

## 13 地域の水利用と水生生態系の保全のための水質管理技術の開発

研究期間：平成 28 年度～令和 3 年度

プログラムリーダー：水環境研究グループ長 萱場 祐一

研究担当グループ：水環境研究グループ（水質）、材料資源研究グループ、寒地水圏研究グループ（水環境保全）、水工研究グループ（水理）

### 1. 研究の必要性

様々な水質改善対策が実施されてきた現在も、社会活動に重大な影響を及ぼす新たな感染症の発生や、日用品由来の化学物質の生態影響、汽水湖等の貧酸素化、貯水池におけるアオコ・カビ臭による利水障害等の水に由来する問題が生じている。そのため、新たな規制の動向にも対応しつつ河川・湖沼等の水質管理を行うとともに、下水処理による新規規制項目への対策やモニタリング・評価技術の確立が必要である。したがって、本研究開発プログラムでは、水環境中の化学物質や病原微生物等の影響の評価手法の構築やその軽減のための処理技術を開発する。また、停滞性水域等における水利用や生態系を保全するためのモニタリング技術、予測手法を構築する。さらに、上記の開発技術やモニタリング・評価手法を活用しつつ流域全体の利水や水生生態系に対する影響を軽減し、環境の質を向上するための管理方策の提案を目指す。

### 2. 目標とする研究開発成果

本研究開発プログラムでは、水環境の質を向上し、地域の水利用や生活環境、水生生態系を保全していくことを目指し、個々の湖沼・ダム管理や下水道管理の技術的支援、国が実施する関連行政施策の立案や技術基準の策定に反映を目標に、以下の達成目標を設定した。

- (1) 流域の水環境を的確・迅速に把握するための影響評価、モニタリング手法の開発
- (2) 水質リスク軽減のための処理技術の開発
- (3) 停滞性水域の底層環境・流入負荷変動に着目した水質管理技術の開発

### 3. 研究の成果・取組

「2. 目標とする研究開発成果」に示した達成目標に関して、平成 30 年度に実施した研究の成果・取組について要約すると以下のとおりである。

#### (1) 流域の水環境を的確・迅速に把握するための影響評価、モニタリング手法の開発

ヒト用医薬品は都市域を負荷源として発生し下水処理場を主要な経由点として都市河川へ排出される微量汚染物質の一つである。都市から下水道、河川までの流域全体における医薬品の効率的な削減対策やリスクの管理を行う上で、河川流下過程における医薬品の消長を的確に把握する必要がある。本年度は、多摩川中流域を対象に、水系暴露解析モデル AIST-SHANEL Ver.3.0 を用いた 250 m メッシュの非正常解析により、流域全体における医薬品の暴露濃度の網羅的予測を試みた。流域への azithromycin, clarithromycin, levofloxacin の 3 種医薬品の排出量として、既存の下水処理場調査実測データと下水処理人口に基づく推定式から多摩川流域内の下水処理場からの放流負荷量を推定してモデル計算に適用した。シミュレーション結果から流域全体の濃度マッピングが達成された。本研究でモデルにより得られた推定値の誤差範囲には留意する必要があるが、水系暴露解析モデルと毒性データを併せて検討することで、流域の生態リスクを包括的に評価できる可能性が示唆された。

湖沼・ダム貯水池の水質改善に向け、効率的な藻類のモニタリング手法の構築が急務となっているため、DNA 配列に基づくプランクトンのモニタリング手法の構築に取り組んだ。従来手法と比較し、極めて多くの種を同定・分類することができ、光学顕微鏡では同定が困難であった 2  $\mu\text{m}$  以下のプランクトンや細菌を容易に同定できるようになることが期待されることから、今後、水質障害の予測に活用できる可能性が示唆された。

気候変動による気温、降水量の変化がダム貯水池の水質、濁質に与える影響についての将来的な予測に取り組んだ。今年度は、仮想ダム貯水池における気候変動による前提条件の変化が水質に与える影響および将来予測等について検討し、富栄養化および底層貧酸素化の適応策に関する検討を行うとともに、現地データを用いたアオコ発生予測モデルの構築を試みた。ダム貯水池における気候変動の適応策を検討した場合、表層放流が富栄養化対策として有効であること、異高同時取水が底層貧酸素化の改善に有効であることが示された。

#### (2) 水質リスク軽減のための処理技術の開発

水生生物の保全に係る水質環境基準項目へのアンモニア性窒素の追加が検討されており、下水放流先に環境基準点がある場合や、排水基準値が設定された場合に対応するため、下水処理過程でのアンモニア性窒素の低減法を提案しておく必要がある。そこで、微生物保持担体を用いて、下水処理水中に残存するアンモニア性窒素の低減効果をプラント実験により調査した。その結果、微生物保持担体処理は、硝化活性が低下する冬季においても、約 45～60 分の処理時間でアンモニア性窒素を 1/10 に低減できること明らかにした。本実験で得られた硝化速度は 18.8 mg-N/L・h であった。

地震等の災害時に下水処理場が被災し処理機能停止となった場合は、応急復旧として簡易沈殿処理が行われている。簡易沈殿処理における有害物質の除去特性については知見が不十分であることから実下水を用いた簡易沈殿処理実験により排水基準項目の金属類を対象として除去特性を調査した。その結果、下水処理において処理困難物質とされている有害物質等の Pb、As、B、Cu、Zn、Mn の簡易沈殿処理における除去率は 30%以下で、除去が困難な物質であることがわかった。しかし、Fe は、沈殿処理によって 71%が除去されることを確認した。

消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案を目的に、F 特異 RNA フェージ (F-specific RNA bacteriophage; FRNAPH) 遺伝子群の下水処理場における存在実態および除去効果の調査によるノロウイルス (Norovirus:NoV) の指標としての利用可能性を評価した。その結果、下水処理によるウイルスの除去効果を評価する指標として、NoV の指標としては FRNAPH GII を、ウイルス除去における安全側の評価としては FRNAPH GI を指標として利用できる可能性が示された。また、公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案と高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価を目的として、越流水の対策技術として雨天時活性汚泥法による NoV の削減効果および活性汚泥中のタンパク質量が NoV の除去効果へ及ぼす影響や膜分離活性汚泥法 (Membrane Bioreactor: MBR) による NoV の除去率向上効果について調査した。その結果、雨天時活性汚泥法による NoV 負荷の削減効果は、9 回の調査の平均で 95%であった。一方、活性汚泥処理による NoV の除去効果は活性汚泥中のペプチド量 (タンパク質) が深く関与している可能性が示唆された。MBR による NoV の除去効果は、通常の活性汚泥法と比較して 2～3 オーダー程度高いことが確認された。

#### (3) 停滞性水域の底層環境・流入負荷変動に着目した水質管理技術の開発

網走湖において既往最大水位を更新した 2016 年の北海道豪雨時および 2017 年の融雪期に連続観測を行った。塩分、溶存酸素(DO)、濁度、3次元流速を 1 時間間隔で観測した。豪雨洪水時の観測結果から、湖水容量の 2 倍以上の流入があっても塩水が残存することが明らかとなった。さらに流出口では塩分が検出されず、DO が低下すること、湖心付近では塩淡境界が低下して塩分が流出する挙動が確認された。湖内に流入した淡水量と流出した塩水量から塩水が 50 倍ほどに希釈されるため、ほぼ塩分が検出されないこと、一方で塩水層に含有される硫化水素が残存するため DO が消費されることが分かった。流出塩水量を検討した結果、洪水イベントの総流入量と塩淡境界標高の変化量に相関関係があり、簡易推定が可能となった。網走湖において塩水層の貧酸素水塊の解消を目的として、現地に気液溶解装置(WEP)を建設して酸素供給による水質変化について実水域で観測を行った。2ヶ月間の酸素供給を行った結果、装置周辺では溶存酸素の上昇が確認されたが、その範囲は非常に小さかった。硫化水素による酸素消費が大きく、溶存酸素として検出できないことが確認された。一方で酸素供給時に固体硫黄が析出して濁度が上昇することから、濁度をトレーサーとすると、底層水塊の流れに沿っておよそ 120 m 四方に酸素供給効果が波及していることが確認された。また水質分析の結果から、WEP による酸素供給によって、硫化水素の減少とともに、リン及び窒素の減少も確認された。このことから、特定標高の層における汽水性貧酸素水塊の無毒化及び栄養塩濃度の減少が可能であることが示唆された。

## THE DEVELOPMENT OF WATER QUALITY MANAGEMENT AND CONTROL TECHNIQUES FOR REGIONAL WATER USE AND AQUATIC ECOSYSTEM CONSERVATION

**Research Period** : FY2016-2021

**Program Leader** : Director of Water Environment Research Group  
Yuichi Kayaba

**Research Group** : Water Environment Research Group (Water Quality Team)  
Material and Resource Research Group  
Cold-Region Hydraulic and Aquatic Environment Engineering Research Group  
(Water Environment Engineering Team)  
Hydraulic Engineering Research Group (River and Dam Hydraulic Engineering Research Team)

**Abstract** : Although various improvement measures for water quality have been implemented, serious issues are still found in water environments, such as infectious diseases that influence social activities, ecological effect of chemical substances derived from products for daily use, and occurrence of algal bloom and musty odor in reservoirs. Therefore, new strategies for evaluation, monitoring and management are required to respond to these issues. In addition, it is important to apply these techniques to the basins in an integrated manner to improve environmental quality. In this R&D program, in order to respond to these challenges, we will promote researches towards achieving the following 3 goals:

- (1) Development of assessment and monitoring methods to understand the water environments of basins with accuracy and speed.
- (2) Development of adequate water treatment technology for the mitigation of water quality risks.
- (3) Development of water quality management focused on the bottom layer environment and the inflow change in stagnant water areas.

We aim to reflect these developments to the planning of the administrative measures and technical standards by the national government towards the improvement of water environmental quality, conservation of regional water use in basins, living environment and the aquatic ecosystem.

**Keywords:** Water environment, water quality management, water quality control techniques, aquatic ecosystem conservation, mitigation of water quality risk

## 13.1 流域の水環境を的確・迅速に把握するための影響評価、モニタリング手法の開発

### 13.1.1 公共用水域における健康・生態リスクが懸念される化学物質の制御手法に関する研究（影響が懸念される物質のモニタリングと定量的リスク評価手法の構築）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：小川文章、對馬育夫、北村友一、鈴木裕識、小森行也

#### 【要旨】

ヒト用医薬品は都市域を負荷源として発生し下水処理場を主要な経由点として都市河川へ排出される微量汚染物質の一つである。都市から下水道、河川までの流域全体における医薬品の効率的な削減対策やリスクの管理を行う上で、河川流下過程における医薬品の消長を的確に把握する必要がある。本年度は、多摩川中流域を対象に、水系暴露解析モデル AIST-SHANEL Ver.3.0 を用いた 250m メッシュの非定常解析により、流域全体における医薬品の暴露濃度の網羅的予測を試みた。流域への azithromycin、clarithromycin、levofloxacin の 3 種医薬品の排出量として、既存の下水処理場調査実測データと下水処理人口に基づく推定式から多摩川流域内の下水処理場からの放流負荷量を推定してモデル計算に適用した。その結果、3 種医薬品の全てでモデル計算濃度が野外実測濃度と比べ低く算出される傾向があったが、clarithromycin については両者の間に良好な相関関係が示された。また、シミュレーション結果から流域全体の濃度マッピングが達成された。本研究でモデルにより得られた推定値の誤差範囲には留意する必要があるが、水系暴露解析モデルと毒性データを併せて検討することで、流域の生態リスクを包括的に評価できる可能性が示唆された。

キーワード：医薬品、下水道、公共用水域、水系暴露解析モデル、濃度予測、生態リスク

#### 1. はじめに

近年、生活で使用され下水道を通して河川水中に流出する微量化学物質による河川環境への影響が懸念されている。国内河川では、環境リスク初期評価により、一部の化学物質のリスクが示唆されている<sup>1) 2)</sup>。そのため、河川水環境において微量化学物質の効率的な削減対策やリスクの管理を検討する必要がある。このような背景のもと、本研究課題では、水生生物およびヒト健康への影響が懸念される化学物質のモニタリングと定量的リスク評価手法の構築を目的としている。

過年度では、下水道が水環境への主たる排出源であると考えられている医薬品を対象に、都市河川である多摩川流域において、既往の野外調査結果に基づいて算出した減衰速度係数と調査地点での負荷量から、調査区間に流入する負荷量および調査区間の最下流地点での負荷量に対する下水処理場の寄与率を推計し、下流地点の医薬品濃度に対して寄与率の高い下水処理場を把握した。また、河川水中の濃度をより正確に予測することを目指し、水中の濃度変化に影響を及ぼす因

子として底質への収着に着目して野外調査や室内実験を行った結果、azithromycin、clarithromycin、levofloxacin が河川底質に蓄積されやすいことや、azithromycin と levofloxacin の底質への収着は主に陽イオン交換反応によるものであることを明らかにした<sup>3)</sup>。このように、水環境中での医薬品の存在実態や挙動に関する知見は集積されつつある。一方で、回数が限られた野外水質調査や室内実験による挙動の検証のみでは流域全体の健康・生態リスクを的確・迅速に把握することは困難である。そこで本年度は、水系暴露解析モデルを用いたシミュレーションにより、流域全体における医薬品の暴露濃度の網羅的予測を試みた。

#### 2. 方法

##### 2.1 対象流域（多摩川流域）

多摩川は、山梨県、東京都、神奈川県を流れる多摩川水系の本川である(延長138 km、流域面積：1240 km<sup>2</sup>、流域人口：約380万人（2005年）<sup>4)</sup>。代表的な都市河川であり、高度成長期の急激な流域の都市化の影響を

表1 AIST-SHANEL Ver. 3.0に内蔵されていたデータおよびそのソース

モデルに既登載の河川流域属性項目	データソース	対象年
標高	国土数値情報 標高・傾斜度3次メッシュデータ	2011
土地利用	国土数値情報 土地利用3次メッシュデータ	2006
人口	平成22年地域メッシュ統計	2010
産業中分類別工業出荷額	平成20年工業統計メッシュデータ	2008
自治体コード	総務省データ	2011
下水処理場	下水道統計(平成23年度版)	2011
気象官署毎の気象データ	気象庁データ	2011

受けて水質が悪化した。下水道整備や河川浄化施設  
の設置などに伴い改善が進み、近年では中流域（多摩  
川原橋）の水質は、BOD 2 mg/L程度で推移している。  
一方で、人口増加および下水道普及率の上昇に伴い、  
中流域においては河川流量の5割以上を下水処理水が  
占める。本研究では、①下水処理場を經由して排出さ  
れる医薬品負荷量が多いと予想され、②シミュレー  
ションの妥当性の検証に適している、と考えられた多  
摩川流域をモデル計算の対象とし、河川流域を単位  
メッシュサイズに分割してメッシュ毎の濃度推定を  
行い、流域全体の生態リスク評価を試みた。

## 2.2 適用したシミュレーションモデル

日本国内において、環境中化学物質の環境動態予測  
を試みることができるモデルとして G-CIEMS (Grid-  
Catchment Integrated Environmental Modeling System) <sup>5)</sup>  
などがあり、流域を単位メッシュサイズに分割し水・  
熱輸送統合解析を実施できるモデルとして  
WEP(Water and Energy transfer Process)モデル <sup>6)</sup>などが  
ある。しかしながら、医薬品のような微量化学物質に  
ついて河川流域全体を単位メッシュサイズに分割し  
てシミュレーションを実施できるモデルは多くみら  
れない。国立研究開発法人産業技術総合研究所 (以下、  
産総研) の産総研-水系暴露解析モデル(AIST-SHANEL  
(Standardized Hydrology-based Assessment tool for  
chemical Exposure Load) Ver.3.0 は一定の入力データを  
準備することで、空間解像度を 250 m、時間解像度を  
日単位とした非定常解析により流域全体の濃度推定  
を可能としている <sup>7)</sup>。本研究では、AIST-SHANEL  
Ver.3.0 を用いて多摩川流域の 250 m メッシュによる  
非定常解析を行うこととした。モデルに内蔵されてい  
たデータとその引用元情報を表 1 に示す。データの対  
象年は 2006 年～2011 年であり、後述のように本研究  
で検証する野外調査実測データの取得年が 2011 年～  
2015 年であったが、適用範囲内であると考えそのま  
まの情報を用いた。次に、AIST-SHANEL Ver.3.0 で求  
められる入力パラメーターを表 2 に示す。水理条件、

表2 入力パラメーターの一覧

デフォルトパラメーターを使用した項目	単位	
空隙率	-	
容積分率-気相	-	
容積分率-液相	-	
容積分率-固相	-	
粗度係数	m <sup>-1/3</sup> *s	
懸濁物質SS沈降速度	m/D	
限界摩擦速度	m/s	
掃流式指数	-	
懸濁物質SS巻上げ速度定数	G/m <sup>2</sup> /s	
河川底泥孔隙率	m <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>	
有機性炭素含有率	-	
土壌気相分解速度	-	
月別定常解析の計算日数	day	
空間差分間隔	m	
時間差分間隔	s	
連立常微分方程式の元の数	-	
水路液相の容積分率	-	
水路液相の相当コンパートメント番号	-	
水路底泥の相当コンパートメント番号	-	
水路液相の堆積所要日数	day	
水路底泥の負荷流出係数	1/m	
大気湿性沈着量の投入先(0:土壌 水域:1)	-	
大気乾性沈着量の投入先(0:土壌 水域:1)	-	
対象化学物質の物性に基づいて設定した項目	単位	
蒸気圧	Pa	
分子量	g/mol	
水溶解度	g/m <sup>3</sup>	
有機炭素水分配係数	m <sup>3</sup> /t	
分解速度	土壌A層液相	1/h
	土壌A層固相	1/h
	土壌B層液相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	土壌B層固相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	土壌C層液相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	土壌C層固相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	土壌D層液相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	土壌D層固相(土壌Aと同じと仮定)	1/h
	河川水相	1/h
	河川底泥液相	1/h
河川底泥固相	1/h	

表3 シミュレーション対象医薬品3種の物性に基づいた入力データ

項目	単位	Azithromycin	Clarithromycin	Levofloxacin	情報元
蒸気圧	Pa	3.5E-22	3.1E-23	1.3E-10	EPI Suite version 4.1で計算
分子量	g/mol	749	748	361	ChemSpider
水溶解度	mg/L	514	217	54	PubChem (Sanford-Burnham Center for Chemical Genomics)
有機炭素水分配係数 ( <i>K<sub>oc</sub></i> )	m <sup>3</sup> /t	3,135	149	12	EPI Suite version 4.1で計算(MCI method)
河川水半減期					文献 <sup>8)</sup> に記載のデータを用いて計算
河川底泥液相半減期					
河川底泥固相半減期	day	0.16	57.8	0.20	
土壌A層液相半減期					河川水と同じと仮定し、文献 <sup>8)</sup> を採用
土壌A層固相半減期					

大気降水量など 23 項目についてデフォルトパラメータを用いた。一方で、蒸気圧、分子量、水溶解度、有機炭素水分配係数分解速度については、シミュレーション対象化学物質の物性に基づいて設定した。計算期間は 4 か月の助走期間を含め、487 日間で設定し、2011 年 1 月 1 日から 2011 年 12 月 31 日までの 365 日分の各メッシュにおける化学物質濃度を濃度解析することとした。なお、多摩川流域を 250 m メッシュで分割したところ、合計 19,784 メッシュであった。

### 2.3 対象医薬品の選定と関連する入力データ

本研究では、下水処理水中に残存しやすく、また、生態リスクが懸念されている<sup>1)</sup>、azithromycin、levofloxacin、clarithromycin の 3 種の医薬品を濃度解析対象とした。これらの物質の物性に基づいてあらかじめ準備した入力データを表 3 に示す。蒸気圧と有機炭素水分配係数 (*K<sub>oc</sub>*) は EPI Suite version.4. で計算した。分子量は Chemspider で、検索し入力した。水溶解度は PubChem の情報を基に入力した。分解速度に関わる河川水半減期は、azithromycin、clarithromycin、levofloxacin に対し、既往研究からデータを引用して各々 0.16 day、57.8 day、0.20 day と入力し<sup>8)</sup>、その他の半減期の項目に対しても河川水と同様と仮定して同値を代入した。

### 2.4 調査実測データを用いた下水道からの排出量推計

AIST-SHANEL Ver.3.0 では、化学物質の濃度推定シミュレーション対象流域への流入データ元として、「特定化学物質の環境への排出量の把握及び管理の改善の促進に関する法律 (化管法)」に基づく化学物質排出・移動量届出制度 (PRTR 制度) により把握が図られている情報を用いている。つまり、PRTR 制度の第一指定化学物質については、排出元である個別事業者の所在地情報を組み込むことで、対象物質の点源負荷量を

与えている、あるいは、流域内の土地利用情報を利用して届出対象条件に満たない事業者からの「裾切り以下の移動・排出量」を面的的に与えている。一方で、azithromycin、clarithromycin、levofloxacin のような医薬品は PRTR 第一指定化学物質とは異なり、移動・排出量情報が把握されていないので、二次情報からは流域への流入量データを用意できない。そのため、解析対象とする 3 種医薬品については水環境への主要な排出源が下水道であること、また、これらの医薬品はほぼ全てヒトに消費されていることを踏まえて、3 種医薬品の河川流域への排出源を下水処理場のみと仮定することとした。まず、過年度に実施した下水処理場での調査実測データ (放流負荷量 (kg/year) に変換) と下水処理場の処理人口との関係から式 (1) を作成した。使用したのは 2011 年~2015 年の間に多摩川流域内の 6 か所の下水処理場で調査した *n* =55 のデータセットである。放流負荷量の算出には下水道統計から晴天時の日下水量 (m<sup>3</sup>/day、年平均) を引用した。

$$L = aP + b \quad (1)$$

ここで、

- L*: 下水処理場からの放流量 (kg/year)
- a*: 排出係数 (kg/人・year)
- P*: 流域人口 (人)
- b*: 排出定数 (kg/year)

次に、得られた変数を用いて流域内の 13 か所の下水処理場に対して処理人口との関係から医薬品放流負荷量を算出し、モデル解析に入力した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 下水処理場調査実測データと人口情報を用いた下水処理場からの排出係数の算出

3 種医薬品について放流負荷量と処理人口との関係をプロットしたグラフを図 1 に示す。決定係数  $R^2$  で比較すると azithromycin では 0.757、clarithromycin では 0.697、levofloxacin では 0.591 であり、azithromycin において最も良好な相関関係が得られた。他の 2 種の医薬品の相関係数も概ね良好であり、下水処理人口を用いた放流負荷量の推定が適用できる可能性が示唆された。今回 55 の異なるデータを用いたが、処理場数としては 6 か所と少ないため、より多くの下水処理場のデータを使用して検証することで、広範囲の濃度域にも適した推定式を設定できることが示唆された。

#### 3.2 モデル計算値と河川調査実測データとの比較

3 種医薬品類について、前節で得られた式 (1) に基づく変数を用いて、多摩川流域内の 13 か所の下水処理場に対して処理人口との関係から放流負荷量を算出して AIST-SHANEL Ver.3.0 に入力し、モデル解析を実行した。その結果、多摩川流域全体の 19,784 メッシュ (250m メッシュ) に対し、2011 年 1 月 1 日～12 月 31 日の 365 日間分の河川水量および 3 種医薬品の負荷量と濃度が計算された。このうち、過年度の河川調査実測データがある多摩川の上流点 (八高線鉄橋)、中流点 (日野橋)、下流点 (関戸橋) そして支川 (浅川高幡橋) の 4 地点について、シミュレーションの計算結果と実測データをプロットしたグラフを図 2 に示す。Clarithromycin の場合、計算結果と実測結果の中央値を順に示すと、上流では 0.0037 ng/L と 0.30 ng/L (78.9 倍差)、中流では 2.42 ng/L と 308.4 ng/L (127.7 倍差)、下

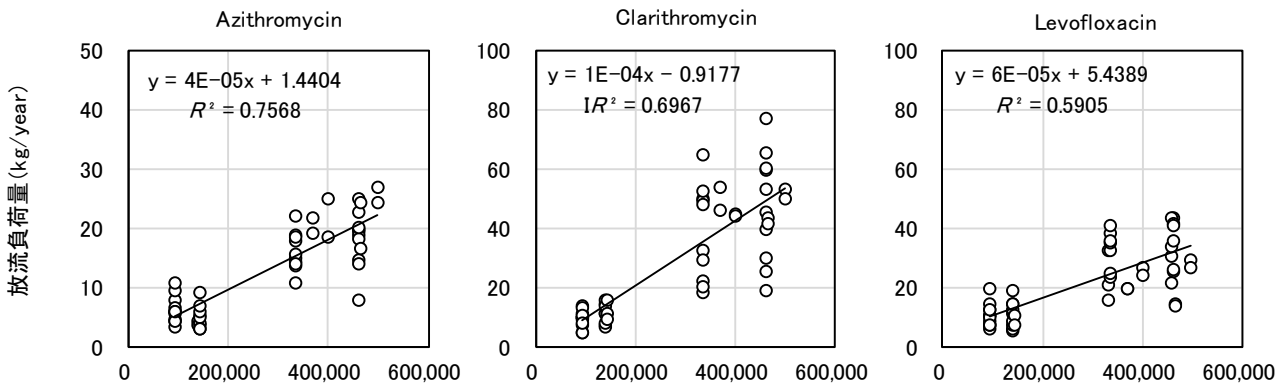


図1 3種医薬品の放流負荷量と下水処理人口との関係 ( $n = 55$ )

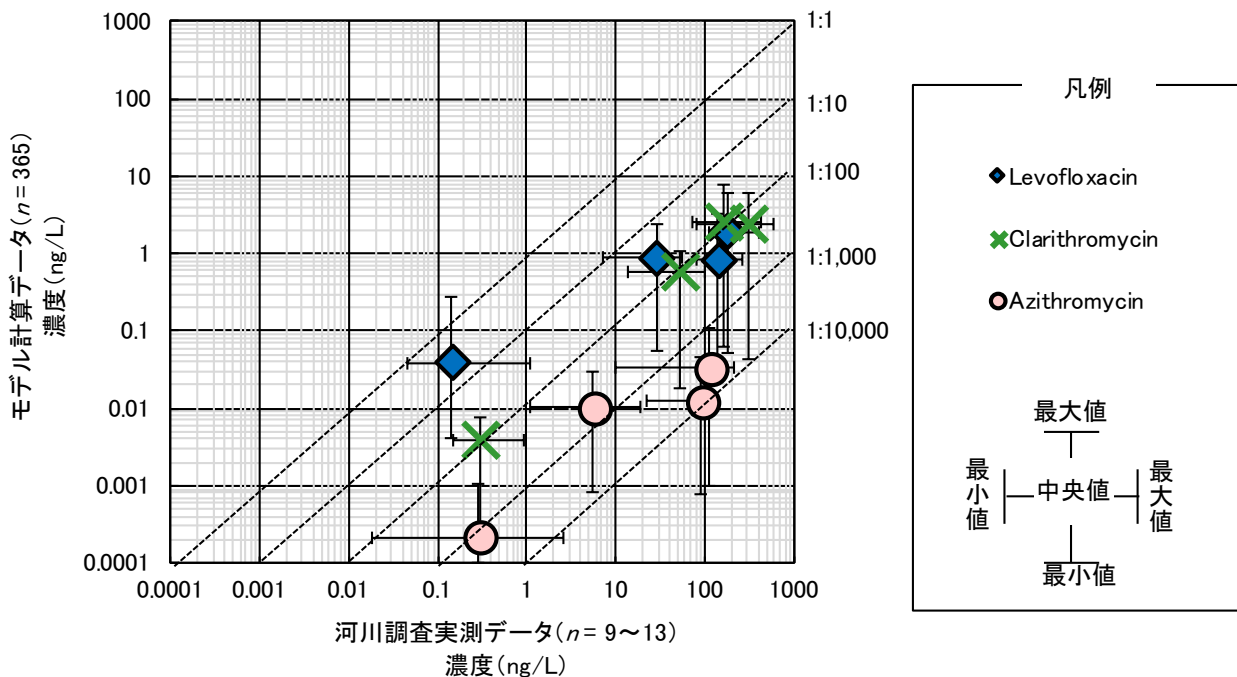


図2 同一メッシュ中の医薬品濃度におけるSHANEL Ver. 3.0計算値と河川調査実測値の比較

流では 2.6 ng/L と 162.2 ng/L (62.6 倍差)、支流では 0.59 ng/L と 52 ng/L (88.3 倍差) であり、2 オーダー程度の差があった。Levofloxacin の場合、計算結果と実測結果の中央値を順に示すと、上流では 0.039 ng/L と 0.14 ng/L (3.7 倍差)、中流では 1.9 ng/L と 180.2 ng/L (95.9 倍差)、下流では 0.8 ng/L と 140.0 ng/L (172 倍差)、支流では 0.87 ng/L と 29.0 ng/L (33.3 倍差) であり、1~2 オーダー程度の差があった。Azithromycin の場合、計算結果と実測結果の中央値を順に示すと、上流では 0.0002 ng/L と 0.29 ng/L (1,319 倍差)、中流では 0.033 ng/L と 115.0 ng/L (3,463 倍差)、下流では 0.012 ng/L と 90.4 ng/L (7,303 倍差)、支流では 0.0103 ng/L と 5.6 ng/L (541 倍差) であり、3~4 オーダー程度の差があり、3 種医薬品の中で最も的確に推定できていない結果であった。3 種の医薬品全てで、実測値の方が計算値よりも高い傾向があり、また、下水処理場が多数存在する多摩川中流域以降では差が大きくなる傾向があった。一方で、clarithromycin については計算値と実測値の誤差の程度が類似しており、プロットにおいても比較的良好な相関が得られていた。

