

扇状地地下水での低沸点有機塩素化合物汚染の特性と 多変量解析による検討

Characteristics of Groundwater Pollution by Volatile Chlorinated Hydrocarbon
on Alluvial Fan and Its Multivariate Analysis

坂本 康^{*}・中村文雄^{**}・風間ふたば^{***}

By Yasushi SAKAMOTO, Fumio NAKAMURA, and Futaba KAZAMA

Characteristics of groundwater pollution by volatile chlorinated hydrocarbon were examined for alluvial fan wells. The results showed that some wells were contaminated both by nitrate and by 1,1,1-Trichloroethane. The principal component analysis and cluster analysis were applied to water qualities of contaminated wells. The results showed that the grouping was more dependent on sampling time than on sampling station, and that the variation of 1,1,1-Trichloroethane concentration was related to the grouping on the sampling day.

Keywords: groundwater pollution, alluvial fan, volatile chlorinated hydrocarbon, multivariate analysis

1. はじめに

わが国でも低沸点有機塩素化合物による地下水汚染は多数報告されている。しかし、汚染源の調査はその半数程度でしか行われていない。これは、地中での水の流れを特定することが難しいためである。地中の流れの推定では、水質から水の流れを推定する手法が今後重要になると考えられる。具体的手法としては、多変量解析の手法（主成分分析＋クラスター分析）により井戸をグループ化する方法が有力である。この手法による研究例はいくつかある（瀧(1993)、乙間・中杉(1989)、Rosenthalら(1990)、Rauret&Rubio(1988)、Ashley & Lloyd(1978)など）。しかし、わが国での実例の数は十分とはいえず、どのような地形・地質でどのような結果が得られるかを整理できる段階にはいたっていない。また、低沸点有機塩素化合物の濃度変動特性など基本的な検討もまだ不十分である。そこで本研究では、扇状地扇端部の汚染を対象に、まずその汚染分布のようすと時間変動を検討した。さらに、上述の多変量解析の手法の適用を試みた。本研究で対象とした汚染地域の特徴としては、扇端部で勾配がゆるやかである上、複数の川に接した地域であるために流れ方向が明確でない点、農地が主で施肥等による汚染も見られる点である。また、検討の特徴は、低沸点有機塩素化合物濃度の変動を水質から求めた流向の変動と関係づけようとした点である。

* 正会員 工博 山梨大学助教授 工学部土木環境工学科

** 正会員 工博 山梨大学教授 工学部土木環境工学科

*** 正会員 工博 山梨大学助手 工学部土木環境工学科

(〒400 甲府市武田 4-3-11)

2. 水質観測方法

2.1 対象地域

対象地域は、甲府盆地内南東部の笛吹川沿いに位置する。地形の概要・対象井戸の位置を図-1に示す。なお、図-1の笛吹川での標高は約260mである。この地域は御坂山塊から盆地に流れ込む二つの川（図ではA川、B川と記す）の間に形成された扇状地である。土地利用は、桃・ぶどうの果樹園が大部分である。対象井戸は、当初この範囲のできるだけ多くの井戸を想定した。しかし、扇頂部・扇中央部には井戸がほとんどなく、扇端部の地域が主な対象となった。また、低沸点有機塩素化合物による汚染が見られたのもこの地域だけであった。

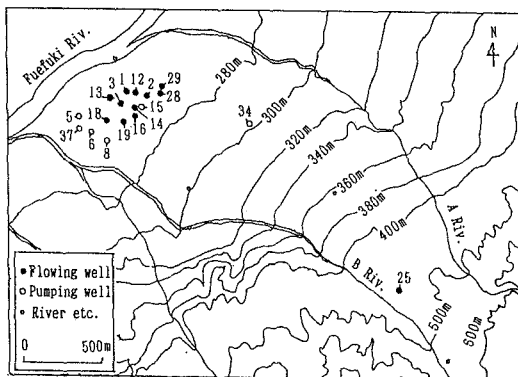


図-1 対象地域・井戸概要図 (●:自噴、○:ポンプ)

