

茨城県土浦市木田余・真鍋地区における 有機塩素化合物による地下水汚染

Groundwater Contamination by Chlorinated Organic Compounds in Tsuchiura City

谷山 稔*・田瀬 則雄**

Minoru TANIYAMA and Norio TASE

I はじめに

1982年度の環境庁の地下水汚染実態調査により、トリクロロエチレン(TCE)、テトラクロロエチレン(PCE)、1, 1, 1-トリクロロエタン(MCあるいはTCA)などの有機塩素化合物による地下水汚染が確認された(早川, 1988)。また調査が進むにつれてその汚染は広域にわたっていることが判明し、地下水汚染に対する関心が高まってきている(田瀬, 1988)。

これらの物質は、洗浄剤、溶剤としてハイテク産業、ドライクリーニング店など社会で広く使用されているが、発ガン性物質の疑いもあり、厚生省や環境庁から飲料水や排水についての基準値が出されている。

このような状況下で、有機塩素化合物の土壌や地下水中の存在状況や挙動についての室内実験(村岡ほか, 1986)や、全国的な汚染の広がりについての報告(ex. 中杉, 1986)は多くあるが、具体的な汚染地域での汚染機構の研究は数例(神野ほか, 1986; 水質汚濁研究協会, 1990など)を除いてほとんど行われていない。また今日きれいでおいしい水と注目され、重要な水資源である地下水を保全するためにも、汚染機構解明、防止対策について多くの研究が望まれている。

本研究では、身近に発生した土浦市木田余・真鍋

地区を研究対象地域とし、有機塩素化合物による地下水汚染の実態を明らかにし、調査・解析事例を紹介することを目的とする。

II 有機塩素化合物について

有機塩素化合物は、水と比較して密度が高く、粘性や表面張力が小さいため、水より土壤に浸透しやすい性質をもっている。一般的に水に溶けにくいですが、それでも飲料水の暫定基準(TCEは $30\mu\text{g}/\text{l}$ 、PCEは $10\mu\text{g}/\text{l}$ 、MCは $300\mu\text{g}/\text{l}$)と比べると基準値の数万倍も溶ける。さらに化学的に安定であるため、一度環境中に放出されると容易に分解されないことが知られている。

有機塩素化合物は、不燃性で、爆発の危険がなく、脱脂洗浄力が強く、蒸留回収によって再利用できる溶剤として金属部品、ICの洗浄、ドライクリーニングや塗料の溶剤などと多方面で使用されている。これらの消費量は年間数万~10万トンにまでいたっている。特に、毒性の最も弱いMCの消費量は増大している。

難分解性で微量汚染物質であり、クリーニング店、金属部品工場、染色工場など使用する事業所が身近に数多く存在するため、どこにでも発生する可能性のある地下水汚染につながっていると言える。

トリクロロエチレン等による汚染はすでに百数十

*筑波大学自然学類(現:筑波大学・院・環境科学研究科)

**筑波大学地球科学系

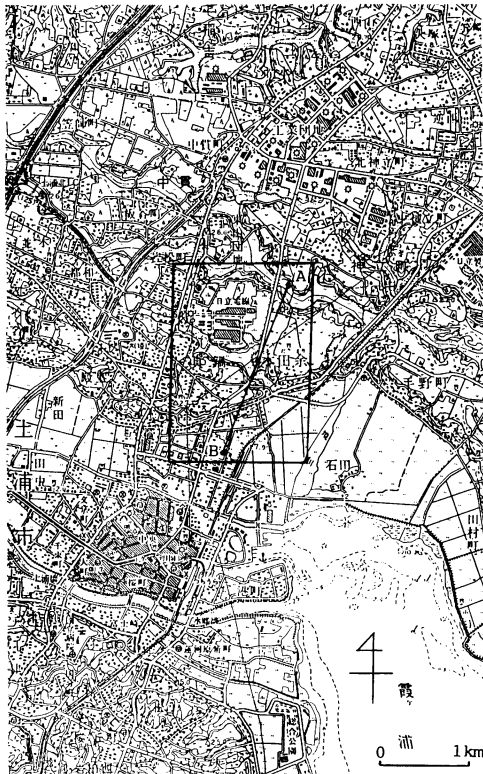
市町村で確認されている。一般的な傾向として、小規模だが発生件数の多いのはクリーニング店などの小事業所を汚染源とするもので、IC工場などハイテク産業関係のもの件数はあまり多くないが、大規模なものが多いのが特徴である（田瀬，1990）。

