

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 3日現在

機関番号：14701

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560513

研究課題名（和文）サイトリスク評価からみた適切な土壤地下水汚染修復に関する研究

研究課題名（英文）Applicable soil and groundwater remediation based on site risk assessment

研究代表者

平田 健正（HIRATA TATEMASA）

和歌山大学・学内共同利用施設等・理事

研究者番号：30093454

研究成果の概要（和文）：

土壤地下水汚染の実サイトにおける有害物質の動態や浄化効果を数値解析するとともに、健康リスクを評価した。有機ヒ素化合物による地下水汚染については、汚染の実態解明を行った。原位置封じ込め措置については、薄い難透水層しか存在しない現場においても、地下水揚水を併用することでリスク低減が可能なことを示した。揮発性有機塩素化合物については、原位置バイオレメディエーションによる分解促進効果と対策期間中のリスクの変化について示した。

研究成果の概要（英文）：

The migration of hazardous substances and purification effects at soil and groundwater contaminated sites were simulated by numerical analysis. Health risk analyses were also conducted at the same sites. First, the transport processes of groundwater contamination by organoarsenic compounds was examined using a three-dimensional numerical simulation. Secondly, a new in-situ containment combined with groundwater pumping was proposed, and also its risk reduction effect was examined. Finally, in the case of groundwater contamination by volatile organochlorine compounds, the variability characteristics of biodegradation effect and health risk were estimated at in-situ bioremediation sites.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・水工水理学

キーワード：水工水理学,地盤工学,有害化学物質,水質汚濁・土壤汚染防止・浄化,リスク評価

1. 研究開始当初の背景

土壤や地下水の汚染は蓄積性に最大の特徴がある。地中での物質移動速度は極めて遅く、逆に物質が移動しにくい特性を利用すれば、汚染物質管理と汚染物質に暴露される経

路遮断は可能となる。まさに世界各地で顕在化した土壤地下水汚染問題への対処手法であり、欧米では対策と管理を組み合わせた実効ある施策が実施されるようになってきた。翻ってわが国では、土壤や地下水に設定され

た環境基準に照らし合わせ、対策の発動も修復目標も環境基準が用いられる。こうした一律の環境基準値が当てはめられると、土地の価値と修復経費が見合わないという理由で、市街地の一等地であっても開発・再開発が断念されるブラウンフィールド問題を惹起することになる。さらに対策をとるにしても、汚染状態を一気に解消できる汚染土壌の掘削処理が多用されることとなり、問題の本質を解決するにはほど遠い。既に欧米ではブラウンフィールド問題が顕在化し、その解決手法として汚染サイトごとに健康影響リスクを評価する試みが進められている。米国のRBCA (Risk-Based Corrective Action)、英国のCLEA (Contaminated Land Exposure Assessment Model) などのように、サイトリスクアセスメントが実用域にある。

ただ、リスクベースの土壌地下水汚染対策をわが国で実効あるものとするためには、わが国特有の地盤・地質特性、土地利用や地下水利用の状況を踏まえた上で、有害物質の存在形態や動態、さらにはこれら有害物質に暴露される経路を忠実に反映させることが望まれる。このためには、汚染挙動解析モデルと精緻な数値解析手法が、リスク評価をより定量的に精度を高める必須のスキルとなる。

2. 研究の目的

土壌地下水汚染の実サイトにおける有害物質の動態や浄化効果を数値解析するとともに、健康リスクを評価して、一連の汚染対策に合理的説明を付与するためのサイトリスク評価の手法を検討した。

3. 研究の方法

土壌地下水汚染では、目に見えない3次元の地中に有害物質が拡がっているため、汚染の詳細な情報を野外調査だけから得るには限界がある。さらに、この問題は地域に与える社会的影響が大きいため、修復対策に関する調査や予備実験を汚染範囲全域で行えないことも多く、このことがリスク評価をより難しくしている。すなわち、リスクベースの実効ある汚染対策の実施を目指すためには、限られた情報を使って汚染の実態や対策効果の検討を進めなければならない。

