

伊藤 禎彦

京都大学大学院地球環境学堂・教授

都市地下帯水層を利用した高度リスク管理型水再利用システムの構築

§1. 研究実施体制

(1)「地下浸透処理およびリスク評価ならびに数値モデル構築」グループ(研究機関別)

① 研究代表者:伊藤禎彦 (京都大学大学院地球環境学堂、教授)

② 研究項目

- ・地下浸透処理における微量汚染物質、病原性微生物等の処理性評価
- ・リスク評価管理手法の確立
- ・数値モデル化と実装シナリオ作成

(2)「消毒副生成物評価」グループ(研究機関別)

① 主たる共同研究者:浅見 真理 (国立保健医療科学院生活環境研究部、上席主任研究官)

② 研究項目

- ・下水処理場放流水中の *N*-ニトロソアミン類とその前駆物質の実態調査
- ・オゾン処理による *N*-ニトロソジメチルアミンの生成能評価条件の検討

§ 2. 研究実施内容

H23 年度は、回分実験、小型土壌カラムおよびパイロットプラント実験を実施し、地下浸透処理における汚染物質、病原性微生物等の除去特性の把握を主として行った。また、確率論的手法を用いて都市内水循環システムの基礎的数値モデルの構築を行った。さらに、*N*-ニトロソジメチルアミン (NDMA) および前駆物質等の下水処理場での実態調査ならびにオゾン処理による生成能評価条件の検討を行った。

「地下浸透処理およびリスク評価ならびに数値モデル構築」グループ

地下浸透処理実験においては、高さ 150cm、内径 15cm の小型土壌カラムを用いて、実下水処理水を原水とした連続運転を行った。運転条件は、20℃、HRT1 週間に設定し、土壌（真砂土、砂および豊浦標準砂）および原水水質（A₂O 処理水、CAS 処理水）が異なる 4 系で実験を行った。各カラムからの処理水での pH、DO、DOC 等は運転開始後約 1 ヶ月で安定に達した。豊浦標準砂を用いたカラムでは、土壌由来の DOC 流出にともない、DOC 除去率が他のカラムより低かった。一方、対象土壌に砂、原水に A₂O 処理水を用いた系（砂・A₂O 系）での DOC 除去について、カラム流入水での平均値 4.14 mgC/L に対して、流出水では 0.933 mgC/L と 77% の除去率が確認されたように、豊浦標準砂を除くカラムで概ね 70% 以上の除去率を示した。窒素については、原水にアンモニア態、亜硝酸態窒素がほぼ含まれていなかったこと、カラムの運転が好気条件下で行われていたことから、硝化・脱窒はほとんど見られなかった。微量汚染物質では、PFCs は、砂・A₂O 系での流入水および流出水中平均 PFOA 濃度が 21 ng/L および 23 ng/L であったように、各カラムで PFCs は除去されなかった。一方、EDCs では、砂・A₂O 系での流入水および流出水中平均 BPA 濃度が 700 ng/L および 22 ng/L と 97% の除去率が得られたように、各カラムにおいて、高い除去率が得られた。カラム流入水および流出水における溶存有機物画分については、流入水では、親水性塩基、疎水性酸性および疎水性塩基が主要な画分であったのに対して、流出水では、各カラムで疎水性塩基および親水性塩基が高い割合を占め、有機物画分に変化が生じた。

鳥羽水環境保全センター内に設置した 4 塔の大型土壌パイロットプラントの運転を、2011 年 10 月 20 日より開始し、処理状況を経時的に把握した。4 塔の運転条件は、①真砂土、平均滞留時間 30 日、不飽和層あり、②真砂土、平均滞留時間 6 ヶ月、不飽和層あり、③真砂土、平均滞留時間 30 日、不飽和層なし、④砂、平均滞留時間 30 日、不飽和層ありとした。pH や DOC は、各リアクターで、モニタリング開始後 1 ヶ月程度で安定したが、真砂土を用いた 3 塔のプラントにおいて、運転開始後約 3 ヶ月で、土壌層内でつまりが生じ、運転を停止した。つまりが生じた原因として、層内の土壌粒子のプロファイル等から、リアクター下層に粒径の小さい粒子が蓄積したことによるものと推察された。つまりが生じた 3 リアクターにおいては、土壌の入れ替えを行い、3 月末日より運転を行った。新たな運転に際しては、最下層 30cm に砂利を轆き詰め、実験対象土壌には、前回使用したまさ土より水はけのよいまさ土を選定した。

④系においては、流出水中 DO が概ね 9 mgO₂/L と好気条件での処理となっており、平均 DOC 除去率は 78%である。微量汚染物質である PPCPs についての処理成績は、Bezafibrate や Clarithromycin 等 7 種の物質で 85%以上の除去率が得られた一方、Crotamiton や Carbamazepine の除去率は 38-47%と低かった。また、大腸菌の土壌浸透処理による除去率として少なくとも 4 log 以上、大腸菌群の場合には 5.90-7.08 log が得られ、これを踏まえて④系での処理水を水道原水とした場合の水道水飲用による *Campylobacter jejuni* の年間感染リスクを QMRA 手法を用いて評価した結果、平均値 1.15×10^{-6} 人⁻¹年⁻¹、中央値 7.74×10^{-8} 人⁻¹年⁻¹ が得られた。暫定的な結果ではあるが、許容リスクレベル 10^{-4} 人⁻¹年⁻¹と比較して十分小さい値が得られた。

