

茨城県大洋村における地下水汚染 —合成洗剤を中心として—

Groundwater Contamination by Synthetic Detergent in Taiyo Village of Ibaraki Prefecture.

石原 廉*・田瀬 則雄**

Yasushi ISHIHARA and Norio TASE

I はじめに

近年、トリクロロエチレンなどによる地下水汚染が深刻化し、地下水汚染に対する関心が高まっている(田瀬, 1988a, 1988b)。この中で、生活排水による地下水汚染は、重要な問題であるが、あまり関心を集めていない。

生活排水が主な原因となる地下水汚染物質には、硝酸イオン、塩化物イオンなどがあるが、合成洗剤(陰イオン系界面活性剤)を無視することはできない。

合成洗剤による地下水汚染については、小林(1974)などにより1960年代後半から問題とされたが、研究事例はあまり多くない。合成洗剤研究会(1987)の文献集にも表流水についての研究例はあるが、地下水のものはほとんどない。

本研究では、上下水道施設がなく生活用水として地下水を利用している茨城県大洋村において、合成洗剤を中心として、地下水質への人為的影響を明かにし、その地域の土地利用との関連性を考察した。

今回は特に地下水に含まれている陰イオン系界面活性剤について、その地域的分布と土地利用との関連性や硝酸イオンとの関係について述べる。

II 合成洗剤による水質汚染の経緯と現状

小林(1988)によると、日本の合成洗剤の生産量は1950年代に入り急激に増加し、1985年では、年間約100万トンに達している。また、合成洗剤の単位面積当りの年間消費量では日本が世界最大となっている。

一方、日本の下水道普及率は1984年で34%と低く(石川, 1987)、ほとんどの生活排水は地中や河川に排出されている。従って、排出された合成洗剤は処理されることなく、地中や河川・湖沼に排出、蓄積し、水体を汚染している。

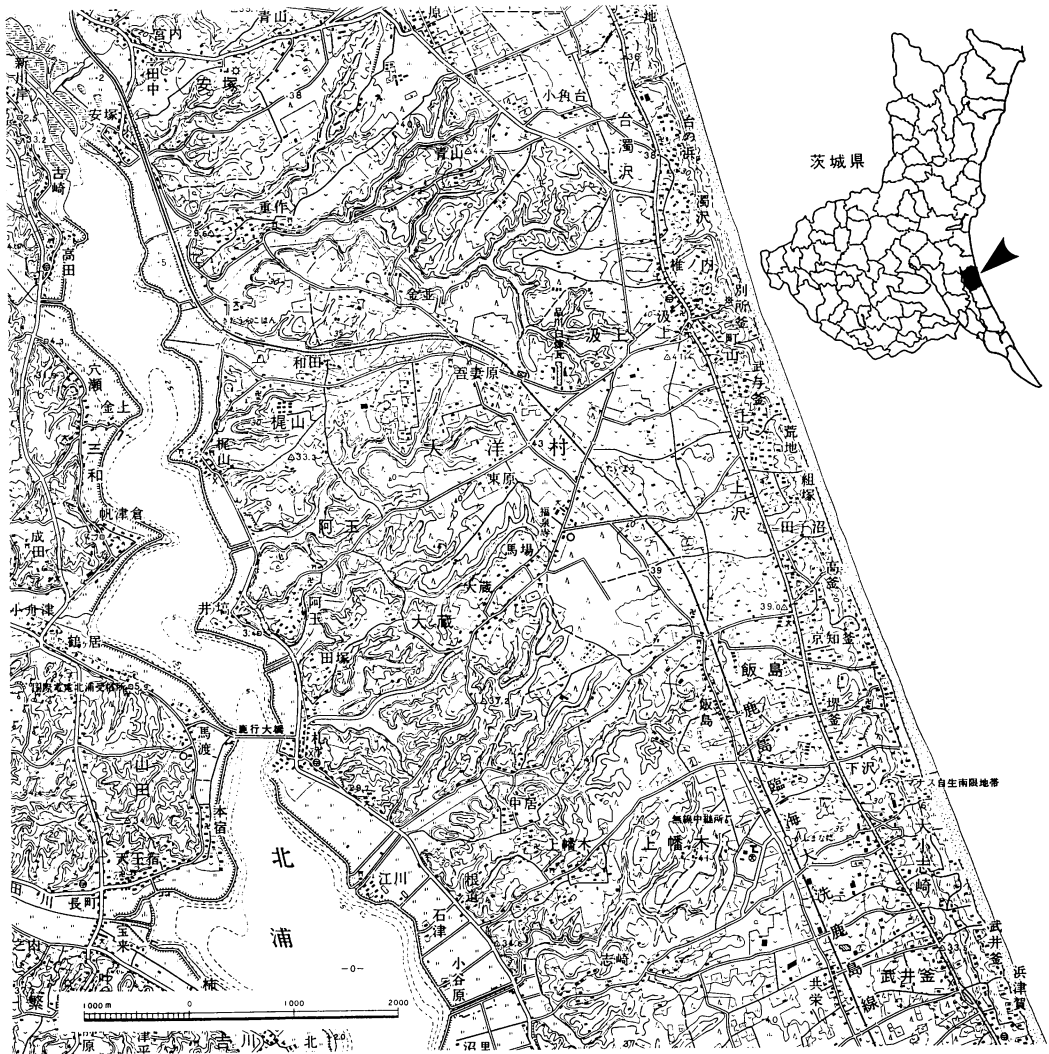
現在日本における合成洗剤の環境中の残留濃度は、生活排水、河川、海域、地下水などに1,000~0.01mg/lの範囲で分布していると考えられている(洗剤問題近畿地区生協連絡交流会, 1985)。