コンピュータの高性能化とともに、近年は汚染の挙動解析(数値解析)が実施される機会も増えている。モデル上で有害物質の挙動が観察できる数値解析では、空間的・時間的に連続した情報が得られるため、有害物質の動態解明、汚染拡散範囲の推定、修復対策の効果予測など、野外調査だけでは判断の難しい状況にも幅広く利用可能である。そこで、本研究では数値解析とリスク評価を組み合わせ以下4ケースについて検討した。

(1)有機ヒ素化合物による地下水汚染

(2)原位置封じ込め措置

(3)原位置バイオレメディエーション

(4)揮発性有機塩素化合物による複合汚染

4. 研究成果

(1)有機ヒ素化合物による地下水汚染

茨城県神栖市で起きた有機ヒ素化合物(DPAA)による地下水汚染機構を3次元数値解析により検討した。得られた知見は以下のとおりである。

①広域地下水流動解析では、地下水流動の長期変動特性を表わすことができた。これより、汚染発生時から現在に至るまで地下水流動に大きな変化はなく、地下水は主汚染域(ABトラック)内では汚染源地区(A地区)から下流西方1km地区(B地区)方向に、その後は向きを南西に変えて下流南西部を常陸利根川方向に流れていることが明らかになった。

②また、B地区下流では企業局揚水井戸の揚水によって、稼働中の井戸周辺部では地下水位の低下が生じていたと推察された。

③A地区のDPAA挙動解析では、最初に汚染が発見された井戸(A井戸)の南東90m地点における表層地中で発見されたコンクリート様の塊から溶出したDPAAを高濃度に含む汚染水が密度流によって地下深くまで降下浸透し、深度30m付近の第二洪積砂礫層に達した後、流速の大きな地下水流れに乗って、A井戸およびその下流域にまで拡がっていく様子が示された。これにより、A井戸の汚染は、浅層部を主体に拡がってきたDPAAと深層部を主体に拡がってきたDPAAがA井戸の揚水によって引き込まれることによって引き起こされたと推察された。

④一方、ABトラックおよびその下流域を対象とした広域DPAA挙動解析では、A井戸南東の90m地点直下の深度30m付近の砂礫層に到達した高濃度のDPAAプルームが、B地区や下流南西部で確認されている地下水汚染の原因に成り得ることが示された。また、下流南西部へのDPAAの輸送には、企業局揚水井戸の揚水が関与していることが示唆された。すなわち、汚染発見時まではABトラック内の企業局揚水井戸の揚水の影響を受けて、DPAAの下流南西部への輸送が抑制されていた。このことが、企業局揚水井戸の一部が停止された2004年以降に、下流南西部の観測井からDPAAが検出され始めた原因と考えられる。

⑤数値解析で得られた知見は、野外調査結果を十分説明するものであり、茨城県神栖市で発生した有機ヒ素化合物による地下水汚染機構を明らかにしている。

⑥環境省・茨城県・神栖市の分析によると(ジフェニルアルシン酸による健康影響について～茨城県神栖市における有機ヒ素化合物汚染～改訂第2版)、地下水中に存在するDPAAの暴露経路は飲用にほぼ限定される。こ

のため、リスク評価は飲用リスクのみで行うことが可能となる。また、地下水中のDPAA濃度がヒ素及びその無機化合物の水質環境基準と同じ0.01mg-As/L以下であればヒトにおいて毒性は認められないとされている。このことから、DPAA汚染対策をリスクベースで考える場合には、汚染の挙動解析によって得られる濃度変化に基づいて検討すればよいと推察される。