今回のモデル計算では、デフォルトパラメーターをそのまま入力した項目が多く、物性に基づく入力項目も物質によっては環境での挙動を十分に考慮できていなかった可能性がある。そのため、推定精度の向上のためには、環境での挙動や条件等を精査しながら入力データを検討するとともに、測定データを蓄積してキャリブレーションを行う必要があると考えられた。

### 3.3 多摩川流域における濃度解析結果のマッピング

計算終了となる 487 日目(助走期間終了後 365 日目)のデータを使用して、多摩川流域全体のメッシュに河川水流量と clarithromycin の負荷量および濃度をマッピングした結果を図 3 に示す。まず、河川水の流量は、奥多摩湖の出口時点での 45.6 m<sup>3</sup>/day と比較して、流域最下流端のメッシュでは 2.5×10<sup>6</sup> m<sup>3</sup>/day であり、約 55,400 倍の流量となっていた。なお、この時下水処理水由来の流量は全流量の 20.7%を占めていた。次に、clarithromycin の日負荷量をみてみると、最初に負荷量が算出された八高線鉄橋の下流地点付近での 2.70 g/day と比較して、流域最下流端のメッシュでは 53.4 g/day であり、約 19.8 倍の負荷量となっていた。この結果は、同一地点間の河川水流量増加率 (1.70 倍) と比較して 1 オーダー程度高く、河川流下過程における分解や底質への吸着による水中からの減少量よりも都市域からの排出量の方が大きいことを示すものであ

た。最後に、clarithromycin の濃度に注目してみると、最大濃度であった場所は支川流域に位置する某下水処理場の下流地点で 33.2 ng/L であり、流域最下流端のメッシュでは 21.1 ng/L であった。本研究グループでは過年度に、clarithromycin に対する初期リスク評価として、ムレミカヅキモを用いた藻類生長阻害試験で得られた EC<sub>50</sub> 値<sup>9)</sup>を基にして PNEC を 20 ng/L と算出している<sup>10)</sup>。この値を超過しているメッシュは全 19,784 メッシュのうち 78 メッシュ存在し、全体の 0.39%であった。また、河道範囲に限った全メッシュと比較すれば 5.14%であった。今回得られた推定濃度と PNEC との単純比較によるハザード比の結果を極端に信頼することはできないが、水系暴露解析モデルと毒性データを併せて検討することで、流域の生態リスクを包括的に評価できる可能性が示唆された。一方で、本研究で実施した濃度推定では、詳細なパラメーターの検討やキャリブレーションをせずに既存のシステムのデフォルト設定を採用している点が多かったことから、濃度が的確に推定されなかった疑いがある。そのため、得られた推定濃度と PNEC との単純比較によるハザード比の結果を極端に信頼することは避けなければならない。

今後、水系暴露解析モデルのようなシミュレーションモデルを適用して流域全体の濃度をなるべく精度良く推定して実測データを補うことができれば、潜在的な汚染を迅速に把握しつつ、視覚的にも理解しやすい形で生態リスク評価が実施できるようになると考えられた。

## 4. まとめ

本研究では、水系暴露解析モデルを用いたシミュレーションにより、多摩川流域全体での医薬品の暴露濃度の網羅的予測を試みた。主要な成果を以下に示す。

○azithromycin、clarithromycin、levofloxacin の 3 種の医薬品について、下水処理場における実測データを基に計算した処理場からの放流負荷量と下水処理人口との間には良好な相関があった。下水処理人口に基づいた 3 種医薬品の放流負荷量の推定式が得られ、未調査の下水処理場からの 3 種医薬品の放流負荷量が推定された。

○下水処理場からの放流負荷量推定値を適用し、AIST-SHANEL Ver.3.0 を用いた 250 m メッシュの非定常解析を実行した。検討した 3 種医薬品の全てでモデル計算濃度が野外実測濃度と比較して低く算



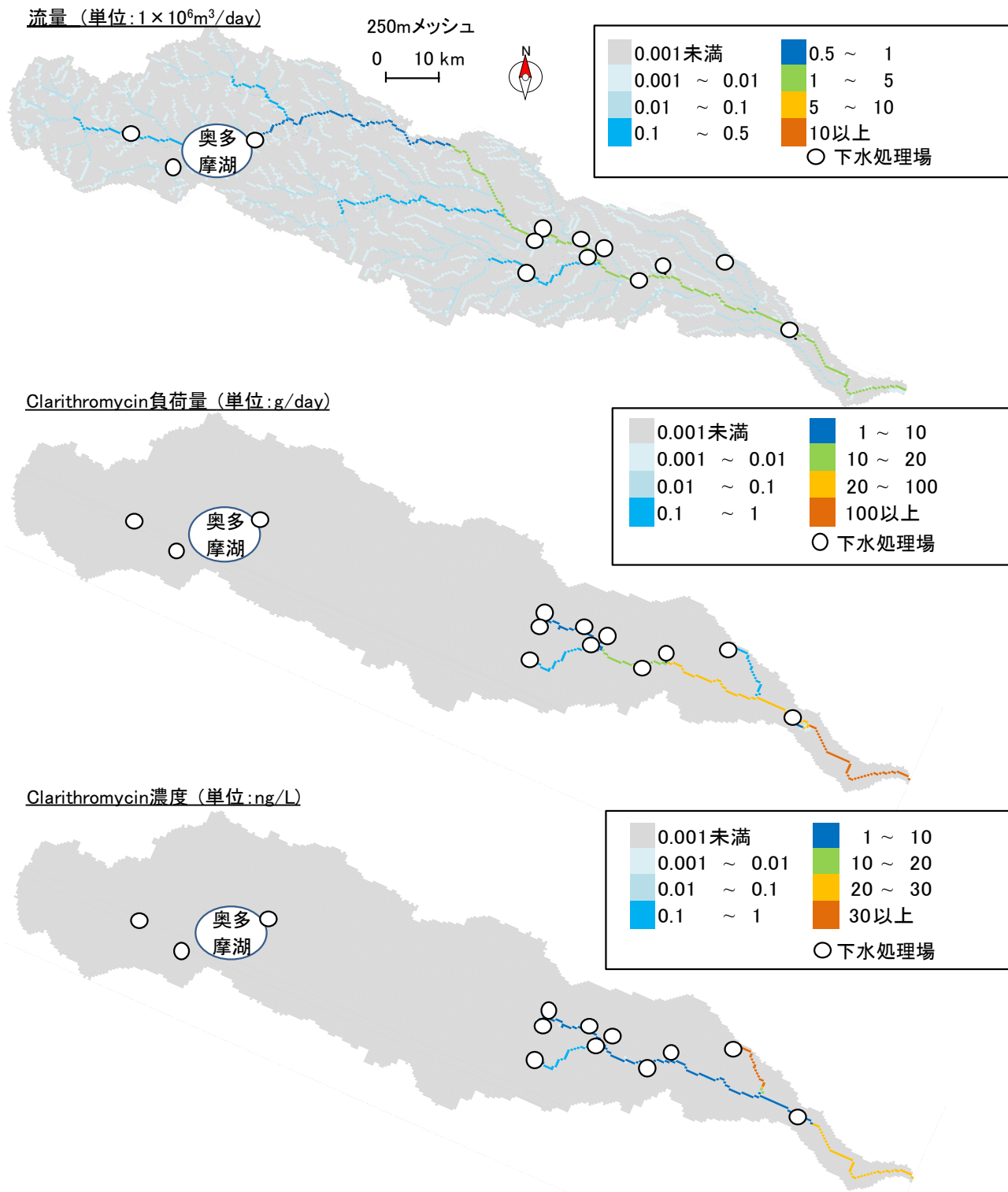


図3 AIST-SHANEL Ver. 3.0による計算値を用いた  
多摩川流域における河川水流量およびclarithromycinの負荷量と濃度のマッピング結果

出される傾向があったが、clarithromycinについては、モデル計算濃度と野外実測濃度間に良好な相関関係が示された。

○モデルによる推定濃度データを用いて流域全体の濃度マッピングが達成された。本研究でモデルにより得られた推定値の誤差範囲には留意する必要があるが、水系暴露解析モデルと毒性データを併せて検討することで、流域の生態リスクを包括的に評価できる可能性が示唆された。

## 参考文献

- 1) 平成 27 年度重点研究成果報告書：水環境中における未規制化学物質の挙動と生態影響の解明、<https://www.pwri.go.jp/jpn/results/report/report-project/2015/pdf/ju-10.pdf> (2019 年 6 月確認)
- 2) 花本征也、真野浩行、南山瑞彦：多摩川と桂川における抗生物質の減衰の差異とその要因、第 51 回日本水環境学会年会、熊本、p.165、2017 年 3 月
- 3) 平成 29 年度研究開発プログラム報告書「13.1.1 公共用水域における健康・生態リスクが懸念される化学物質の制御手法に関する研究」、pp.1-4、2017
- 4) 国土交通省：一級水系における流域等の面積、総人口、一般資産額等について、[http://www.mlit.go.jp/river/toukei\\_chousa/kasen/ryuiki.pdf](http://www.mlit.go.jp/river/toukei_chousa/kasen/ryuiki.pdf) (2019 年 6 月確認)
- 5) Suzuki, N., Murasawa, K., Sakurai, T., Nansai, K., Matsubashi, K., Moriguchi, Y., Tanabe, K., Nakasugi, O. and Morita, M.: Geo-Referenced Multimedia Environmental Fate Model (G-CIEMS). Model formulation and comparison to the generic model and monitoring approaches, *Environ. Sci. Technol.* 38, pp. 5682-5693, 2004
- 6) Jia, Y., Ni, G., Kawahara, Y., & Suetsugi, T.: Development of WEP model and its application to an urban watershed. *Hydrological Processes*, 15 (11), pp. 2175-2194, 2001
- 7) 石川百合子、川口智哉、& 東野晴行：国内の任意水系を対象にした化学物質リスク評価のための産総研-水系暴露解析モデル (AIST-SHANEL) Ver. 3.0.、水環境学会誌、40 (5)、pp.199-208、2017
- 8) 花本征也、杉下寛樹、山下尚之、田中宏明、宝輪勲、& 小西千絵：淀川水系における医薬品類の挙動に関する検討、環境工学研究論文集、45、pp. 29-37、2008
- 9) Isidori M., Lavorgna M., Nardelli A., Pascarella L., Parrella A.: Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms. *Sci. Total Environ.*, 346(1-3), pp. 87-98, 2005.
- 10) Mano, H., and Okamoto, S.: Preliminary ecological risk assessment of 10 PPCPs and their contributions to the toxicity of concentrated surface water on an algal species in the middle basin of Tama River. *J. Water Environ. Technol.*, 14(6), pp.423-436, 2016

## 13.1.2 公共用水域における消毒耐性病原微生物の管理技術に関する研究（消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案）

担当チーム：材料資源研究グループ（資源循環担当）

研究担当者：重村浩之、諏訪守、李善太

### 【要旨】

本研究は、消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案に関わる調査・研究として、ヒト腸管系ウイルスの代替指標として注目されている大腸菌ファージの F 特異 RNA ファージ (FRNAPH) 遺伝子群 (GI~GIV) を対象に、下水処理における存在実態および除去効果を評価し、ノロウイルス (NoV) と比較することで下水処理によるウイルスの除去効果を評価する指標としての利用可能性を評価した。その結果、下水処理による FRNAPH 遺伝子群の除去効果は GI が最も低く、次に GII であり、GIII と GIV は同程度で最も低かった。下水処理による NoV の除去効果は、FRNAPH GI と GII と同程度であり、FRNAPH GII と NoV GII との間には有意な相関関係が確認された。以上の結果から、下水処理によるウイルスの除去効果を評価する指標として、NoV の指標としては FRNAPH GII を、ウイルス除去における安全側の評価としては FRNAPH GI を指標として利用できる可能性が示された。

キーワード：下水処理、ウイルス除去効果、F 特異 RNA ファージ、ノロウイルス、指標ウイルス

### 1. はじめに

グローバル化にともなう多様な感染症を含め水系感染症拡大防止に貢献できる下水道システムの構築は、社会的優先度の極めて高い課題として、評価、対策技術を早急に確立する必要がある。従来、大腸菌、一部のウイルスを指標として衛生学的評価を行ってきたが、多種多様な病原微生物の出現により、検出・対策技術の評価が困難となることが予想される。分子生物学的手法の発展により、社会活動に重大な影響を及ぼす病原微生物の知見が集積されつつあり、新興感染症の病原微生物として一部のウイルスや、再興感染症として多剤耐性菌などが大きな社会問題<sup>1),2)</sup>となっているが、対策手法構築のために必要な除去・消毒感受性の体系化された研究・調査は進んでいない。公共用水域の水質管理のためには、その水質に大きな影響を及ぼす下水処理場にて、多様化する重大な感染症要因である消毒耐性病原微生物への効率的な対応を図る必要があり、包括的な観点に基づく評価手法を構築した上で、対策手法を提案することが必要である。

本研究では、上記を踏まえ、様々なリスク要因に対応した包括的な観点に基づく評価手法の構築と、放流先水利用や異常時・災害時に対応した水処理・消毒技術の開発を目的とするものである。

平成 30 年度は、達成目標である消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案に関わる調査・研究として、近年、ヒト腸管系ウイルスの指標として最も注目

されている F 特異 RNA ファージ遺伝子群の下水処理場における存在実態および除去効果を評価し、ノロウイルスと比較することで指標としての利用可能性を評価したので、その研究成果について紹介する。

### 2. 研究目的および方法

#### 2.1 代替指標としての F 特異性 RNA Phage の評価

多様な病原微生物が検出される中で、各々の微生物に特化した検出対応は費用や労力の面から困難であるため、消毒耐性、存在実態、定量性 (PCR 法、培養法) 観点から、代表的な指標を選定し評価することができれば、病原微生物の効率的な管理に資することができると考えられる。上記の観点を踏まえた代替指標の 1 つとしては、大腸菌ファージの存在が挙げられる。その中でも特に F 特異 RNA ファージ (F-specific RNA bacteriophage; FRNAPH) は大きさ (直径約 20~40 nm) や構造 (正二十面体) がノロウイルス (Norovirus; NoV) などのヒト腸管系ウイルスと類似しているため、指標ウイルスとしての有用性について下水中での存在実態、消毒耐性の評価例<sup>3)</sup>、細菌、腸管系ウイルスとの塩素消毒に対する耐性比較などに関する報告<sup>4),5),6),7)</sup>があり、また、ウイルス不活化手法の評価<sup>8)</sup>や下水再利用プロセスにおけるモデルウイルスとしての利用例<sup>9)</sup>がある。一方、FRNAPH は GI から GIV の遺伝子群に分けられ、それぞれの遺伝子群は下水処理や凝集や膜処理などの水処理において耐性が異なる

との報告がなされている<sup>10,11,12</sup>)。そのため、下水処理場にてウイルスに対する指標としてFRNAPH遺伝子群を用いる場合には、下水処理場におけるFRNAPH遺伝子群の存在実態と除去効果を明らかにし、NoVなどのヒト腸管系ウイルスとの関連性を調べ、安全側の評価やより関連性がある遺伝子群を選定する必要があると考えられる。

本項では、FRNAPH GI~GIVを対象として、下水処理場における存在実態と活性汚泥処理による除去効果を調査し、NoVとの関連性を評価することでNoVの代替指標としての利用可能性を検討した。

## 2.2 下水処理場におけるFRNAPH遺伝子群の調査方法

調査は、A下水処理場内に設置されている標準活性汚泥処理装置(図-1)の流入水および処理水を平成29年5月から平成31年3月の間に計61回採水した。流入下水と処理水中のFRNAPHとNoVを定量し、活性汚泥処理による除去効果を算出した。FRNAPH遺伝子群(GI~GIV)とNoV GI, GIIIは、リアルタイムRT-qPCR法(PCR)により試料中の遺伝子濃度を定量した。定量ではポリエチレングリコール沈殿法によりサンプルを濃縮した。濃縮液からの核酸抽出は、QIAamp Viral RNA Mini QIAcube Kit(QIAGEN)およびQIAcube(QIAGEN)にて抽出した。なお、ウイルス濃縮液をRNA抽出カラムに通水し遺伝子を捕捉させる際、検出感度にバラツキが生じないように抽出カラム1本あたりのSS負荷量が0.05 mg-SS以下となるようにウイルス濃縮液の通水量を調整した<sup>13</sup>)。抽出したRNAは、High-Capacity cDNA Reverse Transcription Kit(Thermo Fisher Scientific)を用いてRT反応を行い、cDNAを得た。この合成したcDNAをTaqMan<sup>®</sup>プローブを用いたPCRにより定量した。TaqMan<sup>®</sup> Gene Expression Master Mix(Thermo Fisher Scientific)を用いて、QuantStudio<sup>™</sup> 12K Flex Real-Time PCR System(Thermo Fisher Scientific)によ

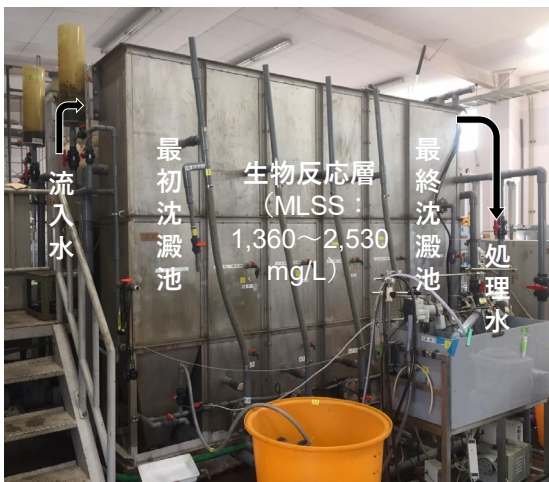


図-1 試験水の水质

り検出した。FRNAPH遺伝子群とNoVのプライマー、TaqManプローブの配列およびアニーリング温度はWolfら<sup>14</sup>)のとKageyamaら<sup>16</sup>)報告をそれぞれ参考にした。PCRにおける検出下限値は約1000 copies/L(約3 log[copies/L])程度となる。さらに、RNA抽出効率およびRT-qPCR阻害の影響を把握する目的でRNA抽出に用いる濃縮後のサンプルにマウスノロウイルス高濃度液を添加して回収率を評価した。なお、da Silvaら<sup>16</sup>)は、回収率が10%を下回った場合は検出阻害が生じたと判断し、1%を下回った場合は深刻な検出阻害が生じたと判断すると報告している。本調査では全てのサンプルの回収率が10%を上回っており大きな検出阻害は見られなかったため、ここではPCRによる定量値において回収率による補正は行っていない。

また、プラック形成法による感染力を有している総FRNAPH濃度(Plaque)と、培養法とPCRを組み合わせたIC-PCR(Integrated Culture-PCR; IC-PCR)<sup>10,11</sup>)による感染力を有しているFRNAPH遺伝子群(GI~GIV)濃度の定量も行った。PCRは遺伝子をターゲットとしていることから、感染力の有無に関係なく試料中の遺伝子情報を検出するため、下水処理中に不活化され感染力を失ったものまで検出してしまう。このことから、FRNAPH遺伝子群(GI~GIV)においては、IC-PCR(感染力を反映している)とPCR(感染力を反映していない)の両手法を用いて定量し、下水処理場での存在実態を詳細に把握した。

## 3. 研究結果および考察

### 3.1 流入下水と処理水におけるFRNAPHとNoVの存在実態

A下水処理場内に設置されている標準活性汚泥処理装置の流入下水および処理水の感染力を有するFRNAPHの存在濃度を図-2に示す。流入下水ではGI(陽性数:60)とGIV(陽性数:60)を除いて他の遺伝子群(GIIとGIII)が全ての試料( $n=61$ )で検出された(陽性数:61)。平均濃度では、GIIとGIIIが同程度で最も高く、その次にGIとGIVであった。総FRNAPH濃度(Plaque)は最も濃度が高く、GIIとGIIIと同程度であった。また、GIVは流入下水中の濃度にばらつきが大きかった。処理水では、GIV(陽性数:41)以外のFRNAPH遺伝子群(GI, GII, GIII)が全ての試料( $n=61$ )で検出された(陽性数:61)。平均濃度では、GIとGIIが同程度で最も高く、その次にGIII, GIVの順であり、GIVが最も低かった。総FRNAPH濃度(Plaque)は流入下水と同様に最も濃度が高かったGIとGIIの濃度と同程度であった。

PCR(感染力を反映していない)による流入下水と処理水のFRNAPH遺伝子群とNoVの存在濃度を図-3に示

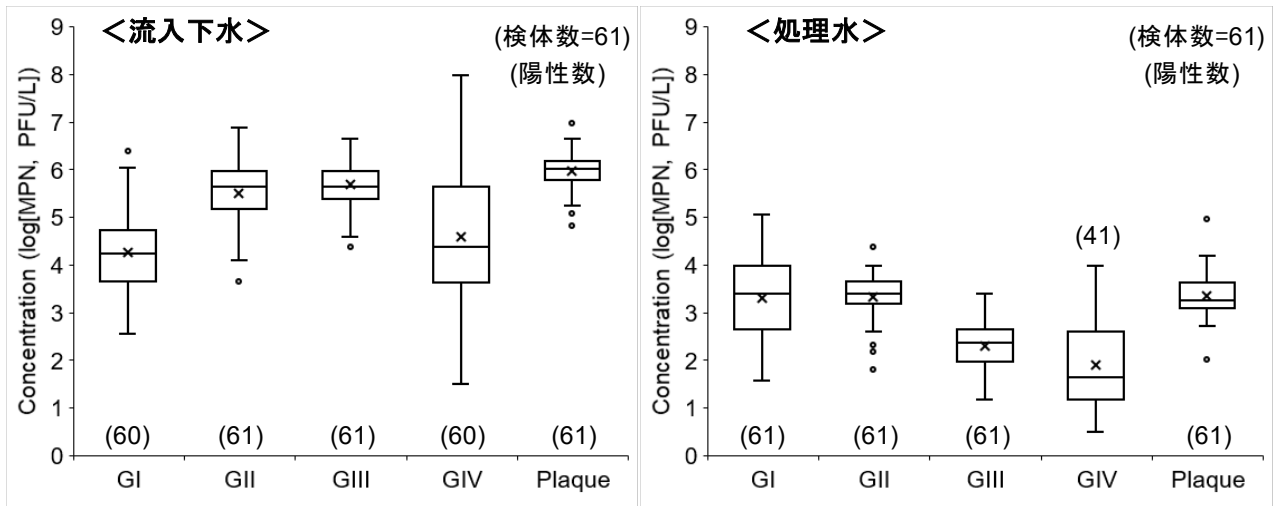


図2 流入下水（左）と処理水（右）におけるIC-PCRとPlaqueによる感染力を有したFRNAPHの存在濃度

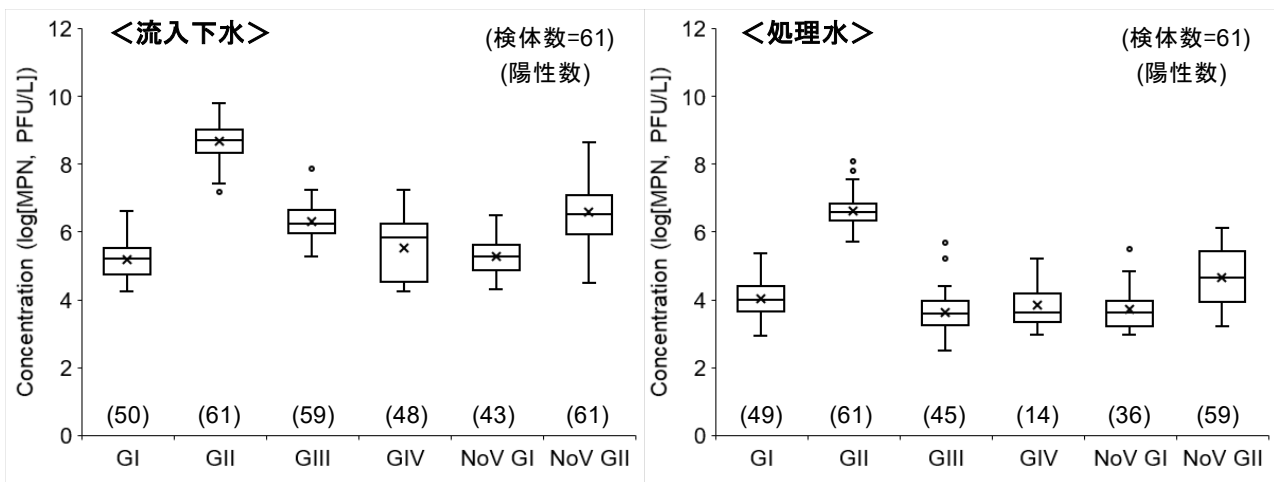


図3 流入下水（左）と処理水（右）におけるPCRによるFRNAPH遺伝子群とNoVの存在濃度

す。流入下水における平均濃度では、FRNAPH GII が最も高く、その次にNoV GII、FRNAPH GIII、FRNAPH GIV、NoV GI、FRNAPH GI の順であった。処理水における平均濃度では、流入下水と同じく FRNAPH GII が最も高く、その次にNoV GII であり、その他の濃度は同程度であった。

FRNAPH 遺伝子群において GI と GIV は主に動物の糞便由来であり、GII と GIII は人の糞便由来であることが報告されており<sup>17)</sup>、GII と GIII は下水処理場の流入水と二次処理水で高頻度および高濃度で検出されることが報告されている<sup>18),19)</sup>。また、GI も流入下水で高頻度に検出されており、下水処理での除去効果が他の遺伝子群と比べて低いことから二次処理水中でも高頻度および高濃度で検出されると報告されている<sup>18),19)</sup>。本研究でも流入下水中では GII と GIII が高濃度で検出されており、処理水

では GI も GII とともに高濃度で検出されているため、既往の研究結果と一致している。下水処理場での調査報告では<sup>10),14),18)</sup>、GIV が検出された事例が少なく報告例も限られている。しかし、本研究では、流入下水において感染力を有する GIV が高頻度 (60/61) で検出された。この理由としては、本研究で用いた活性汚泥処理装置の原水として用いている A 下水処理場の流入下水には家畜排水が混入しているため、動物の糞便由来である GIV が高濃度で存在していたことが考えられる。プラック形成法による感染力を有している総 FRNAPH 濃度 (Plaque) は、全ての FRNAPH 遺伝子群を検出するため、流入下水と処理水において濃度が最も高かった遺伝子群の濃度と同程度であったことが考えられた。

