

複数帯水層における揮発性有機塩素化合物の長期モニタリング結果に基づく移行挙動の概念化

竹内真司¹・能城 悠²・高嶋 洋³

1: 日本大学文理学部 〒156-8550 世田谷区桜上水 3-25-40

2: ダイヤコンサルタント (株) 〒331-0811 さいたま市北区吉野町 2-272-3

3: 野田市役所 〒278-8550 野田市鶴奉 7 番地の 1

Conceptualization on the migration of chlorinated volatile organic compounds in several aquifer systems based on the long-term monitoring

Shinji TAKEUCHI¹, Haruka NOJO² and Hiroshi TAKASHIMA³

1: College of Humanities and Sciences, Nihon University 3-25-40, Sakurajosui, Setagaya Ku, 156-8550, Japan

2: Dia Consultant 2-272-3, Yoshino Cho, Kita Ku, Saitama City, 331-0811, Japan

3: Noda City Office 7-1, Tsuruhou, Noda City, 278-8550, Japan

Abstract

The migration behavior of the contaminants of chlorinated volatile organic compounds have been studied based on the results of the long-term monitoring at the site where several aquifers are distributed. The results of the monitoring of concentration of contaminant on the trichloroethylene (TCE) and the cis 1,2-dichloroethylene (c1,2DCE) during 7 years have suggested that the migration of contaminants have not been significant in this monitoring period due to the existence of low-permeable layer is considered to be effective barrier to the migration of the contaminant toward the lower aquifer, although the deepest aquifer at the depth about 20m has already been contaminated from the beginning of the monitoring. With regard to lateral migration in the aquifer, the difference in migration distance to the downstream has been attributed by the permeability of the aquifer. A conceptual model related to the migration of contaminant has been proposed based on the monitoring data. Conceptualization of the migration behavior based on the long-term monitoring would be important for the decontamination and water usage strategies.

Keyword: Chlorinated Volatile Organic Compounds, Several Aquifer Systems, Migration Behavior, Long-term Monitoring

はじめに

揮発性有機塩素化合物（以下、CVOC: Chlorinated Volatile Organic Compounds）は、携帯電話やパソコンの半導体の洗浄や、ドライクリーニングなどで利用されるが、毒性が高く、発がん性が指摘されている。CVOCは、不飽和帯中では水平方向にはあまり移動せず、汚染源付近を降下するとされている。また、地下水面以下では、水よりも比重が大きいため帯水層中に侵入し、一部は溶解しつつ、難透水層に到達するまで降下を続け、難透水層上に溜まることとなる。その後、帯水層中のCVOCは、徐々に地下水に溶解し、一部は原液のまま地下水流動の下流方向に移動するとされている（US-EPA, 1992；楡井ほか, 1994；地盤工学会, 2010）。

CVOCなどの揮発性有機化合物（VOC: Volatile Organic Compounds）の汚染に関しては、1982年の環境庁（当時）による全国地下水調査に始まり、1991年の土壤汚染に係る環境基準の設定、1997年の地下水環境基準の制定、そして2002年の土壤汚染対策法の制定などにより、近年、各地で問題が顕在化してきた（鈴木ほか, 1989；品田ほか, 1991；鈴木ほか, 1994；片桐ほか, 2004；地盤工学会 2010 など）。VOC汚染については、最優先の課題である汚染浄化対策な

どに関する報告事例が多い（長瀬ほか, 1995；水本ほか, 2008；高畑ほか, 2008；山崎, 2008；黒田ほか, 2008；地盤工学会, 2010 など）。また、実験室におけるカラム試験とそれに基づく数値解析の事例（江種, 2003；江種ほか, 1994 など）、さらには、いくつかの地点の調査、解析、浄化事例をレビューしたもの（長瀬ほか, 1995）などがある。

