

田中宏明

京都大学大学院・工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター・教授

21 世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価

§1. 研究実施体制

(1)「京大環境質予見」グループ

- ① 研究代表者: 田中 宏明 (京都大学工学研究科、教授)
- ② 研究項目
 - ・ 微量物質のモニタリング手法の確立
 - ・ ウイルス処理性能評価手法の確立
 - ・ 水利用システムのリスク物質のモニタリングとその制御と評価
 - ・ 間接的な再利用でのリスク物質の挙動解明

(2)「京大環境質管理」グループ

- ① 主たる共同研究者: 清水 芳久 (京都大学工学研究科、教授)
- ② 研究項目
 - ・ NOM 構成成分の想定
 - ・ 水環境中 NOM の抽出・分析
 - ・ 有機物分画による水環境中 NOM、ファウリング原因物質等の特性評価
 - ・ ファウリング原因物質、消毒副生成物前駆物質の同定

(3)「東レ」グループ

- ① 主たる共同研究者: 高島 寛生 (東レ株式会社地球環境研究所 主任研究員)
- ② 研究項目
 - ・ 技術開発基本方針の決定
 - ・ 基本技術の開発

・実証試験による事業性の評価

(4)「メタウォーター」グループ

① 主たる共同研究者:加藤 康弘 (R&D センター先端水システム開発部オゾン開発グループ、担当課長)

②研究項目

- ・オゾン処理、促進酸化処理、無機膜処理を組み合わせた新しい水処理技術の開発
- ・下水処理水、流入水を対象とした微量化学物質除去性、消毒効果の評価
- ・ベンチスケール実験によるオゾン前処理効果の検証

(5)「国土技術政策総合研究所グループ」

①主たる共同研究者:小越 眞佐司(下水道研究部下水処理研究室、室長)

②研究項目

- ・水利用システムのエネルギー評価
- ・新しい水利用システムの流域環境への影響評価

(6)「土木研究所グループ」

①主たる共同研究者:鈴木 穰 (材料資源研究グループ、グループ長)

②研究項目

- ・水中の病原微生物濃度モニタリング
- ・水の衛生学的評価と管理手法の提案
- ・バイオアッセイによるモニタリング
- ・水生生物への影響評価

(7)「京大日中センターグループ」

①主たる共同研究者:水野 忠雄 (京都大学大学院工学研究科、助教)

②研究項目

- ・河川水および浄水取水を対象とした凝集・沈殿、膜処理プロセスにおける処理性能に関する調査
- ・深圳市を中心とした中国華南地区の水利用・地域情報に関する情報収集
- ・浄水水源となる河川水の定期水質調査
- ・中国の水環境および上下水道に関わる法律、規制に関する調査

(8)「京大学堂グループ」

① 主たる共同研究者:田中 周平 (京都大学地球環境学堂、准教授)

②研究項目

- 循環システム調査と水処理技術の適用の検討
- 水循環系における化学物質調査
- 新水処理技術における除去効果の検討

§ 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

A. 京大環境質予見グループ

H22年度に引き続き、メタウォーターグループと共同で大津サイトにおいてセラ膜を用いたラボスケール処理装置を稼働した。初沈越流水および二次処理水を原水とした処理実験を行い、後半年度詳細に検討すべき運転条件の目途を付けるため、オゾン・凝集・セラ膜処理の組み合わせ処理による化学物質および病原微生物の除去率を把握した。また、東レグループと共同で、大津サイトでは初沈越流水および沖縄サイトにおいて二次処理水を原水として有機膜を用いたパイロットスケール処理実験を稼働し、後半年度詳細に検討すべき運転条件の目途を付けるため、運転条件を変えながらファージ除去率のデータを得た。その結果、処理原水のpHを5付近まで下げることで凝集によるウイルス除去率が向上することを見出した。

レポータージーンアッセイによって処理原水である二次処理水、初沈越流水のエストロゲン様作用のデータを蓄積した。その結果、エストロゲンレセプターの生物種の違いによってエストロゲン様作用に大きな違いがあることを確認した。また、抗エストロゲン作用評価の重要性について再確認した。

