

(6) リスクアセスメント手法を用いた複数の有害物質による
土壌・地下水汚染の浄化目標値設定手法に関する検討

Risk Assessment Methodologies to Set Remediation Goals
for Multiple Contaminants in a Contaminated Site

藤長愛一郎*、松久裕之*、笹本譲*、中馬逸男*

Aiichiro FUJINAGA*, Hiroyuki MATSUHISA*, Yuzuru SASAMOTO*, and Itsuo CHUMAN*

ABSTRACT; Risk assessment methodology to set remediation goals were studied for a contaminated site with multiple contaminants such as tetrachloroethylene (PCE), trichloroethylene (TCE), etc. The methodology comprises of four steps. First, remediation technologies are selected to decrease the contaminants. Second, the decreasing concentrations of the contaminants are predicted by using numerical simulation techniques. Third, total risks (a non-cancer hazard index, HI, and a cancer risk, RiskT) are calculated by using the predicted concentrations. Forth, remediation goals for the multiple contaminants are set as the total risk is under the acceptable risks ($HI < 1$ and $RiskT < 10^{-5}$). In this study, the selected remediation technologies were pump & treat, natural attenuation, and combination of pump & treat and natural attenuation. The methodologies in this study could be applied to set remediation goals for the contaminated site with multiple contaminants.

KEYWORDS; Risk Assessment, Multiple Contaminants, Remediation Goals.

1. はじめに

近年、日本においても土壌・地下水汚染が注目をあびるようになってきており、土壌・地下水汚染の実態がしだいに明らかになってきている。汚染サイト数は、環境庁の報告だけでも1,512件¹⁾、潜在的なものは数十万あるという見方が有力であり²⁾、環境への影響が懸念されている。そこで、汚染された土壌・地下水を人の健康や生態系に影響のないレベルにまで浄化する必要が生じている。現在、日本では有害物質ごとに環境基準値が定められているが、その値は汚染現場に有害物質が1つある場合でも、多数ある場合でも同じである。また、土地の用途（工場用地、住宅地、公園など）や条件（地下水の利用、川などの有無）に関係なしに、農地や自然由来などの例を除いて日本全域で同じ基準値が適用されている。汚染土壌・地下水を浄化する際に、環境基準値には法的な強制力はないが、この値に従って対策しているのが現状である。

一方、アメリカやオランダなどでは、汚染現場ごとに人の健康に与えるリスクや、生態系に与えるリスクを現場の状況に応じた暴露シナリオに基づいて計算し、その結果に基づいて浄化を行っている。リスクに基づいた浄化目標値（Risk-based remediation goals）については、米国環境保護局（U.S.EPA）、米国材料試験協会（ASTM）や州の環境局などから、単一の有害物質で汚染された場合の計算例が数多くの有害物質について報告されている^{3) 4) 5) 6)}。しかしながら、それらの報告では、現場が複数の有害物質で汚染されているケースについては取り扱われておらず、複数の有害物質の各々の浄化目標値を定める手法については言及されていない。リスクの概念に基づけば、有害物質が複数存在する場合は個々の有害物質によるリスクの値を統合させた値でリスクを評価する。よって、有害物質の数に応じて個々の浄化目標値も変化し、複数の有害物

(株)鴻池組 土木本部 技術部（環境担当）(Environmental Service Division of Civil Engineering Department,
Konoike Construction Co., Ltd.)

質をどのような割合で減らせばよいのかは、有害物質の種類、現場の状況や浄化方法によっても異なる。そこで本論文では、浄化方法ごとにモデル式を使用して個々の有害物質濃度の変化を予測し、総合のリスクが許容値を越えないような各有害物質の濃度を計算して、浄化目標値とする手法を検討した。

2. U.S. EPA のガイドラインに沿ったリスク計算方法

2.1 土壌・地下水中の有害物質及び濃度

汚染サイトの例として、製造メーカー原因の有機塩素化合物による汚染を例に用いてモデル化し、U.S.EPA のガイドライン⁷⁾に沿ってリスクの計算を行った。この製造メーカーは、1964 年から 10 年間ほどトリクロロエチレン (TCE) を主とした有機塩素化合物を洗浄溶剤として使用していた。排水管が破損し、漏洩した事故が 2 度あり、いずれも発見後即刻修理したと報告されているが、漏洩した有機塩素化合物の全量は不明である。1999 年からの調査によって、汚染は 50 m × 200 m の範囲の帯水層に主に分布していることが判明している。帯水層は砂礫層からなり、表層土壌である不飽和層 (6m) 以深の 60m におよぶ。地下水の 87 サンプルから検出された有害物質濃度は、統計処理をして平均値を下回らない値 (90%UCL 値)⁸⁾ が 1,1,1-トリクロロエタン (1,1,1-TCA) 0.26 mg/L、テトラクロロエチレン (PCE) 2.86 mg/L、トリクロロエチレン (TCE) 3.57 mg/L、シス-1,2-ジクロロエチレン (cis-1,2-DCE) 0.10 mg/L であった。また、不飽和層は、帯水層の地下水に検出された有機塩素化合物で汚染されておらず、漏洩時には表層土壌中に存在していたであろう有機塩素化合物が帯水層にまで浸透したものと考えられる。よって、本汚染現場のリスクは、地下水中の有機塩素化合物を汚染対象とし、表層土壌からの暴露経路は考慮しないものとした。

2.2 リスクシナリオ (暴露経路と暴露する人) 設定

人の健康に与えるリスクを求めるためには、有害物質が環境中に漏洩してから、暴露する人までの経路を汚染現場の状況に応じて設定する必要がある。図 1 にこの汚染現場で設定した地下水を汚染対象とした場合の暴露経路と暴露する人を示す。設定した暴露経路は、PCE, TCE 等の有害物質で地下水が汚染されており、現場では地下水を利用することより、①飲料による摂取 (経口摂取) や②入浴時のシャワーによる皮膚からの摂取、また、揮発した気体を③室内で吸飲及び④室外で吸飲することを想定した。ここでは、川や湖などが汚染現場周辺になく、地下水中の有害物質が表層水へ流出することはないものとした。表層土壌については、汚染されておらず、土粒子の経口摂取、皮膚接触、肺吸飲、また表層土壌から揮発した気体の室内吸飲や室外吸飲は考慮しないものとした。