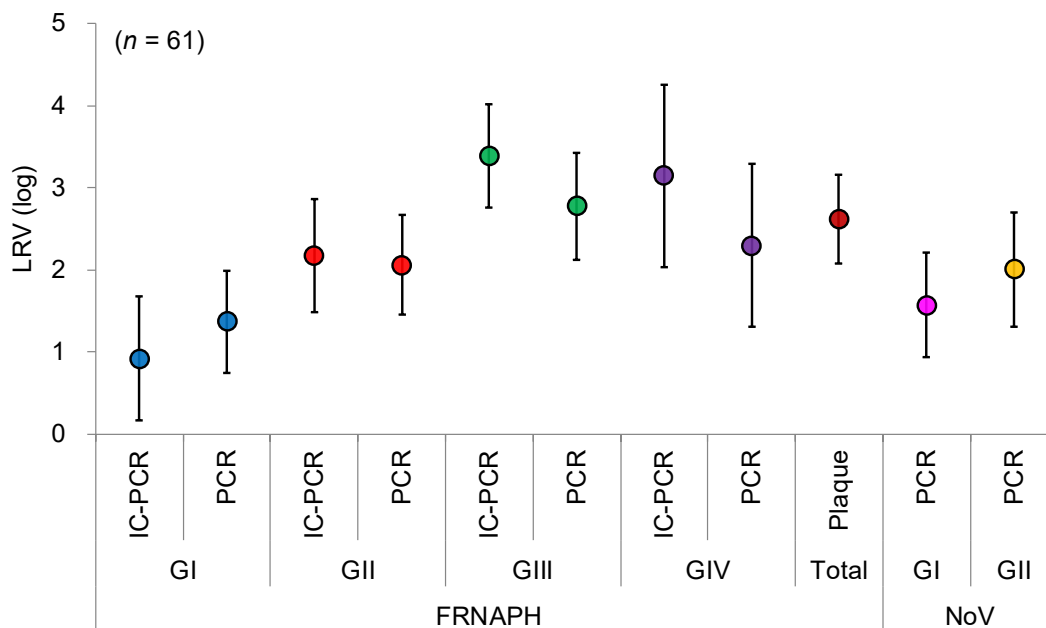


図4 下水処理によるFRNAPHとNoVの除去効果

### 3.2 下水処理によるFRNAPHとNoVの除去効果

流入下水および処理水の濃度から算出した下水処理によるFRNAPHとNoVの除去効果を図4に示す。感染力を含めたFRNAPHの除去効果(IC-PCR、Plaque)は、GI < GII = Plaque < GIII = GIVの順であり、GIは下水処理による除去・不活化効果が最も低かった。下水処理によるFRNAPHとNoV遺伝子の除去効果(PCR)は、FRNAPH GI = NoV GI ≤ FRNAPH GII = FRNAPH GIV = NoV GII < FRNAPH GIIIの順であり、FRNAPH GIとNoV GIが最も低かった。また、FRNAPH GIとNoV GI、FRNAPH GIIとNoV GI、NoV GIIの間には有意な差はなかった(*t*-test,  $P > 0.05$ )。さらに、FRNAPH遺伝子群のIC-PCRとPCRの除去効果を比較した結果、GIVのみPCRとIC-PCRの間に有意差があった(*t*-test,  $P < 0.05$ )。

全てのFRNAPHとNoVの除去効果に対して相関分析を行った結果、不活化効果を含めたFRNAPHの除去効果(IC-PCR、Plaque)の間およびその他の除去効果(PCR)との間で相関関係はあまり見られなかった。しかし、PCRによる不活化効果を含めないFRNAPH GIIとNoV GIIの除去効果の間に高い相関関係が見られた(図5)。

近年、FRNAPH GIIは下水処理場での挙動<sup>19)</sup>や牡蠣における存在実態<sup>20)</sup>においてNoVとの関連性が報告されている。本研究においても下水処理での除去効果において高い相関関係が示されたことから、NoVの指標ウイルスとしての利用可能性が確認された。そのため、今後、下水処理場でのFRNAPH GIIの存在実態を、感染力を含めてより詳細に調べることで、感染力の評価ができない

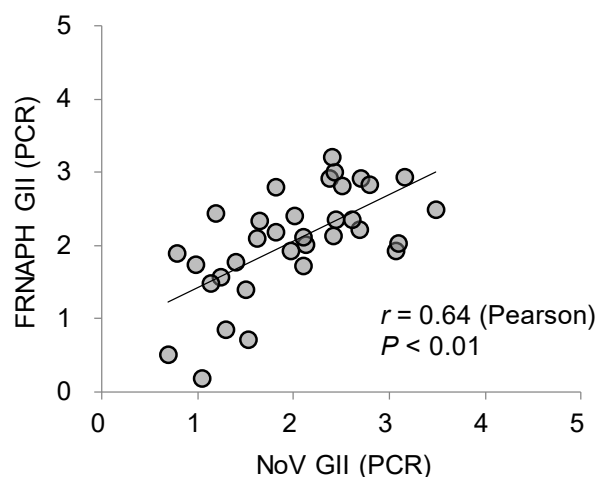


図5 下水処理によるFRNAPH GIIとNoV GIIの除去効果の相関関係

NoVの下水処理場での挙動を推測することができると考えられる。一方、FRNAPH GIは本研究で対象としたウイルスの中で、下水処理により最も除去されにくかった。既往研究においても、NoVのみならずエンテロウイルスやサポウイルス、アデノウイルスなどのヒト腸管系ウイルスおよび大腸菌などの細菌と比べても下水処理による除去効果が著しく低いことが報告されている<sup>18), 19)</sup>。このことから、下水処理によるウイルスの除去効果を評価する上で、FRNAPH GIを指標ウイルスとすることで、より安全側の評価が行える可能性も示唆された。

以上の結果から、下水処理によるウイルスの除去効果を評価する指標として、NoVの指標としてはFRNAPH

GII を、ウイルス除去における安全側の評価としては FRNAPH GI を指標として利用できる可能性が示された。今後は、塩素や紫外線などの消毒処理や膜分離活性汚泥法などの異なる下水処理において、ウイルス除去・不活化の指標としての FRNAPH 遺伝子群の利用可能性を評価する予定である。

#### 4. まとめ

本研究は、様々なリスク要因に対応した包括的な観点に基づく評価手法の構築と、放流先水利用や異常時・災害時に対応した水処理・消毒技術の開発を目的とするものである。平成 30 年度は、消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案に関わる調査・研究として、近年、ヒト腸管系ウイルスの指標として最も注目されている F 特異 RNA フェージ遺伝子群の下水処理場における存在実態および除去効果を評価し、ノロウイルスと比較することで指標としての利用可能性を評価した。以下に得られた結果を示す。

- 1) 流入下水や処理水において FRNAPH 遺伝子群は高頻度・高濃度で存在していることが確認され、ヒト腸管系ウイルスの指標として利用できる可能性が示された。
- 2) 下水処理による FRNAPH 遺伝子群 (GI-GIV) の除去効果は GI が最も低く、次に GII、GIII と GIV は同程度であった。
- 3) 下水処理による NoV の除去効果は、FRNAPH GI と GII と同程度であり、FRNAPH GII と NoV GII との間に有意な相関関係が確認された。
- 4) 下水処理によるウイルスの除去効果を評価する指標として、NoV の指標としては FRNAPH GII を、ウイルス除去における安全側の評価としては FRNAPH GI を指標として利用できる可能性が示された。

#### 参考文献

- 1) 外務省：G7 伊勢志摩首脳宣言、平成 28 年 5 月 27 日、<https://www.mofa.go.jp/mofaj/files/000160267.pdf> (2019 年 9 月 24 日閲覧)
- 2) CDC：ANTIBIOTIC RESISTANCE THREATS in the United States, 2013, <http://www.cdc.gov/drugresistance/threat-report-2013> (2019 年 9 月 24 日閲覧)
- 3) Schaper, M., Dura'n, A. E., Jofre, J. : Comparative resistance of phage isolates of four genotypes of F-specific RNA bacteriophages to various inactivation processes, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 68 (8), pp. 3702–3707, 2002
- 4) Sobsey, M.D. : Inactivation of Health-Related Microorganisms in Water by Disinfection Processes, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 21(3), pp.

- 179-195, 1989
- 5) Snead, M.C., Olivieri, V.P., Kawata, K. and Kruse, C.W. : The Effectiveness of Chlorine Residuals in Inactivation of Bacteria and Viruses Introduced by Post-Treatment Contamination, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 14, pp. 179-195, 1980
- 6) Tree, J.A., Adams, M.R. and Less, D.N. : Virus Inactivation During Disinfection of Wastewater by Chlorination and UV Irradiation and the Efficacy of F+ Bacteriophage as a Viral Indicator, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 35(11-12), pp. 227-232, 1997
- 7) Rippey, S.R. and Watkins, W.D. : Comparative Rates of Disinfection of Microbial Indicator Organisms in Chlorinated Sewage Effluents, *Wat. Sci. Tech.*, Vol. 26 (9-11), pp. 2185-2189, 1992
- 8) 李善太、諏訪守、重村浩之：紫外線によるノロウイルスの不活化とその効果の推定手法、*土木技術資料*, Vol. 61(2), pp. 40–43, 2019
- 9) Lee, S. Ihara, M., Yamashita, N., Tanaka, H. : Improvement of virus removal by pilot-scale coagulation-ultrafiltration process for wastewater reclamation: Effect of optimization of pH in secondary effluent, *Water Res.*, Vol. 114, pp. 23–30, 2017
- 10) Hata, A., Hanamoto, S., Shirasaka, Y., Yamashita, N. and Tanaka, H. : Quantitative distribution of infectious F-specific RNA phage genotypes in surface waters, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 82, pp. 4244–4252, 2016
- 11) Lee, S., Tasaki, S., Hata, A., Yamashita, N. and Tanaka, H. : Evaluation of virus reduction at a large-scale wastewater reclamation plant by detection of indigenous F-specific RNA bacteriophage genotypes, *Environ. Technol.*, Vol. 40(19), pp. 2527–2537, 2019
- 12) Boudaud, N., Machinal, C., David, F., Fréval-Le Bourdonnec, A., Jos-sent, J., Bakanga, F., Amal, C., Jaffrezic, M.P., Oberti, S. and Gantzer, C. : Removal of MS2, Q $\beta$  and GA bacteriophages during drinking water treatment at pilot scale, *Water Res.*, Vol. 46, pp. 2651–2664, 2012
- 13) 諏訪守、岡本誠一郎、尾崎正明、陶山明子：下水処理のノロウイルス除去効果とその検出濃度に及ぼす濃縮法の影響、*下水道協会誌論文集*, Vol. 46(561), pp. 91-101, 2009
- 14) Wolf, S., Hewitt, J., Rivera-Aban, M. and Greening, G. E. : Detection and characterization of F+ RNA bacteriophages in water and shellfish: Application of a multiplex real-time reverse transcription PCR, *J. Virol. Methods*, Vol. 149, pp. 123–128, 2008
- 15) Kageyama, T., Kojima, S., Shinohara, M., Uchida, K., Fukushi, S., Hoshino, F. B., Takeda, N. and Katayama, K. : Broadly Reactive and Highly Sensitive Assay for Norwalk-Like Viruses Based on Real-Time Quantitative Reverse Transcription-PCR, *J. Clin. Microbiol.*, Vol. 41(4), pp.1548–1557, 2003
- 16) da Silva, A. K., Le Saux, J. C., Parnaudeau, S., Pommepuy, M.,

- Elimelech, M. and Le Guyader, F. S. : Evaluation of removal of noroviruses during wastewater treatment, using real-time reverse transcription-PCR: Different behaviors of genogroups I and II, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 73, pp.7891–7897, 2007
- 17) Cole, D., Long, S. C. and Sobsey, M. D. : Evaluation of F + RNA and DNA Coliphages as Source-Specific Indicators of Fecal Contamination in Surface Waters, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 69 (11), pp. 6507–6514, 2003
- 18) Hata, A., Kitajima, M. and Katayama, H. : Occurrence and reduction of human viruses, F-specific RNA coliphage genogroups and microbial indicators at a full-scale wastewater treatment plant in Japan. *J. Appl. Microbiol.*, Vol. 114, pp. 545–554, 2013
- 19) Lee, S., Suwa, M. and Shigemura, H. : Occurrence and reduction of F-specific RNA bacteriophage genotypes as indicators of human norovirus at a wastewater treatment plant, *J. Water Health*, Vol. 17 (1), pp. 50–62, 2019
- 20) Hartard, C., Leclerc, M., Rivet, R., Maul, A., Loutreul, J., Banas, S., Boudaud, N. and Gantzer, C. : F-specific RNA bacteriophages, especially members of subgroup II, should be reconsidered as good indicators of viral pollution of oysters. *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 84 (1), pp. 1–14, 2018



### 13.1.3 底層環境に着目した停滞性水域の水環境管理技術に関する研究（簡易的な藻類定性定量方法の開発）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：小川文章、對馬育夫

#### 【要旨】

本研究では、湖沼・ダム貯水池の水質改善に向け、並列型高速塩基配列決定装置（次世代シーケンサー）を用いた 16S rRNA 遺伝子および 18S rRNA 遺伝子配列に基づく微生物モニタリングの開発に取り組んだ。次世代シーケンサーを用いて得られた結果は、光学顕微鏡を用いて得られた結果をほぼ網羅していた。プランクトンの優占種はダム貯水池によって異なっており、年間を通じて優占種がシフトしていた。細菌叢解析においては、ダム貯水池毎に特徴的な構成になっていることが明確となり、地理的要因より水温等の影響を受け変化することが示唆された。

キーワード：湖沼・ダム貯水池、次世代シーケンサー、細菌、プランクトン

#### 1. はじめに

環境負荷の増大による湖沼やダム貯水池における水質の悪化が長らく問題となっており、生物多様性国家戦略に基づいて「豊かな生態系の確保」の視点から河川・湖沼等の水質改善に関する調査・取り組みが実施されている。しかしながら、湖沼における環境基準達成率は約 50%と低い。国土交通省および独立行政法人水源地機構が管理するダム貯水池においても、約 3 割が環境基準を満たしておらず、約 4 割の貯水池において、アオコやカビ臭等の富栄養化現象が確認されている<sup>1)</sup>。現在まで、流域における流入負荷の削減の取り組みや湖沼底泥の浚渫等様々な取り組みが行われているが、依然としてアオコ・カビ臭発生等の問題は解決されていない。

さらに、湖沼水質を把握する上で、藻類等の植物プランクトンのモニタリングは非常に重要である。藻類の中にはカビ臭物質や毒性物質を生産するものもあり、水の安全性確保の観点からも湖沼・ダム貯水池における藻類のモニタリングは非常に重要である。従来、ダム貯水池の動植物プランクトンのモニタリングは、「河川水辺の国勢調査マニュアル【ダム湖版】V.動植物プランクトン調査」<sup>2)</sup>に準じて行われ、光学顕微鏡を使用した検鏡による同定が行われている。しかしながら、同定には熟練した技術が必要で、対応できる技術者も限られており、形態により判断しているため、形態が非常に似通った植物プランクトンは判断が困難である場合がある。また、カビ臭物質産生プランク

トンやアオコの原因となる植物プランクトンは、主にシアノバクテリア（藍藻）に属す細菌であり、一般的な植物プランクトンより小さく、光学顕微鏡での同定が困難である。

一方、近年、ゲノム解析技術の急速な発展により、次世代シーケンサーを使った大規模 DNA 塩基配列データの取得がより手軽に行えるようになった。本研究では、ダム貯水池水質の維持管理に有効な手法の開発を目指し、次世代シーケンサーを用いた DNA 塩基配列に基づく藻類モニタリング解析手法の確立に取り組む。次世代シーケンサーを用いることにより、藻類の精度の高い同定が実現可能となる。また、検鏡では同定が困難だった細菌も同定も可能となる。H30 年度は、ダム貯水池や湖沼から採取した水試料を用い、月別の動植物プランクトン及び細菌を検出した結果について報告する。

#### 2. 実験方法

本研究では、北海道にある 4 箇所のダム貯水池（A ダム、B ダム、C ダム、D ダムと表記）を対象に、次世代シーケンサー（Miseq, Illumina）を用いた 16S rRNA 遺伝子配列に基づく微生物分類を行った。採水はダムサイトで行い、表層水（表層から 50 cm 水深）を採水した。DNA 抽出操作の前処理として、採水した試料は、500 mL を 0.2 μm フィルターでろ過し、STE バッファー（10 mM Tris HCl, 1 mM EDTA, 0.1 M NaCl, pH8）30 mL にフィルターを一晩浸漬させた（4°C）。浸漬後、

激しく混合することにより、フィルターに捕集された残渣を剥離させ、遠心分離（3,000 g で 20 分間）で 0.5 mL にまで濃縮した。

また、一部の試料においては、ろ液に含まれるプランクトン・細菌を確認するため、ろ液を遠心分離（14,000 g で 5 分間）し濃縮した沈殿物から DNA を抽出した。濃縮した懸濁物は、Nucleo Spin® Soil（MACHEREY-NAGEL）を用いて DNA を抽出した。

本研究では、18S rRNA 遺伝子を対象としたプライマー-TAReuk454FWD1 および TAReukREV3<sup>3)</sup>（V4-V5 領域を対象）で検出される真核生物をプランクトンとし、16S rRNA 遺伝子を持つ藍藻類（Cyanobacteria）については細菌と区別した。細菌、古細菌の解析に、16S rRNA 遺伝子を対象としたプライマー-Pro341F および Pro805R（V3-V4 領域を対象）を使用した<sup>4)</sup>。PCR 反応条件は初期変性を 94°C で 30 秒行った後、乖離温度を 94°C で 5 秒、アニーリング温度を 60°C から 58°C で 30 秒間に設定し、10 サイクル毎に 1°C 下げるタッチダウン方式を採用し、伸長温度を 72°C で 30 秒に設定し、合計 30 サイクル行った。PCR 増幅産物は AMPure XPkit（Beckman Coulter Genomics）を用いて精製した。DNA シーケンシングには Miseq reagent Kit v3（600 サイクル、Illumina）を用い、塩基配列を決定した。解析で得た各リードの塩基配列のキメラチェックは USEARCH を用い、Operational Taxonomic Unit（OTU）-picking およびクラスター解析は QIIME2 を用い、97% 以上の相同性を持つ配列を OTU とした。各 OTU の同定には Greengenes データベース ver. 13\_8 および SILVA132 をリファレンスとした。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 モニタリング試行

フィルターに捕集された残渣サンプルについて、1 サンプル当たり 10 万～30 万リードの塩基配列を取得した。QIIME2 を用いた塩基配列のクラスタリングより、プランクトンは約 1,100 OTU、細菌は約 930 OTU に分類され、それぞれの OTU をデータベースと照合した結果、近縁な種がプランクトンで 107 種類、細菌・古細菌で 360 属が同定された。同定されなかった OTU は、本研究で増幅した遺伝子領域では候補となる種が複数種あり種レベルでは分離できず、その上位階級（門、綱、目、科、属）で分離が留まった可能性と既存のデータベースに含まれていない未知の遺伝子配列を持つ新種の可能性が考えられる。一方、河川水辺の国勢調査では、同ダム貯水池において約 30～70 種の

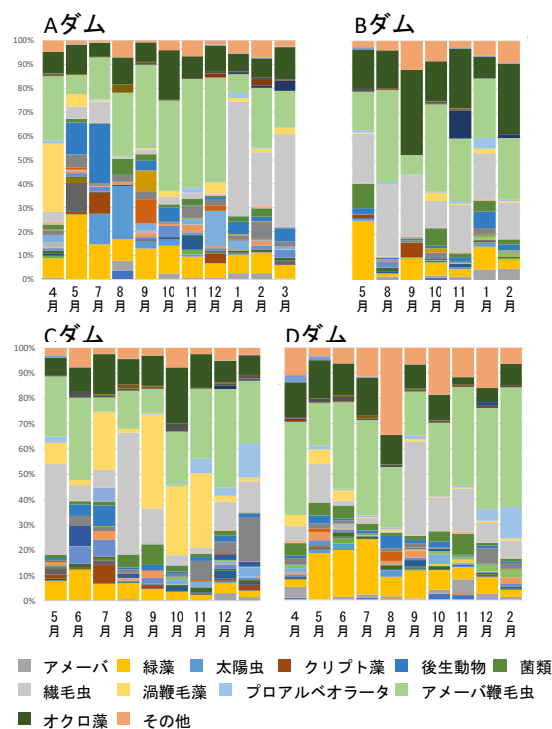


図 1 各ダム貯水池において検出されたプランクトン（門レベル）

プランクトンが同定されており、次世代シーケンサーを用いて得られた結果は河川水辺の国勢調査で同定されたプランクトンをほぼ網羅していた。

#### 3.2 プランクトン

各ダム貯水池におけるプランクトンの検出結果（門レベル）を図 1 に示す。優占種はダム貯水池によって異なっており、年間を通じて優占種がシフトしていた。A ダムでは、優占種が渦鞭毛藻（主に *Scrippsiella* sp. が検出）、緑藻（*Mychonastes* sp.）、後生動物、太陽虫、アメーバ繊毛虫（*Heteromita* sp.）、繊毛虫（*Hypotrichia* sp.）と次々とシフトした。B ダムは、主に緑藻（*Chlamydomonas* sp.）、繊毛虫（*Anteholosticha* sp.）、アメーバ繊毛虫（*Heteromita* sp.）、オクロ植物（*Dinobryon* sp.）から構成されていた。特に、オクロ植物が他ダム貯水池に比べ多く検出される傾向にあった。また、菌類は、10%前後ではあるが、比較的多く検出された（主に *Cryptomycota*, *Kappamycetaceae*）。C ダムは、優占種が繊毛虫（*Cryptocaryon* sp.）、渦鞭毛藻（*Ceratium* sp.、*Thoracosphaeraceae*）、アメーバ繊毛虫（未分離種）と月によって変遷していた。D ダムは、優占種がアメーバ繊毛虫（未分離種）、緑藻（*Mychonastes* sp.）、繊毛虫（*Frontoniidae* sp.）などが優占していた。また、8 月は「その他」に含まれる *Discostella* 属（ホシノタイコケイソウ属）が約 10% 検出された。属・種レベルでみる

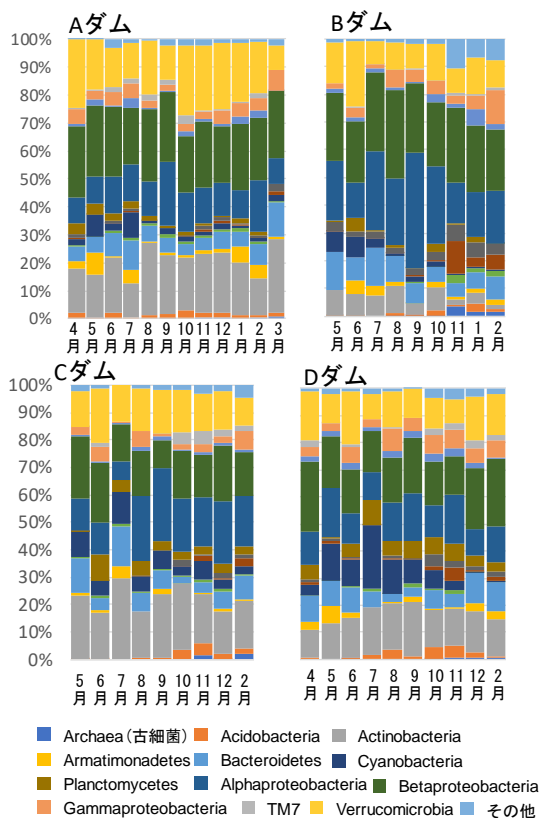


図2 各ダム貯水池において検出された細菌・古細菌 (門レベル(Proteobacteria は綱レベル))

と、どのダム貯水池においても一年を通じて継続的に検出されたものではなく、検出されるプランクトン種は水質の状態等に変動して大きく異なることが示唆された。

### 3.3 細菌

各ダム貯水池における細菌・古細菌の検出結果 (門レベル (Proteobacteria に関しては綱レベルで表示)) を図2に示す。門レベルの分類では、どのダム貯水池からも Actinobacteria、Alphaproteobacteria、Betaproteobacteria、Verrucomicrobia が多く検出された。また、D ダムでは Cyanobacteria 門が多く検出されていたことが特徴的であった。A ダム、C ダム、D ダムで多く検出された Actinobacteria は標高の高い淡水域で比較的好く検出される未分離の ACK-M1 属や C111 属であった。Actinobacteria 門 Actinomycetales 目は「放線菌」と認識されることが多いが、Actinomycetales 目は42科約200属で構成されており、様々な種が存在している。ダム管理において、カビ臭が確認された場合において、一般的なカビ臭産生菌である *Anabaena* sp.、*Aphanizomenon* sp.、*Oscillatoria* sp.、*Phormidium* sp. 等が

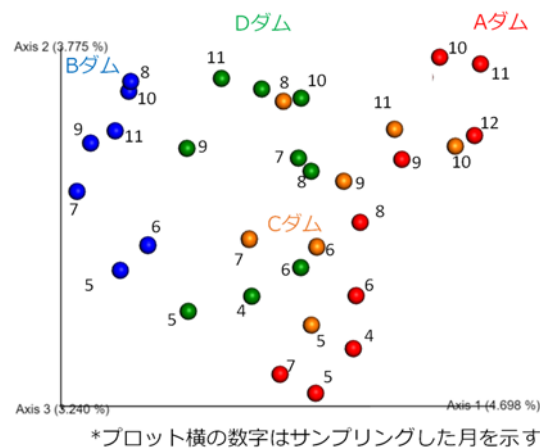


図3 各ダム貯水池から検出された細菌構成の類似度比較 (各サンプルの細菌構成の類似度は各プロット間のユークリッド距離で示される。)

検出されなかった場合、放線菌が原因種とされることが多いが、ACK-M1 属や C111 属がカビ臭を産生するかは不明である。今後、より詳細に生理生態を調査すべき細菌であると考えられる。Alphaproteobacteria では、紅色非硫黄細菌である *Rhodobacter* sp.、環境中に広く分布する *Sphingobium* sp. が比較的多く検出された。Betaproteobacteria では、Burkholderiales 目に属す *Limnohabitans* sp. が多数検出された。*Limnohabitans* sp. は淡水の湖沼、ダム貯水池、河川から検出される細菌である。Verrucomicrobia では好気性で非運動性の細菌である *Luteolibacter* sp. やそれに近縁な未分離の種が頻繁に検出された。また、D ダムにおいては、Cyanobacteria が夏季に比較的多く検出された。Cyanobacteria については、3.4 で詳細に記述する。各ダム貯水池において検出された細菌の種類は図2に示したよう門レベルで比較すると一見大きな差がないように思えるが、属レベルの構成データを用い UniFrac distance を計算し、主座標分析を行うと、図3に示すように、各プロットは、ダム貯水池ごとにまとまってプロットされ、それぞれのダム貯水池に由来した特徴的な構成を示していることが示唆された。また、細菌構成は、年間を通じて一定ではなく、徐々に推移していることがわかる。すなわち、各ダム貯水池の細菌構成は、地理的要因および水温の影響等の季節的要因を受け変化していくことが示唆された。