河川の流域規模での広域的な再生水の間接的もしくは直接的な利用との物質的な相違を明らかにするための医薬品類の実態調査を淀川水系で実施し、都市河川中での医薬品類の光分解性^{A-1}を把握した。また、濃度減衰が大きい物質は主に直接光分解によるものであることを確認した。

近畿の下水処理場の流入水、二次処理水に対してNDMAの生成能(formation potential)試験を実施した。その結果、塩素消毒やオゾン処理によって高濃度のNDMAが生成される場合があることを確認した^{A-2}。再利用用途によってはNDMA生成能を十分に考慮する必要がある。

国総研グループと共同で、都市ごとの上下水道分野におけるエネルギー消費の実態を把握した。

B. 京大環境質管理グループ

NOMのどの成分・画分が、有機・無機膜、オゾン・AOP等の各処理プロセスにおいて、相対的にどの程度影響しているかを評価することを目的とし、H23年度は、H22年度に引き続き、NOM構成成分の想定、水環境中NOMの抽出・分析、有機物分画による水環境中NOM、ファウリング原因物質等の特性評価およびファウリング原因物質、消毒副生成物前駆物質の同定について研究を実施した。

H22年次に引き続き、世界中で蓄積されているNOMに関する起源、環境中での挙動・分解等に関する研究成果・文献を集積・検討するとともに、水環境中に存在しうるNOM構成成分を想定するとともに、NOMの分解挙動等についても評価した。2種の実試料(琵琶湖水、下水二次処理

水)を対象として、NOM の抽出・分画法を確立するとともに、NMR、有機物組成分析等の手法を確立した。琵琶湖 NOM の構造特性が脂質・脂肪酸で特徴づけられること等を明らかにし、今後は NOM 構成成分に順次反映をさせていく予定である。2 種の実試料(琵琶湖水、下水二次処理水)を対象として、小型カラムを用いた有機物分画を実施して特性評価を行った。また、ファウリング原因物質の解明に向けたチーム間連携については、分画の(一部)自動化を図る等の体制を整えた。EEM 分析、有機物分画、TOC 検出 HPSEC 分析等による膜処理前後水中有機物の特性評価に加え、ファウリング原因物質等の同定に向けた LC/MS/MS、NMR 等の検討を行った。

今後は、膜ファウリング物質の究明に向けて、京大・田中チームを中心とする膜関連チームで連携しながら、小型カラムを用いた有機物分画による特性評価を推し進めていく予定である。H23 年度までに準備・確立してきた抽出・分析方法等を 2 つの実試料に適用しながら、それぞれの成果を相互に反映させていく。H24 年度からは、生物蓄積性・毒性緩和影響等の評価に向けて、準備・検討を開始する予定である。

C. 東レグループ

下水再利用のための有機膜利用水処理技術開発として、①下水二次処理水→農業用水用途、②初沈越流水→再生水における UF 膜処理技術開発を行った。

①において、当社が暫定的に設定した目標性能(ウイルス除去率 5.2log 以上かつ従来技術比 15%省エネ)を達成すべく検討を進め、当グループの試験サイトである天津市水再生センターの二次処理水を原水とした場合、凝集+UF 膜プロセスにて目標性能達成可能であることが分かった。一方、モデルサイトである沖縄那覇浄化センターの二次処理水では、天津市水再生センターの二次処理水と比較しウイルス凝集性能が悪く、凝集剤濃度を調整するだけでは目標性能達成が困難であった。そのため、京大予見グループとともに凝集プロセスにおけるウイルス除去率向上検討を実施した結果、低 pH 領域にて凝集することでウイルス除去率が向上することを見出し、パイロット試験においても目標性能に近い処理技術であることを見出した。

さらなる性能向上を検討した結果、UF 膜+UV プロセスについても目標性能を達成可能なプロセスであることを見出した。これらの結果から、UF 膜+UV プロセスと低 pH 凝集+UF 膜プロセスを候補プロセスとして絞り込み、上記の目標性能達成の見通しを得た。

②において、凝集+UF 膜にて BOD,SS,大腸菌群、総りんについては、放流水質基準に近い水を生産可能であり、0.5m/d にて 1 ヶ月程度安定運転可能であることを実証した。