また、暴露する人として、住民、労働者、レジャー客などが挙げられるが、本汚染現場では周囲が住宅地であることより、現場で生活する大人と子供を設定した。

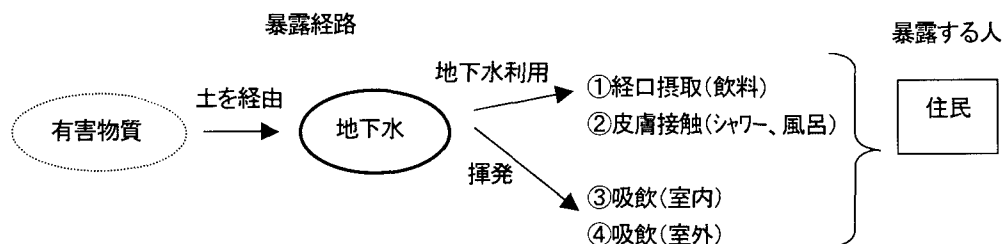


図 1 暴露経路と暴露する人のシナリオ

リスクを算出するために、まず設定した暴露経路による有害物質の摂取量をそれぞれ計算した。使用した計算式と式に代入する因子は、U.S.EPA から出されているガイドライン⁷⁾ やそれを補足するオレゴン州環境局 (ODEQ) のガイドライン⁹⁾ に基づいた (表1、表2)。

表 1 地下水由来による各暴露経路ごとの有害物質摂取量計算式

記号 経路	摂取量の計算式 (mg/kg-day)	式
① 経口摂取	$\frac{C_{GW} \cdot EF}{AT} \cdot \left(\frac{ED_C \cdot I_{NG} R_C}{BW_C} + \frac{ED_A \cdot I_{NG} R_A}{BW_A} \right)$	(1)
② 皮膚接触	$\frac{C_{GW} \cdot PC \cdot ET \cdot EF \cdot CF}{AT} \cdot \left(\frac{ED_C \cdot SA_C}{BW_C} + \frac{ED_A \cdot SA_A}{BW_A} \right)$	(2)
③、④ ガス吸飲(室内、室外)	$\frac{CA_{GW} \cdot EF}{AT} \cdot \left(\frac{ED_C \cdot I_{NH} R_C}{BW_C} + \frac{ED_A \cdot I_{NH} R_A}{BW_A} \right)$	(3)

表 2 摂取量計算式の各因子

記号	項目	単位	住宅地における設定値
C_{GW}	地下水中有害物質濃度	mg/L	
CA_{GW}	ガス中濃度	mg/m ³	$CA = VF \times C_{GW}$
VF	地下水濃度のガス濃度変換係数	L/m ³	文献5より計算
室内	1,1,1-TCA: 1.21×10^{-4} , PCE: 1.19×10^{-4} , TCE: 7.40×10^{-5} , cis-1,2-DCE: 2.76×10^{-5}		
室外	1,1,1-TCA: 2.66×10^{-5} , PCE: 2.54×10^{-5} , TCE: 1.99×10^{-5} , cis-1,2-DCE: 9.83×10^{-6}		
EF	飲料頻度	days/year	350
ED_A	暴露期間(大人)	years	24
ED_C	暴露期間(子供)	years	6
$I_{NG} R_A$	日摂取量(大人)	L/day	2.3
$I_{NG} R_C$	日摂取量(子供)	L/day	1.5
BW_A	体重(大人)	kg	70
BW_C	体重(子供)	kg	15
AT	影響時間	days	癌以外:10950、癌:25550
CF	変換係数	kg/mg	1.0×10^{-6}
PC	皮膚透過定数	cm/hour	PCE 0.37, TCE 0.23, cis-1,2-DCE 0.01
ET	暴露時間	hours/day	0.25
SA_A	皮膚面積(大人)	cm ²	22000
SA_C	皮膚面積(子供)	cm ²	18000
$I_{NH} R_A$	日呼吸量(大人)	m ³ /day	15.2
$I_{NH} R_C$	日呼吸量(子供)	m ³ /day	8.3

2.3 リスク計算方法

人の健康に影響を及ぼすリスクは、癌以外の発病危険度と発癌リスクに分けられ、どちらも有害物質の摂取量とそれぞれの毒性を用いて計算し、数値化される。

(1) 癌以外の発病危険度

1種類の有害物質による癌以外発病の危険度は以下の式 (4) で表すことができる⁷⁾。

$$\text{癌以外の発病の危険度} = \frac{\text{摂取量 (mg / kg - day)}}{\text{発病の閾値 (mg / kg - day)}} \quad (4)$$

ここで、各有害物質の発病の閾値は、毒性のデータベースがU.S.EPA や地方のEPAなどのウェブサイト^{10) 11)}で参照できる。

複数の有害物質が存在する場合は、式 (4) で計算した各々の物質による危険度を足し合わせて合計の危険

度 (hazard index, HI) を求める。HI が 1 より大きい場合は、癌以外の病気が発病する可能性が高いことを示す⁷⁾。

2) 発癌リスク

1 種類の発癌物質による発癌リスクは、以下の式 (5) で表すことができる⁷⁾。

発癌リスク = 摂取量 (mg / kg - day) × 発癌係数 (mg / kg - day)⁻¹ (5)

ここで、各有害物質の発癌係数は、毒性のデータベースが U.S.EPA や地方の EPA などのウェブサイト
で参照できる^{10) 11)}。

複数の発癌物質が存在する場合は、式 (5) で計算した各々の物質による発癌リスクを足し合わせて合計の
発癌リスク(RiskT)を求める。RiskT が 1×10⁻⁵ 以上の場合是一生涯において発癌する確率が 10⁻⁵ (10 万人に
1 人) であり、米国や世界保健機関 (WHO) 等で許容できるリスクの指標となっている^{5) 7) 12)}。また、
米国 Superfund サイトでリスクの浄化発動値として RiskT=10⁻⁴ も認められている⁷⁾。本論文では、RiskT<10⁻⁵
をリスク許容値として浄化目標値 (濃度) を算出した。