III 研究対象地域の概要

1) 地形・地質

本研究では茨城県鹿島郡大洋村を研究対象地域とした(第1図)。大洋村の地形は、中央部の洪積台地と湖岸・海岸の沖積低地からなる。海岸には砂浜が

*筑波大学・自然学類(現:京都生活協同組合) **筑波大学地球科学系



第1図 調査対象地域（5万分の1地形図「鉾田」より）

広がっている。大洋村の大部分を占める台地は鹿島台地と呼ばれている。台地の標高は最高44.2mで、湖岸側は開析が進み、谷が樹枝上に発達しているが、台地内部や海岸側では地形面の原形がよく保存されている。

茨城県の台地と千葉県の下総台地を一括して常総台地という。常総台地の表層は、一様に新期の関東ロームがおおい、その下位は板橋層（常総粘土層）（0.5～3m）、竜ヶ崎層（3～10m）、成田層上・下層（5～10m）と続く（青木・馬場、1979）。

鹿島臨海鉄道株式会社の深度25mまでのボーリングデータによれば、本地域の台地は1～2mの表土におおわれ、その下位は5～6m程度の関東ロームが分布している。関東ロームの下位には主に砂層が広がっている。

2) 人口および土地利用状況

大洋村の面積は、46.46km²である。また、1987年の茨城県の調査によると人口は10,201人、人口密度は219.6人/km²である。人口は、近年わずかながら増加傾向にある。これは、鹿島臨海鉄道の建設によって

交通の便がよくなったことや、近年別荘地として開発が進められているためと考えられる。産業別就業人口の構成比は近年、第二次、第三次産業人口が増加し、第一次産業人口は減少している。

第1図に示すように、湖岸と台地の谷地には水田が広がっている。台地上は畑作地帯になっている。水田地帯と畑作地帯の中間にあたる台地の西側には、森林が広がっている。水田と畑の耕地面積は、水田507ha、畑1,270haで、畑地が約2倍の面積を占める。畑地では、古くは麦、落花生、甘藷などが栽培されていたが、最近ではメロン、トマト、イチゴ、ピーマン、にんじん、ごぼう、みつば等が栽培され、都市近郊型農業へと変わりつつある。大洋村では畜産農家は少なく、畜産による地下水質への影響は少ないと考えられる。

市街地は、台地の東側を海岸線に沿って走る国道51号線沿いに広がっている。また、湖岸に沿って走る主要地方道茨城一鹿島線沿いにも集落がある。台地中央部では集落は点在する。近年建設が進んでいる別荘は、台地上や湖岸・海岸に面した台地斜面に建てられている。海岸は海水浴場になっており、夏には多くの人を訪れる。