上記のように、これまでに多くの既往研究が存在し、土壌・地下水でのVOCの概念的な移行モデルが提示されている（例えば、地盤工学会, 2010, p82, 図 4-8）。しかしながら、複数の帯水層が存在するような比較的複雑な地質構造を有する地域における詳細な調査結果に基づいた報告は、佐藤ほか（1983）、楡井ほか（1994）、高嶋ほか（1995）などがあるが、事例は少ない。このような地点での調査、検討事例は、今後、同様な地質構造を有する地点でCVOCなどの汚染物質の移行挙動を理解し、地下水利用や汚染浄化対策等を講じる上で有用と考えられる。

今回対象とした地域では、機械油の取り扱い工場において、かつて実施された1.1.1.トリクロロエタン（以下、MC）の蒸留再生で生じたMCの他、トリクロロエチレン（以下、TCE）、シス1,2.ジクロロエチレン（以下、c1,2DCE）や1.1.ジクロロエチレンなどの揮発性有機塩素化合物による地下水汚染が確認され、ボーリング調査や地下水流動解析、単

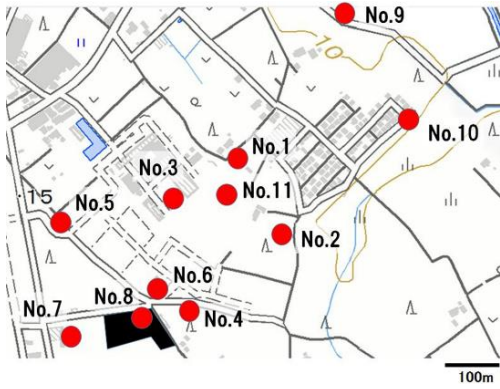


Fig. 1 Borehole location of study area. Borehole No.8 is located at the source of pollution. Geological section along the line from No.8 to No.10 is shown in Fig. 2. A part of 1:25,000 topographic map sheet of "Noda" published by the Geospatial Information Authority of Japan.

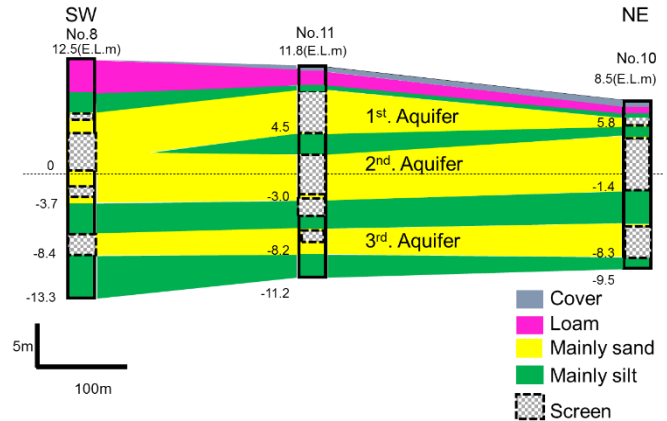


Fig. 2 Geological cross-section of investigation area. The top and bottom elevation (m) of each borehole are mentioned at the top and bottom of each borehole respectively. Bottom elevation of each aquifer is mentioned in parentheses along each borehole.

元調査法（楡井，2007）などによる汚染機構説明が実施されている（高嶋ほか，2008）。なお，当該工場での蒸留再生活動は1995年に終了し，現在は行われていない。汚染源と考えられた工場敷地において，平面の4m格子の各交点において，ボーリングバーによる深度85cmの掘削孔内のMCおよびTCEの地下空気汚染状況を検知管によって把握した結果，MCの蒸留施設があった床面で最高2,000ppm-vol（検知管読み値）を超える値が確認された。さらに，当該位置でのボーリング調査の結果，表層から連続する高濃度の地層汚染が確認された他，宙水中に300mg/lの汚染が確認された。このため，関東ローム層を中心に浅層部の地下水の不飽和帯において地下空気吸引と宙水のばっ気による浄化対策が実施された（高嶋ほか，2008）が，地下水の浄化には至っておらず，それ以降今回の解析対象期間では，浄化対策は実施されていない。その後，汚染源周辺から地下水流動の下流方向の約250m×300mの領域に調査観測のための36本の観測井戸が設置され，2007年以降，年間1回の割合で定期的に地下水の水位測定と汚染物質の濃度測定が行われている。また，この地域では後述するように，オールコアボーリング調査により3層の砂層からなる帯水層が確認されている。上記のように複数の帯水層が存在する地域で，帯水層別に地下水観測井を設置し，長期にわたって定期的に地下水の水位と汚染濃度の観測が行われている例は稀である。したがって，汚染物質の経時的な移行挙動を理解する上では貴重なサイトである。

