 박준범, 2006, BTEX와 액상안 분배성 알코올류 추적자의 분배특성 연구, 한국지하수토양환경학회 춘계학술발표회, 동국대학교, 서울, p. 115-118.

최경민, 김헌기, 2004, 토양내 NAPL과 공기접촉 NAPL의 측정을 위한 분별 NAPL 분배 추적자 기술의 개발, 한국지하수토양환경학회 추계학술발표회, 전주대학교, 전주, p. 29-32.

Annable, M.D., Rao P.S.C., Hatfield, K., Graham, W.D., and Wood, A.L., 1995, Use of partitioning tracers for measuring residual NAPL distribution in a contaminated aquifer: Preliminary results from a field-scale test, in *Proceedings of the 2nd Tracer Workshop*, The University of Texas, Austin, TX, p. 77-85.

Annable, M.D., Jawitz, J.W., Rao, P.S.C., Dai, D.P., Kim, H., and Wood, A.L., 1998, Field evaluation of interfacial and partitioning tracers for characterization of effective NAPL-water contact areas, *Ground Water*, **36**(3), 495-502.

Annable, M.D., Rao, P.S.C., Hatfield, K., Graham, W.D., Wood, A.L., and Enfield, C.G., 1998, Partitioning tracers for measuring residual NAPL: field-scale test results, *Journal of Environmental Engineering*, **124**(6), 498-503.

Aris, R., 1958, On the dispersion of linear kinematic waves, *Proc. Royal Society of London*, Series A vol. **245**, 268-277.

Augustijn, D.C.M., Jessup, R.E., Rao, P.S.C., and Wood, A.L., 1994, Remediation of contaminated soils by solvent flushing, *Journal of Environmental Engineering*, **120**(1), 42-57.

Brooks, M.C., Annable, M. D., Rao, P.S.C., Hatfield, K., Jawitz, J.W., Wise, W.R., Wood, A.L., and Enfield, C.G., 2002, Controlled release, blind tests of DNAPL characterization using partitioning tracers, *Journal of Contaminant Hydrology*, **59**, 187-210.

Brusseau, M.L., Nelson, N.T., and Cain, R.B., 1999, The partitioning tracer method for in-situ detection and quantification of immiscible liquids in the subsurface, In Brusseau, M.L., Sabatini, D.A., Gierke, J.S., Annable, M.D. (Eds.), *Innovative Subsurface Remediation, Field Testing of Physical, Chemical, and Characterization Technologies*. ACS Symposium Series 725, American Chemical Society, Washington, DC, 208-225.

Cain, R.B., Johnson, G.R., McGray, J.E., Blanford, W.J., and Brusseau, M.L., 2000, Partitioning tracer tests for evaluating remediation performance, *Ground Water*, **38**(5), 752-761.

Das, B.S., Wrath, J.M., Kluitenberg, G.J., Langner, H.M., Shous, P.J., and Inskip, W.P., 2005, Evaluation of mass recovery impacts on transport parameters using Least-squares optimization and moment analysis, *Soil Science Society of America Journal*, **69**, 1209-1216.

Dwarakanath, V., Deeds, N., and Pope, G.A., 1999, Analysis of partitioning interwell tracer tests, *Environmental Science and Technology*, **33**(21), 3829-3836.

Falta, R.W., Lee, C.M., Brame, S.E., Roeder, E., Coates, J.T., Wright, C., Wood, A.L., and Enfield, C.G., 1999, Field test of high molecular weight alcohol flushing for subsurface nonaqueous phase liquid remediation, *Water Resources Research*, **35**(7), 2095-2108.

Goltz, M.N., and Roberts, P.V., 1987, Using the method of moments to analyze three-dimensional diffusion-limited solute transport from temporal and spatial perspectives, *Water Resources Research*, **23**(8), 1575-1585.

Harvey, C.F., and Gorelick, S.M., 1995, Temporal moment-generating equations: Modeling transport and mass transfer in heterogeneous aquifers, *Water Resources Research*, **31**(8), 1895-1911.

Haas, C.N., 1996, Moment Analysis of Tracer Experiments, *Journal of Environmental Engineering*, **122**(12), 1121-1123.

Hayden, N.J. and Linnemeyer, H.C., 1999, Investigation of partitioning tracers for determining coal tar saturation in soils. In: Brusseau, M.L., Sabatini, D.A., Gierke, J.S., Annable, M.D. (Eds.), *Innovative Subsurface Remediation, Field Testing of Physical, Chemical, and Characterization Technologies*. ACS Symposium Series 725. American Chemical Society, Washington, p. 208-225.

Jawitz, J.W., Annable, M.D., Rao, P.S.C., and Rhue, R.D., 1998a, Field implementation of a Winsor type I surfactant/alcohol mixture for in situ solubilization of a complex LNAPL as a single-phase microemulsion, *Environmental Science and Technology*, **32**(4), 523-530.