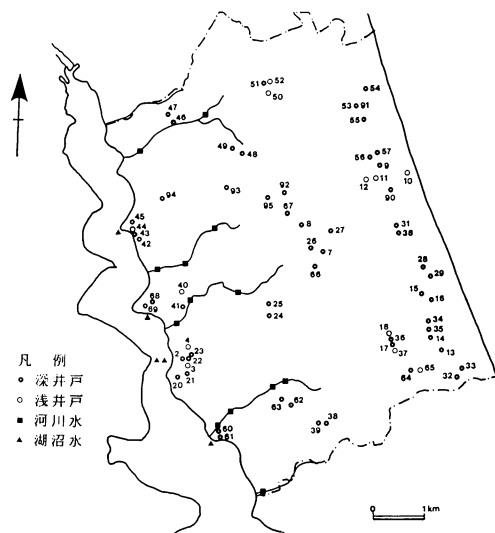
大洋村には上水道施設がなく、生活用水はすべて地下水を利用している。以前は開放式の掘り井戸を使用していたが、現在ではほとんど打ち込み式の井戸になっている。集落の一部や別荘地では、共同の打ち込み式井戸による自家水道を利用している。下水道施設もなく、家庭からの排水は主に地下浸透処理されている。

本地域の地下水への負荷源としては、点源としての生活排水と面源としての肥料が主なものとして挙げられる。また、海洋に面しているため風送塩の影響も考えられる。

IV 野外調査および水質分析

1) 野外調査

第2図に示した地点において1988年3月11日、5月15日、5月22日に地下水の採水調査、10月13日、10月17日に地下水及び地表水の採水調査を行った。採水は井戸、河川及び湖沼で実施し、No26, 27, 34,



第2図 調査地点

46, 53においては季節変化を調べるために3月、5月及び10月に1回ずつ採水を行った。採水の際に、電気伝導度、水温、pHを随時測定した。大部分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が、開放式の井戸のうち測定可能なものについては測定を行った。打ち込み式の井戸については井戸の深度を所有者から聞くようにした。また、採水調査のほかに土地利用調査等も行った。

2) 水質分析

水質分析は次のように行った。

陰イオン系界面活性剤の分析は、桐柴(1982)の開発したエチルバイオレット-キシレン抽出法を用いた。試料水を酢酸緩衝液によってpHを一定に保ち、エチルバイオレット溶液を加え陰イオン系界面活性剤と反応させ、エチルバイオレット活性物質(Ethyl Violet Active Substances, EVAS)としてキシレンで抽出し、キシレン層の吸光度を測定する。本法では脂肪酸塩以外の陰イオン系界面活性剤の全量が定量される。

HCO_3^- はブロムクレゾールグリーンを指示薬として、硫酸で滴定しpH 4.8アルカリ度として求めた。

Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} は筑波大学分析センターのイオ

ンクロマトグラフィーを用いて分析した。

Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺は同プラズマ発光分光分析装置を用いて分析した。

V 地下水質の特徴

調査をした打ち込み式井戸（深井戸）の深度は、聞き取りによると、50m前後のものが多く、最も深いものでは150m、浅いものでは20m程度であった。井戸下端の海拔高度にすると0～40mとなり、海水面下に井戸の下端が位置するものが多い。開放式井戸（浅井戸）は水位測定をNo.3, 4, 12, 18, 37, 50において行った。その結果、地下水面海拔高度は、No.3, 4では2～3m, No.12, 18, 37では約35m, No.50では約28mであった。

No.26, 27, 34, 46, 53においては3月、5月及び10月に1回ずつ採水を行ったが、水質分析の結果、季節的な水質変化はほとんどみられなかった（石原, 1989）。従って、各時期に採水した試料水の分析結果を同一の図上にプロットし、その分布を表した。