本論では，2007年から2013年の7年間のモニタリングデータに基づき，汚染分布の状況を把握することにより，複数帯水層における，CVOCの移行挙動を理解することを目的とする。

調査地点の概要

調査地は，関東平野の中央部に位置する，標高10m～15mのローム台地上に位置し，その範囲は東西約300m，南北約250mの領域である（Fig. 1）。地形面はFig. 1の北東方向

に向けて緩やかに傾斜している。この地域には，第四紀更新世中期から後期の砂層とシルト層の互層が分布しており（高嶋，2008），これまでのボーリング調査により，深度約20mまでに3層のほぼ水平な帯水層（上位から，第1帯水層～第3帯水層）と各帯水層の下位にある3層の難透水層が確認されている（高嶋ほか，2008）。

本論では，Fig. 1に示すNo.1～No.11の11地点で取得された地下水の水位と汚染濃度のデータを基に汚染物質（CVOC）の移行挙動に関する検討を行った。

主な地質層厚は以下の通りである。地表より下位に向かい，層厚1m～3m程度のローム層（関東ローム層）が分布し，その下位には厚さ数十cmの凝灰質粘土層が分布する。さらにその下位に，今回対象とした帯水層が分布する。第1帯水層，第2帯水層は両者とも中粒砂～粗粒砂を主体とする砂層である。第2帯水層は時折平行葉理がみられることがある。第1帯水層と第2帯水層の層厚は，それぞれ，3m～5m，2.5m～5mである。第1帯水層と第2帯水層の間の難透水層は，厚さ1m～2mの火山灰を含むシルト層あるいは細粒砂層から構成され，南西部のNo.5，No.7，No.8付近ではこのシルト層が薄いあるいは欠如している。また，このシルト層には一部硬質を示す部分が存在する。第3帯水層は貝殻片を多量に含むシルト質砂層で構成されており，層厚は1m～2mである。第2帯水層と第3帯水層の間の難透水層は，厚さ2.5m～5mの細粒砂を含むシルト層から構成される。

Fig. 2に地形的にゆるやかな斜面上にほぼ直線状に並ぶNo.8，No.11，No.10に沿った地質断面図を示す。同図には，各観測地点に設置したスクリーンの位置も示した。なお，各地点の観測井戸は透水層別に掘削され，掘削孔と井戸間の隙間は，スクリーン部分を除きセメントミルクやベントナイトペレットによって充填され，異なる透水層からの地下水の流入を遮断するよう処置されている。また第2帯水層は，汚染状況や層相の違いより上部と下部に個別にスクリーンをもつ観測井戸が設置されている。なお，No.8地点