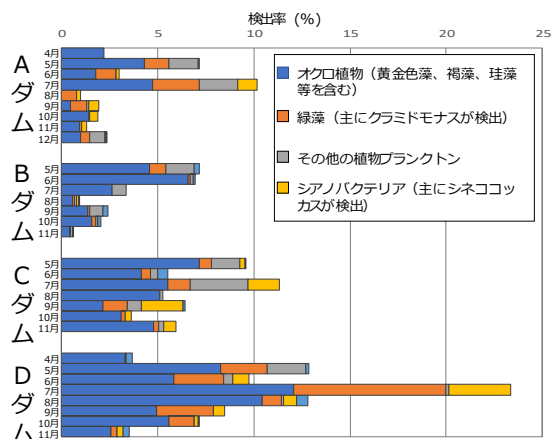


図4 各ダム貯水池から検出されたCyanobacteriaの内訳

### 3.4 Cyanobacteria (シアノバクテリア; 藍藻)

各ダム貯水池から検出されたデータベース上Cyanobacteriaと区別されるものの内訳を詳しくみると、分類されたCyanobacteriaのうち、実際のCyanobacteriaのDNAは0~30%ほどに過ぎず、残りは、植物プランクトンの葉緑体DNA由来であった(図4)。真核生物である植物プランクトンは18S rRNA遺伝子を含む染色体DNAの他に、葉緑体の中に16S rRNA遺伝子を含む葉緑体DNAを持っているため、細菌をターゲットとするプライマーで増幅され、細菌の解析に混ざって検出された。葉緑体DNAは塩基配列がCyanobacteriaと類似しているため、データベース上ではCyanobacteriaとして検出される。データベース上でも目(order)以下の分類では、緑藻やオクロ植物由来の葉緑体と区別されているが、同定精度に不明な点も多いため注意が必要である。その他、検出されたCyanobacteriaは主に*Synechococcus* sp.で、アオコやカビ臭の原因となる*Microcystis* sp.や*Anabaena* sp.はほとんど検出されなかった。*Synechococcus* sp.は光学顕微鏡では同定されないため、これまでダム貯水池で注目されることはあまりなかったが、相当数存在していることが明らかになった。実際、Dダムは富栄養化が進行しているダム貯水池であり、Cyanobacteriaの検出率が他のダム貯水池よりも高かったため、富栄養化もしくはアオコ発生の指標となる可能性が考えられ、今後、引き続き、詳細な検討をする予定である。

### 3.5 ろ液に含まれるプランクトン・細菌

DNA抽出の前処理として、サンプルをろ過する際、ろ液に含まれるDNAについて調査を行った。図5は、

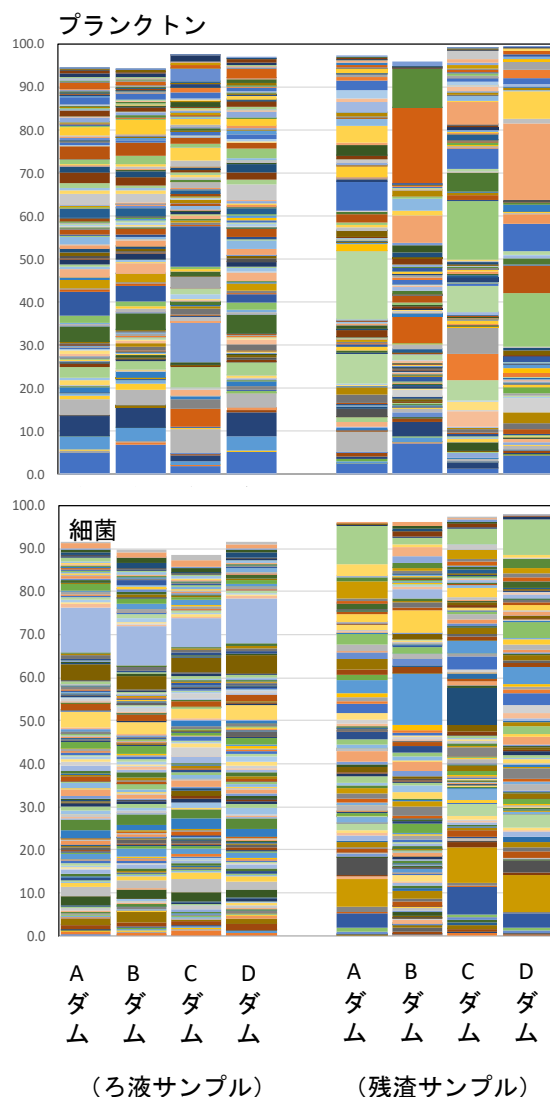


図5 ろ液沈殿物とろ紙残渣から抽出したDNAの比較(それぞれのバーは検出されたOTUに相当する)

ろ液に含まれるDNAとろ紙上に残った残渣に含まれるDNAから検出されたプランクトン種および細菌種について示している。その結果、ろ紙上の残渣由来のDNAサンプルでは、ダム貯水池毎に検出されたプランクトン種・細菌種の種類、検出率は大きく異なっていたのに対し、ろ液から抽出したDNAには、ダム貯水池に関わらずほぼ同様のプランクトンおよび細菌がほぼ同程度の割合で検出された。細菌は通常1.0-10 μmほどの大きさのため、0.2 μmのフィルターを通過することはないと考えられるが、圧力がかかった状態では、比較的サイズの小さい細菌がフィルターを通過することが知られている。近年、浄水場においてピコプランクトン(細胞径が0.2-2 μmのプランクトン)に

よる濁度障害が問題となっている<sup>5)</sup>が、今後、サイズの異なるフィルターを複数組み合わせ、プランクトンサイズの分画を行うことにより、光学顕微鏡では同定が困難なピコプランクトンの同定およびデータベース上でのスクリーニングが可能となると考えられる。ピコプランクトンが引き起こす濁度障害の潜在的なポテンシャルを指標化することができれば、ダム貯水池を管理する上で、次世代シーケンサーの適用は強力なツールとなると考えている。

#### 4. まとめ

本研究では大規模 DNA 塩基配列解析装置である次世代シーケンサーを用い、ダム貯水池におけるプランクトンおよび細菌を含む微生物解析を試みた。その結果、光学顕微鏡を用いた藻類モニタリングの結果を網羅しつつ、それ以上の種を同定することが可能であった。今後は、アオコ、カビ臭、ピコプランクトン等の問題が発生しているダム貯水池を対象にモニタリングを行い、水質と検出されるプランクトン・細菌構成の両面から評価するとともに、次世代シーケンサーで得られた結果に、どの程度、死細胞が含まれているか着目し研究することが重要であると考えている。

#### 参考文献

- 1) 国土交通省：ダム貯水池水質改善の手引き、pp. 1-105、2018年3月
- 2) 国土交通省：河川水辺の国勢調査基本調査マニュアル【ダム湖版】Ⅴ 動植物プランクトン調査編、pp. 1-56、2016年1月
- 3) Stoeck T., Bass D., Nebel M., Christen R., Jones M. D., Breiner H. W., Richards T. A.: Multiple marker parallel tag environmental DNA sequencing reveals a highly complex eukaryotic community in marine anoxic water. *Molecular Ecology*, 19, pp. 21-31, 2010
- 4) Takahashi S., Tomita J., Nishioka K., Hisada T., Nishijima M.: Development of a prokaryotic universal primer for simultaneous analysis of bacteria and archaea using next-generation sequencing. *PLoS ONE*, 9 (8), e105592, 2014
- 5) 今本博臣、遠本和也、一柳淳一、古里 栄一：ダム貯水池におけるピコプランクトン実態調査-曝気循環による抑制効果- *ダム工学*、22 (4)、pp. 244-254、2012

### 13.1.4 底層環境に着目した停滞性水域の水環境管理技術に関する研究（藻類増殖に関する水質項目の影響評価）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）  
 研究担当者：小川文章、對馬育夫、村田里美、服部啓太

#### 【要旨】

日本の多くのダム湖や湖沼でアオコの発生が確認されており、近年の研究では窒素・リンの栄養塩類に加えて Fe や Mn などの微量元素もアオコ発生に寄与することが報告されている。本研究では、アオコ発生の主要な原因藻類と考えられる *M. aeruginosa* を用いて微量元素が藻類の生長におよぼす影響を検討した。微量元素は MA 培地に含まれる 5 種類の金属 (Fe、Mn、Zn、Co、Mo) を対象とし、これらの金属をダム湖水に添加した 32 種の培地を用いて生長試験を行った。4 つのダム湖水と MilliQ 水を用いて生長試験を行った結果、*M. aeruginosa* の生長に対して Fe が第一制限物質となること、Mn と Co が *M. aeruginosa* の第二制限物質となることが示唆された。一方、Zn を含む培地では含まない培地に比べ *M. aeruginosa* の生長が阻害される傾向がみられた。これらの結果より、アオコの発生には Fe や Mn、Co などの微量元素が関与している可能性が示唆された。

キーワード：湖沼・ダム湖、アオコ、*M. aeruginosa*、微量元素、藻類生長試験

#### 1. はじめに

日本の多くのダム湖や湖沼において富栄養化が確認され、アオコや淡水赤潮などの植物プランクトンの異常増殖が全国の水域で発生している<sup>1)</sup>。植物プランクトンの生長は窒素やリンなどの栄養塩の不足によって制限を受けると考えられているが、近年の研究では窒素・リン以外に鉄 (Fe) やモリブデン (Mo) などの微量元素も生長に必須な物質であることが示唆されている<sup>2)</sup>。我々の既往研究では、マンガン (Mn) は *Microcystis aeruginosa* (以下 *M. aeruginosa*) に対する生長促進効果を持つことが明らかにされた<sup>3)</sup>。ゆえに、窒素やリンに加え、Fe や Mn などの微量元素も湖沼やダム貯水池におけるアオコの発生を左右する重要な要因であることが考えられる。

そこで本研究では *M. aeruginosa* の飼育・継代に使用される MA 培地中に含まれる 5 種の金属 (Fe、Mn、亜鉛 (Zn)、コバルト (Co)、Mo) に着目した。これらの金属が *M. aeruginosa* の生長に対する影響を明らかにすることを目的とし、ダム湖水に金属を添加した培地を用いて *M. aeruginosa* の生長試験を行った。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 使用したダム湖水と培地の作成方法

本実験では、既往研究<sup>2)</sup>で対象とした北海道の 4 つのダムからダム湖水を採取し (2018 年 9 月採水) 生長

試験に供した。4 つのダム湖水に加えて、対象区は水道水を超純水製造装置 (Merck 製) により精製した超純水 (以下で MilliQ 水と称す) を供した。それぞれのダム湖水は 5 種金属 (Fe、Mn、Zn、Co、Mo) を測定した。金属分析では硝酸を用いた前処理操作を行い、測定は ICP-MS (X7CCT、Thermo Fisher Scientific 製) を用いた。

培地の作成においては、ダム湖水または MilliQ 水に MA 培地 (表-1) の栄養塩類成分を添加したものを No

表-1 MA 培地成分表

MA 培地成分一覧 (mg/L)			
栄養塩類成分 (No Metal 培地成分)		金属成分	
Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 4H <sub>2</sub> O	50	FeCl <sub>3</sub> · 6H <sub>2</sub> O	0.5
KNO <sub>3</sub>	100	MnCl <sub>2</sub> · 4H <sub>2</sub> O	5.0
NaNO <sub>3</sub>	50	ZnCl <sub>2</sub>	0.5
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	40	CoCl <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	5.0
MgCl <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	50	Na <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> · 2H <sub>2</sub> O	0.8
β-Na <sub>2</sub> glycerophospher · 5H <sub>2</sub> O	100		
Bicine	500		
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	20		
Na <sub>2</sub> EDTA · 2H <sub>2</sub> O	5.0		

表-2 培地の金属パターン

	金属種数																							
	0	1				2				3				4				5						
Fe	○				○	○							○	○			○	○	○	○	○	○	○	○
Mn		○			○		○	○					○	○					○	○	○	○		○
Zn			○			○	○						○	○							○	○	○	○
Co				○				○	○					○	○	○		○	○		○	○	○	○
Mo				○					○	○					○	○			○	○		○	○	○

Metal 培地とした。No Metal 培地を基に各金属成分を一種類ずつ添加し、表-1 に示す濃度に調整した。1 つのダム湖水につき 32 パターン(表-2) の金属を含む培地を作成し、作成した培地は 0.22 μm ポアサイズのメンブレンフィルターにより濾過滅菌を行い、生長試験に用いた。

2.2 藻類生長試験

生長試験に供した藻類株は、国立環境研究所 NIES Collection より分譲された *M. aeruginosa* (NIES-87 株) を使用し、継代培養には MA 培地を用いた。

生長試験では多数の培地の検討を簡易に可能とするために、96 穴のマイクロプレート上で *M. aeruginosa* を培養し生長試験を行った<sup>3)</sup>。生長試験では各培地 200 μL と約 2.2×10<sup>6</sup> cells/mL に濃度調整した藻類細胞懸濁液 20 μL をウェルに添加し、温度 25±1 °C、光強度 40 μmol/m<sup>2</sup>/s 連続照射の条件下で培養した。*M. aeruginosa* の生長の定量には、波長 450 nm の吸光度をマイクロプレートリーダー (CHROMATE 製) で測定し、生長の指標とした。予備試験の結果より、試験開始から 8 日目で吸光度の増加が収束する傾向が見られたため、生長の傾向が明確に表れる 3、5、7 日目に吸光度の測定を行った。培地は一つのパターンに対して 5 ウェルを用いて培養を行い、以下では測定した吸光度は平均値 (n=5) で評価した。CV は 10%程度であったため統計的な評価は本研究では行わなかった。

また、生長試験におけるプレート間の誤差を補正するため、各プレートに金属 5 種を含む培地に *M. aeruginosa* を添加した系 (Control) と金属 5 種を含む培地に *M. aeruginosa* を添加していない系 (Blank) を加え、生長試験を行った。それらの吸光度を用いて生長指数を各サンプルごとに次の式で定義し、生長を評価した。

$$\text{生長指数} = \frac{\text{Sample吸光度}_{450\text{nm}} - \text{Blank吸光度}_{450\text{nm}}}{\text{Control吸光度}_{450\text{nm}} - \text{Blank吸光度}_{450\text{nm}}}$$

表-3 ダム湖水の金属濃度 (μg/L)

	Mn	Fe	Co	Zn	Mo
A ダム	1.11	DL	DL	DL	0.76
B ダム	DL	8.16	DL	DL	0.69
C ダム	DL	DL	DL	DL	0.78
D ダム	DL	DL	DL	DL	0.75

※DL : 測定限界 (各 DL の値は Mn:0.27、Fe:7.1、Co:0.16、Zn:2.0)

3. 結果と考察

ダム湖水の金属分析の結果を表-3 に示す。4 つのダム湖水の金属濃度は低く、今回測定対象とした 5 種の金属はほとんどが測定限界値以下であった。

生長の傾向が明確に表れた 7 日目の生長指数を図-1 に示す。4 つのダム湖水と MilliQ 水すべてにおいて、Fe を含まない培地では、7 日目の生長指数が 0.1 以下と *M. aeruginosa* の生長が制限された。この結果より、本実験系では *M. aeruginosa* の生長に対して Fe が第一制限物質となることが示唆された。Fe を含む培地を比較した場合、Mn と Co をどちらも含まない培地では生長指数がすべて 0.4 以下であった。一方、Mn と Co の両方を含む培地では、すべての培地で生長指数が 0.8 以上となり、Control と同程度の値を示した。これらの結果から、*M. aeruginosa* の生長に対して Mn と Co が第二制限物質となることが示唆された。Mn の効果は我々の既往研究と同様の結果が得られた<sup>3)</sup>。また、Co は *Anabaena* の生長に対して制限物質となることも報告されている<sup>4)</sup>。*M. aeruginosa* も Co により生長が促進される効果があると考えられる。

また、Fe と Fe+Zn や Fe+Co と Fe+Co+Zn などの Zn を含まない培地と Zn を含む培地を比較した場合、Zn を含む培地では生長指数が減少する傾向がみられた。Zn は一定の濃度で *M. aeruginosa* の生長を阻害することが報告されており<sup>5)</sup>、本実験においても Zn の影響により生長が阻害されたことが考えられる。

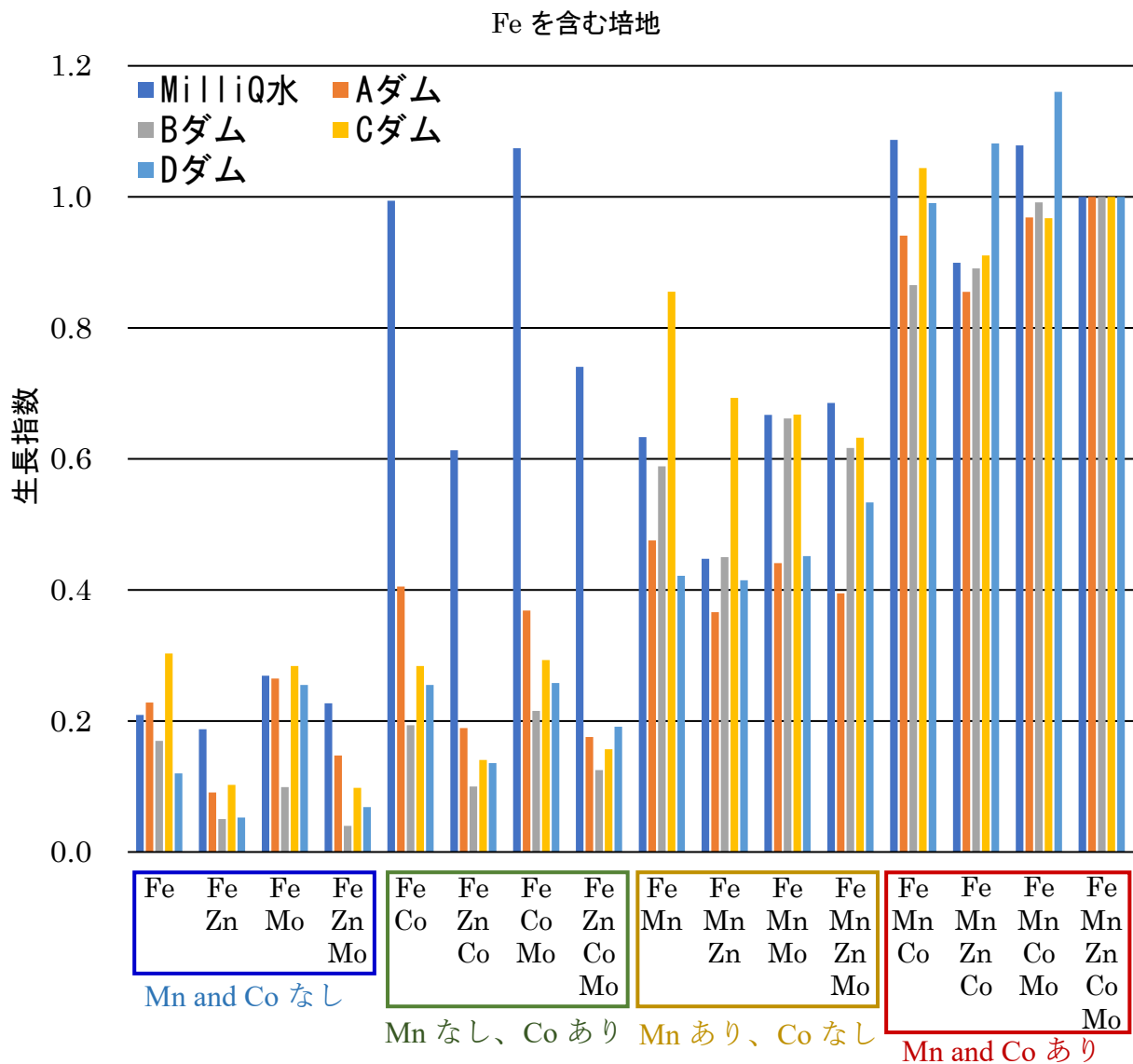
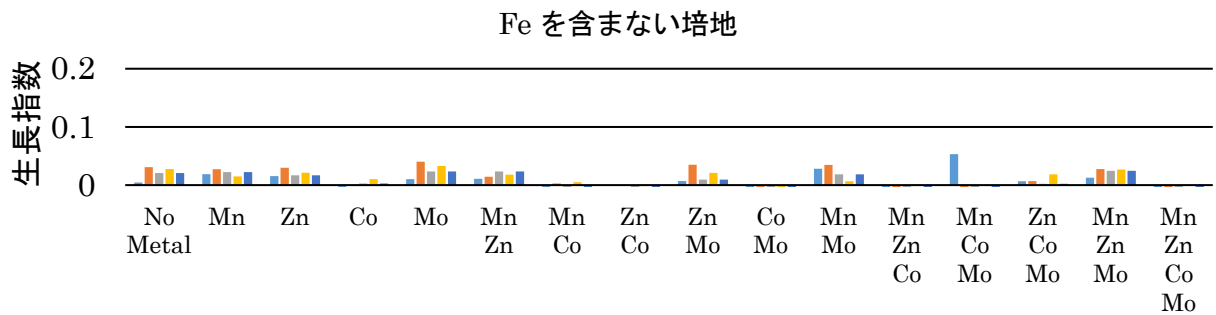


図-1 生長試験の結果

4つのダム湖水と MilliQ 水を比較した場合、Fe+Co や Fe+Co+Mo などの培地においては、MilliQ 水を基にした培地は生長指数が 1.0 に近い値を示し、金属 5 種が含まれている培地とほぼ同様の生長を示した。一方、4つのダム湖水を基にした培地は生長指数が 0.2~0.4 程度の値を示し生長が抑制された。ダム湖水には金属以外にも様々な物質が含有されるため、MilliQ 水には

含まれていない何らかの物質が Co の効果を低減させていることが考えられる。

4つのダム湖水の比較では、生長指数に明確な違いは見られなかった。いずれのダム湖水も金属濃度は低く、成長に影響を与える微量元素はいずれも不足していたため、明確な違いは現れなかったと考えられる。



#### 4. まとめ

本研究ではダム湖水を基に5種の微量元素を添加した32種類の培地を用いて *M. aeruginosa* の生長試験を行い、微量元素が *M. aeruginosa* の生長に与える影響を調べた。実験の結果から以下の結果が得られた。

・Fe、Mn、Coは *M. aeruginosa* の生長に対して制限物質となることが示唆された。

・Znは *M. aeruginosa* の生長を阻害する効果があることが示唆された。

本実験では微量元素の濃度による生長への影響の変化は考慮できなかった。今後は影響を持つ金属の濃度を変化させた藻類生長試験を行う予定である。

#### 参考文献

- 1) 藤本尚志、福島武彦、稲森悠平、須藤隆一：全国湖沼データの解析による藍藻類の優占化と環境因子との関係、水環境学会誌、18巻11号、pp.901-908、1995
- 2) 中島進、八木正一：Oscilla teunis の増殖と2-メチルイソボルネオール の産生に及ぼす微量元素の影響、日本水処理生物学会誌、Vol.26、No.2、pp.44-55、1995
- 3) 土木研究所：平成28年度下水道関係調査研究年次報告書集、土木研究所資料、No.4370、pp.90-95、2018
- 4) 山下尚之、福永彩、田中宏明：緑藻類、珪藻類および藍藻類を供試藻類としたマイクロプレートを用いるAGP試験の検討と河川水および下水処理水の水質評価、環境科学会誌30(4)、pp.250-260、2017
- 5) 南條吉之、永美敏正、若林健二、道上隆文、森明寛、奥田益算：湖山池でアオコを形成する増殖試験結果について、鳥取県衛生環境研究所報、第43号、pp.45-48、2004
- 6) Haiming Wu, Li Lin, Guangzhu Shen, Ming Li : Heavy-metal pollution alters dissolved organic matter released by bloom-forming *Microcystis aeruginosa*, RSC adv, 7, pp.18421-18428, 2017

### 13.1.5 気候変動による停滞性水域の熱・物質循環と水質環境への影響評価と適応策に関する研究（気候変動にともなう流域からダム貯水池・湖沼に流入する土砂量・栄養塩負荷量の変化の把握、ダム貯水池・湖沼の水質予測手法の構築と水質への影響評価、適応策の検討）

担当チーム：水工研究グループ（水理）

研究担当者：石神孝之、宮川仁、中西哲

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：小川文章、對馬育夫、服部啓太

#### 【要旨】

本研究では、気候変動による気温、降水量の変化がダム貯水池の水質、濁質に与える影響についての将来的な予測に取り組んでいる。今年度は、仮想ダム貯水池における気候変動による前提条件の変化が水質に与える影響および将来予測等について検討し、富栄養化および底層貧酸素化の適応策に関する検討を行うとともに、現地データを基にしたアオコ発生予測モデルの構築を試みた。ダム貯水池における気候変動の適応策を検討した場合、表層放流が富栄養化対策として有効であること、異高同時取水が底層貧酸素化に有効であることを示した。またアオコ発生予測モデルはアオコレベルの算出には一定の精度が得られることを示した。

キーワード：地球温暖化、湖沼、貯水池、水質変動予測モデル、水質保全

#### 1. はじめに

地球温暖化が水環境に与える影響は徐々に顕在化しており、現在における全ての温室効果ガス排出とその他の強制力因子は、今後数十年にわたる気候変動の速度及び程度に影響を及ぼすと報告されている<sup>1)</sup>。そのため、温暖化影響の緩和策とともに適応策の検討が重要であり、精度の高い影響予測に基づく適応策の評価と、その実施に向けた取組が必要となっている。平成27年11月、「気候変動の影響への適応計画<sup>2)</sup>」が閣議決定され、これに伴い、国土交通省が「国土交通省気候変動適応計画<sup>3)</sup>」を公表し、実施予定の適応策について整理した。気候変動による地球温暖化が生じる場合、気温上昇に伴う表層水温の上昇、湖沼の温度分布の変化、生物反応や物理化学反応速度の変化、降雨量や降雨パターンの変化に伴う湖沼流入負荷量や水量の変化が予想されるが、気候変動に伴う湖沼の水質変化を定量的に示した研究は少ない。

これらを踏まえて本研究は、流域から湖沼に流入する栄養塩、SSなどの負荷算出の高度化、貯水池内流動モデルの高度化、簡略化および気候変動によるダム貯水池水質問題に対応する適用策について検討を行う。

今年度は、仮想ダム貯水池における気候変動による前提条件の変化が水質に与える影響および将来予測

等について検討し、富栄養化および底層貧酸素化の適応策に関する検討を行うとともに、現地データを基にしたアオコ発生予測モデルの構築を試みた。

#### 2. 貯水池規模を変化させた仮想貯水池による水質計算 2.1 貯水池規模・形状を変化させた感度分析

貯水池の規模を変化させた仮想貯水池 5 ケース (Case 0: 0.53 億 m<sup>3</sup> (回転率: 23 回/年)、Case 1-1: 0.8 億 m<sup>3</sup> (15 回/年)、Case 1-2: 1.2 億 m<sup>3</sup> (10 回/年)、Case 1-3: 2.4 億 m<sup>3</sup> (5 回/年)、Case 1-4: 6.0 億 m<sup>3</sup> (2 回/年)) を作成し、昨年度検討を行った御所ダムでの検討に使用した 1993-1997 年の流入条件を用い、5 年間の水質計算を行った。なお、Case 0 をベースとし、縦断距離を 8 km 程度、横断幅を上流で 100 m、下流で 700 m、水深を約 25 m とし、他の Case では、相似的に形状を調整した。また、貯水池の形状を変化させた仮想貯水池 6 ケース (Case 1-2 を基準として、Case 2-1: 縦横比 50、Case 2-2: 縦横比 25、Case 2-3: 縦横比 5、Case 2-4: 最大水深 125 m、Case 2-5: 最大水深 75 m、Case 2-6: 最大水深 25 m) を作成し、計算を実施した。

その結果、貯水容量が増加すると、表層水温が増加する傾向が確認された (図 1)。特に最も回転率の小さい Case 1-4 (回転率 2 回/年) では、7 月以降の表層水温が 2°C~3°C ほど高くなる傾向がみられた。下層の水

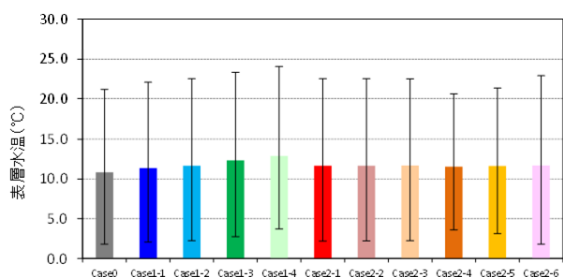


図1 表層および下層の水温 5ヶ年平均値・月最大値・月最小値

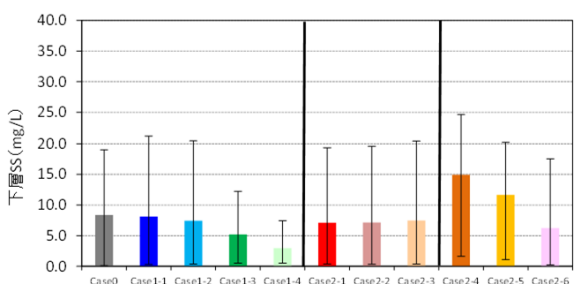
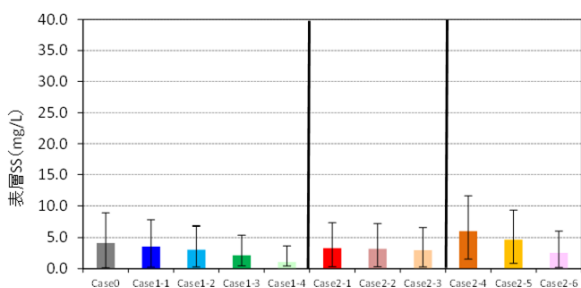
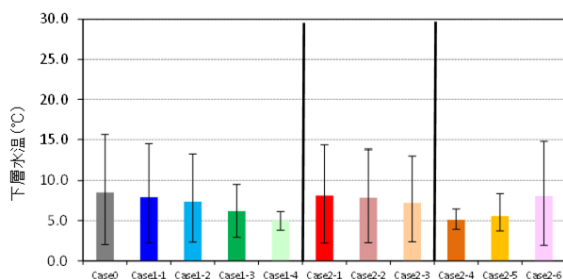