真砂土を用いた回分実験により、PPCPs における Bezafibrate や Clarithromycin 等の生分解性が明らかとなり、さらに Bezafibrate および DEET について、生分解による Transformation products が生成されることが提示された。また、エストロゲン性物質を対象とした土壌吸着実験により、エストロゲン性物質の土壌への吸着では土壌中の有機物含有量が重要な因子となること、また、土壌への吸着速度等を定量的に把握した。

システムの数値モデル化に基づく流域への実装シナリオの作成においては、確率論的手法を用いて都市内水循環システムの基礎的数値モデルの構築を行った。ここでは、対象物質のプロセス入力濃度、処理プロセスにおける除去能、あるいはプロセスにおける対数減少率を、確率分布を有する入力変数とした基本モデルを構築し、プロセス出口濃度を出力変数として、モンテカルロ法による数値解析を行った。

さらに、構築した基礎的数値モデルを用いて、「地下浸透処理を用いた高度リスク管理型水循環システムの処理性評価」における評価結果から、各処理プロセスの除去能、対数減少率の確率分布を推定する手法を構築した。その結果、観測データ数からみた数値解析モデルの精度については、観測データのサンプル数が N = 50 以上で、都市内水循環システムの数値解析モデルを構築することができると示した。

「消毒副生成物評価」グループ

消毒副生成物のうち、発がん性を有する新規の消毒副生成物として注目され、海外では水の再利用の観点からも検討されている NDMA を含む、3 種の N-ニトロソアミン類 (NDMA、N-ニトロソモルホリン (NMor)、N-ニトロソピロリジン (NPyr)) について、淀川流域の 5 下水処理場の 6 放流水と利根川流域の 3 下水処理場の 3 放流水中の実態調査を行った¹⁾。NDMA と NMor は、全ての放流水から検出され、それぞれ 5.0~200、2.0~47 ng/L の濃度範囲であった。NPyr は、全ての場合で不検出であった。クロラミン処理とオゾン処理による N-ニトロソアミン類の生成について評価したところ、NDMA は、クロラミン処理により、1 下水処理場放流水を除く全ての場合で濃度が増加し、その程度は数十~数百 ng/L であった。濃度が上昇しなかった放流水は、下水処理場でオゾン処理が導入されていた。オゾン処理の場合、4 放流水で濃度が増加し、その程度は数十~数千 ng/L であった。

NMor では、クロラミン処理、オゾン処理のいずれでも、処理後に濃度は増加しなかった。NPyr では、クロラミン処理後に、2 放流水中の濃度が増加した。オゾン処理によって NDMA 濃度が増加した放流水のうち、淀川流域の 2 放流水とその下流の河川水を対象に、オゾン処理時間と NDMA 濃度の関係について検討を行った¹⁾。いずれの場合も、NDMA 濃度はオゾン処理時間の増加にともなって増加し、その後、ほぼ一定の値となった。一定の値となるまでの処理時間は、試料によって異なったが、いずれの場合も、溶存オゾンが検出され始めた時間であった。したがって、少なくとも淀川流域の水では、処理時間を溶存オゾンが検出され始める時間に設定すると、全 NDMA 前駆物質の量を評価できることがわかった。大河川の下流域や下水処理水の再利用においては、オゾン処理等が実施または検討されるが、NDMA は、下水処理水の再利用や高度浄水の水源としての水質評価に重要な物質となることが示唆された。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

- 1.小坂浩司、廣瀬一人、浅見真理、秋葉道宏、水道における *N*-ニトロソアミン類とその前駆物質の実態調査、土木学会論文集 G(環境)、67 卷、7 号、pp.III_13-III_21、2011.
2. 森田悠斗、越後信哉、伊藤禎彦、ヨード造影剤の琵琶湖・淀川水系及び塩素処理過程における挙動、土木学会論文集 G(環境)、67 卷、7 号、pp.III_1-III_11、2011.
3. 久本祐資、中村玲奈、小坂浩司、越後信哉、大河内由美子、浅見真理、伊藤禎彦、水道原水中のアミノ酸の存在実態、土木学会論文集 G(環境)、67 卷、7 号、pp.III_23-III_30、2011.
4. Yumiko Ohkouchi, Bich Thuy Ly, Suguru Ishikawa, Yusuke Aoki, Shinya Echigo, and Sadahiko Itoh, A survey on levels and seasonal changes of assimilable organic carbon (AOC) and its precursors in drinking water, *Environmental Technology*, Vol. 32, No.14, pp.1605-1613, 2011.