扇端部の地質は、対象地域北部のボーリング柱状図（深さ120mまで）によると、深さ 55mまでは河川堆積層で55-86mは火山性凝灰岩、それ以深は砂礫層であった。また、河川堆積層中には19-22m、34-40mに粘土層があり、他は砂礫層・砂層であった。対象井戸は、直径数cmの管を水脈まで打ち込んで自噴水を利用する構造のものが主であった。このため、井戸掘削時の柱状図はなく、井戸の深さも明確でなかった。井戸所有者からの聞き取り調査によると、井戸 3、14、16、29は 0-20m、1、5、6、8、13、15、25は、20-40m、2、12、28は50m、34は60m、13、37は不明であった。しかし、この値は所有者の記憶によるため正確ではない。また、井戸の深さと採水層の深さは一致していない。たとえば、井戸13では井戸の深さは 40mであるが、地中に打ち込む管には8m以深に穴があり、8-40mの範囲が採水層になっている。図の井戸のうち、28では造園業、29では建材業を営んでいるが、他は一般家庭（主に農家）と寺社である。この地域は地表勾配が緩やかで、地表勾配からは地下水の流下方向は推定できない。可能性としては、笛吹川に鉛直な北西方向の流れと、より西向きに笛吹川流下方向の流れが考えられる。本報では、扇端部の地域の16井戸と扇中央部の34の井戸、扇頂部の25の井戸、計18井戸を検討対象とした。

2.2 採水方法・分析方法

採水は、1993年10月10日、11月10日、12月10日、1994年1月16日の4回おこなった。各採水日の前一週間の降雨量は、10月10日は87mm、11月10日は53mm、12月10日は 0.3mm、1月16日は 0.0mmである。測定項目は、一般水質ではpH、電気導電度 (EC) と主要陰イオン (Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-})、主要陽イオン (K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+})、低沸点有機塩素化合物では1,1,1-トリクロロエタン (MC)、トリクロロエレン、テトラクロロエレンである。ただし、低沸点有機塩素化合物は1,1,1-トリクロロエタン以外は検出されなかった。陰イオン濃度は高速液クロ（電導度検出器）、陽イオン濃度はフレイム分光光度計、低沸点有機塩素化合物濃度はn-ヘキサン抽出+ECD-GCでそれぞれ測定した。

3. 水質観測結果

3.1 陰イオン濃度分布

扇状地全体の陰イオン濃度分布の概要を図-2に示す。図には前述の対象井戸の他に最上流部での湧水、笛吹川とB川の河川水の結果も示す。図のように、地下水濃度は河川水濃度より高く、また下流にいくに従って上昇している。この傾向は、陽イオン濃度分布でも同様であった。扇端部では、ほとんどの井戸で硝酸性窒素濃度が水道水の基準値10mg/l (NO_3^- 0.71meq/l) を

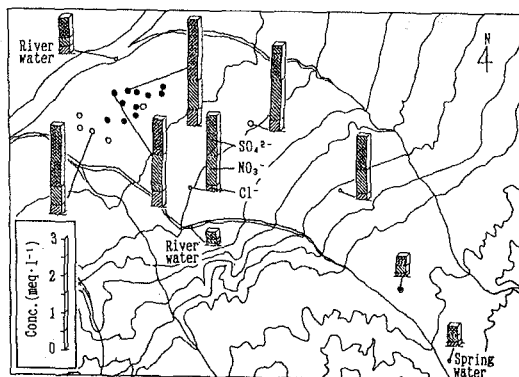


図-2 陰イオン濃度分布 (meq/l)

越えており飲用に適さない水になっていた。この硝酸性窒素による汚染では汚染は面的に広がっており、面源（果樹への施肥など）による汚染ではないかと考えられる。

3.2 1,1,1-トリクロロエタンの濃度分布と変動

扇端部での1,1,1-トリクロロエタンの濃度（4回の測定の平均値）の分布を図-3に示す。図のように自噴井戸を中心に、汚染が見られた。最高濃度は井戸13で観測された488ppbであった。つまり、扇端部は硝酸性窒素と1,1,1-トリクロロエタンのダブル汚染地域となっていた。このことは、ある物質で汚染された地下水には物性の異なる他の物質による汚染の可能性もあることを示唆している。また、陰イオンによる汚染（図-2）と比較すると、汚染井戸が線的に並んでいることが特徴である。このことは、点源汚染であることを示唆している。