2.4 リスク計算結果

リスク計算によって求められた地下水汚染によって住民が受ける癌以外の発病危険度 (HI) を表 3 に、発
癌リスク (RiskT) を表 4 に示す。HI 又は RiskT どちらも PCE と TCE の飲料による影響が大きく、飲料だ
けでリスク許容値を越えている。よって、全ての有害物質の HI と RiskT をそれぞれ足し合わせた値は、リス
ク許容値を超えており、本汚染サイトは人の健康に影響を及ぼさないように何らかの対策が必要という結果
になった。また、1,1,1-TCA は、他の物質に比べて HI の影響が無視でき、また発癌についての毒性データ (発
癌係数) が数値として得られていないので、本現場の浄化対象物質からは除いた。

表 3 汚染地下水による住民の癌以外の発病
危険度 (HI)

暴露経路	1,1,1- TCA	PCE	TCE	cis-1,2- DCE	各物質 の合計
経口摂取	0.04	1.1	26	0.44	27
皮膚接触	1.5×10 ⁻⁵	0.012	0.016	1.2×10 ⁻⁵	0.028
室内呼吸	3.4×10 ⁻⁵	9.6×10 ⁻⁴	0.014	8.7×10 ⁻⁵	0.015
室外呼吸	7.5×10 ⁻⁶	2.1×10 ⁻⁴	0.004	3.1×10 ⁻⁵	0.004
各経路の 合計	0.04	1.2	26	0.44	27

表 4 汚染地下水による住民の発癌リスク
(RiskT)

暴露経路	1,1,1- TCA	PCE	TCE	cis-1,2- DCE	各物質 の合計
経口摂取	NA	2.8×10 ⁻³	7.5×10 ⁻⁴	NA	3.5×10 ⁻³
皮膚接触	NA	2.7×10 ⁻⁶	4.6×10 ⁻⁷	NA	3.2×10 ⁻⁶
室内呼吸	NA	9.1×10 ⁻⁸	2.1×10 ⁻⁷	NA	3.0×10 ⁻⁷
室外呼吸	NA	1.9×10 ⁻⁸	5.7×10 ⁻⁸	NA	7.7×10 ⁻⁸
物質毎の 合計	NA	2.8×10 ⁻³	7.5×10 ⁻⁴	NA	3.5×10 ⁻³

NA: 発癌についての毒性データ (発癌係数) が数値
として得られていない。

2.5 リスク算出結果の不確実性

暴露経路ごとの摂取量を計算するために必要な因子には、U.S.EPA などの調査に基づく一般的な値^{7) 9)}
を使用しており、地域や国による格差が含まれていない。また、毒性の値 (癌以外の発病の閾値や発癌係数)
も不変の値ではなく、現在までの動物実験を基にして得られている値を使用しており、今後改正される可
能性もある。さらに、複数の有害物質のリスクは、U.S.EPA などのガイドライン⁷⁾ に準じて各有害物質のリス
クを加算する方法で求められているが、これは各有害物質の毒性 (癌以外又は癌の発病性) が互いに影響を
与えないことを前提としているためで、今後、各有害物質の共存下での影響が明らかになれば、その分を補
正することによりさらにリスク値の正確性が増す。しかし、現時点では、複数の有害物質の濃度比ごとの相
互作用の毒性データを得るのは非常に困難であり、補正を行うまでには至っていない。

3. 有害物質が複数ある場合の浄化目標値の設定方法の検討

本論文で提案する複数の有害物質による土壌・地下水汚染の浄化目標値設定手法のフローを図 2 に示す。複数の有害物質によるリスクの合計がリスク許容値 ($HI < 1$ かつ $RiskT < 10^{-5}$) を越えている場合は、浄化目標値を設定して対策する必要がある。ここで、有害物質が 1 種類の場合は、リスク許容値に対応する有害物質濃度をリスク計算した逆の手順で計算し、その値を浄化目標値とすればよい^{3) 4) 5)}。しかし、有害物質が複数の場合は、どの物質をどの程度除去すればよいかは組み合わせによっていくつも存在するので、有害物質が 1 種類の場合と同様にリスク許容値から逆算して求めることはできない。しかしながら、有害物質の除去は、有害物質そのものの物理的・化学的な性質、汚染現場の状況や浄化方法などに依存するため、浄化方法を選択して有害物質の減少量をモデル式により予測できれば、各有害物質の浄化目標値を設定することができる。本論文で浄化方法の例として取り扱うのは、現位置での処理法で以下に示す 3 つの例である。それぞれの処理法について有害物質の濃度減少をモデル式を用いて計算し、その値が住民の平均暴露期間である 30 年続くとするリスクアセスメントの手法に基づき、複数の有害物質の浄化目標値の算出を試みた。

① 揚水処理

地下水を揚水することによって地下水中の PCE, TCE 等の濃度を減少させ、地上で処理する方法。

② Natural Attenuation

自然の浄化能力に期待する方法。

③ 揚水処理 + Natural Attenuation

まず、揚水処理により初期濃度を低濃度域に減少させ、その後は Natural Attenuation により浄化目標値を目指す方法。

3.1 揚水処理 (Pump & Treat) による浄化例

地下水が PCE, TCE, cis-1,2-DCE で汚染された場所を現位置揚水処理で浄化する場合について、簡便な揚水処理のモデル式を用いて、処理濃度を予測し、浄化目標値を算出した。使用した揚水処理モデル式は、揚水の希釈効果と土への吸着・脱着による遅延効果を考えたもので、このモデル式を用いてリスク許容値 ($HI < 1$ かつ $RiskT < 10^{-5}$) を満たすときの処理日数及びその時の各有害物質濃度 (浄化目標値) を算出した。図 3.1 に揚水処理モデルの概念図を示す。

(1) 使用した揚水処理のモデル式

ポンプによって地下水を揚水し、揚水した分の水が周囲の清浄な水で復元し、その分希釈される効果と吸着による遅延効果を考えると、有害物質の濃度減少速度は以下の式で表される。