図2 表層および放流水のSS濃度 5ヶ年平均値・月最大値・月最小値

温に着目すると、貯水容量を増加させた場合に、水温上昇の感度が鈍くなる傾向が確認された。特に最も回転率の低いCase1-4(回転率2回/年)では、成層期となる4月~11月において、水温変化がほとんど生じていなかった。貯水池の縦横比を変化させたケース(Case2-1~2-3)では、表層の水温に大きな変化はなかったが、下層の水温に関しては、縦横比が小さくなるにつれて若干低下する傾向がみられた。貯水池の鉛

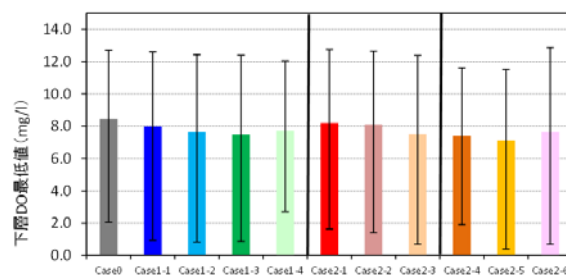


図3 下層DOの最低値の5ヶ年平均値・月最大値・月最小値

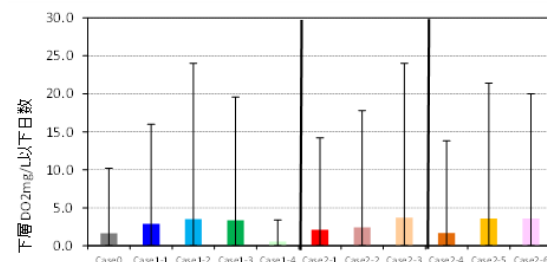


図4 貯水池下層DO2 mg/L以下日数の5ヶ年平均値・月別最大値・月別最小値

直・縦断方向を変化させたケース(Case2-4~2-6)では、表層の水温に関して、大きな変動はなかったが、下層の水温は、最大水深が浅いほど、上昇した。

図2に表層および放流水のSSの5ヶ年平均値・月最大値・月最小値を示す。貯水池規模が大きくなるにつれ、表層および放流水のSS濃度が低下した。これは、貯水池規模の増加に伴い、洪水前の清水の量が相対的に増えていることや、ダム地点に到達する前に濁質が沈降しダム地点に到達するSS量が減少し、放流水SSも低下したと考えられる。

図3に下層DOの最低値の5ヶ年平均値・月最大値・月最小値を、図4に下層DOが2mg/L以下となる日数を示す。貯水池規模の増大に伴い、年回転率が5回となるCase1-3までは下層DOはわずかに減少した。下層DOが2mg/L以下となる日数は、回転率10回/年(1.2億m<sup>3</sup>、Case1-2)までは増加するが、それ以下の回転率になると低下した。これは、鉛直混合が生じる時期のずれ込みと下層の容量増加との関係で変化しているものと推察される。貯水池の縦横比を変化させたケース(Case2-1~2-3)では、縦横比が小さくなるにつれ、下層DOが減少し、下層DOが2mg/L以下となる日数も増加した。これは、縦断距離の変化に伴う流速変化により、下層の滞留性が変化したことによるものと推察される。貯水池の鉛直・縦断方向を変化させたケース(Case2-4~2-6)では、最大水深が125mと最も深いCase2-4で下層DOが高かった。下層で水

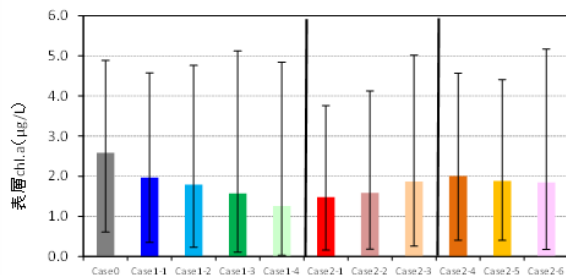


図5 貯水池表層 Chl-a の5ヶ年平均値・年最大値・年最小値

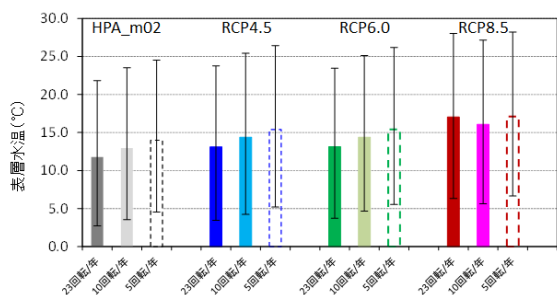


図6 表層水温の年平均値・月平均最小値・月平均最大値

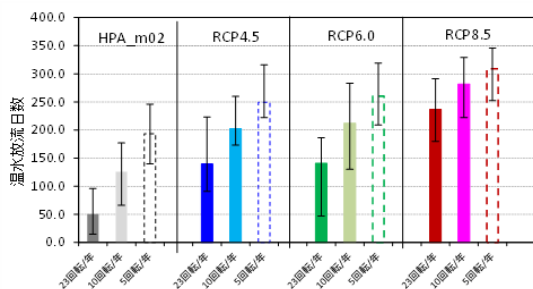


図7 温水放流日数の年平均値・月平均最小値・月平均最大値

温が一定となる層が増えたことで、混合し得る容量が増加したためと考えられる。

図5に貯水池表層 Chl-a の5ヶ年平均値・年最大値・年最小値の結果を示す。貯水池規模を変化させたケース (Case 1-1~1-4) では、貯水池規模が大きくなると、表層 Chl-a が減少した。これは、表層水温の上昇や流入河川水の希釈等のバランスで、現行条件において植物プランクトンが増殖しにくい状況になっていた可能性が考えられる。一方、最大値に着目すると、増加しているケースもあり、滞留性や表層水温、栄養塩の供給状況によって変化している可能性が考えられた。

## 2. 2 仮想貯水池による将来予測計算

貯水池規模を変化させた場合の将来予測計算を実

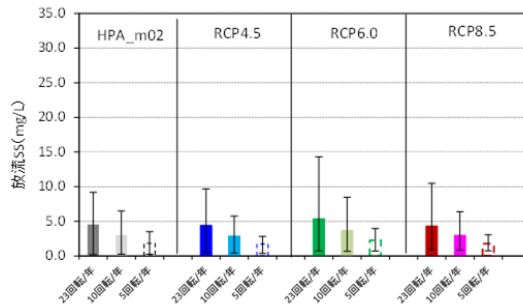


図8 放流水 SS の年平均値・月平均最小値・月平均最大値

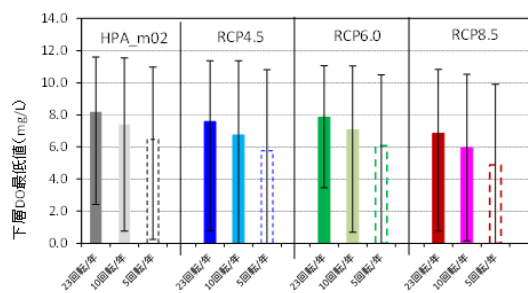


図9 貯水池下層 DO の最低値の年平均値・年最小値・年最大値

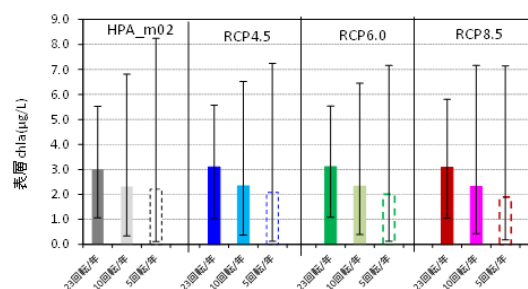


図10 貯水池表層 Chl-a の年平均値・月平均最小値・月平均最大値

施した。用いた気候変動シナリオは、現在気候 (HPA\_m02) 1 ケース、将来気候を RCP\_4.5\_c1、RCP\_6.0\_c1、RCP\_8.5\_c1 の3 ケースとした。また、貯水池規模は Case0 (0.53 億 m<sup>3</sup> (23 回/年))、Case 1-2 (1.2 億 m<sup>3</sup> (10 回/年))、Case 1-3 (2.4 億 m<sup>3</sup> (5 回/年)) の3 ケースとした。

図6に貯水池表層水温の年平均値・月平均最小値・月平均最大値を示す。その結果、気温の上昇が大きい RCP8.5 シナリオで最も大きく、回転率の違いに大きな変化はなかった。

図7に温水放流日数の計算結果を示す。温水放流日数は、回転率が大きく影響していた。これは、貯水池規模が大きいほど滞留性が高く、水温が上昇しやすい条件だったためと考えられる。

図 8 に放流水の SS の計算値を示す。その結果、出水頻度の多く、規模の大きい出水がある RCP6.0 シナリオで SS の辺平均値及び月平均最大値は高かった。また、気候変動シナリオの変化よりも、回転率の変化の方が計算結果に及ぼす影響がより大きかった。

図 9 に貯水池下層 DO の計算結果を示す。下層 DO 濃度は、回転率が小さく、気温上昇が大きいシナリオほど低下した。また、本計算においては、回転率と気候変動シナリオによる影響度は同程度であった。比較的流況がよく、出水頻度の高い RCP6.0 シナリオでは、貯水池規模によらず現在気候と同程度の濃度だった。

図 10 に貯水池表層 Chl-a の計算結果を示す。貯水池表層 Chl-a 濃度は、各気候変動シナリオで大きな変化はなく、気候変動の変化に伴う感度が小さかった。

### 3. 流入負荷レベル・パラメータを変化させた場合の水質変化試算

#### 3.1 富栄養化に関する流入負荷レベル・パラメータを変化させた水質変化試算

境界条件で使用する T-P 濃度を 0.005、0.010、0.015、0.025、0.050 mg/L の 5 段階の濃度（負荷量）レベルを設定して感度分析を行った。分析ケースを表 1 に示す。貯水池規模を 0.53 億 m<sup>3</sup>（回転率 25 回/年）、1.2 億 m<sup>3</sup>（回転率 10 回/年）、2.4 億 m<sup>3</sup>（回転率 5 回/年）の 3 パターンを設定した。なお、N/P 比は固定して、N、P の負荷量を等倍することで条件を作成した。

図 11 に Chl-a の階級別発生日数を示す。貯水池規模 0.53 億 m<sup>3</sup>（回転率 23 回/年）の Case4-1~4-5 より貯水池規模 1.2 億 m<sup>3</sup>（回転率 10 回/年）の Case4-6~4-10 や 2.4 億 m<sup>3</sup>（回転率 5 回/年）の Case4-11~4-15 の方が Chl-a 濃度が高濃度になる日数が多く、長期的に植物プランクトンが存在していた。また、流入する T-P 平均濃度が上昇すると、Chl-a 濃度が 25 µg/L を超過する日数が増加した。これらの結果を踏まえて、最も平均的なケースの条件（回転率 10 回/年、平均流入 T-P 濃度 0.015 mg/L）と最も富栄養化が進行するケースの条件（回転率 5 回/年、平均流入 T-P 濃度 0.050 mg/L）を設定し、2 ケースで将来予測計算を実施した。気候変動シナリオは現在気候（HPA\_m02）1 ケース、将来気候を RCP\_4.5\_c1、RCP\_6.0\_c1、RCP\_8.5\_c1 の 3 ケースとした。

図 12 に気候変動シナリオ毎の Chl-a 濃度の階級別発生日数を示す。平均的な条件に対して気候変動が進行すると、富栄養化が進むことが確認された。特に、RCP8.5 では、富栄養化が進行したケースの現在気候並

表 1 計算ケース

計算ケース	貯水池規模			平均 T-P 濃度 (mg/l)				
	0.53億 m <sup>3</sup> (23回/年)	1.2億 m <sup>3</sup> (10回/年)	2.4億 m <sup>3</sup> (5回/年)	0.005	0.010	0.015	0.025	0.050
Case4-1	●			●				
Case4-2	●				●			
Case4-3	●					●		
Case4-4	●						●	
Case4-5	●							●
Case4-6		●		●				
Case4-7		●			●			
Case4-8		●				●		
Case4-9		●					●	
Case4-10		●						●
Case4-11			●	●				
Case4-12			●		●			
Case4-13			●			●		
Case4-14			●				●	
Case4-15			●					●

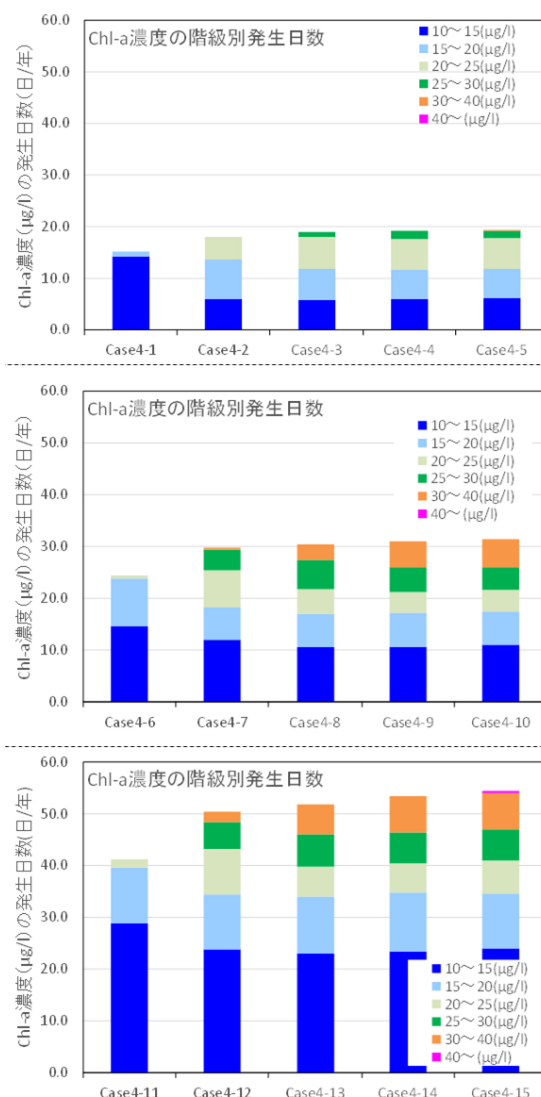


図 11 Chl-a 濃度の階級別発生日数

みに Chl-a 濃度が上昇している。富栄養化が進行した条件に対して気候変動が進行すると、さらに Chl-a 濃度が上昇し、超過日数も増加する傾向が見られた。

表 2 計算ケース

計算ケース	貯水池規模			平均SS濃度 (mg/l)				
	0.53億m <sup>3</sup> (23回/年)	1.2億m <sup>3</sup> (10回/年)	2.4億m <sup>3</sup> (5回/年)	5	10	15	20	30
Case5-1	●			●				
Case5-2	●				●			
Case5-3	●					●		
Case5-4	●						●	
Case5-5	●							●
Case5-6		●		●				
Case5-7		●			●			
Case5-8		●				●		
Case5-9		●					●	
Case5-10		●						●
Case5-11			●	●				
Case5-12			●		●			
Case5-13			●			●		
Case5-14			●				●	
Case5-15			●					●

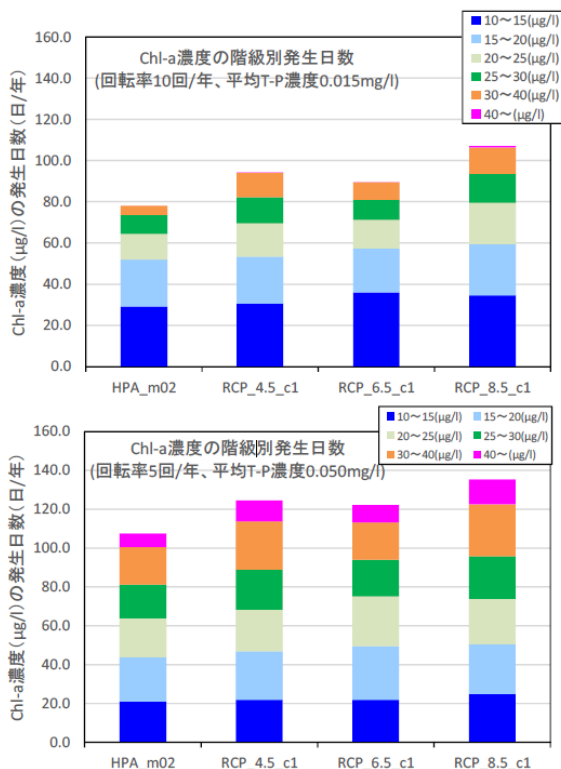


図 12 気候変動シナリオ毎の Chl-a 濃度の階級別発生日数

### 3.2 濁水長期化に関する流入負荷レベル・パラメータを変化させた水質変化試算

境界条件で使用する平均流入 SS 濃度を 0.005、0.010、0.015、0.025、0.050 mg/L の 5 段階の濃度（負荷量）レベルを設定して感度分析を行った。分析ケースを表 2 に示す。貯水池規模を 0.53 億 m<sup>3</sup>（回転率 25 回/年）、1.2 億 m<sup>3</sup>（回転率 10 回/年）、2.4 億 m<sup>3</sup>（回転率 5 回/年）の 3 パターンを設定した。

図 13 に SS 濃度の階級別発生日数を示す。各放流 SS は、概ね流入 SS 濃度が大きくなるにつれて、超過日数が多くなった。また、貯水池規模の変化よりも流入濃度の変化の影響の方が大きかった。放流 SS が 25 mg/L 以上となる日数は、回転率が高く、平均流入 SS 濃度が高いほど増加した。

上記の結果を踏まえて、最も平均的なケースの条件（回転率 10 回/年、平均流入 SS 濃度 15 mg/L）と濁水長期化が進行するケース（回転率 5 回/年、平均流入 SS 濃度 30 mg/L）の 2 ケースで将来予測計算を実施した。また、気候変動シナリオは現在気候（HPA\_m02）1 ケース、将来気候を RCP\_4.5\_c1、RCP\_6.0\_c1、RCP\_8.5\_c1 の 3 ケースとした。

図 14 に放流 SS 濃度の将来予測値および 10 mg/L 超

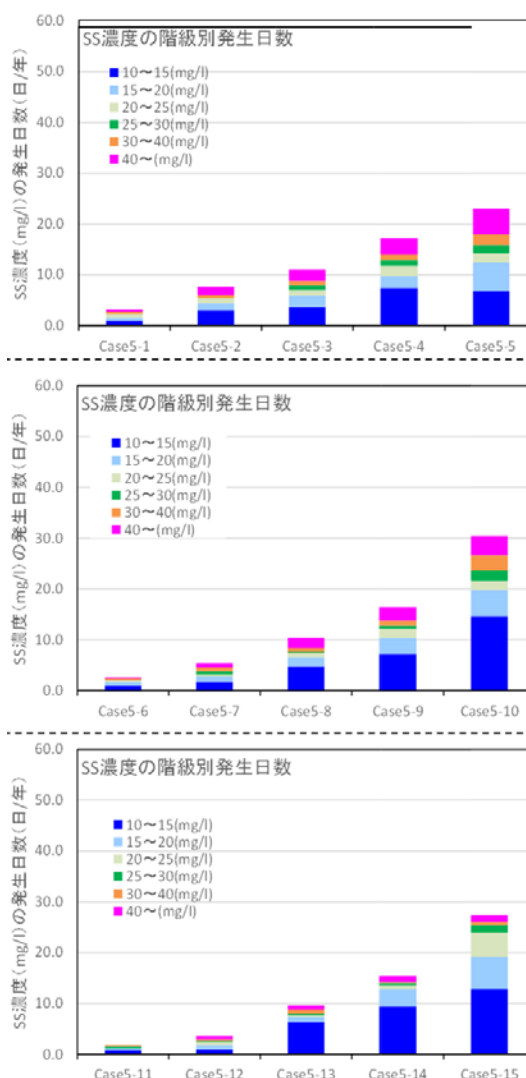


図 13 放流 SS 濃度の階級別発生日数

過日数を示す。RCP6.0 および 8.5 シナリオで濁水長期化がより進行するような結果となった。RCP8.5 シナリオでは現在気候よりも 2 倍ほど長期化が進行した。

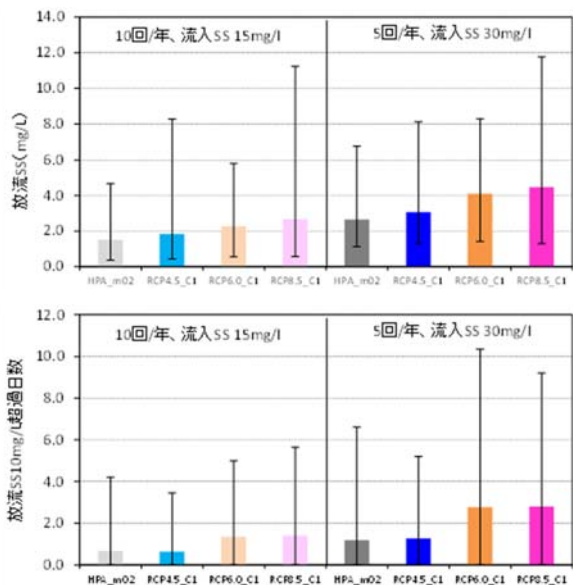


図 14 放流 SS 濃度の将来予測値および 10 mg/L 超過日数の年平均値・月平均最小値・月平均最大値

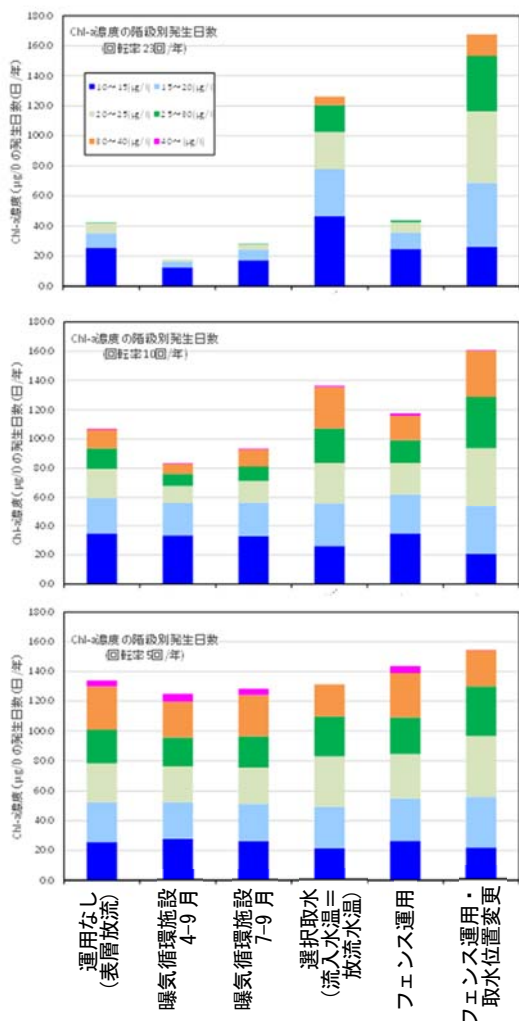


図 15 貯水池規模別の Chl-a の階級別発生日数

#### 4. 適応策に関する水質変化試算

##### 4.1 富栄養化対策に関する適応策の検討

富栄養化対策として一般に考えられる対策として、①曝気循環施設、②選択取水施設、③流入水制御フェンスが挙げられる。これらの対策については、既に水質保全対策として設置されているダムも多く存在し、気候変動による適応策として活用できる可能性がある。なお、今回の仮想貯水池の計算では、表層付近の条件変化が与える影響が大きいと考えられるため、深層曝気は対策から外した。また、その他の対策として、プロペラ式循環も考えられたが、詳細なメカニズムが把握されておらずモデル化が困難であることから今回の検討からは除外した。

図 15 に貯水池規模別の Chl-a の階級別発生日数を示す。曝気循環に関して、本計算では曝気施設を 5 基設置した場合の計算を実施した。その結果、貯水池規模が小さいほど、曝気効果が大きいことが確認された。Chl-a 濃度が 25 µg/L 以上となる日数に着目すると、回転率 23 回/年では半減し、回転率 10 回転では 2~3 割軽減していた。運用期間を 7~9 月に限定したケースでは、やや効果が薄れており、回転率 10 回/年以下では、Chl-a 濃度が 25 µg/L 以上となる日数に大きな変化は見られなかった。これは、6 月以前にも 25 µg/L を超過する日があり、夏季のみの運用では不十分であったと考えられる。選択取水施設に関して、放流水温 = 流入水温とした場合、いずれの貯水池規模でも Chl-a 濃度が 25 µg/L を超過する日数が増える傾向が見られた。また、回転率が 23 回/年のダム貯水池で、Chl-a 濃度が 25 µg/L を超過する日数が少なくなる傾向が見られた。よって、現行で放流水温 = 流入水温としている貯水池では、表層放流を行うことで表層の水温上昇、ならびに、Chl-a 濃度の上昇を抑制でき、気候変動の適応策として有効であると考えられた。流動フェンスに関して、フェンスを設置したことにより、いずれの貯水池規模でも Chl-a 濃度が 25 µg/L を超過日数が若干多くなる傾向が見られた。流動フェンスと選択取水を組み合わせたケースに関して、Chl-a 濃度が 25 µg/L 以上となる日数が他のケースと比べ大きかった。選択取水と同様に、現行操作で行っている表層取水の効果が大きいものと推察される。