各採水日の1,1,1-トリクロロエタンの濃度の変化を図-4に示す。図には特に濃度が高い井戸での変動を示したが、他の井戸でも傾向は同じであった。図によると、各井戸の濃度の大小関係は4回の観測で常に同じであった。また、12月10日以外は同程度であった。しかし、12月10日には他の採水日より低い濃度が観測された。以上から、1,1,1-トリクロロエタンの濃度は数カ月程度の長期的目でみれば比較的安定しているが、短期的には変動もあると考えられる。なお、扇端部の1,1,1-トリクロロエタンの濃度については、1991年、1992年にも観測している。その結果では、1991年から1992年にかけて濃度が低下したが、1993年は1992年と同程度であった。また、1991年、1992年には、微量ではあるがトリクロロエチレン、テトラクロロエチレンが検出された井戸もあった。

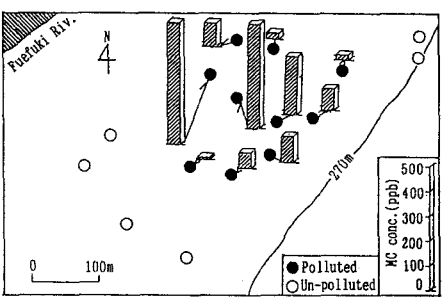


図-3 1,1,1-トリクロロエタンの濃度分布 (ppb)

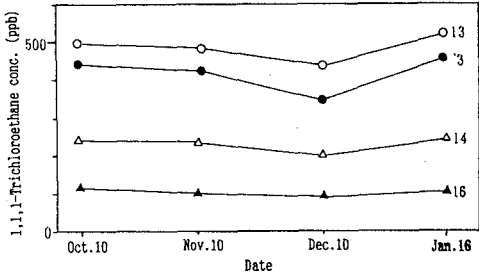


図-4 1,1,1-トリクロロエタンの濃度変動

4. 多変量解析方法

井戸水では、本研究の対象地域のように実際の採水層がはっきりしない場合が多い。このため、水質を使って採水層・水系を区別する方法が用いられている。日本では乙間・中杉(1989)が、水質により井戸をグループ化しないと等濃度線が得られない例を報告している。乙間・中杉の方法は主成分分析とクラスター分析を組み合わせるものだが、本報でも同じ方法により井戸のグループ化を行った。まず、pH、ECと Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の9項目の一般水質の相関行列から、累積寄与率 0.97以上となる5あるいは6個の主成分を抽出した。そして、各主成分のスコアによりクラスター分析（ウォード法）を行った。非類似度としては、標準化ユークリッド距離を採用した。

5. 多変量解析結果

5.1 平均値を用いた場合

18井戸のそれぞれで、各一般水質項目の4回の観測値の平均値を求めた。そして、得られた18組の観測値に対して、主成分分析＋クラスター分析を行った。得られた主成分は5個であった。第一～三主成分の因子負荷量を表-1に示す。第一主成分はECで代表されるイオン濃度の高さを示している。この主成分のスコアは、扇頂部の井戸25で他の井戸の 1/140以下と極端に小さくなった。第二主成分は K^+ に影響を受けている。この主成分のスコアは、1,1,1-トリクロロエタンの濃度が最高となった井戸13と同じ

表-1 主成分の因子負荷量

	Principal Components based on Averaged Data			Principal Components based on Non-averaged Data		
	1st	2nd	3rd	1st	2nd	3rd
pH	-0.18	0.55	0.77	-0.27	-0.31	-0.85
EC	0.99	0.07	-0.00	0.78	-0.43	-0.31
Cl^-	0.80	0.04	-0.49	0.71	-0.51	0.26
NO_3^-	0.74	0.58	-0.07	0.48	-0.71	-0.28
SO_4^{2-}	0.87	-0.37	0.02	0.65	-0.22	0.55
K^+	0.34	-0.79	0.38	0.57	0.69	-0.22
Na^+	0.91	0.33	0.08	0.86	0.25	-0.33
Ca^{2+}	0.98	0.01	-0.02	0.93	0.08	0.22
Mg^{2+}	0.84	-0.17	0.47	0.80	0.52	-0.25
accumulated proportion	0.62	0.79	0.92	0.49	0.70	0.87