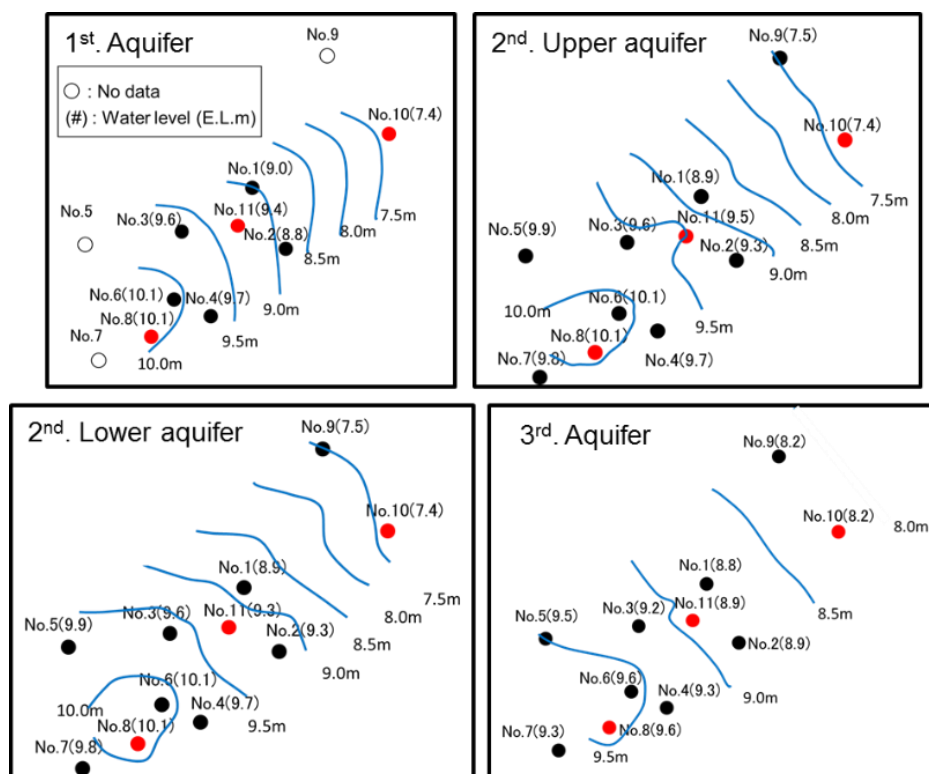


Fig. 3 Estimated groundwater level at November 2014. Red circles indicate the borehole location at No.8, No.11 and No.10.

では第1帯水層と第2帯水層を隔てる難透水層が途切れているものの、それぞれの帯水層に地層として対比できるため、この地点でも帯水層別に観測井戸が設置されている。ただし、No.10地点では、第2帯水層は上部・下部に分けずに一連のスクリーン仕上げの観測井戸となっている。Fig. 2の南西―北東断面によれば第1帯水層と第2帯水層の基底面はNo.10地点からNo.8地点に向かって緩く傾いているが、第3帯水層の基底面はほぼ水平に分布している。

Fig. 3に2014年11月に対象地域の11地点の透水層別の観測井戸で測定した各帯水層の地下水位に基づいて推定した標高水位の地下水面図を示す。また、Table 1にはNo.8, No.11, No.10地点の水位標高とともに、地下水流動の最上流部のNo.8地点と最下流部のNo.10地点の間の水位差を示す。Fig. 3およびTable 1より地下水位は、No.8地点付近を最高標高として、地形勾配に沿って北東方向に低下していることが分かる。第1帯水層と第2帯水層の各ボーリング孔の水位はほぼ同じ値である。このことは、No.8地点で両帯水層を隔てる低透水性層が明瞭でないことと整合的である。また、No.11およびNo.10地点の第1帯水層と第2帯水層を隔てる難透水層は、最大でも2m程度の厚さのシルト層および細粒砂層が主体であること、No.8地点ではこの難透水層は途切れていることから、この難透水層の止水性は低いものと予想され、両帯水層は水理的にはほぼ連続している可能性を示唆する。第3帯水層と第2帯水層を隔てる難透水層については、Fig. 3およびTable 1よりNo.1地点を除けば、第2帯水層と第3帯水層の水位差が0.4~0.8mと大きいことから止水性が比較的高い。

Table 1 Groundwater level (E.L.m) measured in November 2014 and head difference Between No.8 and No.10 in each aquifer.

	No.8	No.11	No.10	Head difference(m) (No.8 to No.10)
1 st Aquifer	10.1	9.4	7.4	2.7
2 nd . Upper aquifer	10.1	9.5	7.4	2.7
2 nd . Lower aquifer	10.1	9.3	7.4	2.7
3 rd Aquifer	9.6	8.9	8.2	1.4

各地点での汚染物質の濃度の経時変化の特徴

TCEとその分解生成物と考えられるC1.2-DCEに着目して、2007年4月から2013年11月にかけて実施された8回分の地下水水質の分析結果を両者の合計とともに帯水層ごとにグラフ化した(Fig. 4)。Fig. 4にはTCEおよびC1.2-DCEの環境基準値も示した。