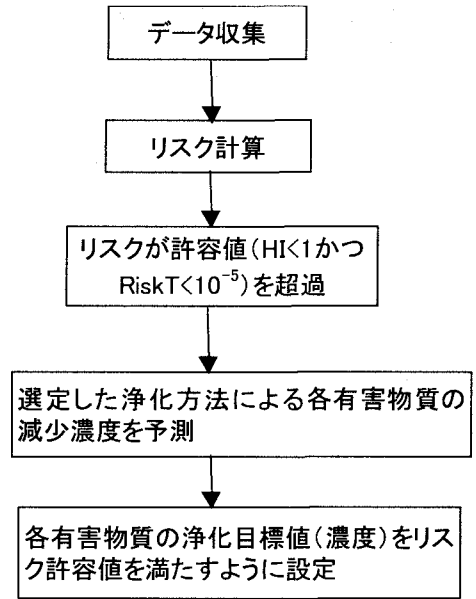


図 2 汚染土壌・地下水に複数の有害物質がある場合の浄化目標値設定フロー

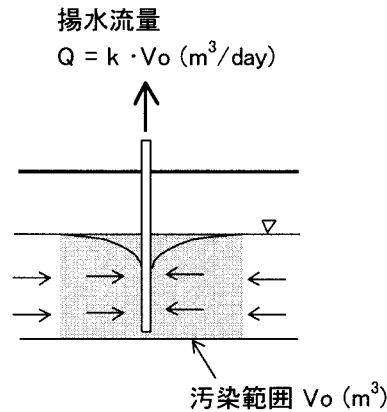


図 3.1 揚水処理概念図

$$-\frac{dC}{dt} = \frac{\rho}{n} \cdot \frac{d(Kd \cdot C)}{dt} + kC \quad (6)$$

ここで、遅延係数 $R = 1 + Kd \times \rho / n$ を用いて式 (6) を表すと式 (7) が得られる。

$$-\frac{dC}{dt} = +\frac{k}{R}C \quad (7)$$

C : 地下水中の有害物質濃度 (mg/L)

ρ : 飽和水層の土の密度 (ここでは文献値^{4) 5) 14)} $1.7 \sim 1.85 \text{g/cm}^3$ の内、 1.85g/cm^3 を使用)

n : 空隙率 (ここでは文献値^{4) 5) 14)} $0.3 \sim 0.38$ の内を 0.3 を使用)

Kd : 土への吸着係数 (L/kg) (ここで、 $Kd = Koc \times foc$)

Koc : 有機炭素への配分係数 (L/kg) (PCE 155、TCE 166、cis-1,2-DCE 35.5)¹⁵⁾

foc : 土中の有機炭素量分 (ここでは文献値⁴⁾ 0.01 を使用)

k : 汚染地下水の揚水量割合に応じた係数 (0.1 day^{-1} : 1日に汚染地下水の容量の10分の1を揚水し、揚水した分は周りの汚染されていない地下水から供給されるとする。)

この式 (7) を積分すると式 (8) が得られる。

$$\frac{C}{C_0} = \exp\left(-\frac{k}{R}t\right) \quad (8)$$

示したモデル式を使用する際の制約条件は以下の通りである。

- ① 帯水層中の土質は均一の土質であり、透水係数、間隙率、有機物質濃度は一定である。
- ② PCE、TCE 等の濃度は、汚染範囲中均一である。
- ③ 土への吸着・脱着が、平衡状態で起こる。
- ④ 揚水した分の地下水量が、連続して補給され、地下水位は一定に保たれる。

本論文で対象とする帯水層の土質は砂礫層で比較的通水性が良く揚水に適しており、地下水汚染が帯水層の全域 (層厚 60 m) に一様に広がっている。また、1日当たりの地下水の揚水量は汚染範囲の10分の1程度であり、揚水した水量が速やかに復元すると予想されるので、本モデル式はこれらの制約条件下での適用が可能であると考えられる。

(2) 濃度減少及びリスクの計算結果及び考察

本揚水処理モデル式によって予想される濃度減少を図 3.2 に示す。その濃度により算出した HI の変化を図 3.3 に示す。PCE、TCE、cis-1,2-DCE の合計の HI が 1 未満となるのは運転開始 370 日後となり、その時の PCE は 0.08mg/L 、TCE は

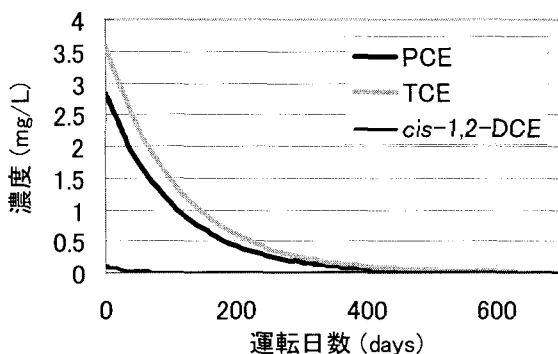


図 3.2 揚水処理による濃度変化計算値

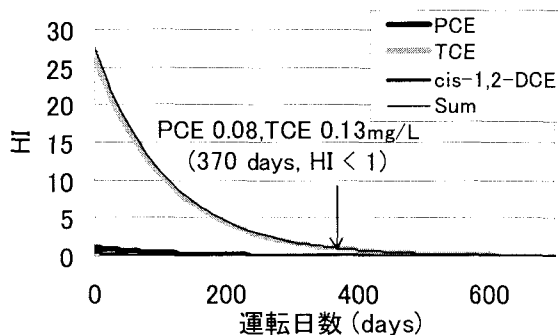


図 3.3 揚水による癌以外の発病危険度 (HI) の変化

0.13mg/Lとなり、cis-1,2-DCEは 9×10^{-7} mg/Lと無視できる値となった。また、RiskTの変化を図 3.4 に示す。PCE と TCE の合計の RiskT が 10^{-4} 以下になるのは運転開始後390日後でPCEは0.07 mg/L、TCEは0.11 mg/Lとなり、 10^{-5} 未満になるのは 630 日後で PCE は 0.0072 mg/L、TCE は 0.013 mg/L となる（ここで cis-1,2-DCE は発癌物質としての発癌データが得られていないため発癌リスクには含めない）。よって、本揚水処理モデル式を用いた計算によ

ると、まず HI<1 が達成され、次に米国 Superfund の浄化発動基準値 (Risk< 10^{-4}) を達成し、最後に RiskT< 10^{-5} が運転 630 日後達成される。よって、リスク許容値 (HI<1 かつ RiskT< 10^{-5}) を満たすのは、運転 630 日後となり、浄化目標値はPCEが0.0072mg/Lで、TCEが0.013mg/Lとなる。

なお、このモデル式には、土の密度、空隙率、土中の有機炭素分について一般的な値を文献から引用したが、実測により汚染現場特有の値を使用する方がより現場に適した値になる。