グループに属する井戸で他のグループより高くなった。この主成分のスコアが最高となったのは扇中央部の井戸34であった。第二主成分は井戸34との類似性の指標ということもできる。

クラスター分析で得られた樹形図を図-5に示す。また、井戸13と同じグループ（非類似度<3）となった井戸を図-6に●で示す。図-6には、宅地の位置も示したが、これらの宅地とそれらをつなぐ道路以外はすべて農地である。図-6で示した井戸13と同じグループの井戸の深さはまちまちであった。図-6には、乙間・中杉にならないあえて等濃度線も描いてみた。しかし、この等濃度線の最急勾配の方向が汚染源の方向であるとあえて仮定すると、農地の中に汚染源があることになってしまう。グループ化により等濃度線を得るという方法は、汚染源の周囲どの方向にも観測井戸がある場合は有効である。しかし、本研究の対象地域のように、流域の外れに汚染された井戸が集まっている場合には適用できない。汚染源位置を推定するためには、等濃度線以外の方法が必要である。一般水質の平均値を使ったクラスター分析では、汚染井戸が広がっている方向とグループ境界の方向が一致し、この方向は等高線の最急勾配方向でもあった。このことから、グループの境界の方向と流れ方向とに関係がある可能性がある。このような視点で次に、平均値でなく各採水日の個々のデータを使ってグループ化を行った。

5.2 全観測値を用いた場合

図-4に示したように、12月10日には1,1,1-トリクロロエタンの濃度が低下した。このような低下が井戸グループとどう対応するかを調べるために、各採水日毎にグループ化を行った。各採水日の個々の観測値を使ってグループ化する方法には、各採水日の18組の観測値で各採水日毎にそれぞれ別々にグループ化する方法と、井戸数×測定回数（4回）、計72組の全観測値を一緒にしてグループ化する方法がある。しかし、前者では採水日毎に抽出される主成分が異なり、異なる採水日同志の比較ができない。そこで、本報では共通の主成分を用いる後者の方法でグループ化を行った。本研究の方法と同様に、異なる採水日のデータを一緒にしてクラスター分析した例としてKaurek&Rubio(1988)の研究がある。

主成分分析結果として、第一～三主成分の因子負荷量を表-1に示す。第一主成分はイオン濃度の高さを示す。第二主成分の因子負荷量は陽イオン濃度で正、陰イオン濃度で負となった。このことから、第二主成分はイオン・バランスの指標、あるいは測定していないイオン（炭酸イオンなど）の濃度の指標とも考えられる。