図 16 に本研究で検討した富栄養化対策の適応策に関する結果をまとめる。

		対策運用			
		基本運用 (表層放流)	曝気循環	選択取水 (流入=放流)	流入水制御フェンス+選択取水
概念図					
概要	<p>表層水を取水することで、温水の早期放流することや表層の滞留性を改善する効果が期待される。 (・一般的な選択取水運用との比較を行う。)</p>	<p>曝気により湖内に循環流を発生させることで、表層水温を低下させ、アオコ等の発生を抑制する。</p>	<p>一般的に水温躍層が形成されている貯水池において冷水・温水放流や濁水の長期化を低減するために設置される。 ・基本操作(表層放流)の比較として実施</p>	<p>フェンスによって栄養塩に富んだ流入水を深部に導入し、植物プランクトンへの栄養塩類の供給を抑制する。 ・放流は基本運用(表層放流)とする。</p>	<p>フェンスによって栄養塩に富んだ流入水を深部に導入し、選択的にその層を取水することで貯水池表層部への栄養塩類の供給を抑制する。</p>
施設諸元・運用	<p>散気量：3700 L/min 導入基数：5基 設置水深：15 m 運用時期：ケース1 4月～9月                   ケース2 7月～9月(夏期限定)</p> <p>・水位に追従し表層から取水</p>	<p>【容量小】大 【容量中】中 【容量大】小</p>	<p>フェンス高：5m 設置位置：制限水位時の縦断距離2/3程度 選択取水位置：表層から5m</p>	<p>フェンス高：5m 設置位置：制限水位時の縦断距離2/3程度 選択取水位置：表層から5m</p>	<p>フェンス高：5m 設置位置：制限水位時の縦断距離2/3程度 選択取水位置：表層から5m</p>
適応策の効果	<p>【容量小】大 【容量中】中 【容量大】なし</p>	<p>【容量小】(基準) 富栄養化の抑制困難 【容量中】(基準) # 【容量大】(基準) #</p>	<p>【容量小】(基準) ほとんどなし(一部あり) 【容量中】# 【容量大】#</p>	<p>【容量小】(基準) ほとんどなし(一部あり) 【容量中】# 【容量大】#</p>	<p>【容量小】(基準) 富栄養化の抑制困難 【容量中】# 【容量大】#</p>
経済性	<p>IC:中 RC:小 (取水施設運用で対応可)</p>	<p>IC:中 RC:大 (初期コスト・ランニングコストが多くなる)</p>	<p>IC:大 RC:中 (選択取水を新設の場合、初期コスト大)</p>	<p>IC:小 RC:小 (フェンスの初期コストがかかる)</p>	<p>IC:大 RC:中 (フェンスの初期コストがかかる。選択取水の新設の場合、初期コスト大)</p>
管理負担	<p>運用日数：通年(自動制御可)</p>	<p>運用日数：ケース1 約180日/年                   ケース2 約90日/年</p>	<p>運用日数：通年(自動制御可)</p>	<p>運用日数：通年 (特に設置後の対応はないが、水位低下時に取り外すなど場合によって対応あり)</p>	<p>運用日数：通年 (選択取水については自動制御可)</p>
下流河川への影響	<p>【現在気候】温水放流日数が1.0-1.2倍 【将来気候】温水放流日数が1.6倍</p>	<p>【現在気候】温水放流日数が1.1倍 【将来気候】温水放流日数が1.6倍</p>	<p>【現在気候】温水放流日数が1.2倍 【将来気候】温水放流日数が1.6倍</p>	<p>【現在気候】温水放流日数が1.1-1.2倍 【将来気候】温水放流日数が1.1-1.6倍</p>	<p>【現在気候】温水放流日数が1.1-1.2倍 【将来気候】温水放流日数が1.1-1.6倍</p>
適応策としての評価	<p>○ (下流への温水放流が増加するものの、小〜中規模貯水池への適用性が高い。経済面・管理面の負担も比較的小さく、適用策としての実現性が高い。)</p>	<p>○～△ (小〜大規模貯水池で効果が認められるが、経済面・管理面での負担が比較的大きい。適用策としての新設は困難。)</p>	<p>× (下流河川への影響は対策メニューの中で最も小さいが、富栄養化減少の抑制は難しい。)</p>	<p>△ (フェンス上流で効果はあるが、ダムサイト付近での効果は確認できない。経済面・管理面の負担は小さい。)</p>	<p>× (温水放流が増加するだけでなく、明確な効果は認められない。)</p>

図 16 富栄養化対策の適応策に関する検討結果



## 4.2 底層貧酸素化対策に関する適応策の検討

底層貧酸素化対策として、①高濃度酸素供給装置、②選択取水施設（異高同時取水）について検討した。また、深層曝気施設も対策として考えられたが、高濃度酸素供給装置と比較し、供給酸素濃度がそれほど高くないため、検討から除外した。

図17に下層DOの計算値を示す。高濃度酸素供給装置に関して、7~9月の夏期に稼働させた場合、回転率23回/年ではある程度効果が確認できるが、回転率10回/年以下のケースでは大きな改善効果が確認できなかった。DO濃度が2mg/L以下となる場合のみに稼働させた場合では、各貯水池規模で貧酸素化を抑

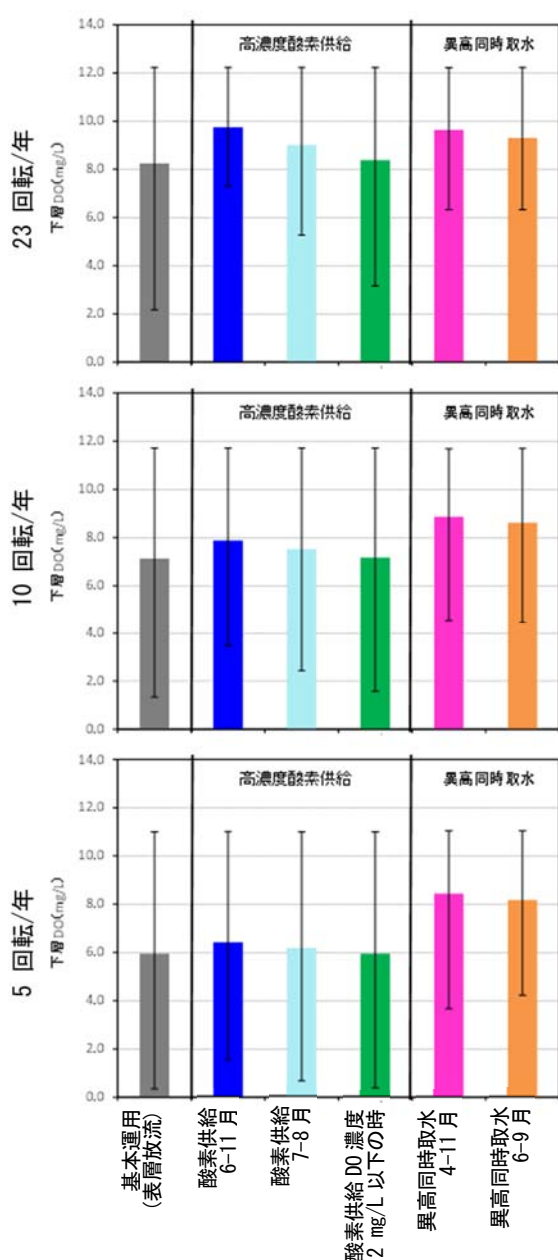


図17 下層DOの年平均値・月最大値・月最小値

制・防止することは困難であった。選択取水施設（異高同時取水）に関して、異高同時取水は、4~11月、夏期の6~9月の運用時期にかかわらず、同程度の改善効果が確認された。また高濃度酸素供給装置よりも底層貧酸素化の改善効果が大きいと考えられる。

図18に本研究で検討した富栄養化対策の適応策に関する結果をまとめる。

## 5. 現地データを基にしたアオコ発生予測モデルの構築

### 5.1 機械学習手法を用いたアオコ発生予測モデル

富栄養化が進行したダム貯水池では夏期にアオコが発生することが懸念され、アオコは景観の悪化や異臭の原因となり、ダム管理者にとって重大な問題となりえる。貯水池の水質管理を目的として水質・生態系シミュレーションモデルを用いてアオコ発生を予測する試みは多くなされているが、アオコ発生は物理的・生物学的に未解明な点も多く、従来の生態系シミュレーションモデルでは十分な予測精度が得られていない。近年では、機械学習手法を用いた統計学的モデルが様々な研究分野で検討されており、機械学習手法による予測は物理的・化学的なプロセスを考慮しないという欠点を有するが、過去のデータが十分に得られている現象については、パラメータ推定により複雑な現象に対しても予測が可能というメリットを有する。長濱らは霞ヶ浦におけるアオコ発生について機械学習手法を用いたモデルによる検討を行い、優れた予測精度が得られることを示している<sup>4)</sup>。そこで本検討では中国地方のダムを対象として、過去の気象・水象・水質データを整理し、それらのデータをもとに機械学習手法を用いたアオコ発生予測モデルの構築を試みた。

### 5.2 検討に用いたデータ

#### 5.2.1 解析対象としたダム

本検討ではアオコの発生が確認されている中国地方の4つのダムを対象として解析を行った。

4つのダムのアオコ発生に関する状況を以下に示す。

Aダムでは2012年の竣工から6年間のうち3年間でアオコの発生が確認されている。データが適切に管理されている2012年1月から2017年2月を解析対象期間とした。

Bダムでは2011年の竣工から7年間のうち5年間でアオコの発生が確認されている。データが適切に管理されている2011年3月から2017年12月を解析対象期間とした。

対策運用		選取取水施設での異高同時取水	
概念図	<p>① 高濃度酸素水を供給する。 ② 高濃度酸素水を供給する。 ③ 高濃度酸素水、曝気した水を供給する。 ④ 高濃度酸素水、曝気した水を供給する。 ⑤ 高濃度酸素水、曝気した水を供給する。</p> <p>出典：松江工研株式会社、WEP システム</p>	<p>上層・下層の水の混合によつて下層の回転率を上げる</p> <p>酸素濃度：高</p> <p>酸素濃度：低</p>	
概要	貯水池底層に設置した装置から高濃度の酸素水を供給することで直接的に底層のDO濃度の改善を図る対策である。深層曝気とは異なり、酸素を溶かし込んだ水を供給するため、曝気よりも消費電力が小さく、効率的とされている。		選取取水施設は、冷温水及び濁水対策として設置され、流入水温と同等の水温の水深から選択的に取水することで放流水質を制御する対策である。また、上段と下段から同時に取水可能な構造の取水施設（多孔式または連続サイフォン式等）であれば、表層と中層・底層から同時に取水することで、夏季の底層水の流動・拡散を促進し、底層の水質悪化を抑制することが可能と考えられる。
施設諸元・運用	酸素水供給量：80m <sup>3</sup> /h 吐出DO濃度：30mg/l 導入基数：1基 実施時期：6月～11月（貧酸素化進行時期）	酸素水供給量：80m <sup>3</sup> /h 吐出DO濃度：30mg/l 導入基数：1基 実施時期：底層DO2mg/lを基準としてそれを下回った時期に実施	運用時期：6月～9月（貧酸素化が進行する時期） 取水深・取水量：表層・深層で同量取水
適応策の効果	【容量小】大 【容量中】中 【容量大】小	【容量小】小 【容量中】ほとんどなし 【容量大】ほとんどなし	【容量小】大 【容量中】中～大 【容量大】中～大
経済性	IC:中 RC:小 (初期コストがやや高いが、ランニングコストは比較的小さい)	IC:大 RC:小 (新規設置・改良の場合、初期コスト大)	IC:大 RC:小 (新規設置・改良の場合、初期コスト大)
管理負担	運用日数：約180日 ・影響を及ぼさない	運用日数：約60日 ・影響を及ぼさない	運用日数：約120日 (水温、DOのモニタリングが必須) 【現在気候】「流入水温＝放流水温」操作とほぼ同程度の温水放流日数が発生。 【将来気候】「流入水温＝放流水温」操作とほぼ同程度の温水放流日数が発生。冷水放流日数が増加。
下流河川への影響	○ (小～中規模貯水池で効果が認められる。放流水温に影響を及ぼさない。経済面の負担が比較的小さく、小～中規模貯水池への適応策として実現性がある。)	△～× (夏期だけの対応では、貯水池規模が大きくなる対応できない)	○ (小～大規模の幅広い貯水池規模に対して効果が認められる。運用期間を夏季に限定することで管理面の負担を軽減。大規模貯水池の適応策として実現性がある。)

図 18 副米養化対策の適応策に関する検討結果

C ダムに関しては少なくとも 1998 年よりアオコの発生が確認されている。(1998 年以前についても現在確認中) なお、C ダムは 2008 年 2 月以降、アオコ対策施設としてフェンスと表層水移送装置が設置されており、水質改善対策の前後でアオコ発生の特性が変化することが考えられるため、解析対象期間は 2000 年 1 月から 2007 年 12 月までとした。

D ダムでは 2004 年の竣工から 14 年間のうち 5 年間でアオコの発生が確認されている。データが適切に管理されている 2005 年 1 月から 2016 年 8 月を解析対象期間とした。

### 5. 2. 2 気象・水象・水質データ

モデルの学習に用いたデータを表 3 に示す。

入力データは主に気象・水象・貯水池水質・流入水質の 4 分類であり、気象データはそれぞれのダムに最も近い気象庁観測所の観測データを整理し、入力変数に用いた。水象・貯水池水質・流入水質については各ダムで観測が行われていたため、それらのデータを入力変数に用いた。T-N と T-P の栄養塩については各ダムで月に 1 回の定期観測で測定されるデータであるため、線形補完を行い日データとした。

出力データは主に表層の Chl-a とアオコレベルの観測値が存在し、アオコ発生・非発生の 2 値データはア

表 3 解析に用いたデータ

項目		観測・算出	正規化手法	単位	備考	Aダム	Bダム	Cダム	Dダム	
気象	気温	日平均気温	観測	実数	°C	●	●	●	●	
		前5日平均気温	算出	実数	°C	-	-	-	-	
		前10日平均気温	算出	実数	°C	-	-	-	-	
		前20日平均気温	算出	実数	°C	-	-	-	-	
		前30日平均気温	算出	実数	°C	●	●	●	●	
	日射	日平均日射量	観測	実数	MJ/m <sup>2</sup>	●	●	●	●	
		前5日平均日射量	算出	実数	MJ/m <sup>2</sup>	-	-	-	-	
		前10日平均日射量	算出	実数	MJ/m <sup>2</sup>	-	-	-	-	
		前20日平均日射量	算出	実数	MJ/m <sup>2</sup>	-	-	-	-	
	風速	日平均風速	観測	対数	m/s	●	●	●	●	
雨量		ダム地点雨量	観測	対数	mm	●	●	●	●	
水象	流量	ダム流入量	観測	対数	m <sup>3</sup> /s	●	●	●	●	
		前5日平均流入量	算出	対数	m <sup>3</sup> /s	-	-	-	-	
		前10日平均流入量	算出	対数	m <sup>3</sup> /s	-	-	-	-	
		前20日平均流入量	算出	対数	m <sup>3</sup> /s	-	-	-	-	
		前30日平均流入量	算出	対数	m <sup>3</sup> /s	●	●	●	●	
	運用	ダム放流量	観測	対数	m <sup>3</sup> /s	●	●	●	●	
		貯水位	観測	対数	m	●	●	●	●	
		貯水量	算出	対数	m <sup>3</sup>	H-V式から算出	●	●	●	●
	灌水面積	算出	対数	m <sup>2</sup>	H-A式から算出	●	●	●	●	
貯水池水質	水温	水深0.5m水温	観測	実数	°C	●	●	●	●	
		水深1m水温	観測	実数	°C	-	-	-	-	
		水深3m水温	観測	実数	°C	-	-	-	-	
		水深5m水温	観測	実数	°C	●	●	●	●	
		水温勾配	算出	対数	°C	●	●	●	●	
	濁度	水深0.5m濁度	算出	対数	度	自動観測データ	●	●	●	●
	栄養塩	貯水池上層T-P	観測	対数	mg/L	※1	●	●	●	●
貯水池上層T-N		観測	対数	mg/L	※1	●	●	●	●	
流入水質	水温	流入水温	観測	実数	°C	●	●	※2	●	
	栄養塩	貯水池上層T-P	観測	対数	mg/L	※1	●	●	●	●
		貯水池上層T-N	観測	対数	mg/L	※1	●	●	●	●
出力	Chl-a	水深0.5mChl-a	観測	対数	µg/L	●	●	●	●	
	アオコ	アオコレベル	観測	実数	区分	●	●	※2	●	
		アオコ発生	算出		0-1	区分	●	●	※2	●

※1 月 1 回の定期観測データであるため、観測日間を線形補完することで日データとした

※2 C ダムでは流入水温のデータが観測されておらず、アオコレベルも記載されていなかった。

オコレベルが3以上の時にアオコ発生と定義し、これらの3つの変数を出力変数として解析に用いた。

モデル解析では入力・出力データを規格化する必要があるが、今回の検討では入力・出力データに偏りを有するデータも存在したため、以下で示す二つの正規化手法を用いて、データの規格化・正規化を行った。(実数形)

$$A_1 = \frac{(q_{max} - q_{min})p + q_{min} p_{max} - q_{max} p_{min}}{p_{max} - p_{min}}$$

(対数形)

$$A_2 = \frac{(q_{max} - q_{min})\log p + q_{min} \log p_{max} - q_{max} \log p_{min}}{\log(p_{max}/p_{min})}$$

※ A1:変換後の入力値、A2:変換後の入力値(対数)、p:入力値、p<sub>max</sub>,p<sub>min</sub>:入力データの最大値と最小値、q<sub>max</sub>,q<sub>min</sub>:変換値の最大値(0.95)と最小値(0.05)である。

正規化においては、実数形と対数形の二つがあるが、指標ごとに二つの手法を行ったうえで分布の偏りがより少なくなる手法を、入力変数の値として用いた。

### 5.3 ニューラルネットワークモデルによる解析

#### 5.3.1 ニューラルネットワークモデルの概要

本検討では機械学習手法として代表的なニューラルネットワークモデル(以下、NNモデル)を用いて解析を行った。本研究では、簡易な検討として、入力層、中間層、出力層の3層からなるNNモデルにより解析を行った。モデルに組み込まれた活性化関数を以下に示す。

$$f(u_i) = \frac{1}{1 + \exp(-u_i)}, \quad u_i = \sum_{i=1}^n \omega_i \cdot x_i - \theta$$

※ f(u<sub>i</sub>):ニューロンの出力値、x<sub>i</sub>:入力値、ω<sub>i</sub>:重み付け係数、θ:しきい値、nは入力層のユニット数である。

解析においてはネットワーク構造による精度の変化を検討するために、中間ニューロン数を変化させた解析を行い、NNモデルの構造について感度分析を行った(Case-1~4)。またCase-1~4の結果を基に、入力変数群を変化させた解析を行い、入力変数の項目によるNNモデルの感度分析を行った(Case-5~8)。またNNモデルの各解析パターンの精度を評価するために、Chl-aではRMSE(二乗平均平方根誤差)と相関係数を算出し、アオコレベルではRMSE、的中率(アオコレベル1以上の際の的中率)、相関係数の3指標を算出し、アオコ発生ではRMSEと的中率(アオコ発生時の

的中率)を算出した。

#### 5.3.2 NNモデルによる各個別ダムの解析結果

AダムにおけるNNモデルの中間ニューロン数を変化させた感度分析結果を表4に示す。AダムにおいてはCase-3、4でChl-aやアオコレベルの相関係数が高くなる傾向が見られた。ニューロン数が増加することによりモデルの表現力が向上したため、相関係数が高くなったと考えられる。

表4 Aダム NNモデル解析結果

項目		Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
設定条件	出力変数	3	3	3	3
	中間ニューロン数	6	10	15	20
Chl-a	RMSE	3.97	5.51	3.45	3.50
	相関係数	0.491	0.666	0.683	0.637
アオコレベル	RMSE	1.00	1.06	1.01	0.90
	的中率	34.8%	14.9%	21.5%	40.3%
	相関係数	0.855	0.915	0.917	0.933
アオコ発生	RMSE	0.34	0.43	0.49	0.37
	発生的中率	94.7%	87.4%	86.3%	87.4%

表5 Bダム NNモデル解析結果

項目		Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
設定条件	出力変数	3	3	3	3
	中間ニューロン数	6	10	15	20
Chl-a	RMSE	2.84	3.06	2.89	2.89
	相関係数	0.55	0.443	0.536	0.502
アオコレベル	RMSE	0.91	0.84	0.70	0.78
	的中率	45.8%	39.0%	58.5%	50.0%
	相関係数	0.890	0.942	0.901	0.905
アオコ発生	RMSE	0.59	0.45	0.43	0.44
	発生的中率	78.9%	81.1%	92.2%	91.1%

表6 Cダム NNモデル解析結果

項目		Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
設定条件	出力変数	3	3	3	3
	中間ニューロン数	6	10	15	20
Chl-a	RMSE	2.11	2.30	2.14	2.28
	相関係数	0.541	0.362	0.557	0.538
アオコレベル	RMSE	0.91	0.90	1.40	1.11
	的中率	58.5%	57.8%	0.0%	15.6%
	相関係数	0.816	0.873	0.795	0.847
アオコ発生	RMSE	0.58	0.61	0.81	0.64
	発生的中率	74.8%	62.2%	49.6%	60.0%

表7 Dダム NNモデル解析結果

項目		Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
設定条件	出力変数	3	3	3	3
	中間ニューロン数	6	10	15	20
Chl-a	RMSE	3.27	3.17	3.04	4.42
	相関係数	0.252	0.306	0.296	0.265
アオコレベル	RMSE	1.33	1.17	1.42	1.31
	的中率	22.2%	20.6%	0.0%	0.0%
	相関係数	0.481	0.740	0.648	0.748
アオコ発生	RMSE	1.00	0.81	0.98	0.90
	発生的中率	0.0%	62.2%	49.6%	60.0%

B ダムにおける NN モデルの中間ニューロン数を変化させた感度分析結果を表 5 に示す。B ダムにおいても A ダムと同様に Case-3、4 においてアオコレベル的中率もしくは相関係数が高くなる傾向が見られた。

C ダムにおける NN モデルの中間ニューロン数を変化させた感度分析結果を表 6 に示す。C ダムにおいては Case-1、2 がアオコレベルの再現性が高く、Case-3、4 では再現性が低下した。

D ダムにおける NN モデルの中間ニューロン数を変化させた感度分析結果を表 7 に示す。D ダムにおいてはアオコ発生時や Chl-a の値が 100  $\mu\text{g/L}$  を超えるような学習データが少ないため、再現性が十分に確保できていないと考えられる。

4 つのダムにおける解析結果を比較した場合、Chl-a の相関係数は A ダムにおける Case-3 で最も高い値を示した。A ダムにおける Chl-a の変動を図 19 に示す。相関係数が比較的高い値を示した Case-3、4 においては冬季の低 Chl-a の傾向は十分に再現できていたが、春季～夏期は再現性が不十分であった。Case-2 においては春季～夏期の Chl-a のピークを一部再現できているものの、全体的に Chl-a を過大に算出しており RMSE

が大きくなった要因と考えられる。他のダムの解析においても冬季の低 Chl-a は十分に再現できていたが、春季～夏期は再現性が不十分であり植物プランクトンのブルームを再現するにはデータ数や入力変数の不足が原因であると考えられる。

アオコレベル的中率は C ダムにおける Case-1 で最も高い値を示した。C ダムにおけるアオコレベルの変動を図 20 に示す。C ダムにおいてはアオコの発生は夏期の短期間のみで発生しており、アオコ発生時のアオコレベルは再現性が見られた。Case-3、4 では 2017 年夏季のアオコレベル 0 の時期にアオコの出現を予測しているため、的中率が減少していると考えられる。

一定の予測精度が得られたと考えられる A ダムと C ダムにおいて気象、水象、貯水池水質、流入水質の 4 分類の入力変数をそれぞれ一つずつ除いた解析を行い、入力変数の感度分析を試みた。A ダムにおいては Chl-a とアオコレベルでともに高い相関を示した Case-4 を基準に、中間ニューロン数を 20 に固定して感度分析を行った。C ダムにおいてはアオコレベルで最も高い中率を示した Case-1 を基準に、中間ニューロン数を 6 に固定して感度分析を行った。それぞれの結果

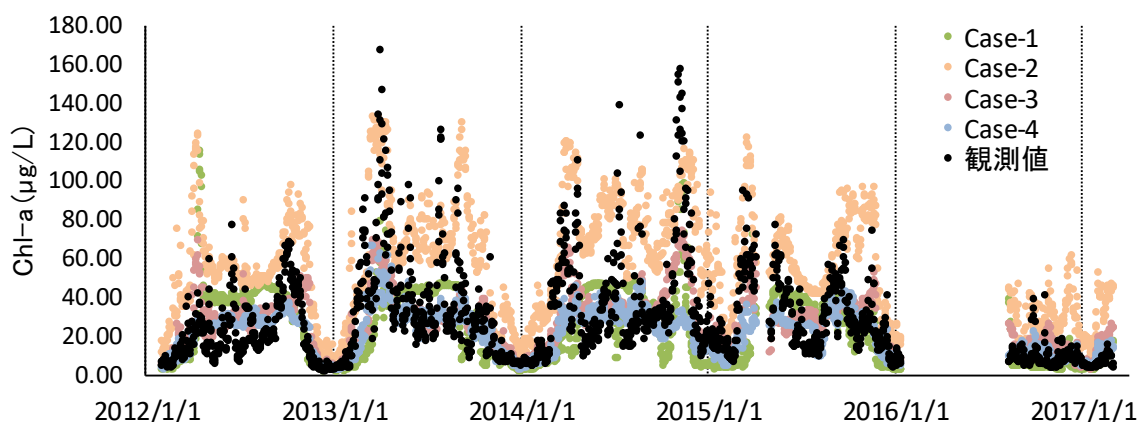


図 19 A ダムにおける Chl-a の変動

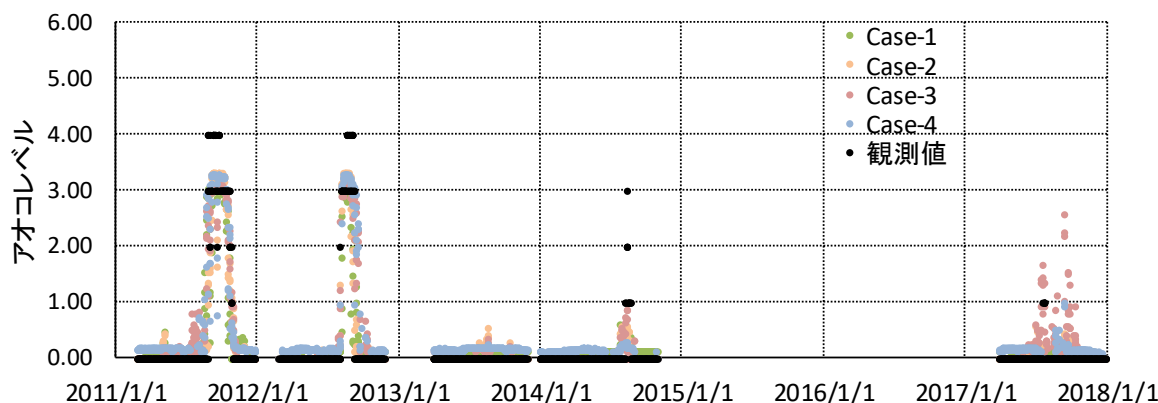


図 20 C ダムにおけるアオコレベルの変動

表 8 A ダム入力変数感度分析結果

項目		Case-4	Case-5	Case-6	Case-7	Case-8
設定条件	出力変数	3	3	3	3	3
	中間ニューロン数	20	20	20	20	20
入力層項目	気象	●		●	●	●
	水象	●	●		●	●
	貯水池水質	●	●	●		●
	流入水質	●	●	●	●	
Chl-a	RMSE	3.50	3.59	3.45	3.88	3.61
	相関係数	0.637	0.660	0.680	0.559	0.597
アオコレベル	RMSE	0.90	1.26	1.24	0.89	1.03
	的中率	40.3%	13.8%	5.5%	40.9%	26.5%
	相関係数	0.933	0.805	0.884	0.844	0.901
アオコ発生	RMSE	0.37	0.56	0.45	0.54	0.40
	発生的中率	87.4%	70.5%	82.1%	60.0%	87.4%

表 9 C ダム入力変数感度分析結果

項目		Case-1	Case-5	Case-6	Case-7	Case-8
設定条件	出力変数	3	3	3	3	3
	中間ニューロン数	6	6	6	6	6
入力層項目	気象	●		●	●	●
	水象	●	●		●	●
	貯水池水質	●	●	●		●
	流入水質	●	●	●	●	
Chl-a	RMSE	2.11	2.16	2.37	2.36	2.41
	相関係数	0.541	0.506	0.190	0.371	0.188
アオコレベル	RMSE	0.91	0.89	1.12	1.45	1.68
	的中率	58.5%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
	相関係数	0.816	0.779	0.775	0.731	0.079
アオコ発生	RMSE	0.58	0.53	0.59	0.83	1.00
	発生的中率	74.8%	87.4%	83.0%	0.0%	0.0%

(Case-5~8) を表 8、9 に示す。

A ダムの Chl-a の予測は気象データと水象データを除いた場合は相関係数が向上し、貯水池水質データと流入水質データを除いた場合は相関係数が低下した。一方でアオコレベルの予測は気象データと水象データを除いた場合は的中率が大きく低下した。貯水池水質データを除いた場合は的中率に変化は見られず、流入水質データを除いた場合は的中率が低下した。

C ダムの Chl-a の予測は気象データを除いた場合は大きな変化が見られなかったが、その他の三つの入力変数群を除いた場合は相関係数が大きく低下した。アオコレベルの予測においては気象、水象、貯水池水質、流入水質すべての入力変数群において的中率が低下した。