Fig. 4より、観測期間を通じて多くの区間で環境基準を超過する濃度のTCEとC1.2-DCEが検出されていることが分かる。

帯水層ごとに見ると、第1帯水層のNo.8地点では、観測期間を通してTCE、C1.2-DCEとも高い値(1.0E+0(mg/l)オーダー~1.0E+1(mg/l)オーダー：注1.0E+1は1.0×10¹と同値)を示すが、地下水流動の中流部(No.11)、下流部(No.10)での観測期間の初期から中期の汚染物質の濃度は相対的に低いことが分かる。また、No.8地点では観測期間全体を通して地下水中のTCEの濃度がC1.2-DCEのそれに比べて低く、その他の観測期間ではいずれもC1.2-DCE濃

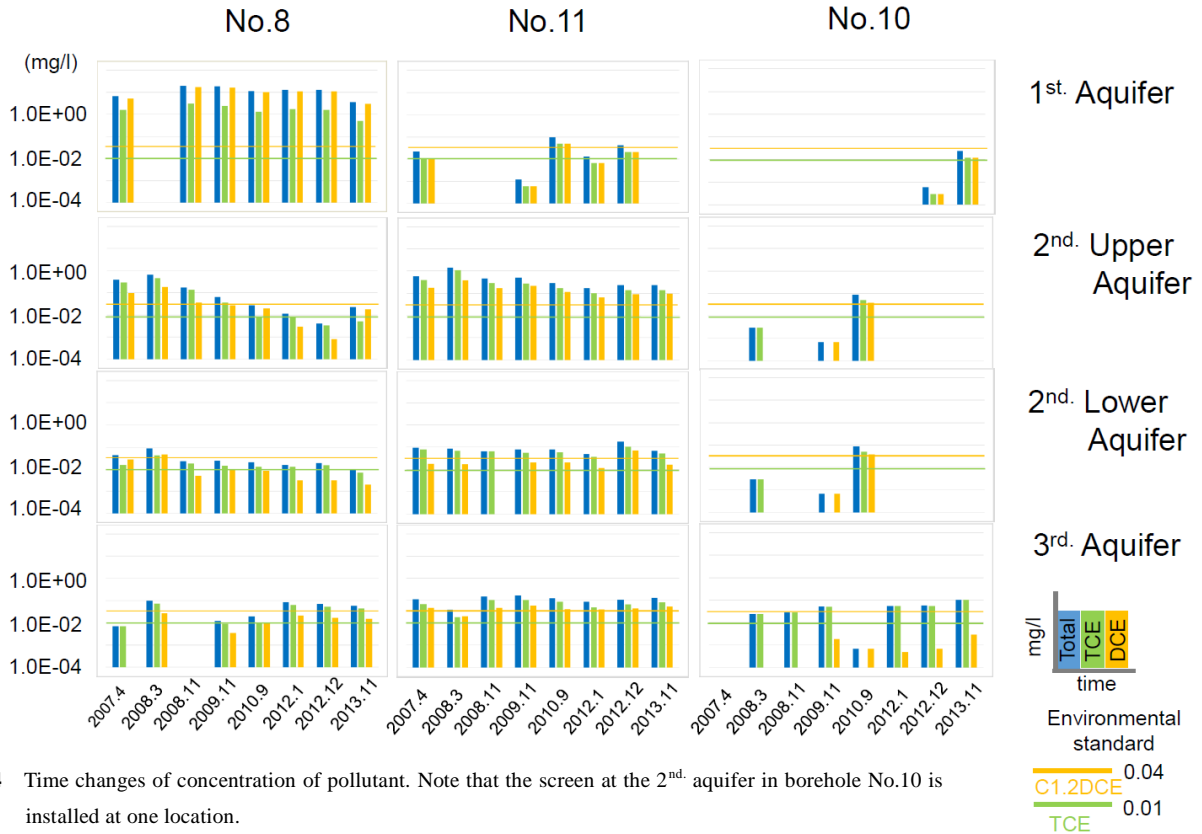


Fig. 4 Time changes of concentration of pollutant. Note that the screen at the 2nd. aquifer in borehole No.10 is installed at one location.