クラスター分析結果では、扇頂部の井戸25だけはすべての採水日で同じグループとなった。しかし他の井戸では、同じ井戸

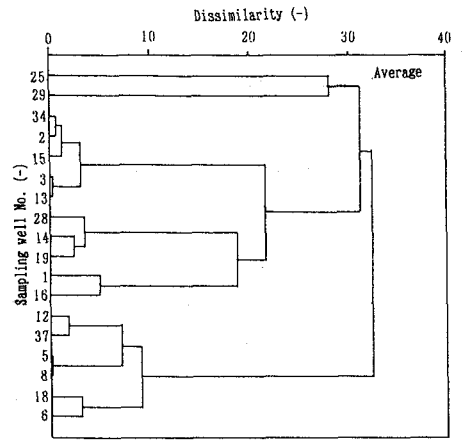


図-5 平均値によるデンドログラム

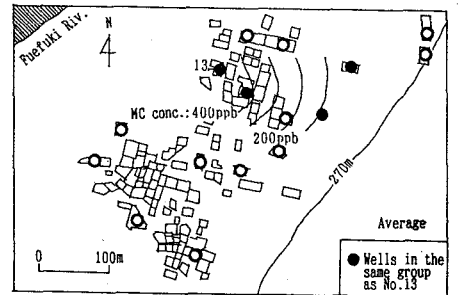


図-6 平均値によるグループ区分

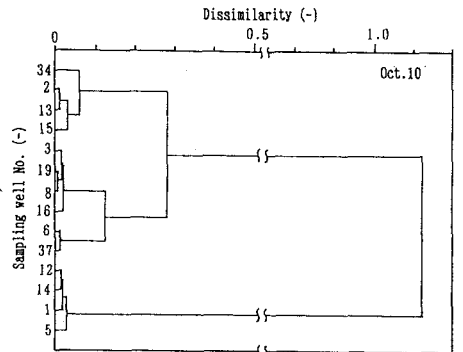


図-7 10月10日のデンドログラム

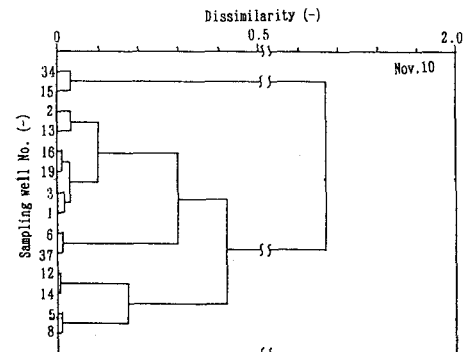


図-8 11月10日のデンドログラム

でも採水日によってグループが異なる傾向がみられた。Rauret & Rubio(1988)の研究結果では、一つの井戸は採水日によらず同じグループに属する傾向の方が強かった。その結果と比較すると、本対象地域では地点差よりも採水日による差の方が大きく現れたといえる。クラスター分析で得られた採水日毎の樹形図を非類似度 2以下の範囲について図-7~9 に示す。図-7は10月10日、8は11月10日、9は12月10日の結果である。1月16日は結果が10月10日と類似していたので省略した。図-7、8 には非類似度の大きい井戸18、25、28、29の井戸、図-9には25、28、29の井戸が含まれていない。10月10日、11月10日には他とかけ離れた水質であった井戸18が、12月10日には他の水質と変わらなくなっていることが樹形図の一つの特徴といえる。また、1、1、1-トリクロロエタンの濃度が最高となった井戸13を含むグループは、10月10日、1月16日には扇中央部の井戸34も含んでいた。これに対し、12月10日に井戸34と同じグループになるのは井戸13よりも南よりの井戸 3、15であり、11月10日に井戸34と同じグループになるのは井戸15のみであった。

1、1、1-トリクロロエタンの濃度が最高となった井戸13と同じグループ（非類似度<0.1）に属した井戸を図-10 ~12に●で示す。図には、グループの境界を破線で示す。図によると井戸13と同じグループに属した井戸の分布は10月10日と1月16日では同じで、11月10日はそれよりも南東に、12月10日は南西に広がった。グループ構成の採水日による差は、採水日による流れ方向の差によるかもしれない。グループ井戸の分布を地形・地下水位分布とともに示した例としてAshley & Lloyd(1978)の報告がある。その例では、同一グループは川の流れ方向、水頭勾配の方向に分布している。したがって、本研究の対象地域でも、グループ井戸の分布方向の変化は流れ方向の変化が原因である可能性がある。もしそうなら、その流れ方向の変化によって、12月10日に1、1、1-トリクロロエタンの濃度が下がった（図-4）可能性がある。

なお、汚染源については、疑わしい事業所はあったが確証は得られていない。

6.まとめ

有機塩素化合物による扇状地扇端部の地下水汚染について、その水質特性および一般水質の多変量解析によるグループ化の結果との関係を検討した。得られた主な知見は以下である。

- (1) 研究対象地域は、硝酸性窒素と1、1、1-トリクロロエタンによるダブル汚染地域であった。このことは、ある物質で汚染された地下水には物性の異なる他の物質による汚染の可能性もあることを示唆している。
- (2) 硝酸性窒素汚染井戸が面的に広がっているのに対して、1、1、1-トリクロロエタン汚染井戸は線的に並ぶ傾向があった。このことは、硝酸性窒素汚染は面源汚染、1、1、1-トリクロロエタン汚染は点源汚染であるためと考えられる。