III 研究対象地域

本研究では1986年に有機塩素化合物による地下水汚染が問題となり、現在地下水をおもに雑用水として利用している土浦市木田余・真鍋地区を研究対象地域とした（第1図）。

1) 地形・地質

対象地域は、常総台地の一部で新治台地と呼ばれる洪積台地と、霞ヶ浦に面する沖積低地からなっている。台地の標高は約25mで、低地は5mである。また、台地では開析が進み、谷が対象地域の中央に



第1図 研究対象地域（国土地理院発行2.5万分の1「常陸藤沢」）

も入り込んでいる。

第1図に示すA-Bの地質断面図を第2図に示した。台地上では表層は関東ロームに覆われ、その下は常総層、木下層、上岩橋層と続き、それらはおもに砂層が堆積しており不連続な礫層や粘土層などはさんでいる。さらに標高約-10mには粘土層が連続しているが、低地ではきれている。その下層には連続性のある礫層（上泉層）が存在する。この礫層の下には比較的厚い砂層（藪層）が続いている（地質調査所，1988）。なおボーリングデータが少ないため、台地と低地の地質のつながりについては詳しくはわからない。

地下水については浅層地下水はあまり発達せず、深層地下水としては上泉層の礫層に存在する。標高-18~-28mにあたるこの帯水層は、有力な深層地下水の中でもっとも上位に位置するものである。この帯水層は一般家庭用、農業用、簡易水道用として広く利用されている。なお、対象地域のすぐ北側の台地では浅層地下水（宙水）が発達している。