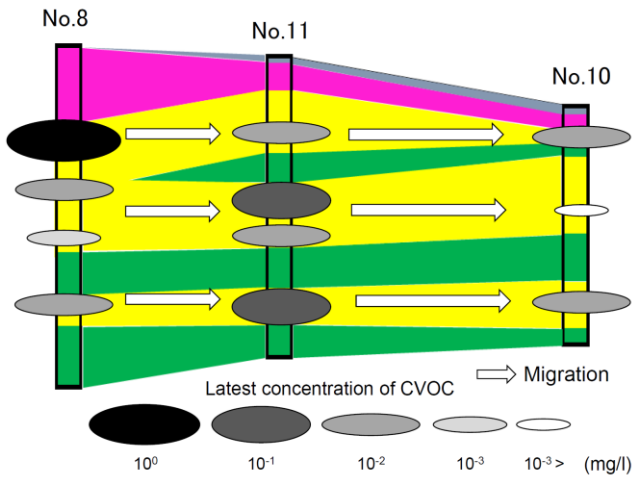


Fig. 5 Conceptualization of CVOC migration based on the late time concentration of pollutant in the study area.

度は TCE 濃度よりも低いことから、同地点では TCE から C1.2-DCE への分解が進んでいることが示唆される。

第2帯水層上部層の No.8 地点では、時間とともに濃度が減少する傾向を示す ($1.0E-1$ (mg/l) オーダー～ $1.0E-3$ (mg/l) オーダー)。No.11 地点では No.8 地点と同様かそれ以上の濃度 ($1.0E-1$ (mg/l) オーダー) を維持しながら推移している。No.10 地点 (上部, 下部の区分がなく帯水層全体で採水) では観測期間の中期で汚染が検出されているものの、最初期および後期では検出されていない。

第2帯水層下部層では、No.8 地点および No.11 地点では $1.0E-2$ (mg/l) オーダーから $1.0E-3$ (mg/l) オーダーの値

を維持しながら推移している。ここでも第2帯水層上部と同様に上流部 (No.8 地点) よりも下流部 (No.11 地点) の方が高い濃度を示すことが特徴である。このことから No.11 地点では、上流部からの継続的な汚染物質の供給があることが推察される。

第3帯水層では、No.8 地点において期間を通して $1.0E-3$ (mg/l) オーダーから $1.0E-2$ (mg/l) オーダーの範囲で若干の増減をしながら推移しているが、No.11 地点では $1.0E-1$ (mg/l) オーダーの値で推移している。さらに No.10 地点では $1.0E-2$ (mg/l) オーダーから $1.0E-1$ (mg/l) オーダーに向けて次第に増加傾向を示すことが特徴である。

考 察

No.8 地点では、第1帯水層と第2帯水層との間には明瞭な難透水層は存在しないが、汚染濃度の値の比較から第1帯水層のスクリーン区間で高濃度の CVOC が滞留していると解釈することが可能である。難透水層は確認されないものの、当該深度 (深度約 10m 付近) 付近にはシルトサイズの粒子、あるいは泥岩を主体とする層相の記載があることから、これらが下方への移行の妨げになっている可能性が考えられる。

第2帯水層においては、地下水流動の上流にあたる No.8 地点では特に本帯水層上部において汚染濃度が減少傾向にあるのに対し、No.11 地点では No.8 地点よりも汚染濃度が高く、濃度の時系列的な減衰はあまりみられない。さらに No.8 地点では第1帯水層と第2帯水層との間の難透水層が途切れ、遮水性が低下しているものと考えられる。これら

のことからこの No.11 地点での期間を通した高い値は、上流側特に No.8 地点の第 1 帯水層からの継続的な供給が行われていることを示唆しているものと考えられる。