3.2 Natural Attenuation（科学的自然減衰法）による浄化例

1990 年代中頃より米国では汚染源を除去した後は、自然の浄化作用を期待して、モニタリングだけで管理していく Natural Attenuation が注目されている。地下水中の有害物質の濃度が減少する現象には、土粒子への吸脱着、気相への揮発、地下水へへの希釈・拡散、化学分解、微生物分解があり、ここでは、土粒子へ吸脱着、地下水による希釈と微生物分解による効果を考えたモデル式を用いて、各有害物質濃度を予測し、浄化目標値を算出した。

(1) 使用した Natural Attenuation のモデル式

土への吸着・脱着を考慮した地下水の移流による希釈効果と微生物分解による効果とを取り入れた以下のモデル式により PCE 等の減少を予測し、リスクを算出した。

$$-\frac{dC}{dt} = +kaC + kbC \tag{9}$$

式（9）で地下水による希釈と吸着・脱着を含めた除去定数（day⁻¹）は以下の式で表される。

$$ka = \frac{Q}{V_o} = \frac{V_c \cdot S}{L \cdot S} = \frac{V_w}{L} \tag{10}$$

ここで、Q：有害物質を含んだ水の流量（m³/day）、Vo：有害物質を含んだ水量（m³）、Vc：有害物質の流速（m/day）、S：地下水流と垂直な汚染範囲の面積（m²）、L：地下水流と平行な汚染範囲の長さ（ここでは現場の主な汚染範囲より 100m とする。）、Vw：地下水の流速（ここでは 0.9 m/day (10⁻³ cm/sec)とする。これは、砂礫層の透水係数の文献値^{16) 17)} 10⁻¹ cm/sec に動水勾配を通常の平地での高めの値 0.01 を掛けた値である。）、R：遅延件数（ここではセクション 3.1 と同じ値を使用する。）

また、式（9）における微生物分解の係数は、式（11）～式（14）で表されるように、まず、PCE が生物分解され TCE となり、その後 cis-1,2-DCE となり、さらには塩化ビニル（VC）となる^{18) 19)}。

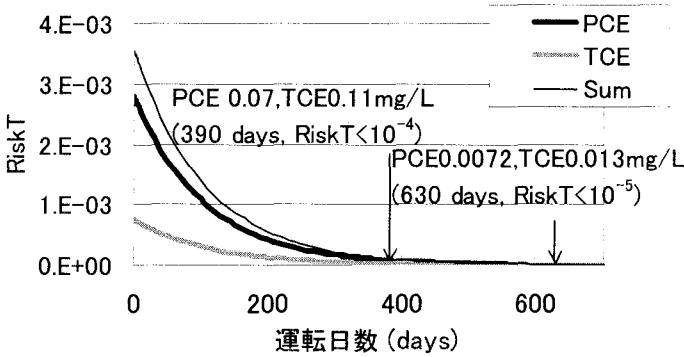
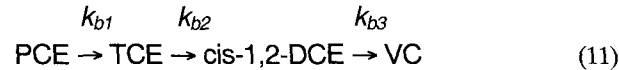


図 3.4 揚水処理による発癌リスク(RiskT)の変化

$$\frac{dC_{PCE}}{dt} = -k_{b1} \cdot C_{PCE} - k_a \cdot C_{PCE} \quad (12)$$

$$\frac{dC_{TCE}}{dt} = k_{b1} \cdot y_1 \cdot C_{PCE} - k_{b2} \cdot C_{TCE} - k_a \cdot C_{TCE} \quad (13)$$

$$\frac{dC_{DCE}}{dt} = k_{b2} \cdot y_2 \cdot C_{TCE} - k_{b3} \cdot C_{DCE} - k_a \cdot C_{DCE} \quad (14)$$

ここで、 k_b ：微生物による分解速度係数 (k_{b1} : $0.07 \sim 1.2 \text{ yr}^{-1}$, k_{b2} : $0.05 \sim 0.91 \text{ yr}^{-1}$, k_{b3} : $0.18 \sim 3.3 \text{ yr}^{-1}$)²⁰⁾
 y ：モル濃度換算係数 (y_1 : $M_{TCE}/M_{PCE} = 131.5/166 = 0.79$, y_2 : $M_{DCE}/M_{TCE} = 97/131.5 = 0.73$)

以上の式を前進差分法で差分計算を施し、数値解を得る。

このモデルの制約条件は以下の通りである。

- ① 帯水層中の土質は均一の土質であり、透水係数、間隙率、有機物質濃度は均一である。
- ② 土への吸着・脱着が、平衡状態で起こる。
- ③ PCE、TCE等の濃度は、汚染範囲中均一である。

これらの制約条件下でも、汚染が砂礫質の帯水層に 60 m にわたって広がっていることより、地下水が汚染範囲全域に均等に流れやすく、汚染濃度の均一性も保たれやすくなることなどにより、本モデル式の適用が可能であると考えられる。

(2) 濃度減少とリスクの計算結果及び考察

Natural attenuation モデル式による濃度減少の計算結果について、微生物分解速度係数を文献²⁰⁾の最大値 (k_{b1} : 1.2 yr^{-1} , k_{b2} : 0.91 yr^{-1} , k_{b3} : 3.3 yr^{-1}) を用いたものを図 4.1 に、最小値 (k_{b1} : 0.07 yr^{-1} , k_{b2} : 0.05 yr^{-1} , k_{b3} : 0.18 yr^{-1}) を用いたものを図 4.2 に示す。微生物分解速度を文献の最大値にした場合 (図 4.1) の各日数における濃度をもとに、リスクを計算したところ RiskT が 10^{-4} 未満になるのは 1040 日 (2.8 年) 後、HI が 1 未満になるのは 1330 日 (3.6 年) 後、RiskT が 10^{-5} 未満になるのは 1720 日 (4.7 年) となった。また、微生物分解速度を文献の最小値にした場合 (図 4.2) の濃度に応じて算出した HI が 1 未満になるのは 3390 日 (9.3 年) 後、RiskT が 10^{-4} 未満となるのは 3740 日 (10.2 年)、 10^{-5} 未満になるのは 6150 日 (16.8 年) 後となった。よって、自然の浄化に頼った Natural Attenuation では、PCE、TCE 等の濃度を減少できるものの、微生物の分解速度によって処理日数にかなりの差があり、目標のリスク許容値 ($HI < 1$ かつ $RiskT < 10^{-5}$) を満たすまでに文献値の最大の微生物分解速度を用いた場合は 1720 日 (4.7 年) ばかり、その時の各有害物質濃度 PCE 0.0024 mg/L, TCE 0.035 mg/L, cis-1,2-DCE 0.0081 mg/L が浄化目