- Jawitz, J.W., Annable, M.D., and Rao, P.S.C., 1998b, Characterizing the spatial distribution of non-aqueous phase contaminants using partitioning tracers and the method of moments, *International Conference and Special Seminars on Groundwater Quality: Remediation and Protection*, IAHS, Tubingen, Germany, p. 422-425.
- Jawitz, J.W., Sillan, R.K., Annable, M.D., Rao, P.S.C., and Warner, K., 2000, In-situ alcohol flushing of a DNAPL source zone at a dry cleaner site, *Environmental Science and Technology*, **34**(17), 3722-3729.
- Jin, M., Delshad, M., Dwarakanath, V., Mckinney, D., Pope, G., Sepehmoori, K., and Tilburg, C., 1995, Partitioning tracer for detection, estimation, and remediation performance assessment of subsurface on aqueous phase liquid, *Water Resources Research*, **31**, 1201-1211.
- Jin, M., Butler, G.W., Jackson, R.E., Mariner, P.E., Pickens, J.F., Pope, G.A., Brown, C.L., and McKinney, D.C., 1997, Sensitivity models and design protocols for partitioning tracer tests in alluvial aquifers, *Ground Water*, **35**(6), 964-972.
- Kusera, E., 1965, Contribution to the theory of chromatography: Linear nonequilibrium slution chromatography, *Journal of Chromatography*, **19**, 237-248.
- Meinardus, H.W., Dwarakanath, V., Ewing, J., Hirasaki, G.J., Jackson, R.E., Jin, M., Ginn, J.S., Londergan, J.T., Miller, C.A., and Pope, G.A., 2002, Performance assessment of NAPL remediation in heterogeneous alluvium, *Journal of Contaminant Hydrology*, **54**(3-4), 173-193.
- Nelson, N.T. and Brusseau, M.L., 1996, Field study of the partitioning tracer method for detection of dense nonaqueous phase liquid in a trichloroethene-contaminated aquifer, *Environmental Science and Technology*, **30**(9), 2859-2863.
- Nelson, N.T., Ostrom, M., Wietsma, T.W., and Brusseau, M.L., 1999, Partitioning tracer method for the in situ measurement of DNAPL saturation: influence of heterogeneity and sampling method, *Environmental Science and Technology*, **33**(22), 4046-4053.
- Parker, J.C. and Valocchi, A.J., 1986, Constraints on the validity of equilibrium and first-order kinetic transport models in structured soils, *Water Resources Research*, **22**(3), 399-407.
- Pope, G.A. and Sepehmoori, K., 1994, NAPL partitioning interwell tracer test in OU1 test cell at Hill Air Force Base, Utah, Final report to Mantech Environmental Research Services Corporation under Project Order No. 94RC0251, The University of Texas, Austin, TX.
- Pope, G.A. and Jackson, R.E., 1999a, Characterization of organic contaminants and assessment of remediation performance in subsurface formations. US Patent 5,905,036, US Patent Office, Washington, DC.
- Pope, G.A. and Jackson, R.E., 1999b, Characterization of organic contaminants and assessment of remediation performance in subsurface formations. US Patent 6,003,365, US Patent Office, Washington, DC.
- Pope, G.A. and Jackson, R.E., 2001, Characterization of organic contaminants and assessment of remediation performance in subsurface formations. US Patent 6,321,595, US Patent Office, Washington, DC.
- Rao, P.S.C., Annable, M.D., Sillan, R.K., Dai, D., Hatfield, K.H., Graham, W.D., Wood, A.L., and Enfield, C.G., 1997, Field-scale evaluation of in-situ cosolvent flushing for enhanced aquifer remediation, *Water Resources Research*, **33**(12), 2673-2686.
- Rao, P.S.C., Annable, M.D., and Kim, H., 2000, NAPL source zone characterization and remediation technology performance assessment: recent developments and applications of tracer techniques, *Journal of Contaminant Hydrology*, **45** (1-2), 63-78.
- Sardin, M.D., Schneider, D., Leij, F.J., and van Genuchten, M.Th., 1991, Modeling the nonequilibrium transport of linearly interacting solutes in porous media: A review, *Water Resources Research*, **27**(9), 2287-2307.
- Schnider, P. and Smith, J.M., 1968, Adsorption rate constants from chromatography, *AIChE Journal*, **14**(5), 762-771.
- Toride, N., Leij, F.J., and van Genuchten, M.Th., 1995, The CXTFIT code for estimating transport parameters from laboratory of field tracer experiments, Research Report No. 137, U.S. Salinity Lab., USDA-ARS, Riverside, CA.
- Valocchi, A.J., 1985, Validity of the local equilibrium assumption for modeling sorbing solute transport through homogeneous soils, *Water Resources Research*, **21**(7), 808-820.
- Valocchi, A.J., 1986, Effect of radial flow on derivations from local equilibrium during sorbing solute transport through homogeneous soils, *Water Resources Research*, **22**(12), 1693-1701.
- Willson, C.S., Pau, O., Pedit, J.A., and Miller, C.T., 2000, Mass transfer rate limitation effects on partitioning tracer tests, *Journal of Contaminant Hydrology*, **45**(1-2), 79-97.
- Wise, W.R., 1999, NAPL characterization via partitioning tracer tests: quantifying effects of partitioning nonlinearities, *Journal of Contaminant Hydrology*, **36**(1-2), 167-183.
- Wise, W.R., Dai, D., Fitzpatrick, E.A., Evans, L.W., Rao, P.S.C., and Annable, M.D., 1999, Non-aqueous phase liquid characterization via partitioning tracer tests: a modified Langmuir relation to describe partitioning nonlinearities, *Journal of Contaminant Hydrology*, **36**(1-2), 153-165.
- Young, C.M., Jackson, R.E., Jin, M., Londergan, J.T., Mariner, P.E., Pope, G.A., Anderson, F.J., and Houk, T., 1999, Characterization of a TCE DNAPL zone in alluvium by partitioning tracers, *Ground Water Monitoring and Remediation*, **19**(1), 84-94.