(2)原位置封じ込め措置

土壌汚染対策法の施行規則では、原位置封じ込めが地下水汚染を経由した健康被害を防止するための標準的措置になっている。しかし、同法の主な対象と考えられる市街地では、原位置封じ込めの適用条件を満足する不透水層があまり存在しないことが明らかになってきた。そこで、より多くの汚染現場に適用可能な原位置封じ込め措置として地下水揚水を併用した技術を考え、数値解析を実施してそのリスク低減効果を考察した。その結果、薄い難透水層しか存在しない現場においても、地下水揚水を併用することで、原位置封じ込め措置の適用が可能を示すことができた。また、限られた帯水層条件での数値解析結果からではあるが、本技術の実用化にとって重要な知見を得ることができた。

①難透水層内に $1.0 \times 10^{-3} \text{m/d}$ の上向き浸透速度を生じさせれば、層厚が5.0m未満の場合でも原位置封じ込め措置の適用が可能になる。これは封じ込め区域 900m^2 あたりの浸透量に換算すると $0.09 \text{m}^3/\text{d}$ である(難透水層の有効間隙率を0.095として算定)。

②難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-6} \text{m/s}$ から $1.0 \times 10^{-9} \text{m/s}$ の範囲内であれば、汚染拡散防止によるリスク低減に必要な揚水量は封じ込め区域 900m^2 あたり $0.1 \text{m}^3/\text{d}$ 程度で済む。この程度の揚水量であれば、地上の水処理装置は小規模で済み、対策費用の抑制につながる。

③難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-7} \text{m/s}$ 以上の現場で、遮水壁の透水係数が構造条件の $1.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$ を確保できていれば、遮水壁外からの地下水の流入を防げるため、汚染拡散防止に必要な揚水量は約 $0.1 \text{m}^3/\text{d}$ である。しかし、難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$ 以下(遮水壁の構造条件以下)になると、遮水壁の透水係数を難透水層の10分の1以下にしなければ、遮水壁外からの地下水流入量が増えるため、必要な揚水量が増加する。このため、難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$ 以下の現場では、遮水壁の種類や遮水性に注意を要する。

④地中に汚染物質が残る原位置封じ込め措置では、長期に渡ってリスクを管理しなければならない。遮水壁の性能が十分に遮水壁外からの地下水の流入が抑制されていれば、難透水層内に生じている上向きの浸透速度や浸透量を揚水量から推定できる。しかし、

難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$ 以下になると、遮水壁の透水性を難透水層よりも1桁小さくしなければ、遮水壁外から流入する地下水量が増えるため、揚水量が増加する。このため、難透水層内の浸透速度や浸透量を揚水量から推定できない。ただし、この場合でも難透水層内に汚染拡散防止に必要な上向きの浸透速度を生じさせるために必要な遮水壁内外の地下水位差は同じなので、難透水層の透水係数が $1.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$ 以下の場合には、リスク管理の指標としては揚水量ではなく遮水壁内外の地下水位のほうが望ましい。

なお、今回の数値解析は、薄い難透水層しか存在しない現場においても、地下水揚水を併用することで原位置封じ込め措置の適用が可能になることを確認するために実施した。このため、解析に使用した帯水層条件や判断基準は限られており、数値解析で得られた汚染拡散防止に必要な揚水量や遮水壁内外の地下水位差などの数値は、透水係数や有効間隙率などによって変化する。したがって、本技術を実現場に適用する際には、現場に合った帯水層モデルを使用した数値解析などにより詳細な検討を行う必要がある。

(3)原位置バイオレメディエーション

テトラクロロエチレン(PCE)などの揮発性有機塩素化合物によって汚染された地下水を浄化する技術として注目されている原位置バイオスティミュレーションに対する数値解析モデルを構築し、実現場に適用して分解促進効果を検討した。今回は、工場敷地内で漏出した揮発性有機塩素化合物により地下水が汚染された現場(事例1)および産業廃棄物の不法投棄によって地下水が揮発性有機塩素化合物で汚染された現場(事例2)を対象とした。なお、事例1は実対策であるが、事例2は使用する薬剤や井戸間隔を決めるために事前に行われた実証試験である。このため、事例2では物質によっては濃度が環境基準値を下回っていない。