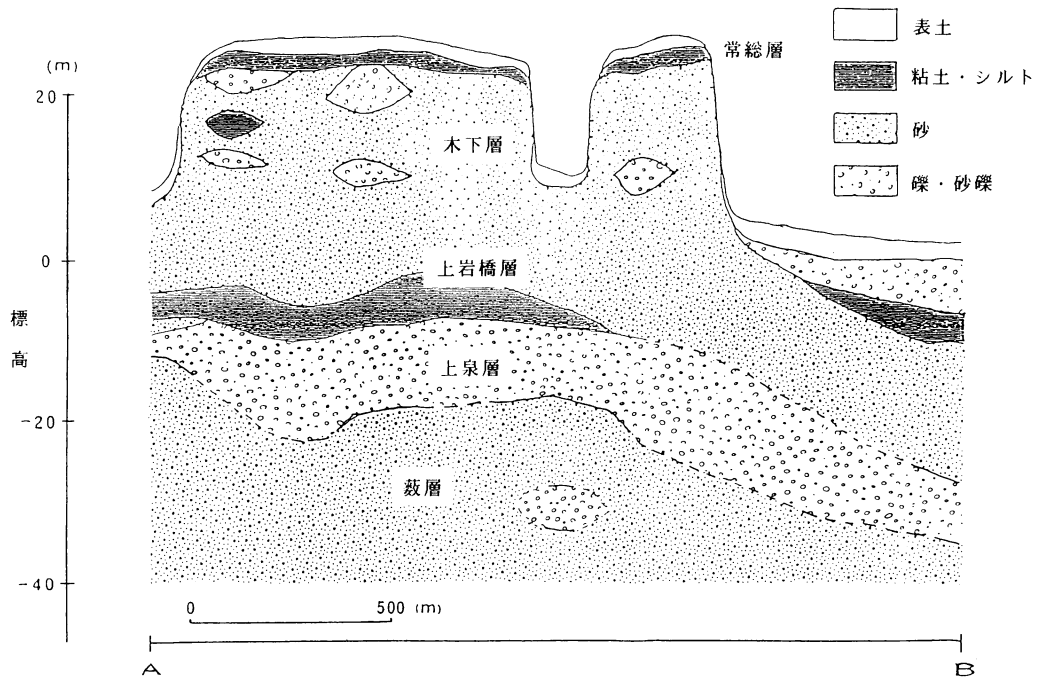
2) 土地利用

対象地域は主に宅地、畑に利用されている。すぐ北側の台地では、宙水を利用した古くからの集落が存在するが、対象地域は新興住宅地で荒地も散在しており、低地でも蓮田から住宅地へ変わっている。なお、対象地域の北西部にはH工場がある。周辺地域については、北部に神立工業団地があり、南西部には土浦市街が広がっている。また南東部には蓮田がその南の霞ヶ浦まで広がっている。

深層地下水は宅地で生活用水として使われるほか、蓮田などで農業用として使用されている。汚染が発見されるまで対象地域の家庭は深層地下水を飲料水として利用していた。しかし現在では、汚染された井戸を持つ家庭にはほとんど上水道が敷かれている。また最近では上下水道の整備とともに宅地化が進んでいる。

3) 地下水汚染の経緯

1986年に対象地域で初めてTCE等による地下水汚染が発見されたときの様子を書いた当時の新聞記事（朝日新聞，1986年11月1日）の内容をまとめると、次のようになる。



第2図 地質断面図 (第1図のA-B断面)

『土浦市木田余・真鍋地区では1986年に土浦市公害課による地下水調査でTCEなどによる地下水汚染が発見された。その結果によると両地区の440軒のうち、TCEは96軒で、PCEは125軒で暫定基準値を上回った。またTCEで214軒、PCEで52軒、MCで29軒の井戸において基準値以下で検出された。なお汚染された地下水の中にはTCE濃度が1.87mg/l、基準値の60倍にまでいたるものもあった。同市公害課によると、汚染地域はH工場の東西に広がっており、工場に近いほど高濃度である傾向を示しているという。このため同工場の立入検査を実施し、工場内の井戸水と周辺の土壌から塩素系溶剤が検出された。この調査で県は「H工場と汚染の因果関係を確定づけるものはないが、原因者であると想定できる状況にある」として、工場側に技術改善や汚染対策の行政指導を進めていく方針である。』

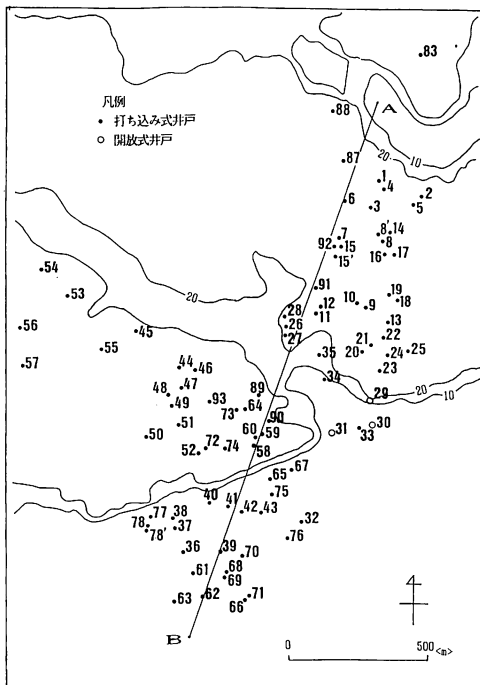
その後、工場側の補助もあり、汚染された井戸を持つ家庭は上水道に切り替えられており、現在井戸

水は風呂や洗濯などの雑用水として主に利用されている。県でも年に1回程度追跡調査を行ったり、住民に注意を促しているようである。しかし、汚染源が解明されていないこともあり、抜本的な対策は立てられていない。

IV 調査方法

1) 野外調査

第3図に示した地点において、1989年9月、10月、11月、そして一部 (No. 72~93) については12月に地下水の採水調査を行った。採水の際に、電気伝導度、水温、pHを随時測定した。No. 29, 30, 31以外の井戸は打ち込み式であったため、地下水位を測定することは不可能であった。打ち込み式井戸については井戸の深度、ボーリングデータ、今までの有機塩素化合物についての調査結果などを所有者から聞き取りにより調べた。