H24 年度以降は①および②について、長期連続試験により各生産水の水質リスクを当チームで策定するリスク評価手法を基に検証するとともに、③下水二次処理水→都市用水用途として UF 膜+RO/NF 膜のプロセス開発を開始する。

D. メタウォーターグループ

開発プロセスを①親水用水向け高品位再生処理技術 (Case1)、および下水水資源のカスケード利用のための②下水流入水直接処理技術 (Case2) の 2 ケースに絞り込み、ラボ実

験装置によりオゾン、無機膜単位プロセスの定量評価実験を継続して実施した。ウイルス、や残留医薬品類の除去性評価などから、Case1 については、適切な運転条件の絞り込み、および膜ろ過性能維持方法の目処を得た。また土研 G と共同でオゾン処理レベルの違いによるリスク評価データの取得も行った。Case2 についてはラボレベルでの基礎特性把握に着手し、オゾン消費量と水質改善効果の定量把握、プロセス序列影響評価、凝集剤併用効果の検証等を進めており、特にオゾン消費量と膜処理安定性の一次評価データの取得を完了した。また、日中 G と共同で中国南部地域向けの膜処理装置を製作し、設置場所の検討、実験方法の検討を進め、24 年度初めから深センにおいて、主に浄水処理向けのデータ取りを開始する予定である。

E. 国土技術政策総合研究所グループ

既存水利用システムのエネルギー消費構造の検討を 22 年度に引き続いて実施した。下水処理水の再生利用のための代表的な水処理プロセスであるオゾン処理、膜処理を対象として、自治体から稼働中の施設の電力消費に関する実績値の情報提供を受けて運用時の CO₂ 発生量原単位を試算した。メーカーによる調査、浄水施設の膜処理に関しても同様の情報収集を行い、処理規模別の CO₂ 発生量原単位を評価するための基礎情報を得た。

また、昨年度に調査を行った従来技術による再生水の広域利用において、供給元となる下水処理場の規模と場所を変更した場合や用途を変更したケーススタディを実施し、それぞれについて簡易なモデルを使用して CO₂ 排出量を試算した。

他グループが設計している新しい再利用システムの機器情報から運用時の CO₂ 発生量原単位を算定し、従来技術で処理された再生水のかんがい利用と比較検討した。

F. 土木研究所グループ

本年度は、衛生学的リスク評価に繋げるための、ウイルスの消毒実験を実施した。二次処理水を対象とし、オゾン消毒、塩素消毒実験を行い、腸管系ウイルス（ノロウイルス）を対象に不活化効果を検討した。定量方法として遺伝子検出による評価を行い、増幅域を拡張した PCR(LT-RT-PCR)と通常 Real-time PCR (ST-RT-PCR)にて検討した結果、結合塩素によるノロウイルス遺伝子減少は、LT-RT-PCR と ST-RT-PCR でその減少割合が大きく異なり、ST-RT-PCR による遺伝子減少量は、結合塩素で CT 値=300mg/L・min で約 1Log, LT-RT-PCR では、CT 値=100mg/L・min で 1Log 不活化することが明らかとなった。またオゾン消毒では、オゾン接触時間に比例して遺伝子の減少が確認され、ノロウイルスの遺伝子型 GII の方が GI よりもオゾンによる遺伝子の不活化が大きいことが分かった。

衛生学的リスク評価では農業利用における作物由来における消費者を考慮し、DALY におけるリスク評価の試算を行った。作物摂取量、作物への再生水の付着量を考慮し、実測データに基づき、原水濃度、膜処理による除去率、付着量の分布、不確実要素を加味して

リスク評価の試算を検討した。その結果、作物摂取および再生水利用時のシナリオを設定し試算した結果、野菜、果実、加熱調理用作物（穀類、イモ類、豆類）は、WHO の提唱する 10^{-6} DALY を達成する結果となった。また、利用用途毎に 10^{-6} DALY を達成するために、必要とされる再生水処理による腸管系ウイルスの除去率の試算を行った結果、利用用途毎に異なるが、下水処理水について概ね 5Log 以上の去率が要求されることが分かった。

マイルストーンの達成状況として、H23 年度は、引き続き条件の異なる環境水試料、4 種類、処理施設試料、4 種類の計 8 種類に対して、病原微生物の存在実態把握を行った。