原位置バイオスティミュレーションでは、地下水中に薬剤を注入することによって地中の微生物を活性化させ、帯水層中で汚染物質の分解・無害化を図る。事例1では、薬剤を加えた地下水を注水井と揚水井を使って原位置で循環させながら浄化する方法が採用されている。ここでは、汚染物質のPCEを、トリクロロエチレン(TCE)、ジクロロエチレン類(DCEs)、塩化ビニル(VC)を経て無害なエチレンまで脱塩素化させることが目的になる。一方、事例2では、事例1のように地下水の循環は行わず、井戸から薬剤を注入だけである。この現場で検出された物質の種類は多く、エチレン系のPCE、TCE、DCEs、VC、エタン系の1,1,1-トリクロロエタン(1,1,1-TCA)、1,1,2-トリクロロエタン(1,1,2-TCA)、

1,2-ジクロロエタン(1,2-DCA)、およびメタン系の四塩化炭素(CT)、ジクロロメタン(DCM)である。すなわち、塩素化エチレン類はエチレンまで、塩素化エタン類はエタンまで、塩素化メタン類はメタンまで脱塩素化させることが目的になる。

表1は事例1と事例2で得られた分解促進効果(平均値)を自然減衰速度(一次反応速度定数で $10^{-3}d^{-1}$)に対する倍数として示している。揮発性有機塩素化合物の脱塩素化特性として、塩素数の多い物質の脱塩素化が速いと言われているが、今回の数値解析でも同じ傾向が得られている。還元的脱塩素化を利用した揮発性有機塩素化合物の原位置バイオステイミュレーションで期待される分解促進効果は十倍から百倍程度と言える。ただし、今回の解析では1,2-DCAのみ分解促進効果が3倍と大きくなかった。

表1 分解促進効果(自然減衰速度の倍数として表示)

物質名		事例1	事例2
エチレン系	PCE	161	317
	TCE	174	295
	DCEs	122	50
	VC	93	95
エタン系	1,1,1-TCA		79
	1,1-DCA		-
	1,1,2-TCA		117
	1,2-DCA		3
	CA		-
メタン系	CT		-
	CF		-
	DCM		130
	CM		-

(4) 揮発性有機塩素化合物による複合汚染

揮発性有機塩素化合物による土壌地下水汚染に対するリスク評価を複数の現場データを用いて行った。揮発性有機塩素化合物による土壌地下水汚染では、元々の汚染物質だけでなく、分解生成物の多くも規制対象になる。そのため、汚染対策やリスク評価では複数物質による汚染(複合汚染)に対して実施することが求められる。

このような複数物質を対象としたリスク評価については複数の考え方がある。一つ目は、「日本の法制度が個別物質毎、曝露頻度毎に考えられている点を踏まえ、それと整合するかたちで、個別物質毎に各曝露経路のリスクをそれぞれ評価する」方法である。これに対して、「複合汚染がある場合のリスク(Risk、閾値無し)およびハザード比(HQ、閾値有り)の計算ではそれぞれの物質を累計的に考察することが可能」とする考え方もある。前者は(一社)土壌環境センターで開発されたSERAM、後者はアメリカで開発されたRBCA

になる。また、土壌地下水汚染ではないが、国立環境研究所では「大気汚染を対象とし、複合曝露の健康リスクを評価するには、化学物質の相互作用を考慮しなければならず、各々の化学物質の独立した作用の和とみなすことができない狭義の相互作用には層状作用と拮抗作用が考えられる。しかし、これらの研究事例は二つもしくは数種の汚染物質に対してであり、多くの汚染物質がある場合は協議の相互作用は考慮せず、各化学物質によるリスクの和を複合曝露によるリスクである」と考えている(化学物質環境リスクに関する調査・研究(終了報告)、国立環境研究所特別研究報告、SR-76、2006)。今回は複合汚染がある場合は個々のリスクの和を考える方法で検討した。

① 事例(1)