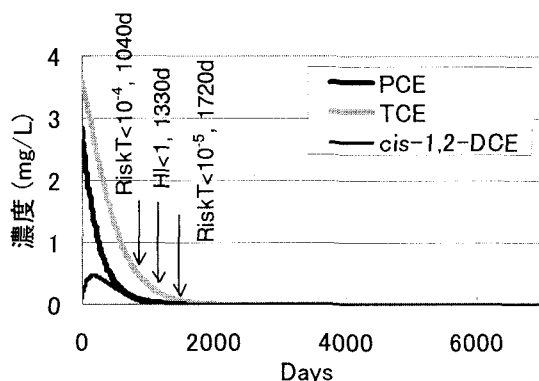


図 4.1 Natural attenuationによる濃度変化予測(地下水の流速は 10^{-3} cm/sec 、微生物分解速度は文献の最大値)

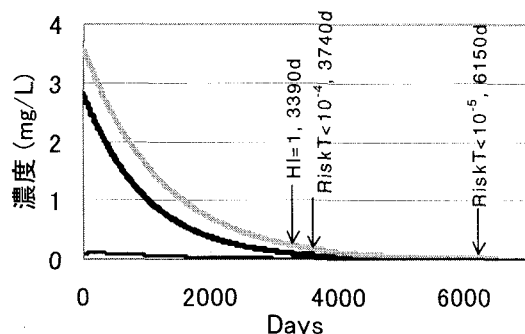


図 4.2 Natural attenuationによる濃度変化予測(地下水の流速は 10^{-3} cm/sec 、微生物分解速度は文献の最小値)

標値と設定される。また、文献値の最小の微生物分解速度の場合は6150日（16.8年）かかり、その時の各有害物質濃度 PCE 0.0057 mg/L, TCE 0.020 mg/L, cis-1,2-DCE 0.00091 mg/L が浄化目標値と設定される。

計算では地下水の流速を 10^{-3} cm/sec (0.9 m/day) としたが、土質によって流速にはかなりの幅があり（礫の透水係数 3×10^{-2} cm/sec $\sim$ 3 cm/sec、粗砂の透水係数 9×10^{-5} cm/sec $\sim$ 6×10^{-1} cm/sec¹⁷⁾、流速を 10^{-4} cm/sec（透水係数 10^{-2} cm/sec $\times$ 動水勾配 0.01）として計算すれば、微生物分解速度を文献の最小値にした場合にリスク許容値を満たす処理日数は2180日（6.0年）でその時の浄化目標値はPCE 0.0018 mg/L, TCE 0.039 mg/L, cis-1,2-DCE 0.011 mg/Lと設定され、文献の最小値の処理日数は25730日（70.5年）と長期の処理期間が予想され、その時の浄化目標値はPCE 0.0026 mg/L, TCE 0.035 mg/L, cis-1,2-DCE 0.007 mg/Lと設定される。また、流速を 10^{-2} cm/sec (9 m/day) とすれば、1日に汚染範囲の長さ（100 m）の0.09の割合で地下水が流れ、揚水処理の設定値 0.1 (1/day) と大差がなくなり、揚水処理と同程度の処理速度が得られた。以上の結果より、Natural Attenuationによる浄化は、微生物分解速度及び地下水の流速に大きく影響されることが分かった。

3.3 揚水処理+Natural Attenuationによる浄化

揚水処理の欠点として、低濃度領域では除去できる量が限られているため除去効率が悪く²¹⁾、またPCE, TCE等の非水溶性の物質は水に溶けるのに時間がかかるためモデル式で仮定した平衡状態が完全には成り立たず、計算された時間で目標値まで達成させるのが困難なことが知られている^{22) 23)}。

そこで、まず揚水処理で米国の Superfund サイトの浄化発動値 (HI<1 かつ RiskT< 10^{-4}) を満たすまで浄化を行い、その後の低濃度域は Natural Attenuation に期待して浄化目標値を達成する場合を試算した。セクション 3.1 の揚水処理モデル式によって HI<1 かつ RiskT< 10^{-4} を満たす処理日数は390日でその時の濃度 (PCE 0.07 mg/L, TCE 0.11 mg/L, cis-1,2-DCE 0.0091 mg/L) を初期濃度として、Natural Attenuationによる濃度減少の予測をセクション 3.2 のモデル式を用いて設定条件を同様にして計算を行った。微生物分解定数に文献²⁰⁾の最大値を使用した場合の濃度変化を図 5.1 に、最小値を使用した場合の濃度予測を図 5.2 に示す。微生物分解速度を文献の最大値とした場合、揚水処理終了後、Natural Attenuation 開始後 650 日（合計 1040 日）で HI<1 かつ RiskT< 10^{-5} を満たし、その時の浄化目標値は、PCE 0.0048 mg/L, TCE 0.024 mg/L, cis-1,2-DCE 0.0052 mg/L と設定される。また、微生物分解速度を文献の最小値とした場合、揚水処理終了後、Natural Attenuation 開始後 2340 日（合計 2730 日）でリスク許容値 (HI<1 かつ RiskT< 10^{-5}) を満たし、その時の浄化目標値は、PCE 0.0066 mg/L, TCE 0.016 mg/L, cis-1,2-DCE 0.00073 mg/L と設定される。

よって、まず揚水処理を行い、その後の低濃度域を Natural Attenuation により浄化することによって、処理日数が Natural Attenuation のみの場合よ

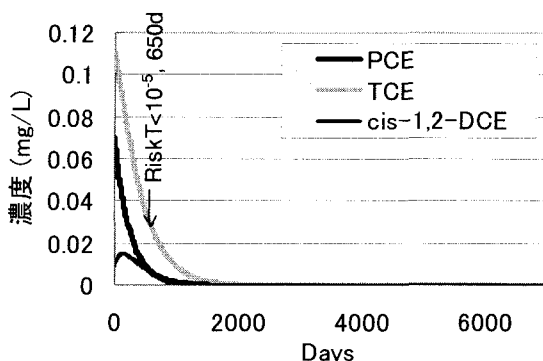


図 5.1 揚水処理でHI<1かつRiskT< 10^{-4} まで濃度減少後、微生物分解速度が文献の最大値のNatural attenuationによる濃度変化予測