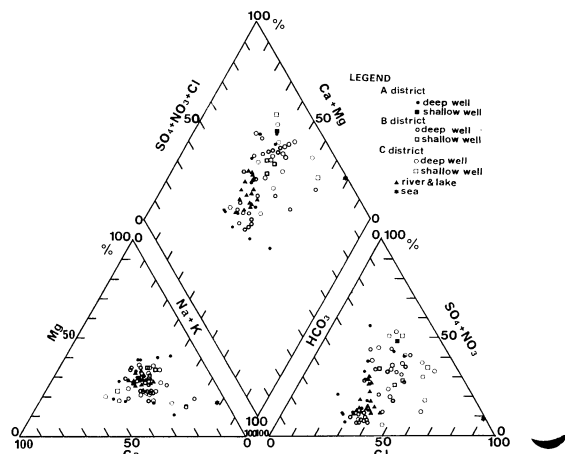
1) 地下水質の地域的分布

野外調査及び水質分析の結果により、地下水質への人為的影響を主に土地利用との関係で考察した。ここでは、主にEVAS及び硝酸イオン(NO₃⁻)について述べるが、全体の特徴について簡単に述べておく。

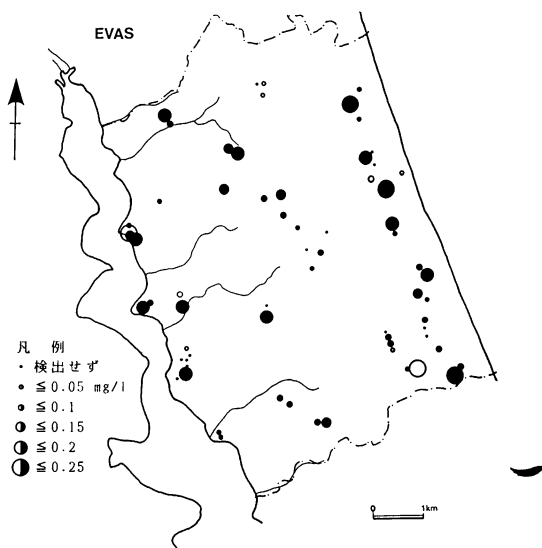
第3図に湖水、河川水を含めた水質組成をキーダイアグラムによって表した。図上のA地区は湖岸の水田地帯、B地区は台地中央部の畑作地帯、C地区は台地海岸部の市街地である。またダイアグラム中の海水の組成は、海水の組成比が一定であることから、主要成分の平均濃度から求めた。

陽イオンの組成はほぼ一定であることから、水質組成は陰イオンによって決定されていることが分かる。また海水の組成と地下水の組成とは海岸部のC地区でも異なっており、海水の直接的な混入はないものと考えられる。しかし本地域の地下水中には、Na⁺やCl⁻が比較的多く含まれており、これらは風送塩によって供給されているものと考えられる。

A地区における水質組成は各地点によってさまざまであり、HCO₃⁻の割合が多いものからCl⁻,



第3図 地下水質のキーダイアグラム（A地区は湖岸部、B地区は台地中央部、C地区は海岸部で、湖水と河川水を含む）



第4図 陰イオン界面活性剤(EVAS)の濃度分布(黒丸は深井戸、白丸は浅井戸)

NO₃⁻, SO₄²⁻の割合が多いものまで存在する。この中には「シブ水」と呼ばれる特異な組成を示す地下水が含まれる。

B地区の水質組成の特徴は、全体的に溶存イオンが少ないことである。B地区はおもに畑作地であるが、肥料等の影響は小さいと考えられる。

C地区は全体的に溶存イオンが多く、Cl⁻,

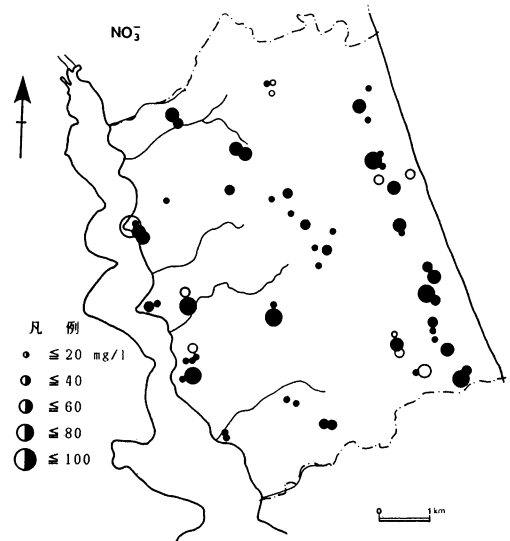
NO₃⁻、SO₄²⁻の割合が多くなっている。C地区は海岸部で、また民家の多い地域でもあるので、生活排水や風送塩の影響が現れていると考えられる。