ここでは、TCEによる地下水汚染が発覚してから長期間に渡り地下水揚水処理を実施した現場のモニタリングデータを利用して、飲用リスクを評価した。なお、当時はVCが環境基準物質に指定されておらず定期モニタリングされていなかった。このため、評価対象はTCEおよびcis-1,2-DCEになる。ただし、cis-1,2-DCEの測定は水質環境基準物質に指定された1993年以降に始まったため、それ以前のデータはTCEのみである。また、定期モニタリングで検出されたcis-1,2-DCEは地下水中におけるTCEの自然減衰(今回の場合は、自然条件下での還元的脱塩素過程)によって生成されたものである。

図1にTCEの自然減衰効果を考慮した場合(実データ)と自然減衰効果がなかったと仮定した場合のTCEの濃度およびリスクの時間変化を示す。これによると、自然減衰がなかった場合には、1994年4月に目標リスクを超過している。また、それ以降は目標リスクの超過は見られないが、自然減衰効果がなかった場合には目標リスクに近い値となっている。これは、cis-1,2-DCEにスロープファクターがないためである。すなわち、TCEが還元的脱塩素化してcis-1,2-DCEが生成されることでリスクは減る。ただし、VCのスロープファクターはTCEより2オーダー大きい

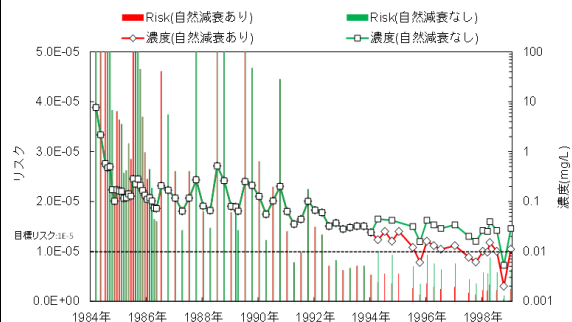


図1 リスクの計算結果

この現場でcis-1,2-DCEの還元的脱塩素化によりVCが生成している場合、VCを含めたリスクは大きくなると推察される。VCについては他の事例で考察する。

図2にTCEとcis-1,2-DCEによる複合汚染があった場合の濃度とハザード指数(HI、個々の物質のハザード比を合計したもの)の時間変化を示す。なお、モニタリングしていなかった1994年以前のDCEs濃度については、今回は実測で得られたTCEとDCEsの濃度比を使って推定している。図中の白抜きマークは濃度が環境基準値未満を示している。これによると、cis-1,2-DCE濃度を考慮した場合には、目標ハザード比を下回るまでの期間が2年程度延びる可能性が推察される。すなわち、TCEとcis-1,2-DCEの2物質がリスク評価の対象となる場合、TCEの還元的脱塩素化によってリスクは減るが、ハザード指数は増えることに留意しなければならない。

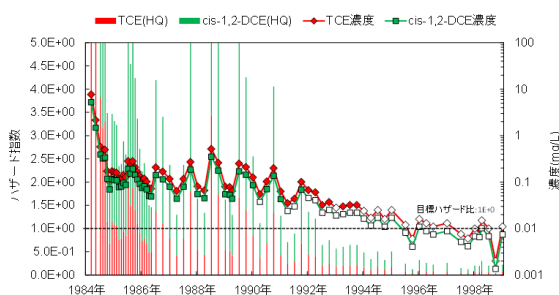


図2 ハザード指数の計算結果

② 事例(2)