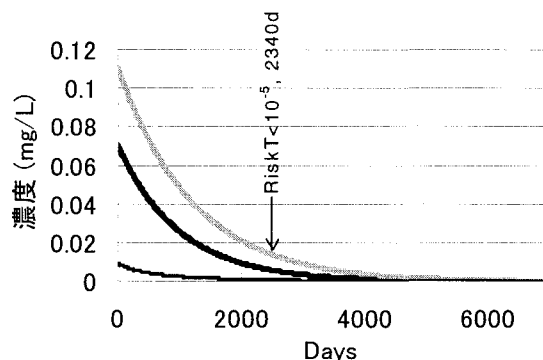


図 5.2 揚水処理でHI<1かつRiskT< 10^{-4} まで濃度減少後、微生物分解速度が文献の最小値のNatural attenuationによる濃度変化予測

り大幅に削減できることが示された。揚水処理と Natural Attenuation の組み合わせの浄化方法により、それぞれの浄化法の長所を生かした処理が出来るといえる。

3.4 各浄化処理法における浄化目標値の比較

本論文で取り上げた3通りの現位置での浄化工法である①揚水処理、②Natural Attenuation、③揚水処理+ Natural Attenuation によって、汚染現場に存在する PCE, TCE, cis-1,2-DCE の総合のリスク許容値 (HI<1 かつ RiskT<10⁻⁵) を満たす時の処理日数及び浄化目標値となる各有害物質の濃度を表 5 に示す。表 5 より、同じリスク許容値を満たすにも、浄化処理法によって各有害物質の濃度に差が出てくるのが分かる。

表 5 各浄化工法毎に計算したリスク許容値(HI<1 かつ RiskT<10⁻⁵)を満たすのに必要な処理日数とその時の有害物質濃度(浄化目標値)

	揚水 処理	Natural Attenuation				揚水処理(390 日)+Natural Attenuation			
		Vw: 10 ⁻³		Vw: 10 ⁻⁴		Vw: 10 ⁻³		Vw: 10 ⁻⁴	
		A	B	A	B	A	B	A	B
処理日数(日)	630	1720	6150	2180	25730	650 計 1040	2340 計 2730	820 計 1210	9640 計 10030
PCE (mg/L)	0.0072	0.0024	0.0057	0.0018	0.0026	0.0048	0.0066	0.0044	0.0051
TCE (mg/L)	0.013	0.035	0.020	0.039	0.035	0.024	0.016	0.026	0.023
cis-1,2-DCE(mg/L)	<9×10 ⁻⁷	0.0081	0.00096	0.011	0.007	0.0052	0.00073	0.0072	0.0044

A:微生物分解速度が文献値中の最大、B:微生物分解速度が文献値中の最小

Vw: 地下水の流速 (cm/sec)

処理日数は、揚水処理法 (1 日当たりの揚水量は汚染水量の 1/10) が3つの浄化処理法の内でも最も短く、次に揚水処理+ Natural Attenuation の組合せであった。Natural Attenuation のみによる浄化は最も処理日数がかかる計算結果となった。また、処理日数は浄化目標値にも影響することが、今回の計算結果より分かった。

微生物分解速度の差によって Natural Attenuation による処理日数が大きく変化しており、それが設定される浄化目標値にも影響を与えるので、微生物分解速度の差による処理日数の予測の幅を考慮することは浄化目標値を設定するうえで重要であるといえる。

また、地下水の流速の差によって Natural Attenuation による処理日数が大きく変化しており、それが設定される浄化目標値にも影響を与えるので、地下水流速の差による処理日数の予測の幅を考慮することは浄化目標値を設定するうえで重要であるといえる。

計算した各物質の浄化目標値は、各処理法とその条件に影響した。今回設定した各処理モデル式によって算出した浄化目標値の幅は、PCE で 0.0018 mg/L~0.0072 mg/L、TCE で 0.013 mg/L~0.039 mg/L であった。PCE の最大値と TCE の最小値は揚水処理のみの場合であり、PCE の最小値と TCE の最大値は Natural Attenuation のみで流速が 10⁻⁴ cm/sec で微生物分解速度が文献の最大値で処理した場合であった。

4. おわりに

本論文では、U.S.EPA の環境リスクアセスメント手法に基づいて複数の有害物質で汚染された地下水を浄化する際にどのように浄化目標値を設定すればよいのかを検討した。今回得られた成果をまとめると次のようになる。

- ①現位置での地下水浄化によく用いられる揚水処理を例として、土粒子への吸脱着の影響を考えた揚水処理のモデル式を用いて PCE, TCE, cis-1,2-DCE の濃度を予測して、その値を用いてリスク許容値 (HI<1 かつ RiskT<10⁻⁵) を満たす浄化目標値を算出した。1 日に汚染地下水の 10 分の 1 を揚水する設定での処理期間は 630 日で、浄化目標値は、PCE 0.0072 mg/L、TCE 0.013 mg/L と算出された。
- ②自然の浄化能力に期待する Natural Attenuation では、微生物による PCE, TCE, DCE, VC へと逐次分解する反

底と地下水による希釈及び土への吸着・脱着を考え合わせたモデル式により濃度減少を予測して、リスク許容値を満たす浄化目標値を算出した。地下水の流速に 10^{-3} cm/sec、微生物分解速度に文献の最大値を用いた場合、処理日数は 1720 日 (4.7 年) で、その時の浄化目標値は PCE 0.0024 mg/L, TCE 0.035 mg/L, cis-1,2-DCE 0.0081 mg/L と設定された。微生物分解速度が文献の最小値を用いた場合は 6150 日 (16.8 年) と比較的長期の処理期間が必要であり、その時の浄化目標値は PCE 0.0057 mg/L, TCE 0.020 mg/L, cis-1,2-DCE 0.00096 mg/L と設定された。