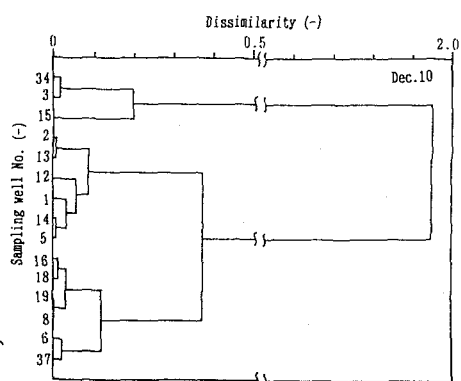


図-9 12月10日のデンドログラム

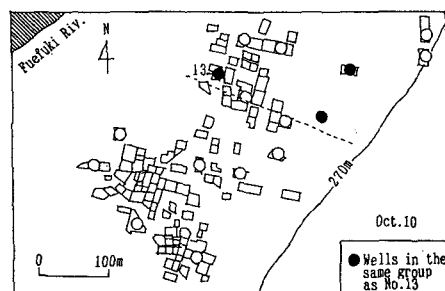


図-10 10月10日のグループ区分

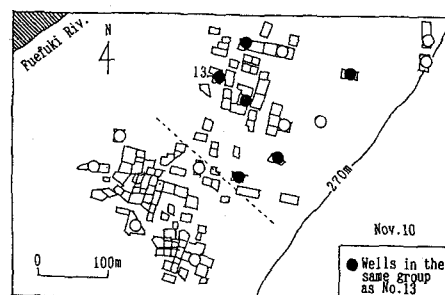


図-11 11月10日のグループ区分

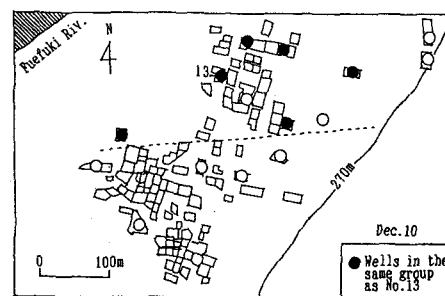


図-12 12月10日のグループ区分

- (3) 汚染井戸の1,1,1-トリクロロエタンの濃度は長期的にはほぼ安定しているが、他より低い値を示す測定日もあった。
- (4) 各採水日の一般水質を使ったクラスター分析を試みた。その結果、1,1,1-トリクロロエタンの濃度が他の採水日より低い採水日のデータでは、グループ化の結果も他の採水日と異なっていた。

謝辞

本報では井戸水の採水・水質測定において、山梨大学工学部土木環境工学科平成5年度卒業生、中川淳氏（現、日本技術開発㈱）の多大なる協力を得た。また、対象地域の選定、1991年、1992年の水質観測では山梨大学工学部環境整備工学科卒業生、加崎史啓氏（現、大分県庁）、高田治雄氏（現、積水化学工業㈱）の多大なる協力を得た。ここに記して謝意を表したい。

参考文献

- 乙間末広・中杉修身(1989)：観測井水質の多変量解析による地下水汚染の状況把握、水質汚濁研究、12(2)、105-111
- 瀧和夫(1993)：市街化地域における地下水の汚染調査と解析、「地下水汚染・土壌汚染の現況と浄化対策」、166-181、工業技術会
- Ashley,R.P. and Lloyd,J.W.(1978): An example of the use of factor analysis and cluster analysis in groundwater chemistry interpretation, Journal of Hydrology, 39, 355-364.
- Kauret,G. and Rubio,R.(1988): Cluster Analysis as a Tool in the Study of Groundwater Quality, International Journal of Environmental Analytical Chemistry, 32, 255-268
- Rosenthal,E.A.,Issar,A.S., and Batelaan,O.(1990): Definition of groundwater flow patterns by environmental tracers in the multiple aquifer system of southern Arava Valley, Israel, Journal of Hydrology, 117, 339-368.