地下水の陰イオン系界面活性剤(EVAS)濃度の分布を第4図に示す。陰イオン系界面活性剤の供給源は生活排水である。EVAS濃度は検出せずから0.25mg/lの間分布している。水道水の法的水質基準は0.5mg/lであるので、一応基準は満たされている。しかし、一方では0.1mg/lのオーダのLAS(直鎖型アルキルベンゼンスルホンサン)濃度でアユなどの稚魚に発育障害がみられる(三上ほか, 1983)という報告もあり、生活用水としての安全性に問題がない訳ではない。

一般に日本における地下水中の陰イオン系界面活性剤濃度は0.01mg/lのオーダであるといわれている。茨城県土浦市や牛久市でも地下水から0.01~0.1mg/lのオーダのEVASが検出されている。県内でも人口の少ない本地域の地下水にも同程度の陰イオン系界面活性剤が含まれている。このことは、下水処理施設の不備が要因となっていると考えられる。

EVAS濃度は、海岸部の市街地や湖岸の集落で高く、0.15mg/l以上の値を示す地点が多い。これらはすべて一般家庭の井戸である。それに対して、大洋村のほぼ中心に当たる台地上では、ほとんど検出されない。この地域には役場や学校等の公共施設や別荘が建てられているが、一般の民家はまばらで、大部分は畑地である。EVASは一般家庭の多い地域とそうでない地域の間で明かな濃度差がみられる。

本地域におけるEVAS濃度の分布傾向として、高濃度地点が非常に散在しており、わずかにしか離れていない地点間においても大きく濃度が異なる。このことから、生活排水の影響は広範囲には及ばないと考えられる。また、周囲に飲食店等のある地点や排水口が比較的接近している地点は、局地的に高いEVAS濃度が検出され、深い打ち込み式の井戸であっても、その周囲の排水処理に大きく影響されていることが考えられる。また、深度50m前後の井戸(No.8, 13, 16, 63, 92)からもEVASが検出されており、かなり深くまで生活排水が浸透していること



第5図 硝酸イオンの濃度分布(黒丸は深井戸, 白丸は浅井戸)

が考えられる。

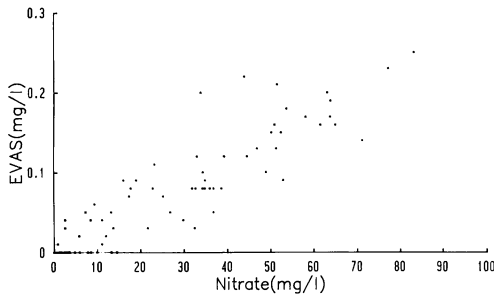
地下水中のNO₃⁻の濃度分布を第5図に示す。本地域の地下水へのNO₃⁻の供給源としては、生活排水と農地への窒素肥料が考えられる。

NO₃⁻の濃度分布はEVASの濃度分布と類似しており、EVAS濃度の高い地点ではNO₃⁻濃度も高くなっていることが多い。また、EVASと同様に高濃度地点が散在している。これらのことから、生活排水がNO₃⁻の主な供給源になっていることが考えられる。

硝酸性窒素の水道水の法的水質基準は10mg/l(硝酸イオン濃度で44.3mg/l)である。一般に高濃度の硝酸塩を摂取すると、メトヘモグロビン血症を起こすことが知られている(横橋・鈴木, 1974)。特に、乳幼児への影響が大きいと言われ、水中の硝酸・亜硝酸性窒素濃度が8~9mg/lでこの病状が現れる可能性が高い。

本地域では水質基準以上の濃度を示す井戸が多く、最高83mg/lのNO₃⁻濃度が検出された。NO₃⁻の浄化は難しく、生活用水としての安全性に問題がない訳ではない。

2) EVAS濃度と硝酸イオン濃度の関係



第6図 陰イオン界面活性剤と硝酸イオンの関係

第6図は NO_3^- 濃度とEVAS濃度の関係を示したものである。深井戸と浅井戸で差はみられず、EVAS濃度と NO_3^- 濃度は相関がよく、相関係数は $r = 0.93$ である。このことは前にも述べたとおり、 NO_3^- が主に生活排水から供給されていることを示していると考えられる。

