

「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」
平成 22 年度採択研究代表者

H24 年度 実績報告

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) 地下浸透処理グループ

- ① 研究代表者: 伊藤 禎彦 (京都大学地球環境学堂、教授)
- ② 研究項目
 - ・化学物質および病原微生物の土壌浸透処理性能の把握
 - ・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

(2) 消毒副生成物評価グループ

- ① 主たる共同研究者: 浅見 真理 (国立保健医療科学院・生活環境研究部水管理研究分野・
上席主任研究官)
- ② 研究項目
 - ・消毒副生成物の生成ポテンシャル評価とその制御

§ 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)

(1)地下浸透処理グループ

平成 24 年度は、下水処理水再利用において着目すべき対象化学物質を、ヒトへのリスク評価に基づき選定した。これを踏まえ、23年度より運転を行っている室内土壌カラムおよび実下水処理場内に設置した土壌パイロットプラントにおいて、対象物質および病原性微生物濃度測定を経時的に実施し、除去性、不活化能の知見を集積した。また、土壌浸透処理系内の対象化学物質の挙動を記述する数理モデルを構築し、モデルに用いる諸定数を実験的に推定した。実装システムとしてのモデル構築においては、これまでに構築した都市内水循環システムの基本数値モデルを用いて、確率論的アプローチによる都市内水循環システムの水質リスクの評価モデルを構築するとともに、確率論的水質リスク評価を目的とした土壌浸透処理プロセスの数値解析モデルの構築を行った。

下水処理水再利用において着目すべき測定対象化学物質をヒトへのリスクの観点から選定するにあたり、本事業での測定値ならびに過去の文献を用い、下水処理水中化学物質濃度に関する知見を整理した。そして、各物質での最大濃度と水道水質基準等にみられる基準・目標値との比較を行い、最大濃度が基準・目標値に比して0.1以上である化学物質を測定対象とした。結果として、消毒副生成物 (THMs (Trihalomethanes), HAAs (Haloacetic acids), NDMA (*N*-Nitrosodimethylamine)等), 1,4-dioxane, EDTA (Ethylenediaminetetraacetic acid), 1,3-dichloro-2-propanol, PFCs (Perfluorinated compounds), EDCs (Endocrine disrupting chemicals), ニッケル, 鉛およびシアンが選定され、これらに PPCPs (Pharmaceutical and Personal Care Products) (transformation products の探索, 生分解特性の把握を目的)を加えたものを本事業での測定対象化学物質とした。

室内土壌カラム (砂, HRT3.5 日, 不飽和層あり)において、流入水 (A2O 処理水)中平均 THMsFP (formation potential)および HAAsFP (n=15)がそれぞれ 86 µg/L および 53 µg/L であったのに対して、流出水では 23 µg/L (除去率: 73%)および 16 µg/L (除去率: 70%)と土壌浸透処理による低減効果が見られた。また、土壌浸透処理 (砂, HRT7 日, 不飽和層あり)のみの系 (系 1)および土壌浸透処理前 (系 2)ならびに処理後 (系 3)にオゾン処理 (リアクター容積: 3.3 L, オゾンガス注入率: 5 mgO₃/L, オゾンガス流量: 0.3 L/min, 反応時間 10 分)を加えた系それぞれで対象物質処理性を評価した。この結果、流入水に対して、系 1, 系 2 および系 3 での流出水での HAAsFP の平均除去率 (n=7)は、77%, 84%および 80%, EDTA の平均除去率 (n=7)は 52%, 75%および 69%と、系 2 での高い除去性が明らかとなり、下水処理水にオゾン処理を行った後、土壌浸透処理を実施する処理プロセスの有用性を示した。オゾン処理は、この場合、土壌浸透処理の機能を補完する化学酸化処理として位置付けている。また、真砂土および砂を用いた回分実験による PPCPs の微生物分解生成物の探索を実施し、Bezafibrate および DEET (*N,N*-diethyl-3-toluamide)の分解生成物を検出した¹⁾。