A ダムと C ダムにおける入力変数群の感度分析結果より、Chl-a の予測には貯水池水質データと流入水質データが大きく寄与していることが示唆された。湖山池における NN モデルを用いた検討においても Chl-a の予測には T-N、T-P を入力変数に加えることで予測精度が向上することが報告されており<sup>5)</sup>、Chl-a の高精

度予測には T-N と T-P 濃度が必要不可欠であると考えられる。また、アオコレベルの予測には気象データと水象データが大きく寄与していることが示唆された。

## 6. おわりに

仮想ダム貯水池における気候変動による前提条件の変化が水質に与える影響および将来予測等について検討し、富栄養化および底層貧酸素化の適応策についてそれぞれの対策方法をモデルの計算により検討した。また、現地データを基にしたアオコ発生予測モデルの構築を試みた。主な成果は以下の通り。

- ・貯水池規模を変化させた仮想貯水池では、貯水池規模の増大により表層水温が増加した。また、下層 DO 濃度が 2.0 mg/L 以下になる日数は回転数の上昇に応じて増加や減少が起きるなど、各水質指標に大きな変化が確認された。
- ・貯水池形状を変化させた仮想貯水池では、水温分布や下層 DO に変化が見られたが、変化程度については、貯水池規模の変化と比較して小さかった。
- ・気候変動シナリオを用いた将来予測計算の結果、貯水池規模により、水温・SS・DO の変化が大きかった。
- ・特に、水温については貯水池規模が小さいほど、DO については貯水池規模が大きいほど、気候変動の影響を大きく受ける結果となった。
- ・富栄養化に関する感度分析の結果、平均流入 T-P 濃度が貧栄養～中栄養の場合 (0.005～0.015 mg/L の範囲) で回転率が小さいほど、Chl-a 濃度の上昇が比較的大きかった。
- ・濁水長期化に関する感度分析の結果、RCP6.0 および RCP8.5 シナリオで濁水長期化がより進行する結果が得られた。RCP8.5 シナリオでは現在気候よりも 2 倍ほど長期化が進行した。
- ・富栄養化の適応策を検討した結果、最も効果があったのは曝気循環であり、どの貯水池規模でも対策効果が確認された。また基本操作として設定していた表層放流が、貯水池内の表層水温や Chl-a 濃度の低下に寄与することが確認され、気候変動への適応策として有効である可能性が示された。
- ・底層嫌気化の適応策を検討した結果、高濃度酸素供給装置の導入により、底層貧酸素化が改善及び軽減される効果が確認された。異高同時取水については、4 月～11 月の水温成層期の運用により、底層貧酸素化改善の効果が大きいことが確認された。
- ・機械学習手法を用いたアオコ発生予測モデルの構築

を行い、解析の結果より一部のダムでは Chl-a の変動傾向やアオコレベルで一定の精度が得られた。

- NN モデルの入力変数を変化させた感度分析の結果から、Chl-a の変動は貯水池水質データと流入水質データによる寄与が大きく、アオコレベルの変動は気象データや水象データによる寄与が大きいことが示唆された。

#### 参考文献

- 1) 文部科学省、経済産業省、気象庁、環境省：IPCC 第 5 次評価報告書統合報告書政策決定者向け要約（翻訳）、2015
- 2) 環境省：気候変動の影響への適応計画

<http://www.env.go.jp/press/files/jp/28593.pdf>、2015（2019年9月確認）

- 3) 国土交通省：国土交通省気候変動適応計画 <https://www.mlit.go.jp/common/001264212.pdf>、2015（2019年9月確認）
- 4) 長濱祐美、阿部真己、松本俊一、福島武彦：霞ヶ浦土浦入を対象に構築したアオコ予測システムの紹介、17th World Lake Conference、pp. 339-341、2018
- 5) 斎幸治、原田昌佳、吉田勲、平松和昭、森牧人：ニューラルネットワークモデルを用いた富栄養湖のクロロフィル a 濃度の推定、農業農村工学会論文集、250、pp. 57-64、2007

## 13.2 水質リスク軽減のための処理技術の開発

### 13.2.1 公共用水域における健康・生態リスクが懸念される化学物質の制御手法に関する研究（水質リスクを軽減するための処理技術）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）  
研究担当者：小川文章、北村友一、鈴木裕識  
小森行也

#### 【要旨】

現在、環境省では水生生物の保全に係る水質環境基準項目へのアンモニア性窒素の追加を検討している。下水放流水からアンモニア性窒素が検出される場合もあり、下水放流先に環境基準点がある場合や、排水基準値が設定された場合に対応するため、下水処理過程でのアンモニア性窒素の低減法を提案しておく必要がある。平成 30 年度は、微生物保持担体を用いて下水処理水中に残存するアンモニア性窒素の低減効果をプラント実験から調査した。その結果、微生物保持担体処理は、硝化活性が低下する冬季（水温 10～15℃）、原水中アンモニア性窒素濃度約 12 mg/L において、約 45～60 分の処理時間でアンモニア性窒素を 1/10 に低減できること明らかにした。本実験で得られた硝化速度は 18.8 mg-N/L・h であった。地震等の災害時に下水処理場が被災し処理機能停止となった場合は、応急復旧として簡易沈殿処理が行われている。簡易沈殿処理における有害物質等の除去特性については知見が不十分であることから実下水を用いた簡易沈殿処理実験により排水基準項目の金属類を対象として除去特性を調査した。その結果、下水処理において処理困難物質とされている有害物質等の Pb、As、B、Cu、Zn、Mn は、簡易沈殿処理における除去率は 30% 以下であり除去が困難な物質であることがわかった。しかし、Fe は、沈殿処理によって 71% が除去された。

キーワード：アンモニア性窒素、微生物保持担体、簡易沈殿

#### 1. はじめに

環境省では水生生物の保全に係る水質環境基準項目へのアンモニア性窒素（以下、NH<sub>4</sub>-N とする）の追加を検討している。下水放流水から NH<sub>4</sub>-N が検出される場合<sup>1)</sup>もあり、下水放流先に環境基準点がある場合や、排水基準値が設定された場合に対応するため、下水処理過程での NH<sub>4</sub>-N の低減法を提案しておく必要がある。平成 30 年度は、過年度の調査で LAS、医薬品の

低減効果が認められた微生物保持担体を用いて、下水処理水中に残存する NH<sub>4</sub>-N の低減効果をプラント実験により明らかにした。

また、地震等の災害時に下水処理場が被災し処理機能停止となった場合は、応急復旧として簡易沈殿処理が行われている。簡易沈殿処理における有害物質等の除去特性に関する知見は未だ十分とはいえない状況にあることから実下水を用いた簡易沈殿処理実験を行い

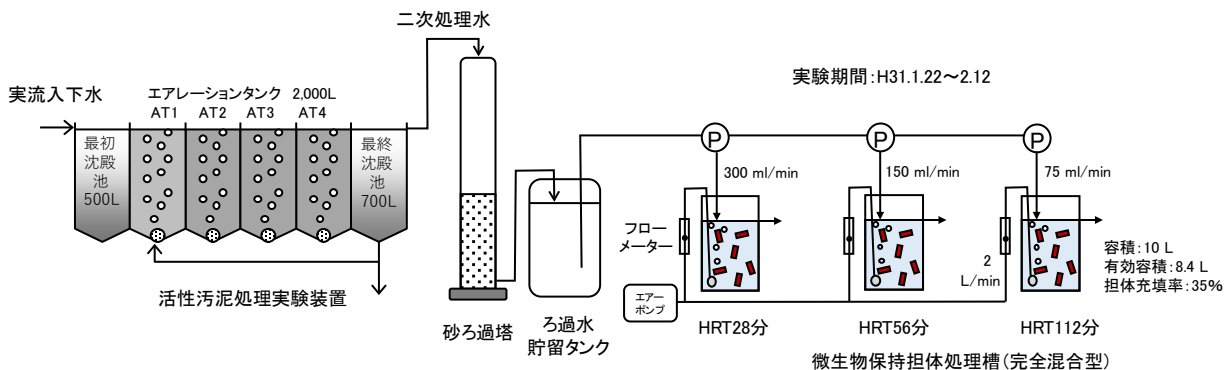


図-1 活性汚泥処理装置と微生物保持担体処理槽（完全混合型）の概要



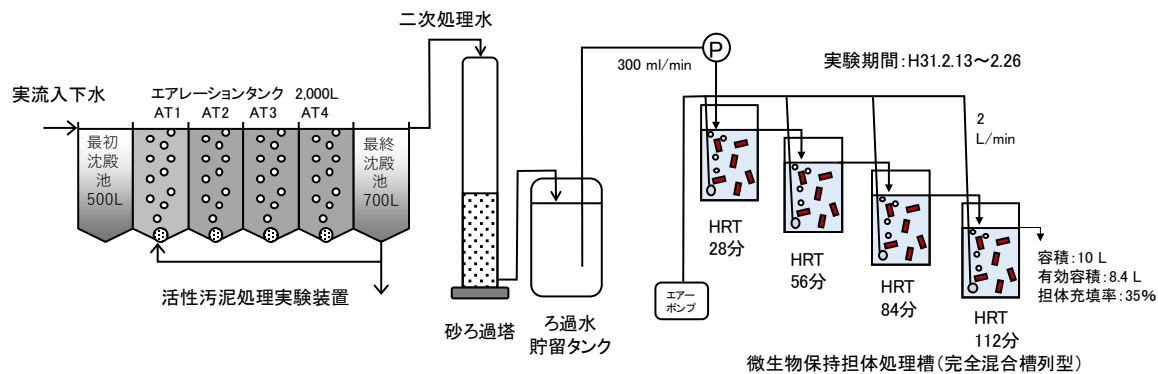


図-2 活性汚泥処理装置と微生物保持担体処理槽（完全混合槽列型）の概要



写真-1 完全混合型微生物保持担体処理槽

排水基準項目の金属類を対象として除去特性の調査を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 担体による下水処理水中 NH<sub>4</sub>-N の除去実験

下水処理水中に残存する NH<sub>4</sub>-N が微生物保持担体処理によりどの程度の滞留時間で、どの程度低減できるかを明らかにするための基礎実験を行った。図-1,2 に本実験で使用した活性汚泥処理装置と微生物保持担体処理槽の概要を、写真-1,2 に微生物保持担体処理槽の外観を示した。微生物保持担体処理実験は、完全混合型（図-1、写真-1）と完全混合槽列型（図-2、写真-2）の2条件で検証した。微生物保持担体処理槽（10L）は、活性汚泥処理実験装置の後段に3または4台設置し、各処理槽にはポリプロピレン製の中空円筒状の微生物保持担体（4mm<sup>OD</sup>×3mm<sup>ID</sup>×5mm<sup>L</sup>）を添加率35%（高比率）で充填した。微生物保持担体処理のための原水は、活性汚泥処理実験装置を硝化抑制で運転し、処理水中に NH<sub>4</sub>-N を残留させたものである。本実験では、冬季の低水温期の NH<sub>4</sub>-N の低減効果を明らかにするため、微生物保持担体槽の水温制御は行っていない。



写真-2 完全混合槽列型微生物保持担体処理槽

H30年12月下旬から試験処理水のみで担体の馴致を行い、H31年1/22~2/12は完全混合型、2/13~2/26は槽列型で連続運転を行った。完全混合型では1/22、1/29、2/5、2/12の4回、完全混合槽列型では2/19、2/21、2/26の3回、原水と各反応槽の流出水をスポット採水した。水質分析は、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2+3</sub>-N、NO<sub>3</sub>-Nを自動流れ分析（ビーエルテック QuAAtro2-HR）で、TOCをNPCO方式（島津製作所 TOC-V）で測定した。その他に採水時に、pH、DO、水温を測定した。

### 2.2 簡易沈殿処理における金属類の除去実験

実験は、過年度に作製した下水の簡易沈殿処理実験装置（図-3、写真-3）を用いて行った。実験装置は、最初沈殿池（29L）、曝気槽（146L）、最終沈殿池（44L）で構成され、流入水量500L/dにおける水面積負荷、滞留時間は表-1のとおりである。実験装置の作製にあたってこれらの諸元は下水道維持管理指針<sup>2)</sup>を参考に設定したものである。

実験は、同型の装置を2系列運転し、同一条件の平行再現実験とした。実下水処理場の流入下水を実験装置に流量500L/d（約350mL/min）で通水し、流入水、処理水（A）、処理水（B）を1回/週の間隔で5週間に

わたって5回採取した。通常、曝気槽はエアレーションが行われ生物処理の主要部分となる重要施設であるが、災害時に被災しその機能が損なわれることがある。本実験では、曝気槽が機能停止したことを想定し、実験装置を構成する最初沈殿池、曝気槽、最終沈殿池すべてを沈殿池とした。また、実験期間中、汚泥の引抜は行わなかった。なお、本実験における実験装置全体の沈殿時間は10.4時間となる。

試料採取時に水温、pH、ORPを測定するとともに、採取試料は分析室に持ち帰りBOD、COD、SS、DOC、TN、TPの他、有害物質等として金属類を分析した。分析した金属類は一律排水基準項目の有害物質からCd、Pb、As、Se、B、その他の項目からCu、Zn、Fe、Mn、Crの計10元素とした。

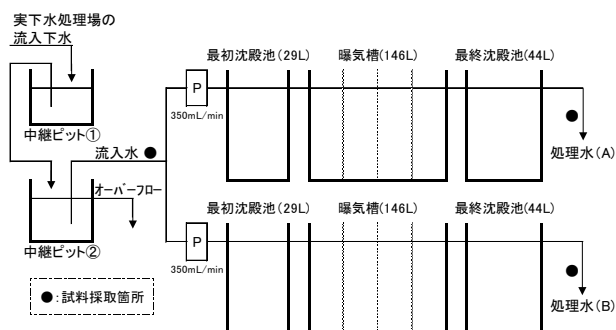


図-3 簡易沈殿処理実験装置

表-1 簡易沈殿処理実験装置の諸元

	最初沈殿池	曝気槽	最終沈殿池
水面積負荷 ( $m^3/m^2 \cdot d$ )	33	-	22
滞留時間 (h)	1.4	7.0	2.1
W (m)	0.15	0.15	0.15
L (m)	0.10	0.50	0.15
H (m)	1.96	1.95	1.94



写真-3 簡易沈殿処理装置の写真

BOD、COD、SS、DOCの分析は、河川水質試験方法(案)<sup>3)</sup>により行った。TN、TPは、水酸化ナトリウム-ペルオキシ二硫酸カリウム溶液による分析前処理を行った後、自動比色分析装置を用いて分析した。

金属類の分析は、分析前処理として試料50mLに硝酸1mL添加し加熱分解処理した。放冷し5Bろ紙でろ過した後、50mLに定容しICP質量分析計を用いて各元素濃度を測定した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 担体による下水処理水中NH<sub>4</sub>-Nの除去特性

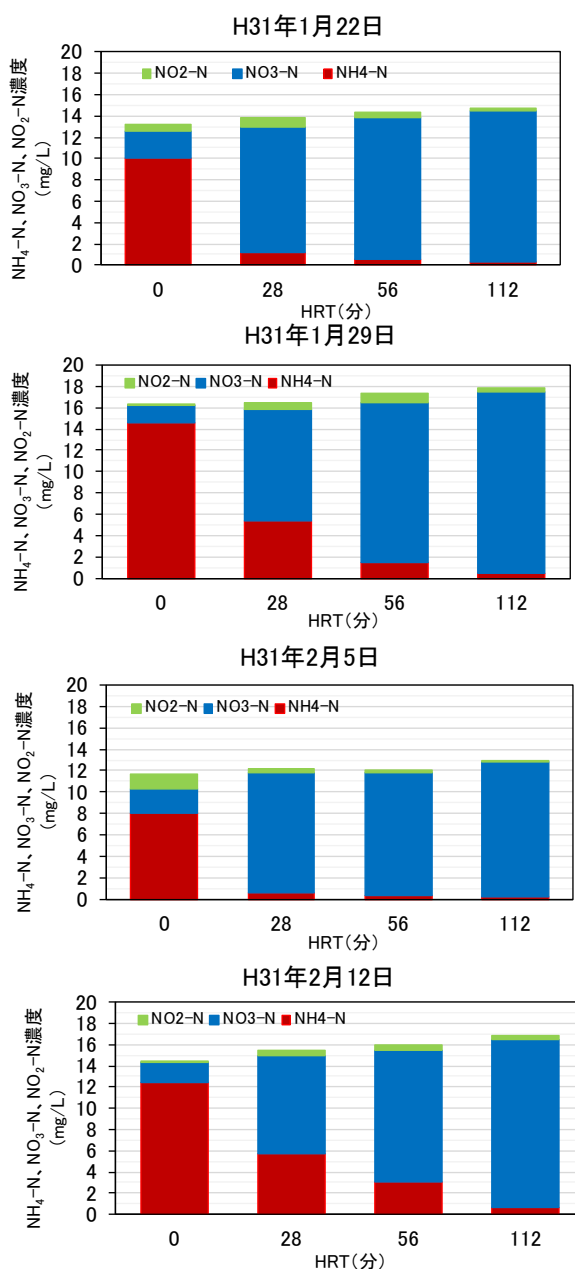


図-4 完全混合型実験中のNH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nの測定結果

図-4 は完全混合型処理実験中の 1/22、1/29、2/5、2/12 の各担体処理槽流出水の NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N の結

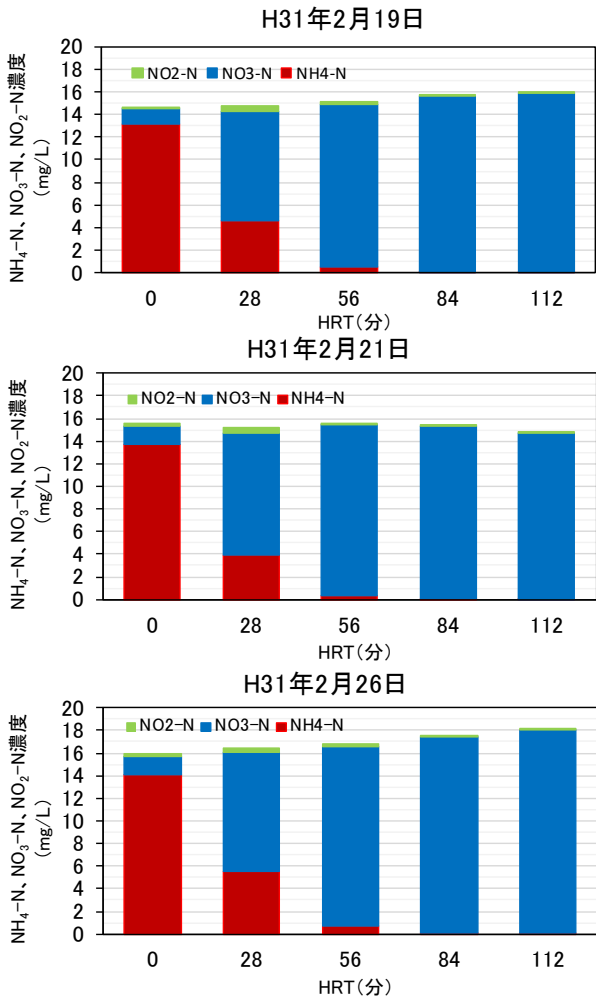


図-5 完全混合槽列型実験中の NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N の測定結果

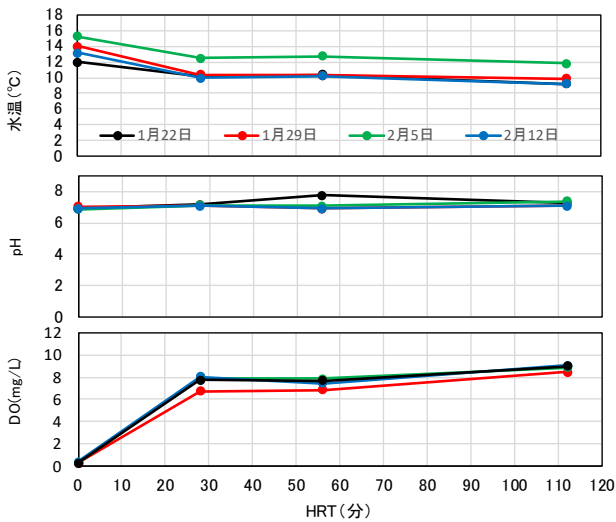


図-6 完全混合型実験中の水温、pH、DO の結果

果である。図-5 は完全混合槽列型処理実験中の 2/19、2/21、2/26 の結果である。完全混合型、完全混合槽列

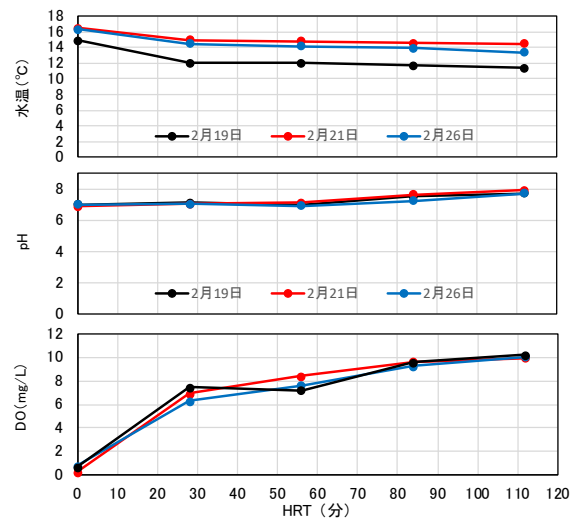


図-7 完全混合槽列型実験中の水温、pH、DO の結果

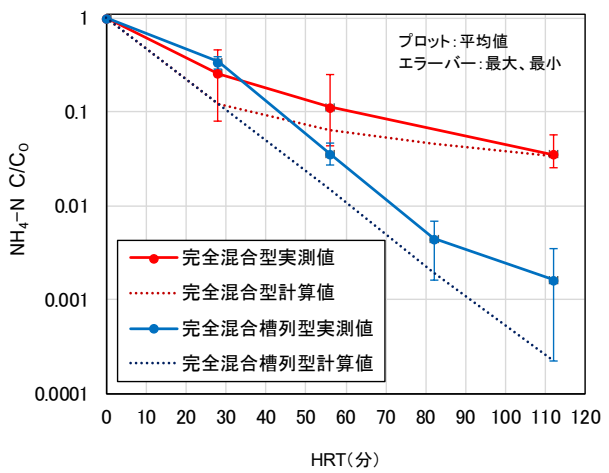


図-8 HRT と NH<sub>4</sub>-N (C/C<sub>0</sub>) の関係

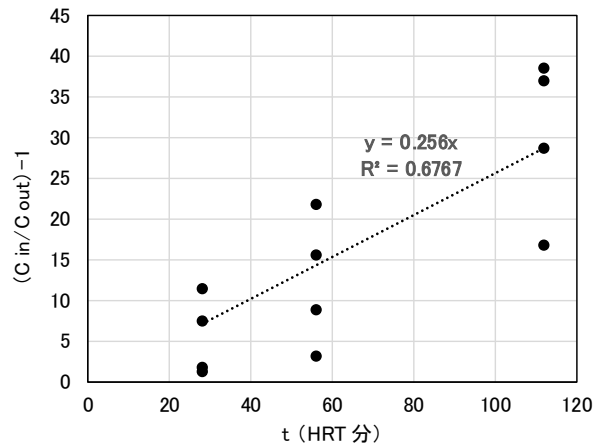


図-9 完全混合実験における t(HRT) と (C in / C out) - 1 の関係

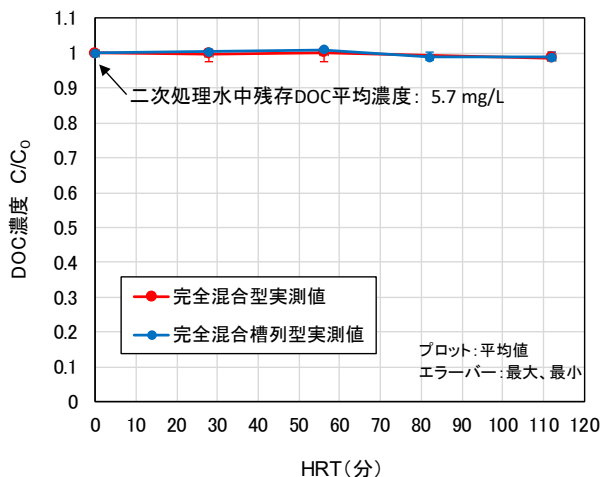


図-10 HRTとDOC(C/C<sub>0</sub>)の関係

型のいずれも HRT 56 分の条件で、NH<sub>4</sub>-N の約 90% 以上が NO<sub>3</sub>-N に変化していた(ただし 2 月 12 日は除く)。

図-6、7 に各担体処理槽流出水の水温、pH、DO の測定結果を示した。完全混合型と完全混合槽列型の HRT 56 分の処理水の平均水温は 10.9°C、13.7°C で、完全混合槽列型処理水が約 3°C 高い条件であった。pH は 7 付近で硝化に伴う低下は見られなかった。DO は完全混合型、完全混合槽列型とも 6 mg/L 以上あった。

原水の NH<sub>4</sub>-N 濃度を C<sub>0</sub>、微生物保持担体処理水の NH<sub>4</sub>-N 濃度を C として C/C<sub>0</sub> を算出し、HRT と C/C<sub>0</sub> の関係を図-8 に示した。図より NH<sub>4</sub>-N 低減率 90% を得るのに必要な処理時間 (HRT) は 45~60 分、99% の低

減率は槽の混合特性によって大きく異なる結果となったが、完全混合型では約 120 分以上、完全混合槽列型では、約 70 分となった。

完全混合型と完全混合槽列型の HRT 28 分の全条件で、NO<sub>2+3</sub>-N の生成量から平均硝化速度を算出すると、硝化速度は 18.8 mg-N/L・h (0.45 kg-N/m<sup>3</sup>・d) となった。硝化脱窒運転を行っている活性汚泥法での単位活性汚泥当たりの硝化速度は、3 mg-N/mg-SS・h 程度<sup>4)</sup>であることから、本実験の微生物保持担体は、6.3 g/L 相当の活性汚泥に匹敵していることとなる。微生物保持担体上に高濃度の硝化細菌が存在していたことがわかる。嫌気-無酸素-好気法の好気槽に担体を添加したパイロットプラントの実験で、水温 15°C 時の好気槽での最大硝化速度が 0.4 kg-N/m<sup>3</sup>・d であったとの報告<sup>5)</sup>があり、本研究で得られた硝化速度と近い値であった。

担体処理槽の混合特性で NH<sub>4</sub>-N の低減効果を比較すると、HRT 60 分以降で完全混合槽列型の NH<sub>4</sub>-N 低減効果が高いことがわかる。以下で、これが妥当かどうかを理論的観点から検証する。

完全混合槽列型の処理水中の濃度は、反応速度定数を 1 次反応とすると以下の式で表される。

$$C_{out} = C_{in} / (1 + kt/N)^N \quad \dots \text{式(1)}$$

ここで、C<sub>in</sub> : 流入濃度(mg/L)

C<sub>out</sub>: 流出濃度(mg/L)

k : 反応速度定数(1/min)

表-2 簡易沈殿処理実験結果と排水基準

	流入水			処理水(A)			処理水(B)			排水基準
	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	
水温 (°C)	19.2	20.5	22.0	13.9	15.8	17.0	13.7	16.0	17.3	-
pH (-)	7.2	-	7.4	7.3	-	7.3	7.2	-	7.3	5.8 - 8.6 <sup>*1</sup>
ORP (mV)	-175	-166	-156	-276	-268	-260	-272	-267	-262	-
BOD (mg/L)	37	66	108	41	63	88	38	64	105	160 <sup>*2</sup>
COD (mg/L)	35	48	69	37	41	45	37	41	43	160 <sup>*3</sup>
SS (mg/L)	44	70	120	25	32	39	23	29	36	200
DOC (mg/L)	17	22	28	21	26	31	23	27	31	-
TN (mg/L)	24	30	36	21	24	26	22	24	26	120 <sup>*4</sup>
TP (mg/L)	2.6	3.2	3.8	2.1	2.4	2.6	2.2	2.4	2.6	16 <sup>*4</sup>
Pb (µg/L)	0.31	0.42	0.65	0.27	0.35	0.40	0.27	0.33	0.39	100
As (µg/L)	0.72	0.81	0.92	0.68	0.74	0.80	0.62	0.72	0.82	100
B (µg/L)	58	61	73	60	61	62	59	60	62	10,000
Cu (µg/L)	13	18	24	15	17	18	15	16	18	3,000
Zn (µg/L)	25	34	50	24	25	28	22	26	30	2,000
Fe (µg/L)	2,300	2,700	4,200	570	780	920	550	770	880	10,000
Mn (µg/L)	73	77	86	49	55	60	48	55	58	10,000
通水量 (mL/min)	-	-	-	330	354	375	305	346	370	-
沈殿時間 (hr)	-	-	-	11.1	10.3	9.8	12.0	10.6	9.9	-