第3図 採水地点分布

2) 水質分析

TCE, PCE, MC 濃度分析には比較的操作が簡単で濃度計算の容易なn-ヘキサンによる溶媒抽出法を用いた。試料水中の TCE 等を n-ヘキサンで抽出し、抽出液の一定量をガスクロマトグラフ法によって定量分析した。試料は密封ガラス瓶で採取し、その日のうちに処理、分析を行った。なお、これらの物質の分析下限値は 1 $\mu\text{g}/\text{l}$ である。

Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , SiO_2 については、筑波大学分析センターのプラズマ発光分析装置により分析した。 Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} は、同センターのイオンクロマトグラフィにより分析した。 HCO_3^- は、4.3Bxとして塩酸滴定により現地にて求めた。

V 調査・分析結果

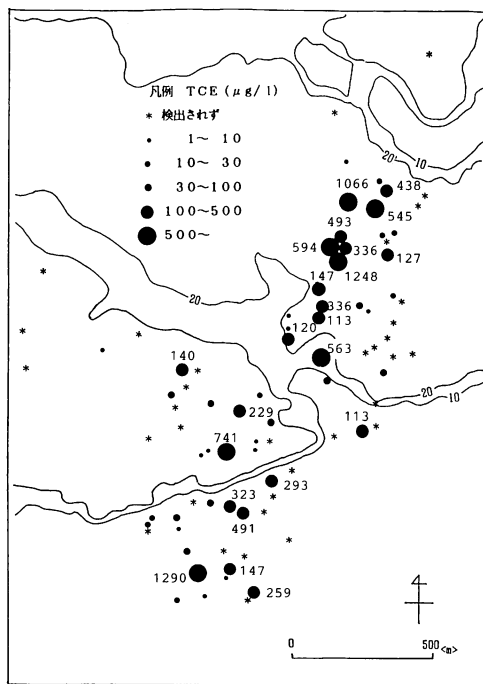
今回の調査では9月、10月、11月に TCE, PCE, MC 濃度を調べた。その結果、時期により濃度分布に大きな変化は見られなかった。そこでまず汚染概況を見るために11月の結果に12月に新たに調査した結

果を加えた91ヶ所の井戸についてみる。

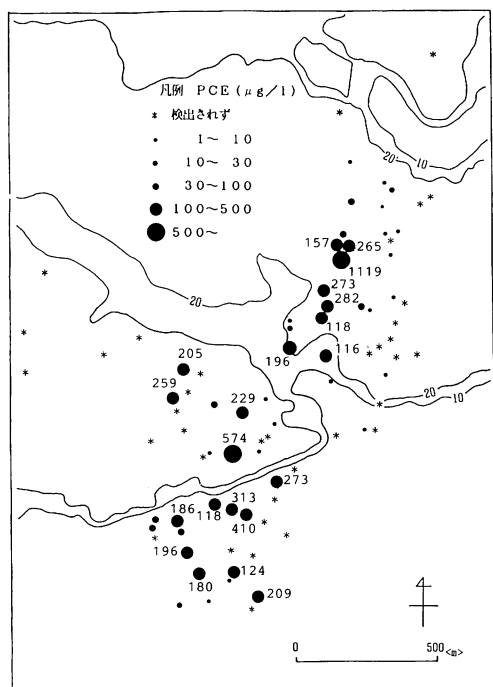
1) 汚染状況

TCE, PCE 濃度が基準値を超える井戸の数はそれぞれ31, 33本で、それらの割合は36%程度である。基準値を超えていないが、検出されている井戸も合わせれば50%以上が汚染されている。検出された中で濃度の最高値は、TCEで No. 61における1,290 $\mu\text{g}/\text{l}$, PCEで No. 15'における1,119 $\mu\text{g}/\text{l}$ である。MCについては7地点において検出されたが、最高は23.7 $\mu\text{g}/\text{l}$ であった。発見当時の詳細な分布状況は明らかでないが、大きくみれば汚染濃度は発見当時とあまり変わってないようである。