土壌浸透処理を介した再生水の微生物リスク評価を行うため、土壌パイロットプラント（砂、HRT30 日、不飽和層あり）を対象として、流入水と土壌浸透処理水中の *C. jejuni* (*Campylobacter jejuni*)、AdV (Adenovirus) のモニタリングを実施し、また、土壌浸透処理による *C. jejuni* 除去能を推定するための指標微生物として糞便性大腸菌群を選定した。AdV 検出用の水試料濃縮はポリエチレングリコール (PEG) 沈殿法で行い、土壌浸透処理水では、処理水 50 L を限外ろ過により 1 L に一次濃縮した後、PEG 沈殿を行う二段階濃縮を試みた。その結果、土壌浸透処理の細菌除去能は 5.36~6.16 log₁₀ と安定して高いのに対して、AdV では 0.56~1.34 log₁₀ に留まることがわかった。また、同処理による AdV 感染能の変化を捉えるため、CaCO₂ 細胞を用いてウイルス感染させた後に細胞内ウイルスを PCR 検出する手法の条件を決定した。

土壌浸透処理系内の対象化学物質の挙動の把握を目的として、吸着、生物分解を組み込んだ動態モデルの構築を行った。また、モデルに用いる吸着速度定数、生物分解速度定数について、砂を対象とした回分式実験により定量化した。

実装システムとしてのモデル構築においては、対象物質を溶存有機炭素 (DOC) として、室内土壌カラムおよびパイロットスケール実験で得られた実測値を用いて、対象物質の入出力濃度、対数減少率の経時変化や確率分布を表現可能な土壌浸透処理プロセスの数値解析モデルを構築した。

(2) 消毒副生成物評価グループ

平成 23 年度までの調査で、オゾン処理による NDMA の前駆物質濃度が高かった下水処理場を対象に、下水処理場に流入する下水管渠から下水を採取し、下水中の NDMA 濃度および前駆物質濃度を測定し、発生源の探索を行った。12 下水管渠中の下水および下水処理場の流入水の計 13 試料のうち、NDMA は 9 試料から検出され、その濃度範囲は <5.0~120 ng/L であった。これら試料にオゾン処理を行った場合、NDMA は全ての試料から検出され、その濃度範囲は 26~75000 ng/L であった。下水管渠中の下水に関しては、数百 ng/L 以上の濃度で検出されたのは 3 試料であったが、各下水の流量も考慮した場合、NDMA 濃度が最も高かった試料において、NDMA 前駆物質の負荷量も大きかった。別の日に、同下水管渠中の下水とさらに上流の下水管渠中の 4 下水を採取し、NDMA とオゾン処理後の NDMA 濃度を測定した。オゾン処理後の NDMA 濃度が最も高かった下水管渠中の下水とその上流の下水中の結果から、その間に排出源があることが判明した。

東京の地下水中の塩素酸イオン、過塩素酸イオン濃度を測定したところ、自然起源と考えられた試料は概ね塩素酸イオン濃度の方が高い傾向にあったが、一部は塩素酸イオン濃度の方が低い場合があった²⁾。この傾向は、自然起源の表流水中の場合と異なる傾向であった。塩素酸イオン、過塩素酸イオンのいずれも、生分解は還元反応によって進むことが知られており、この結果は、少なくとも、溶存酸素濃度が低い試料については、両イオンの生物分解の速度の差によるものと考えられた。今回調査した東京の地下水は、全体的に溶存有機物濃度が比較的高く、35%程度は溶存酸素濃度が低い状態にあったことから、生物分解が進みやすい環境をもつ地下帯水層が

比較的多かったと考えられた。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. 米谷貴志, Songkeart Phattarapattamawong, 越後信哉, 森田悠斗, 大河内由美子, 伊藤禎彦 (2012) 地下浸透処理における下水処理水中残留医薬品類の消長に関する基礎的検討, 土木学会論文集 G(環境), 68, III_419-III_428.
2. 小坂浩司, 黒田啓介, 村上道夫, 吉田伸江, 浅見真理, 小熊久美子, 滝沢智, 秋葉道宏 (2013) 東京の地下水中の塩素酸イオンおよび過塩素酸イオンの実態調査, 木学会論文集G(環境), 69, 10-18.
3. Liang Zhou, Shinya Echigo, Yumiko Ohkouchi, Sadahiko Itoh (2012) Quantitative Microbial Risk Assessment of Drinking Water Treated with Advanced Water Treatment Process, The 9th International Symposium on Water Supply Technology, Proceedings & Abstracts, 106-107, Yokohama, 2012.11.
4. Yasuhiro Asada, Yumiko Ohkouchi, Sadahiko Itoh (2012) Estimation of illness-to-infection rate of *Campylobacter jejuni* based on epidemiological study The 4th Asia-Pacific Young Water Professionals Conference 2012, Health-Related Water Microbiology Special Session, Tokyo, 2012.12.