第3章(原位置バイオレメディエーション)の事例1のデータを使い、浄化対策実施期間中の塩素化エチレン類のリスクを評価した。図3と図4にリスクとハザード指数の計算結果を示す。図中の白抜きマークは濃度が環境基準値未満であることを示す。計算結果によると、リスクはVC、ハザード指数はDCE(ここではcis-1,2-DCE)の影響が一番大きい。これはVCのスロープファクターがPCEやTCEより2オーダー大きいこと、およびDCEの参照用量が他の3物質よりも小さいことに起因している。最終的には、全物質濃度が環境基準値未満となる723日目にはリスクとハザード指数の両方とも目標値を下回るが、それまではVCとDCEの影響が非常に大きい状態が継続する。これら2物質は前章の分解促進効果算定結果からPCEやTCEよりも還元的脱塩素化速度が小さく、浄化期間中の一時期には濃度が大きくなる傾向が見られる。したがって、リスクベースで原位置バイオレメディエーションの管理を行う場合には、汚染物質になるPCEやTCEよりも分解生成物であるDCEとVCの重要性が増すことが示唆される。

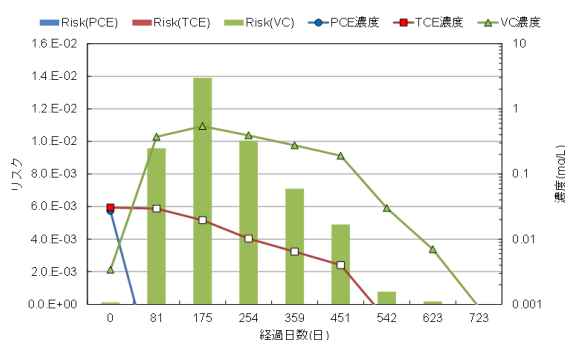


図3 リスクの計算結果

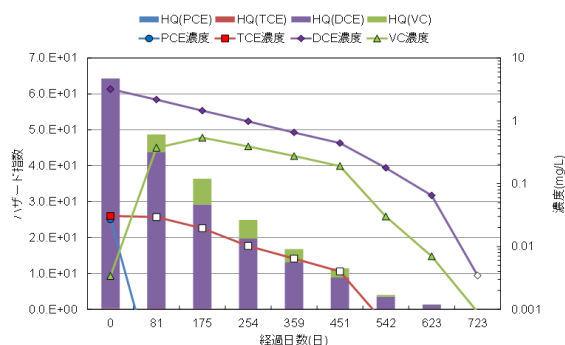


図4 ハザード指数の計算結果

③ 事例(3)

事例(2)と同様のリスク評価を第3章(原位置バイオレメディエーション)の事例2で行った。図5と図6にリスクとハザード指数の計算結果を示す。この現場は事例(2)とは異なり、エチレン系以外の揮発性有機塩素化合物にも汚染されており、複合汚染としてのリスク評価はさらに複雑になる。計算結果によると、事例(2)と同様にリスクはVC、ハザード指数はDCEsの影響が大きく、これはVCやDCEsのスロープファクターや参照容量の数値だけでなく、PCEやTCEの還元的脱塩素化に伴って両濃度が上昇していることに起因する。

エチレン系以外に関しては、リスクは1,2-DCAとDCM、ハザード指数はDCMの影響が大きい。ただし、1,2-DCAとDCMのリスクはVCの10分の1程度と大きくない。一方、DCMのハザード比はDCEと同等以上である。DCMの参照用量はDCEの3倍程度なので、有害性という観点ではDCEほど大きくはない。ただし、実証試験期間中のDCM濃度は高い状態が継続しており、これがハザード指数に占めるDCMの割合が大きくなった理由である。このように、原位置バイオレメディエーションをリスクベースで評価する場合には、対象物質の濃度と分解促進効果だけでなく、リスク評価の指標となるスロープファクターや参照用量などの数値についても考慮することが重要と言える。