- ③高汚染濃度域では揚水処理を用いて効率よく PCE 等を除去し、米国 Superfund サイトで認められているリスク許容値 ($HI < 1$ かつ $Risk T < 10^{-4}$) になるまで処理行い (390 日間、その時点の濃度は PCE 0.07 mg/L, TCE 0.11 mg/L)、その後の低濃度域では Natural Attenuation により浄化した場合の処理目標とその時の浄化目標値を算出した。リスク許容値 ($HI < 1$ かつ $Risk T < 10^{-5}$) を達成するには、地下水流速が 10^{-3} cm/sec で微生物分解速度を文献の最大値を用いた場合、処理日数は合計 1040 日 (2.8 年) 間必要でその時の浄化目標値は PCE 0.0048 mg/L, TCE 0.024 mg/L, cis-1,2-DCE 0.0052 mg/L と算出された。また、微生物分解速度を文献の最小値を用いた場合は処理日数が合計 2730 日 (7.5 年) 間必要で、その時の浄化目標値は PCE 0.0066 mg/L, TCE 0.016 mg/L, cis-1,2-DCE 0.00073 mg/L と算出された。

以上、本論文では、処理方法ごとにモデル式を使用して複数の有害物質の濃度減少を予測し、各物質の浄化目標値 (濃度) をリスク許容値から逆算して求める手法を示した。地下水中の汚染物質の挙動を完全にモデル化することは困難で、今回使用したモデル式には制約条件があるとはいえ、今回提示した手法によって、複合汚染を現位置で処理する場合の各有害物質の浄化目標値をリスクに基づいて設定する方法を示すことができた。現在、日本では土壌・地下水汚染について汚染現場ごとのリスクは評価されていないが、本論文で示した手法は、リスクの概念に基づいて汚染現場ごとに複合汚染の各有害物質の浄化目標値を設定する方法となり得ることを示した。

参考文献

- 1) 環境省環境管理局水環境部、平成 11 年度土壌汚染調査・対策事例及び対応状況に関する調査結果の概要、2001.3. <<http://www.env.go.jp/water/report/h12-02/index.html>>
- 2) 日本政策投資銀行、調査 わが国環境修復産業の現状と課題 ―地下環境修復に係る技術と市場― No.3, p.53, 1999.10.
- 3) U. S. Environmental Protection Agency, Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I – Human Health Evaluation Manual (Part B, Development of Risk-based Preliminary Remediation Goals) Interim, Office of Emergency and Remedial Response, Washington DC, EPA/540/R-92/003, 1991.12.
- 4) American Society for Testing and Materials, Standard Guide for Risk-Based Corrective Action Applied at Petroleum Release Sites, Designation: E 1739-95, p.185-235. 1996.12.
- 5) Oregon Department of Environmental Quality, Risk-Based Decision Making For the Remediation of Petroleum-Contaminated Sites, Waste Management & Cleanup Division, Portland, OR. 1999.9.
- 6) USEPA Region 9, Toxicity Values, Preliminary Remediation Goals (PRGs) Tables, Region 9 of the U.S. Environmental Protection Agency, San Francisco, CA. <<http://www.epa.gov/region09/waste/sfund/prg/index.html>>
- 7) U. S. Environmental Protection Agency, Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I. Human Health Evaluation Manual (Part A). Interim Final. Office of Emergency and Remedial Response. Washington DC. EPA/540/1-89/002. 1989. <<http://www.epa.gov/superfund/programs/risk/ragas/index.htm>>
- 8) Gilbert, Richard O., Statistical methods for environmental pollution monitoring, John Wiley & Sons, Inc., p. 136 and 170, 1987.
- 9) Oregon Department of Environmental Quality, Guidance for Conduct of Deterministic Human Health Risk Assessments, Waste Management & Cleanup Division, Portland, OR. 1998.12.
- 10) USEPA IRIS, Integrated Risk Information System, Substance file. U.S. Environmental Protection Agency, Washington DC. <<http://www.epa.gov/iris/index.html>> accessed in Sep. 2000.
- 11) USEPA Region 9, Preliminary Remediation Goals (PRGs) Tables, Region 9 of the U.S. Environmental Protection Agency, San Francisco, CA. <<http://www.epa.gov/region09/waste/sfund/prg/index.html>>
- 12) 早水輝好、環境基準と水道水質基準の改定について、水環境学会誌、Vol/16, No.4, p. 224-242. 1993.

- 13) 環境省、地下水の水質汚濁に係る環境基準について、別表 1 人の健康の保護に関する環境基準、告示第 10 号 1997.3、改正 告示第 16 号 1999.
- 14) C.H. Ward, J.A. Cherry, and M.R. Sclaf, Subsurface Restoration, Ann Arbor Press, Inc. p. 140. 1997.
- 15) Michigan Department of Environmental Quality; Toxicological Data Table,
<<http://www.deq.state.mi.us/erd/opmemos/opmemo18/om18bt.html>> accessed in 2000.9.
- 16) 根切り工事と地下水編集委員会、現場技術者のための土と基礎シリーズ 19、根切り工事と地下水－調査・設計から施工まで－、社団法人 土質工学会、p. 71, 1991.1.
- 17) Patrick A.Domenico and Franklin W. Schwartz, Physical and Chemical Hydrogeology, 2/E. 3.2 Hydraulic Conductivity and Permeability of Geologic Materials, John Wiley & Sons, Inc., p.39, 1997.
- 18) U.S.EPA, Technical Protocol for Evaluating Natural Attenuation of Chlorinated Solvents in Ground Water. U. S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development Washington DC. EPA/600/R-98/128. 1998.9.
- 19) ジョン・T・クックソン Jr.、第 4 章 有害物質の微生物的変換の最適化 バイオレメディエーション エンジニアリング－設計と応用－ 藤田正憲、矢木修身 監訳 エヌ・ティー・エス, 1997.
- 20) Wioldemeier, T.H., H.S. Rifai, C.J. Newell, and J.W. Wilson; Natural Attenuation of Fuels and Chlorinated Solvents, John Wiley & Sons, New York., 1999.
- 21) 吉田光方子、吉岡昌徳、谷本高敏、岡田泰史; 建物下テトラクロロエチレン汚染の水平井戸による浄化、地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会 第 7 回 講演集、p. 253, 2000.12.
- 22) Suthan S. Suthersan, Remediation Engineering Design Concepts, Chapter11. Pump and Treat Systems, CRC Press, Inc. 1996.
- 23) Patrick A.Domenico and Franklin W. Schwartz; Physical and Chemical Hydrogeology, 2/E. Chapter 20. remediation: Overview and Removal Options. John Wiley & Sons, Inc. 1997.