第 3 帯水層における CVOC の下流方向への移動を第 2 帯水層と比較すると、第 3 帯水層では初期の段階から下流部 (No.10 地点) で高い濃度の CVOC が検出されていることが分かる。また、第 3 帯水層の動水勾配は上位の帯水層よりも小さい (Table 1) ことも考慮すると、第 3 帯水層は上位の帯水層よりも大きな透水性を有していることが考えられる。本層の岩相が貝殻を主体としたシルト質砂層であり、これが高い透水性の要因となっていることが考えられる。第 3 帯水層において、観測区間の初期から比較的高い濃度の CVOC が観測されていることについては、第 2 帯水層との間に存在する低透水層の層厚が 2.5m 以上と厚いため、この間を高濃度の CVOC が移動することは容易ではないと考えられる。汚染物質の下方への移動の原因としては、既存井戸の井戸管と掘削孔の間隙の止水性が劣化したことによるバイパスの他、過去の構造物建設時の未閉鎖のボーリング孔の存在などが可能性として考えられる。したがって、汚染物質の観測データに基づく解釈には、既存井戸の存在やその仕様を可能な限り把握しておくことが重要である。

まとめ

複数帯水層において複数の揮発性有機塩素化合物 (CVOC) による汚染地域が確認された地域で実施された 7 年間の濃度の経時変化を整理し、期間内の最新の観測結果に基づいて汚染物質の移行挙動に関する概念モデルを構築した (Fig.5)。

7 年間の観測期間において、CVOC は各帯水層内の地下水流動の下流方向に徐々に移動している。汚染源近傍の No.8 地点では、第 1 帯水層のスクリーンにおいて観測された CVOC の濃度が観測期間を通して領域の中で著しく高いことから、この深度付近に CVOC が滞留しやすくなっていることが推察される。この滞留 (下方への移行抑制) には、当該スクリーンの深度付近に分布するシルト質の細粒物質が寄与している可能性が考えられる。

第 2 帯水層では中流部 (No.11) において上流部よりも高い濃度の CVOC が確認された。これは汚染源であり、第 1 帯水層と第 2 帯水層の間の難透水層が途切れている No.8 地点の第 1 帯水層から地下水の流動に乗って下流の No.11 地点の第 2 帯水層上部へ汚染物質が継続的に供給されている可能性が考えられる。

第 3 帯水層はその上位の帯水層とは水理的に連続していない。また上位の帯水層と比べて動水勾配が小さいにもかかわらず汚染物質の広がりには上位の帯水層と比較して早いことから、第 3 帯水層の透水性が高いことが示唆される。これは当該帯水層の貝殻片を多量に含む砂層が要因として考えられる。

本論では、複数の帯水層が分布する地域において、長期間でかつ比較的広域のモニタリングデータを詳細に整理す

ることで、汚染の広がりを視覚的に理解することが可能となることを提示した。ここで構築した汚染物質の移行概念モデルに基づいて、汚染浄化や地下水利用に対する適切な対策を講じることが可能となると考えられる。

また、近年多発する地震により、汚染現場によっては液状化などに伴う汚染物質の擾乱などの可能性も考えられる。したがって、継続的かつ広域でのモニタリングによる移行概念モデルの構築と適時のモデルの見直しが有効と考えられる。

謝辞: 本論文を作成するにあたり、匿名の査読者の指摘により大きく改善された。また、野田市役所環境保全課の皆様と浅野さく泉管工株式会社の尾毛谷茂有氏および元浅野さく泉管工株式会社の青柳龍太郎氏には関連する情報をご提供いただいた。ここに深謝いたします。