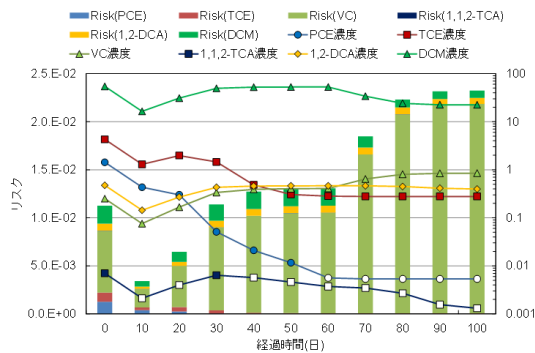


図5 リスク計算結果

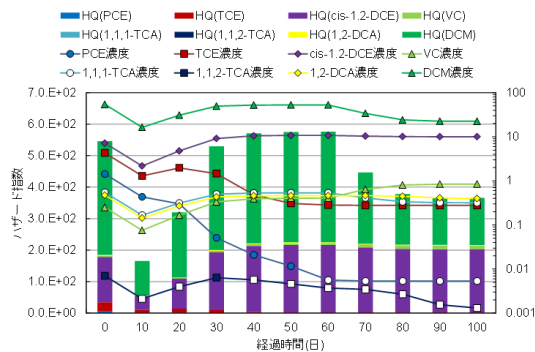


図6 ハザード指数の計算結果

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

①渡辺俊一、江種伸之、平田健正、横山尚秀、山里洋介、森田昌敏、Three-Dimensional Numerical Simulation of Groundwater Contamination by Organoarsenic Compounds in Kamisu City, Japan、Groundwater Quality Management in a Rapidly Changing World (IAHS Publ. 342)、査読有、2011、pp. 171-175

②江種伸之、姜学妍、峠和男、西田憲司、平田健正、地下水揚水を併用した原位置封じ込め措置の土壤汚染の拡散防止効果、地盤工学ジャーナル、査読有、Vol. 6、No. 2、2011、pp. 297-304

③渡辺俊一、江種伸之、平田健正、横山尚秀、山里洋介、森田昌敏、茨城県神栖市で起きた有機ヒ素化合物による地下水汚染機構の解明に関する数値解析、地盤工学ジャーナル、査読有、Vol. 6、No. 2、2011、pp. 383-394

④平田健正、暴露経路の遮断で健康影響低減と土地活用が可能にー改正土壤汚染対策法の下で技術開発と改善が必要ー、ENECO、査読無、Vol. 44、No. 4、2011、pp. 94-95

[学会発表] (計6件)

①渡辺俊一、江種伸之、平田健正、横山尚秀、山里洋介、森田昌敏、Effects of groundwater withdrawal and its agricultural use on groundwater quality in a shallow aquifer、GQ13 (IAHS)、2013. 4. 21、フロリダ大学(米国)

②開徳憲史、江種伸之、平田健正、原位置バイオスティミュレーションによる揮発性有機塩素化合物の分解促進効果、第13回地下環境水文学に関する研究集会、2012. 11. 10、香川大学

③平田健正、土壤汚染対策で思うことー土壤汚染対策の近況ー、NPO土壤汚染対策コンソーシアム主催第22回土壤汚染シリーズセミナー「土壤汚染対策のあるべき姿と普及啓発」、2012. 4. 10、ドーンセンター(大阪市)

④開徳憲史、江種伸之、松本慧、平田健正、菊池恭志、川本克也、岩手青森県境不法投棄現場における揮発性有機塩素化合物の微生物分解促進効果、第17回地下水・土壤汚染とその防止対策に関する研究集会、2011. 6. 17、サンピアンかわさき(川崎市)

⑤江種伸之、地下水揚水を併用した原位置封じ込め技術によるリスク低減効果に関する解析的検討、第11回地下環境水文学に関する研究集会、2010. 10. 16、琉球大学

⑥江種伸之、姜学妍、峠和男、西田憲司、平田健正、地下水揚水を併用した原位置封じ込めにより汚染拡散の防止、第16回地下水・土壤汚染とその防止対策に関する研究集会、2010. 6. 18、仙台市民会館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平田 健正 (HIRATA TATEMASA)

和歌山大学・学内共同利用施設等・理事

研究者番号：30093454

(2) 研究分担者

江種 伸之 (EGUSA NOBUYUKI)

和歌山大学・システム工学部・准教授

研究者番号：00283961