空間的分布を見るために TCE, PCE 濃度分布を図4, 5に示した。浅層地下水である No. 29, 30, 31には TCE 等は検出されなかった。深層地下水についてみると、主たる汚染井戸が長さ1.5km, 幅0.5kmで北東から南西方向に細長く分布している。なお、北側の台地ではH工場のすぐ東側は高濃度に汚染さ



第4図 TCEの濃度分布(1989年11~12月) 100 $\mu\text{g}/\text{l}$ 以上の井戸は濃度を示した



第5図 PCEの濃度分布(1989年11~12月) 100 $\mu\text{g}/\ell$ 以上の井戸は濃度を示した

れており、東側ほど濃度が低くなる傾向が見られる。

第6図にA-Bの断面におけるTCEの深度別濃度分布を示した。汚染状態をみると、高濃度で汚染されている井戸深の標高は約-10mから-20mに広がっている。それより深い井戸でも濃度は比較的低いものの汚染されており、汚染が確認された最も深いところは標高-60mである。すでに汚染はかなり深部にまで及んでいる。

汚染が確認されている地点について検出される3物質の組合せからみて、ほとんどの汚染井戸でTCE、PCEが同時に検出されている。同時に検出された井戸は46本で、26本が基準値を越えていた。MCが検出された井戸では3物質がすべて検出された。

TCEとPCEの濃度分布を比較すると、同時に2物質が検出された場合、比較的TCE濃度が高い地下水とPCE濃度が高い地下水が存在している。この違いを第7図に示した分布図でみると、汚染地域の東側(北側の台地)にTCE濃度が比較的高い地下水、

西側(谷付近から南)にPCE濃度が高い地下水が南北に連なっている。またその間にはTCEとPCE濃度とが同程度である地下水が存在する。これらの分布については汚染源と地下水の流れと深く関係すると考えられる。

2) 地下水の水質の空間的分布

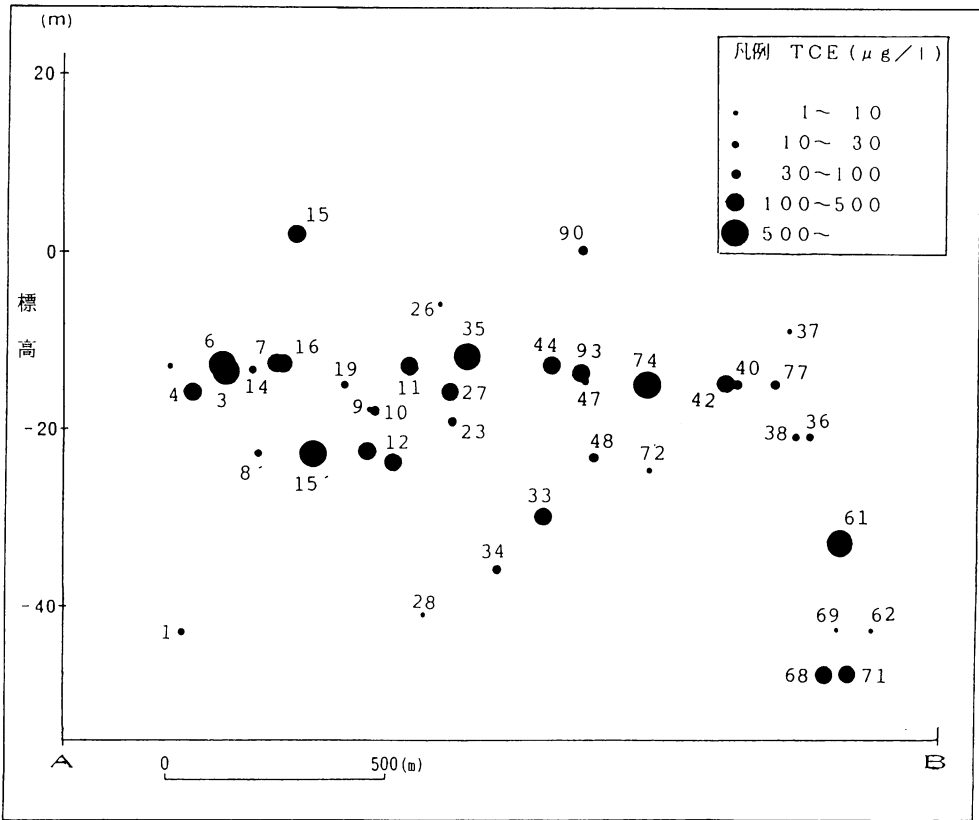
地下水の流れについてみるために井戸のストレーナの位置を中心に、電気伝導度、地下水の一般水質(ヘキサダイアグラムの形など)、硝酸イオン濃度、pHなどに注目して、地下水を第1表に示すように5つのグループに分類した。このうちIIIとVグループはより深い帯水層の地下水である。IグループとIIグループの区分では、Iでは硝酸イオン濃度がやや高く、IIでは重炭酸イオン濃度が高いのが特徴となっている。IVグループはIIの南側(下流側)に存在するが、IIよりは硝酸イオン濃度が増加している。