引用文献

- 江種伸之, 2003, 揮発性有機化合物・油の動態. 地下水学会誌, 45 巻, 169-178.
- 江種伸之・神野健二・鷺見栄一, 1994, ガス拡散を考慮した有機塩素化合物の不飽和一飽和領域における輸送特性解析. 土木学会論文集, No.503, II-29, 167-176.
- 地盤工学会, 2010, はじめて学ぶ土壌・地下水汚染, 丸善出版, 205p.
- 片桐 猛・篠田 健・南村繁樹・高橋 誠・近藤晋司・佐藤 健・篠田成郎・永瀬久光・寺尾 宏・篠原直規・今村 聡・素野宏昭・根岸基治・石嶋雅子, 2004, 岐阜市南部地区クリーニング所跡地の土壌・地下水汚染調査・対策事例. 地下水技術, 46 巻, 5 号, 17-24.
- 黒田佳樹・前田信吾・山口重徳, 2008, EDC 工法による高濃度 VOC 汚染の浄化例. 「土壌・地下水汚染の浄化および修復技術—浄化技術からリスク管理, 事業対策まで—」, エヌ・ティー・エス, 86-91.
- 水本正浩・石田浩昭・上野俊洋・中村寛治, 2008, 複合微生物によるバイオオーグメンテーション浄化技術. 「土壌・地下水汚染の浄化および修復技術—浄化技術からリスク管理, 事業対策まで—」, エヌ・ティー・エス, 59-67.
- 森山 登, 寺尾通徳, 川田邦明, 植村達夫, 白井文雄, 1988, トリクロロエチレンの土壌微生物による分解. 衛生化学, 34 巻, 366-367.
- 長瀬和夫, 栗屋 徹・村田正敏, 山井忠世, 前川統一郎, 平山利晶, 1995, 有機塩素系化合物による地下水汚染に対する調査と対策. 地下水学会誌, 37 巻, 4 号, 267-296.
- 楡井 久, 2007, 不法投棄廃棄物層と単元調査法. INDUST, 全国産業廃棄物連合会, 22 巻, 52-57.
- 楡井 久・佐藤賢司・古野邦雄・森崎正昭・香川 淳・佐藤徳樹・鈴木喜計・手塚裕樹・伊藤哲也, 1994, 多層集水井戸による地質汚染の深層化. 第 4 回環境地質学シンポジウム講演論文集, 日本地質学会環境地質研究委員会, 31-36.
- 楡井 久・佐藤賢司・鈴木喜計・古野邦雄, 1994, 環境に

- おける地質単元. 地質学雑誌, 100 巻, 425-435.
- 佐藤賢司・古野邦雄・原 雄・奥田庸夫・高梨祐司・楡井久, 1983, 下総台地における 6 価クロム地下水汚染機構. 地質学論集, 23 号, 105-113.
- 品田芳二郎・岩本広志・鈴木喜計・佐藤賢司・楡井 久, 1991, 「バリエー井戸」-汚染地下水処理に至る調査と施工の環境地質学的アプローチ. 第 1 回環境地質学シンポジウム講演論文集, 日本地質学会環境地質研究委員会, 71-76.
- 鈴木喜計・原田泰雄・品田芳二郎・佐藤賢司・楡井 久, 1994, 浄化のすすむ地質汚染現場 (第 2 報). 第 2 回環境地質学シンポジウム講演論文集, 日本地質学会環境地質研究委員会, 7-12.
- 鈴木喜計・佐藤賢司・楡井 久, 1989, 君津市における有機塩素化合物による地層汚染・地下水汚染調査研究と対策. 日本地質学会関東支部シンポジウム「地層汚染と地下水汚染」講演要旨. 54-66.
- 高畑 陽・桐山 久・大石雅也・有山元茂, 2008, 注水バ
イオスパーキング工法によるベンゼンの浄化技術. 「土壌・地下水汚染の浄化および修復技術-浄化技術からリスク管理, 事業対策まで-」, エヌ・ティー・エス, 68-77.
- 高嶋 洋, 2008, 最も脆弱な帯水層と地質環境管理, 地質汚染-医療地質-社会地質学会誌, 43-52.
- 高嶋 洋・古野邦雄・楠田 隆, 2008, 1.1.1.トリクロロエタンによる地下水汚染機構と汚染分布特性. 第 18 回環境地質学シンポジウム論文集, 4 巻, 57-62.
- 高嶋恒太・小山修司・佐藤賢司・森崎正昭・楡井 久. 1995, 地質汚染現場における地下水汚染機構に関する一考察. 第 5 回環境地質学シンポジウム講演論文集, 日本地質学会環境地質研究委員会, 195-200.
- United States EPA, 1992, Dense Nonaqueous Phase Liquids-A Workshop Summary. EPA/600/R-92/030, 23p.
- 山崎 裕, 2008, HRC 工法による微生物促進浄化技術. 「土壌・地下水汚染の浄化および修復技術-浄化技術からリスク管理, 事業対策まで-」, エヌ・ティー・エス, 78-85.