また、高度処理水に適するバイオアッセイ手法を検討するため、3 種類の化学物質（フルタミド、クラリスロマイシン、シクロホスファミド）を雄メダカに曝露し、DNA マイクロアレイにより遺伝子発現変動パターンを解析した。これまでの化学物質への曝露結果から、外部刺激、繁殖、ストレス、免疫反応に関連する遺伝子の発現変動が確認された。また、PPCPs など化学物質 20 物質について藻類生長阻害試験を実施し、生態リスク評価に用いる毒性情報を収集した。さらに、水処理技術の工程水（大津サイト、那覇サイト）や、下水処理水の流入状況が異なる河川水を対象にバイオモニタリングを実施し、それらの遺伝子発現パターンを基に、再生水を含めた水資源の生物影響を評価する手法の構築を進めた。全体計画の数値目標である、水処理技術の工程水 20 種類以上、河川水等 30 種類以上、化学物質 30 種類以上の評価に対して、23 年度までに、19 プラントの工程水、河川水 27 地点、化学物質 26 種類について評価を行った。

G. 京大日中センターグループ

中国華南地区における水道水源の 1 つとなる河川を選定し、上流域から下流域までの 5 地点において、毎月 1 回程度の定期水質調査を継続実施した。窒素およびりんについて、全りんは低減傾向が認められたものの、窒素については増加傾向が認められた。特に浄水処理実験との関連で注目しているアンモニア態窒素濃度については、調査日による変動が大きく、直近では 2 mgN/L 程度となった。アンモニアへの対応を考え、前塩素を前処理とした膜処理プロセスについて、特に消毒副生成物について焦点を当て、評価を行っている。

水質調査としては微量汚染物質の分析にも着手した。現在、各物質の存在について、その使用量、河川流域周辺の土地利用などとの関係について調査中である。

中国華南地区の水事情、社会情勢、文化などを考慮して、この地区における最適な水循環系について検討を開始している。

H. 京大学堂グループ

研究初年度からの交流を通じて、ダナン工科大学との協力体制が整い、ダナン市の水環境関連施設（浄水場、下水処理場、工業団地廃水処理施設など）への訪問、情報収集、採水を行うことが可能となった。4 つの下水処理場の処理工程に関する情報収集を行い、水処理システム調査に

については当初予定していた平成 23 年度でおおよそ目標を達成した。さらに、都市部における水利用実態のアンケート調査を実施し、雨季における住民の水利用特性を 7 つの行政区域別に把握した。また、化学物質循環経路調査については、主要河川、湖沼、地下水、下水処理場放流水、工業団地廃水中の一般水質、有機フッ素化合物類の分析を行った結果、①河川の一般水質汚染は、ハノイと比較してあまり進行していない一方で、地下水の大腸菌汚染が進んでいること、また、②湖沼からハノイと比較し数十倍程度の有機フッ素化合物類が検出されたこと等を把握した。国内では、浄水の水源となっている比謝川において高濃度の PFOS を検出した。新規水処理システムの処理効果の検討では、負荷電の NF 膜による効率的な PFOS 処理の可能性が示された。また、有機フッ素化合物類の分析について、従来よりも簡便性・再現性の高い前処理方法を考案した H-1)。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表)

- 論文詳細情報

A-1. 花本征也、中田典秀、山下尚之、田中宏明 (2011) 都市河川における医薬品類の減衰、環境工学研究論文集, Vol.48, 179-185.

A-2. Suchul Yoon, Norihide Nakada, Hiroaki Tanaka (2011) Occurrence and removal of NDMA and NDMA formation potential in wastewater treatment plants, *Journal of Hazardous materials*, 190, 897-902. (DOI: 10.1016/j.jhazmat.2011.04.010)

H-1. 鈴木裕識, 田中周平, 藤井滋穂, Chinagarn Kunacheva (2011) 下水試料中に含まれる懸濁態ペルフルオロ化合物類の簡便性・再現性の高い分析方法の提案, 環境工学研究論文集, Vol.48, 257-265.

(3-2) 知財出願

① 平成 23 年度特許出願件数(国内 1件)

② CREST 研究期間累積件数(国内 1件)