IIIグループとVグループの差は明瞭で、IIIは硝酸イオン濃度が原因は不明であるが非常に高く、Vは電導度も低く、硝酸イオンもほとんど検出されない。それぞれのグループの空間的分布を見る(第8図)と、すべてのグループについて北から南方向あるいは北東から南西方向へ細長く分布する傾向が見られる。

次にそれぞれのグループにおけるTCEとPCEの濃度の関係について第8図に示した。Iグループは比較的TCE濃度が高いI-aとTCE濃度が低いI-bとに分けられる。IIグループはTCE汚染が顕著なII-aとTCEとPCEとの濃度が同程度であるII-bとに分類できる。IVグループについてはTCE等の濃度が比較的高いVI-aと比較的低いVI-bとに分類できる。IIIとVグループはほとんど汚染されていない。このように地下水質が同じ場合でも汚染状況が変わるのは、地下水が流動するなかでTCE等の侵入や拡散(希釈)が行われていると考えられる。

3) 地下水の流れと汚染物質の侵入経路の推定

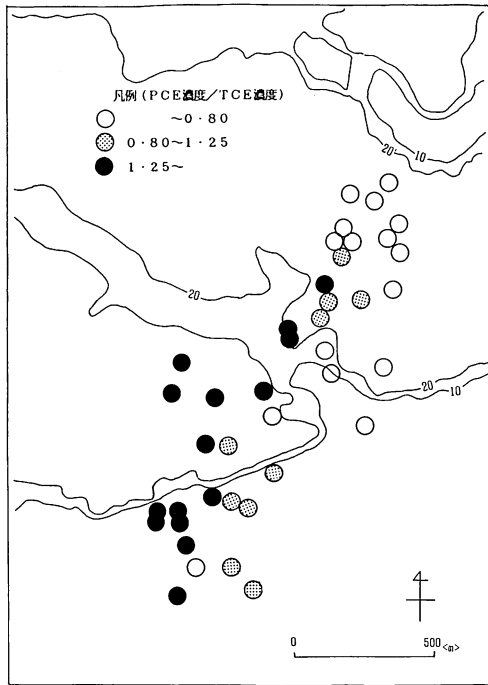
今回の調査ではNo. 29, 30, 31を除いてすべての調査井戸が打ち込み式の井戸であったために水位を測定することができなかった。このため地下水流動についての情報は充分でなかった。そこで地下水の汚染状態の違いや一般水質の分布特性によって地下



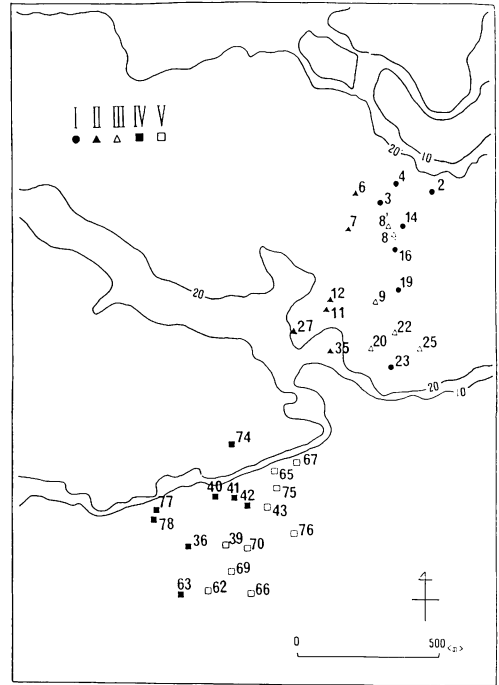
第6図 深度別のTCEの濃度分布(第1図のA-B断面, 数字は地点番号)