地下水に含まれる NO_3^- の起源を知る上で、窒素の安定同位体 (^{15}N) は有用な手がかりとなる。全 NO_3^- 中の $^{15}\text{NO}_3^-$ の割合は、空気中の割合を0とすると、動物タンパク質等が起源となるものでは10~30%である。従って、し尿、雑排水を含む生活排水が起源となる NO_3^- 中にも $^{15}\text{NO}_3^-$ が、10~30%含まれていると考えられる。また硫酸等の窒素系肥料が起源となるものについては0~5%で、多くとも10%程度である (cf., 並木ほか, 1989)。

本調査では、2点ではあるが NO_3^- 濃度の高い試料水 (No90とNo91) について $^{15}\text{NO}_3^-$ の割合を質量分析計によって測定した。その結果は、それぞれ10.9%と6.9%の $^{15}\text{NO}_3^-$ が検出され、 NO_3^- の起源が主に生活排水である可能性が強いことを示している。

VI まとめ

地下水中の合成洗剤 (陰イオン系界面活性剤) についてその地域的分布や硝酸イオンとの関係について考察してきた。その結果、次のような結論を得た。

- (1) 生活排水の影響は広範囲には広がらないが、深層の地下水にまで及んでいると考えられる。
- (2) 地下水中の硝酸イオン濃度は水質基準の44.3 mg/l を越えているものが多くある。また、EVAS濃度は最高0.25mg/l で水質基準の0.5mg/l には満た

ないものの、生活用水として問題点がないとは言えない。

(3) 本地域の地下水中の硝酸イオンは、おもに生活排水から供給されていると考えられる。この点は窒素の安定同位体 (^{15}N) からも裏づけられる。

(4) 地下水中の陰イオン系界面活性剤は、地下水への生活排水の影響を示す指標となっている。

謝 辞

洗剤の分析については化学技術研究所の原田泰研 究員に御教示いただきました。 ^{15}N の測定には農業研究センターの米山室長のご好意により、筑波大学大学院並木則和君にお願いいたしました。現地調査では茨城県立潮来高校の飯島 力教諭にお手伝い いただきました。厚くお礼申し上げます。

文 献

- 青木直昭・馬場勝良 (1979) : 霞ヶ浦—北浦地域の下総層群。筑波の環境研究, 4, 186—195.
- 石川忠男 (1987) : 海外の下水道事情と国際協力。1987年下水道年鑑, 109—145.
- 石原 廉 (1989) : 茨城県大洋村における地下水質への人為的影響—合成洗剤を中心として—。筑波大学自然科学類昭和63年度卒業論文 (未発表), 84p.
- 合成洗剤研究会 (1987) : 「合成洗剤に関する文献・資料総覧」。合同出版, 270p.
- 小林 勇 (1974) : わが国における合成洗剤による環境汚染の深刻な状況と対策について。日本の科学者, 9, 516—522.
- 小林 勇 (1988) : 「よくわかる洗剤の話」。合同出版, 119p.
- 洗剤問題近畿地区生協連絡交流会編 (1985) : 「水と環境を守るために」。洗剤問題近畿地区生協連絡交流会, 34p.
- 田瀬則雄 (1988a) : 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 (1988b) : 日本における地下水汚染の事例と発生の背景。地下水学会誌, 30, 103—108.
- 桐栄恭二 (1982) : 環境水中にある微量陰イオン系界面活性剤の分析。ぶんせき, 11, 862—865.
- 並木則和・田瀬則雄・米山忠克・榎根 勇・古藤田一雄 (1989) : ^{15}N による地下水中の硝酸塩の起源の同定について—沼田段丘の事例—。水理実験センター報

告, 13, 77-80.

三上美樹・藤原邦達・小林 勇 (1983) : 「図説洗剤のすべて」. 合同出版, 158p.

横橋五郎・鈴木庄亮 (1974) : 「環境汚染病」. 医歯薬出版, 480p.