第1表 水質による地下水のグループ化

	調査地点 No.	電気伝導度 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	硝酸イオン濃度 (mg/ℓ)	pH	ストレーナー位置 (標高m)
I	2, 3, 4, 14, 16 19, 23	190~260	30~48	6.9~7.6	-13~-18
II	6, 7, 11, 12, 27 35	220~280	6~16	7.0~7.2	-13~-24
III	8, 8', 9, 20, 22 25	310~400	87~104	6.8~7.0	-18~-23
IV	36, 40, 41, 42 63, 74, 77, 78	240~300	18~31	6.9~7.2	-14~-21
V	43, 70, 75 39, 62, 65, 66 67, 69, 76	130~190	0	7.2~8.0	-26~-28 -37~-45



第7図 PCE/TCE 濃度比の分布



第8図 水質による井戸グループの分布

水の大きな流れを検討してみた。

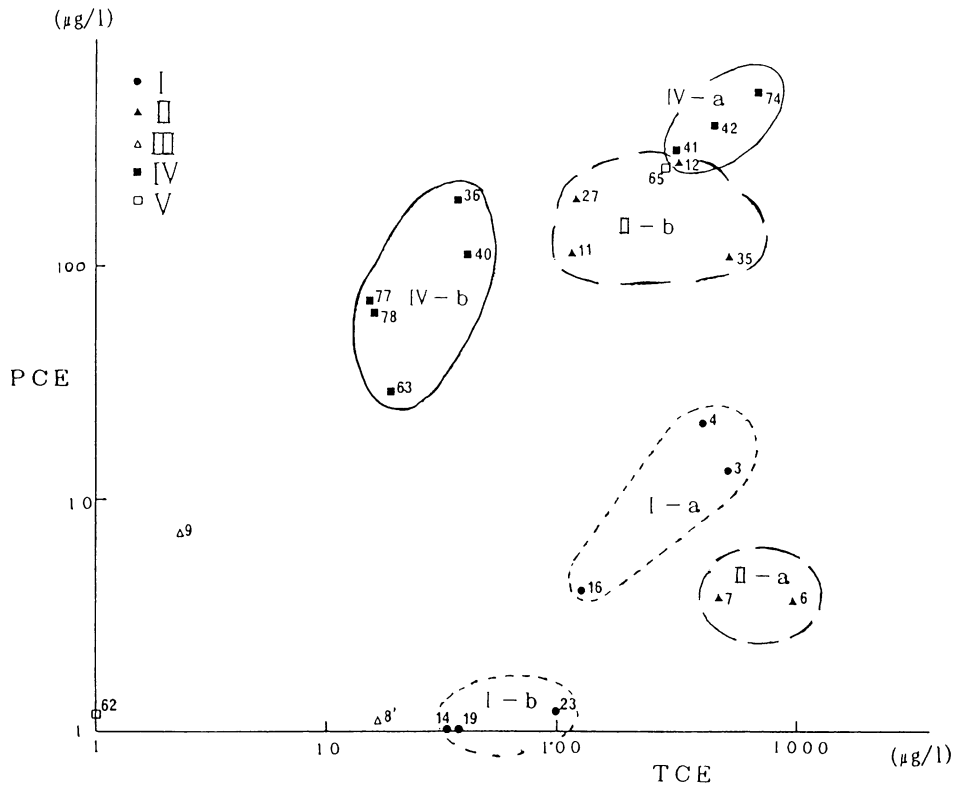
地下水の流動については地下水の水質分布パターンが南北方向に同じ性質を示すことから、地下水の大きな流れが北から南方向であると推定される。

第9図において、IとIVグループは北から南へ向かってTCEとPCEの濃度が低下している。特にIグループはI-aからI-bへと両物質ともほぼ同程度の割合で低下している。これらの低下は、大きな生分解が期待できない物質であるので、基本的には流下にもなう希釈と考えてよいであろう。IIグループではTCEは減少しているが、PCEは大きく増加している。これはII-aからII-bの間で高濃度のPCEの新たな侵入(合流)があるものと考えられる。この影響でIVグループのPCEの希釈の割合が低下しているものと考えられる。これらの点からも地下水の基本的な流動方向は北北東から南南西と考えてよいと思われる。

TCEの濃度分布から、汚染源(あるいは帯水層への到達地点)の一つは汚染濃度が最も高い台地北側

のNo.15'地点付近(あるいはこれよりやや(北)西側)にあると考えられる。また、PCEについてはH工場側からも供給されている可能性がある。また、TCEの濃度分布はPCEよりも北側へ広がっている。これらのことから、汚染源(汚染経路)は複数ある可能性が考えられる。報道で疑われているH工場、北部の神立工業団地、あるいは不法な廃棄物埋立などが考えられるが、どれとは断定はできない。複数と考える場合、同一事業所における時期による使用溶剤の種類と量、割合の変更、あるいは(使用済み溶剤)の保管場所の移動なども考える必要がある。

汚染経路については、汚染されている帯水層の深度がかなり深いこと、その帯水層の上部には連続性のよい粘土層あることもあり、表層からの浸透により帯水層が汚染されたと考えるより、汚染源付近の井戸壁を介して広がった可能性が強いと考えられる。あるいは、最悪の可能性としては、下館市で発生したフェノールによる地下水汚染のように、廃液の深井戸注入処理と言うことも一つの可能性として考え



第9図 TCEとPCEの濃度間関係

られる。

VI おわりに

行政による大規模な調査事例を除くと、トリクロロエチレン等による地下汚染の実態を調査した事例はあまり多くない。本研究では、TCE、PCE、MC以外の分解生成物と考えられている cis-1,2-ジクロロエチレンなどは機器の都合などで測定できなかった。また、地下水位が測定できない等不備な点もあるが、このような調査を蓄積することが地下水の保全、汚染の防止のためには不可欠のことと考えられる。

今回は筆者独自の調査で、行政・工場側とはいっさいコンタクトを持たなかったため、工場内やより広域なデータを利用できなかったが、この調査なども参考にしていただいて、行政側のより抜本的対策を期待したい。

謝辞

ガスクロマトグラフによる分析に関して御指導頂いた、神奈川県公害センターの伏脇裕一氏および長谷川敦子氏に深謝致します。またボーリングデータを提供して頂いた吉田さく泉工業の方々に御礼申し上げます。そして、野外調査の場を快く提供して頂いた現地の皆様に心より御礼申し上げます。

文献

神野健二ほか(1986)：テトラクロロエチレンによる地下水汚染についての水文地質的考察。日本地下水学会誌，28，113-125。
 水質汚濁研究協会(1990)：「地下水質保全対策調査一事例調査解析」。昭和63年度環境庁委託業務結果報告書，76p。

田瀬則雄 (1988) : 日本における地下水汚染の発生状況.
ハイドロロジー, **18**, 1-13.

田瀬則雄 (1990) : 地下水の安全度チェック—手軽にできる
チェックの一例—. MOL, **28** (4), 112~117.

地質調査所 (1988) : 筑波研究学園都市及び周辺地域の環
境地質図説明書.

中杉修身 (1986) : 地下水汚染の実態とその類型的整理.
環境科学研究報告集, **B293-R12-14**, 1~18.

平田健正 (1988) : 有機塩素化合物による地下汚染. 地下
水学会誌, **30**, 223~230.

早川哲夫 (1988) : 地下水質保全行政の現状と今後の動
向. かんきょう, **13** (2), 8~12.

村岡浩爾・平田健正 (1986) : 水中における有機塩素化合
物の挙動について. 環境科学研究報告集, **B293-R12-14**, 57~63.