※1: 海域以外の公共用水域に排出

※2: 海域及び湖沼以外の公共用水域に排出

※3: 海域及び湖沼に排出

※4: 湖沼植物プランクトンの著しい増殖をもたらすおそれがある湖沼として環境大臣が定める湖沼、海洋植物プランクトンの著しい増殖をもたらすおそれがある海域として環境大臣が定める海域及びこれらに流入する公共用水域に排出

t : 滞留時間(min)

N : 槽数

式(1)を、 $N=1$  とし、 $y=ax$  型に、変形すると式(2)が得られる。

$$(C_{in}/C_{out}) - 1 = kt \quad \dots \text{式(2)}$$

t に対して、 $(C_{in}/C_{out}) - 1$  をプロットすると k を得ることができる。図-9 は、完全混合型の実験データをプロットし、k を近似法で算出した結果である。その結果、ばらつきが大きいものの、 $k = 0.256$  (1/min) が得られた。得られた k を用いて、完全混合型と完全混合槽列型の  $C/C_0$  を計算した結果を、図-8 内に点線で示した。

本計算結果からも、完全混合槽列型は、完全混合型よりも同滞留時間でも処理水濃度を低くすることができる。例えば、HRT 56 分で 1 槽型と 2 槽型の処理水濃度を比較すると、2 槽型は、1 槽型の 1/3 (計算値では 1/4) まで低減できることがわかる。この結果から、高濃度の  $\text{NH}_4\text{-N}$  が残留する処理水や流入量変動が大きい場合は、完全混合型槽列型が有効になる可能性がある。

図-10 に DOC について HRT と  $C/C_0$  の関係を示した。二次処理水中残存 DOC 濃度は約 5.7mg/L であったが、DOC は微生物保持担体処理ではほとんど低減しない結果となった。微生物保持担体による DOC の低減効果は前年度<sup>6)</sup>と同様の結果であった。

### 3.2 簡易沈殿処理における金属類の除去特性

実験結果と各項目の排水基準を表-2 に示す。流入水の平均水温は 20.5°C、処理水 (A)、処理水 (B) の平均水温はそれぞれ 15.8°C、16.0°C であり、約 10 時間の沈殿で水温が約 4°C 低下した。流入水、処理水の pH の値はほぼ同じであった。また、流入水の ORP は -166mV、処理水 (A)、処理水 (B) の ORP はそれぞれ -268mV、-267mV であり、約 10 時間の沈殿処理により流入水は、より強い還元状態に変化していた。

本実験の流入水は、図-3 に示したとおり、実下水処理場の流入下水を用いているが、幾つかのピットを経由していることもあり、一般的な流入下水の水質<sup>7)</sup>に比べ低い値となっており、BOD、COD、SS、DOC、TN、TP の平均値は、それぞれ 66 mg/L、48 mg/L、70 mg/L、22 mg/L、30 mg/L、3.2 mg/L であった。分析した金属類の Pb、As、B、Cu、Zn、Fe、Mn の平均値は、それぞれ 0.42 μg/L、0.81 μg/L、61 μg/L、18 μg/L、34 μg/L、

2,700 μg/L、77 μg/L であり、Cd、Se、Cr の 3 元素は不検出であった。本実験では、排水基準項目を対象としたこともあり調査対象金属類の添加による濃度調節は行っていない。比較的高濃度で検出された Fe は排水基準値の約 1/4、他の金属類は排水基準値の約 1/60 以下であった。

表-2 に示すとおり、処理水 (A) の BOD、COD、SS、DOC、TN、TP の平均値は 63 mg/L、41 mg/L、32 mg/L、26 mg/L、24 mg/L、2.4 mg/L であった。同一条件で行った処理水 (B) の値は、処理水 (A) とほぼ同じ値であり実験は再現されていたことが分かる。

これらの結果から約 10 時間の沈殿処理による除去率を算出すると BOD は 4~6%、COD は 14~15%、SS は 55~58%、TN は 18~19%、TP は 23~24% であった。これらに対し DOC は沈殿処理することにより、その濃度が 17~19% 増加する結果となった。BOD、COD、SS、TN、TP の除去は、浮遊物質の沈降により除去されたものと考えられる。DOC の増加は、約 10 時間の沈殿処理による強い還元状態のなかで嫌気性分解により一部の有機物が可溶化したものと考えられる。

金属類は、排水基準値に比べ低い濃度ではあるが沈殿処理による除去率を算出した。Pb 除去率は 17~23%、As は 9~11%、B は 1~2%、Cu は 8~9%、Zn は 23~24%、Fe は 71%、Mn は 29% であった。本実験で対象とした金属類は、下水処理において処理困難物質とされている物質であるが、簡易沈殿処理における除去率は 30% 以下であり除去が困難な物質であることがわかった。しかし、比較的高濃度の Fe は、沈殿処理によって 71% が除去されていた。還元状態の強い嫌気性条件下において硫化鉄となり沈殿除去されたものと考えられる。

## 4. まとめ

微生物保持担体を用いて下水処理水中に残存するアンモニア性窒素の低減効果をプラント実験から調査した。また、流入下水の簡易沈殿処理実験を行い排水基準項目の金属類を対象として除去特性の調査を行った。

本研究で得られた知見は以下のとおりである。

- 1) 微生物保持担体処理は、硝化活性が低下する冬季 (水温 10~15°C、原水中  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度約 12 mg/L) においても、45~60 分の処理時間 (HRT) で  $\text{NH}_4\text{-N}$  を 1/10 に低減できることを明らかにした。
- 2) 本実験での硝化速度は 18.8 mg-N/L・h であった。

- 3) 完全混合槽列型による微生物保持担体処理は、完全混合型単独槽よりもNH<sub>4</sub>-Nの低減効果は大きくなることを実験および計算から確認した。
- 4) 下水処理において処理困難物質とされている有害物質等のPb、As、B、Cu、Zn、Mnは、簡易沈殿処理における除去率は30%以下であり除去が困難な物質であることがわかった。しかし、Feは、沈殿処理によって71%が除去された。

## 5. 今後の予定

微生物保持担体によるNH<sub>4</sub>-Nの低減技術の開発については、曝気量削減による省エネルギー化および実用化に向けた検討を重点研究「下水処理水に残存するアンモニア性窒素の低減技術と水生生物の影響評価に関する研究（R元～3）」中で行う予定である。微生物保持担体処理による微量有害物質の低減効果については、最新の網羅的分析手法を導入し、引き続き、調査していく予定である。

## 参考文献

- 1) 小川文章、小森行也、村田里美、鈴木裕識:下水処理工程における化学物質等の除去特性及び生物影響に係る検討業務、平成29年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.83-84、2018
- 2) 日本下水道協会:下水道維持管理指針2003年版、pp.20-49、平成15年8月
- 3) 国土交通省:河川水質試験方法(案)[2008年版]、平成21年3月、国土交通省水質連絡会、[http://www.mlit.go.jp/river/shishin\\_guideline/kasen/suishitsu/houhou.html](http://www.mlit.go.jp/river/shishin_guideline/kasen/suishitsu/houhou.html) (令和元年9月12日閲覧)
- 4) 高橋正宏、小越真佐司、鈴木穰:下水道高度処理施設設計指針改訂の考え方、北海道大学第1回衛生工学シンポジウム論文集、p.261、1993
- 5) 高橋正宏、鈴木穰:固定化微生物を用いた高度処理プロセスの実用化に関する研究、平成6年度、下水道関係調査研究年次報告書集、pp.173-174、1995
- 6) 小川文章、對馬育夫、小森行也:公共用水域における健康・生態リスクが懸念される化学物質の制御に関する研究、平成29年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.89-91、2018
- 7) 日本下水道協会:平成28年度版下水道統計、第73号、平成30年12月

## 13.2.2 公共用水域における消毒耐性病原微生物の管理技術に関する研究（公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案、高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価）

担当チーム：材料資源研究グループ（資源循環担当）

研究担当者：重村浩之、諏訪守、李善太

### 【要旨】

本研究は、①消毒耐性を有する病原微生物に対応した代替指標の提案、②公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案、③高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価、④リスク要因に応じた管理技術の提案、の各項目を達成目標に掲げ実施するものである。30年度は、上記②、③の達成目標に関わる調査・研究として、実態調査に基づき合流式下水道越流水対策技術の1つである雨天時活性汚泥法のノロウイルス（Norovirus: NoV）削減効果を明らかにした。また、活性汚泥法による NoV の除去効率向上要因の解明のため、活性汚泥中に存在するタンパク質量が NoV の除去効果に及ぼす影響を評価した。次いで、膜分離活性汚泥法（Membrane Bioreactor: MBR）による NoV の除去率向上効果に関して調査を行なった。その結果、雨天時活性汚泥法による NoV 負荷の削減効果は、過年度分を含めた9回の調査の平均で95%であった。活性汚泥処理による NoV の除去効果に活性汚泥中のペプチド量（タンパク質）が深く関与している可能性が示唆された。MBR による NoV の除去効果は、通常の活性汚泥法と比較して2～3 オーダー程度向上していた。

キーワード：合流式下水道越流水、ノロウイルス、タンパク質、膜分離活性汚泥法

### 1. はじめに

グローバル化にともなう多様な感染症を含め水系感染症拡大防止に貢献できる下水道システムの構築は、社会的優先度の極めて高い課題として、評価、対策技術を早急に確立する必要がある。従来、大腸菌、一部のウイルスを指標として衛生学的評価を行ってきたが、多種多様な病原微生物の出現により、検出・対策技術の評価が困難となることが予想される。分子生物学的手法の発展により、社会活動に重大な影響を及ぼす病原微生物の知見が集積されつつあり、新興感染症の病原微生物として一部のウイルスや、再興感染症として多剤耐性菌などが大きな社会問題<sup>1,2)</sup>となっているが、対策手法構築のために必要な除去・消毒感受性の体系化された研究・調査は進んでいない。公共用水域の水質管理のためには、その水質に大きな影響を及ぼす下水処理場にて、多様化する重大な感染症要因である消毒耐性病原微生物への効率的な対応を図る必要があり、包括的な観点に基づく評価手法を構築した上で、対策手法を提案することが必要である。

本研究では、上記を踏まえ、様々なリスク要因に対応した包括的な観点に基づく評価手法の構築と、放流先水利用や異常時・災害時に対応した水処理・消毒技術の開発を目的とするものである。30年度は、達成目標である公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案に関わる調査・研究として、越流水の対策技術の1手法であ

る雨天時活性汚泥法による NoV の削減効果を評価した。高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価に関しては、活性汚泥中のタンパク質量が NoV の除去効果へ及ぼす影響や、MBR による NoV の除去率向上効果について調査を行なった。

### 2. 研究目的および方法

#### 2.1 公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案

下水道の普及に早くから取り組んできた一部の自治体においては、下水と雨水の排除を同一の管渠とした合流式下水道を採用している。合流式下水道では降雨時において、雨水量が増加し下水処理場において処理対応が困難になる場合には、未処理下水が公共用水域へ放流されることから、衛生学的な安全性を担保するため合流式下水道越流水の対策技術の構築が必要となる。本研究においては、越流水対策技術の1つである雨天時活性汚泥法による NoV の負荷削減効果を明らかにすることを目的に、H市の下水処理場（嫌気好気法を導入：処理フローの概略は図-1）において実態調査を行った。晴天時の受け入れ可能な流入水量である1Q分に対し、降雨時には最大の受け入れ流入水量を3Qとし、2Q分の流入下水を反応タンクの後段にバイパス流入させ処理を行うことができる。本調査では、降雨時の雨天時活性汚泥法の運転直後から

終了時まで、流入下水、最初沈殿池流出水、二次処理水を採水し NoV 濃度を測定することで、その削減効果を明らかにした。

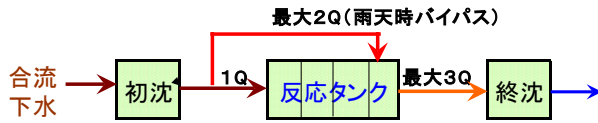


図-1 雨天時活性汚泥法の概略図

NoV の測定は、安定した定量値を得るため試料の濃縮は PEG 沈殿法とした。PEG 沈殿法により回収した沈渣を RNase-free 水（遺伝子分解酵素を除去した水）に再浮遊させてウイルス濃縮液とし、濃縮液中のウイルスは、リアルタイム RT-PCR 法により定量を行った。ウイルス遺伝子の抽出は、ウイルス濃縮液から QIAamp Viral RNA Mini Kit (QIAGEN 社) の抽出カラムを用いたグアニジン法とした。抽出した RNA に微量に含まれている DNA を除去するため DNaseI 処理し、RNeasy MinElute Clean up Kit (QIAGEN 社) でウイルス RNA を精製した。上記で抽出したウイルス RNA 試料 0.5 $\mu$ g をランダムプライマー、Omniscrypt RT Kit (QIAGEN 社) を用い全量 50 $\mu$ L の系で逆転写反応により cDNA を作製し 5 $\mu$ L をリアルタイム PCR に供した。NV の検出に用いたプライマー、プローブおよび反応条件は、「ノロウイルスの検出法について」<sup>3)</sup>に準じた。リアルタイム PCR 反応のための試薬は QuantiTect Probe PCR Kit (QIAGEN 社) を用い、リアルタイム PCR 装置は QuantStudio™ 12K Flex Real-Time PCR System (Thermo Fisher Scientific) を使用した。逆転写反応に使用する抽出 RNA 量は Spectrophotometer (NanoDrop 社製) により定量した。なお、ウイルス遺伝子抽出カラムへのウイルス濃縮液の通水量は、検出濃度にバラツキが生じないように抽出カラム 1 本あたり 0.05mg-SS となるように統一した<sup>4)</sup>。他の水質分析項目は濁度、SS とした。

## 2.2 活性汚泥中のタンパク質と NoV 除去効果の関係

NoV は、活性汚泥法により 2 log 程度の除去効果が得られるが、活性汚泥法の変法である生物学的高度処理法では 3 log 程度に向上する報告がある<sup>5)</sup>。感染性胃腸炎の流行により、流入下水中の NoV 濃度が高まることから、放流先の水利用の状況によっては、下水処理場においてより高度な除去効果が必要となることも予想される。

本項では、活性汚泥法による NoV の除去効果を高めるための 1 要因を明らかにすることを目的に、昨年度に引く続き吸着効果に関与が推定される活性汚泥中のタンパク質と NoV の除去能力との関係性を評価した。

処理プロセスが異なる活性汚泥を評価対象として、生

物学的高度処理法を導入している I 下水処理場の A<sup>2</sup>/O 法の好気槽 (A<sup>2</sup>/O 法)、I 下水処理場内の活性汚泥処理プラントの反応タンクから活性汚泥 (標準法) を各々採取した。各々採取した活性汚泥は、静置沈殿させ上澄液などの取り除き流入下水を 15L 添加することで、MLSS 濃度が 500、1,000、2,000mg/L となるように 30L の反応系を 6 ケース (2 種類の活性汚泥×MLSS 濃度が 3 ケース) 作成した。この 30L の反応系を利用し回分実験として 7 時間の曝気混合後に混合液を採取、その後静置沈殿させ上澄液を採水した。回分実験から得られた上澄液については NoV と SS を測定した。NoV の測定法は上記 2.1 と同様である。タンパク質については、20mL の試料を 2,400×G、15 分間、4°C にて遠心分離を行い上澄液と沈渣に分別し、上澄液には滅菌蒸留水を加え 20mL としタンパク質測定用試料とした。沈渣からのタンパク質の抽出は抽出液を添加、超音波処理による手法を参照した<sup>6)</sup>。抽出液として 50mM リン酸緩衝液+1%SDS を 20mL になるまで添加、攪拌混合の後、10 分間の超音波処理、その後、遠心分離により上澄液と沈渣に分別、同様の操作を繰り返すことで 2 回の抽出操作を行った。最終的には、遠心分離・抽出処理後に得られた全ての上澄液をタンパク質測定用試料として Bicinchoninic Acid (BCA 法) により測定を行った<sup>7)</sup>。BCA 法における標準タンパク質としては、牛血清アルブミンを希釈して利用した。また、上澄液は透析膜により 3KDa 以下、3~10KDa 以下、10KDa 以上に分子量分画を行った後にタンパク質を測定した。

## 2.3 MBR による NoV 除去効果の向上評価

活性汚泥処理水や再生水の水質向上などを目的として膜分離技術の導入が徐々に行われつつある。除去対象物質に応じて膜の公称孔径は精密 (MF 膜)、限外 (UF 膜)、逆浸透 (RO 膜) などに大別されるが、MF 膜が多く用いられている MBR の適用事例は平成 23 年 3 月時点で 16 箇所となっている<sup>8)</sup>。SS や細菌類の除去により良好な水質が得られるとともに、ウイルスの除去効果が高いとの報告事例<sup>9)</sup>があるが、限られた知見である。

本項では、下水の高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価の一環として、MBR による NoV の除去効果を把握した。

除去効果を把握するため、I 下水処理場内の活性汚泥処理プラントの生物反応槽に MF 膜 (無機系/平幕/孔径 0.1 $\mu$ m) を浸漬させ膜ろ過水を得た。HRT を約 8 時間とした連続処理により MLSS 濃度を徐々に高め 3,300~7,400mg/L の範囲で評価を行った。また、NoV とともに大腸菌を測定した。NoV の測定法は上記 2.1 と同様であり、大腸菌は QT トレイによる MPN 法とした。



### 3. 研究結果および考察

#### 3.1 公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案

降雨時に越流水対策として雨天時活性汚泥法（嫌気好気法）を導入している H 市下水処理場における NoV 負荷の削減効果の調査結果を図-2 に示す。これは過去に得られた調査データを加え整理した結果である。全調査時における降雨状況は、時間最大降雨量が 2.0～18.5mm、累積降雨量は 9.5～54mm であった。また、最大バイパス流量は 0.3～1.7Q であった。雨天時活性汚泥処理時における NoV 負荷の削減効果は、流入負荷量を 1 とし流入負荷量に対する処理水の負荷量比を求めたところ 0.016～0.115 であった。雨天時活性汚泥処理を実施しなかったとすると、晴天時の受け入れ可能な流入水量である 1Q 分を超過した NoV の負荷が公共用水域へ直接放流されることとなることから、雨天時活性汚泥処理により放流先河川水への負荷を大幅に低減しているものと考えられた。処理水の負荷量比に大きな違いが見られたことから、その要因を推定するため雨天時活性汚泥処理時における反応タンク内の MLSS や雨天時活性汚泥処理の継続時間と NoV 流出負荷の関係について、各々整理した結果を図-3、4 に示す。雨天時活性汚泥処理開始当初の反応タンク内（バイパス流入槽の前段での評価）の MLSS は約 1,300～1,700mg/L で推移しており、MLSS が高まることで NoV の流出負荷が若干低くなる傾向が見られるものの、明確な関連性はない状況であった。併せて、雨天時活性汚泥処理の継続時間との関係では、3.3～13.8 時間の間において累積降雨量が 9.5～25mm の 10 時間以内であれば処理継続時間と NoV の流出負荷に関連が見られたが、50mm 程度であった 10 時間以上では NoV の流出負荷が低下傾向を示した。一方、反応タンク内の MLSS の上昇は、雨天時活性汚泥処理時における SS の流出が懸念されることから、MLSS と処理水の平均 SS を整理し図-5 に示す。全体的には MLSS が高くなっても処理水の平均 SS 濃度は上昇傾向を示しておらず、SS の観点から処理水質へ及ぼす影響は小さいものと考えられた。

全 9 回の降雨時調査における NoV 流出負荷の平均は 0.052 であり流入負荷量に対する除去効果は約 95% であった。

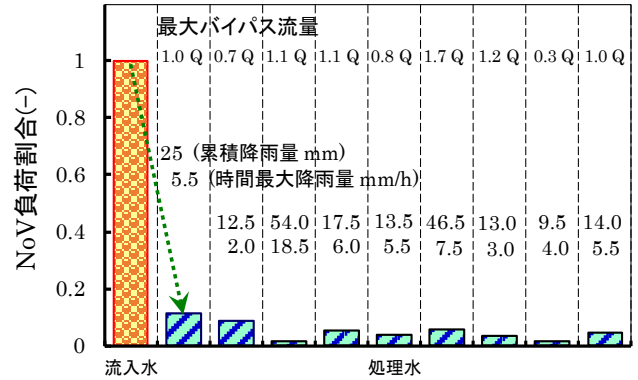


図-2 雨天時活性汚泥処理法によるNoV負荷の削減効果

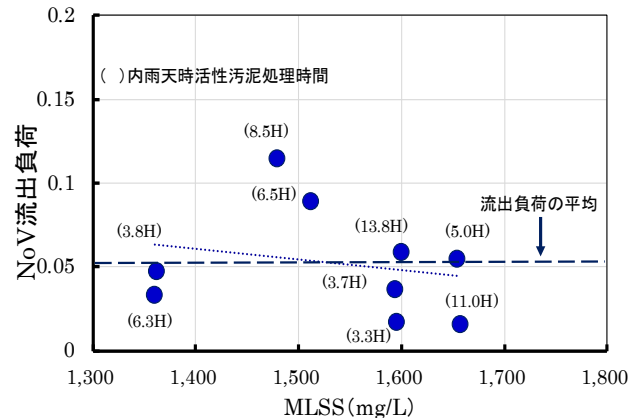


図-3 反応タンク内MLSSとNoV流出負荷との関係

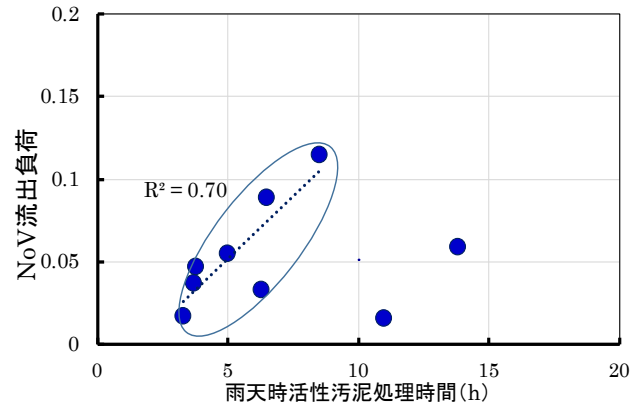


図-4 雨天時活性汚泥処理時間とNoV流出負荷との関係

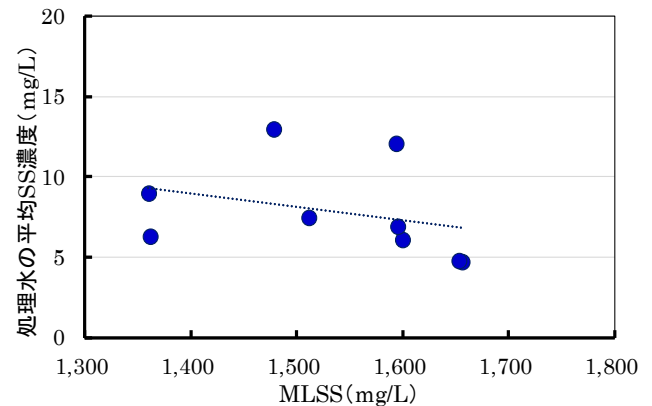


図-5 反応タンク内MLSSと処理水のSSとの関係

### 3.2 活性汚泥中のタンパク質と NoV 除去効果の関係

過年度に実施した3回分の回分実験結果を含め整理した結果を図-6に示す。なお、分子量分画において10KDa以下のものをペプチド、10KDa以上をタンパク質として整理した。単位水量あたりの活性汚泥中には10KDa以上のタンパク質が最も多く、次いで、3KDa以下、3~10KDa以下のペプチドの順であり、かつ、A<sup>2</sup>O法の活性汚泥は標準法に比較してタンパク質、ペプチド量ともに多い状況であった。活性汚泥中のタンパク質やペプチド量と回分実験後における上澄液中のNoV濃度との間には高い相関関係があり、活性汚泥中のタンパク質・ペプチド量の増加に伴ってNoV濃度が低くなる傾向が見られた。

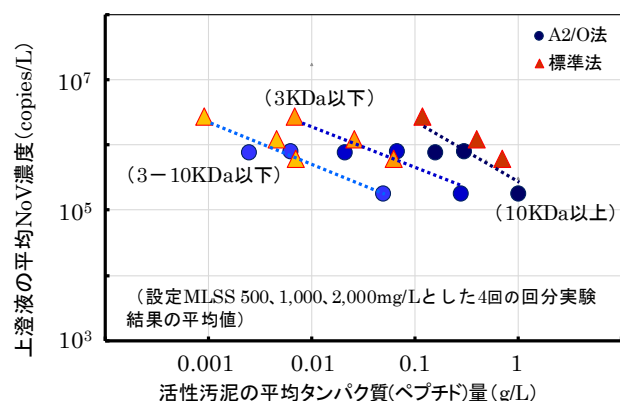


図-6 活性汚泥のタンパク質(ペプチド)量とNoV濃度の関係

次いで、図-6に示した活性汚泥中のタンパク質、ペプチド量についてA<sup>2</sup>O法と標準法ごとに整理した結果を表-1に示す。設定MLSS濃度を500、1,000、2,000mg/Lとした4回の回分実験結果の平均値を示したものであり、平均値の最小値は設定MLSSを500mg/L、平均値の最大値は設定MLSSが2,000mg/Lとしたものである。3KDa以下のペプチド量は標準法に比較してA<sup>2</sup>O法では最大4.5倍量、同様に3~10KDa以下のペプチド量は7.1倍量の違いが見られた。10KDa以上のタンパク質に関しては1.4倍量多かった。

A<sup>2</sup>O法の活性汚泥は、標準法に比較してペプチドやタンパク質の含有量が多く、特にペプチド量に大きな違いが見られた。これらの結果から、活性汚泥によるNoVの吸着除去効果にペプチドが深く関与している可能性が示唆された。

今後、次世代シーケンサーなどを活用し標準法とA<sup>2</sup>O法の活性汚泥中に存在するペプチド生成能に関与する細菌叢の違いを解明することで、NoVの除去効果向上要因の1つを明らかにできるものと考えられる。

表-1 タンパク質量とペプチド量の比較

	実験1~4の平均値 (g/L)		A <sup>2</sup> O法/標準法の比
	A <sup>2</sup> O法	標準法	
3KDa以下 (ペプチド)	0.021~0.28	0.0069~0.062	} 3.0~ <b>4.5</b>
3-10KDa以下 (ペプチド)	0.0025~0.05	0.00092~0.007	} 2.7~ <b>7.1</b>
10KDa以上 (タンパク)	0.16~1.0	0.12~0.7	} 1.3~ <b>1.4</b>

設定MLSS濃度500、1,000、2,000mg/Lとした4回の回分実験結果の平均値。平均値の最小値(g/L)は設定MLSSを500mg/L、平均値の最大値は設定MLSSが2,000mg/Lとしたものである。

### 3.3 MBRによるNoV除去効果の向上評価

MBRによるNoVの除去効果の向上評価に関わる調査結果を図-7に示す。調査期間中の流入下水のNoV濃度は10<sup>6</sup>~10<sup>8</sup>copies/Lレベルで推移しており、夏季と冬季において2オーダー程度の違いが見られた。MBR処理水のNoV濃度は10<sup>2</sup>~10<sup>3</sup>copies/Lレベルで推移しており、流入下水に比較して濃度の変動幅は小さい。MBRの実験装置の立上げ時から現状までの濃度推移について、MLSSのデータと併せ整理した結果を図-8に示す。MLSSは3,300~7,400mg/Lで推移したが、MLSSが低い状態でのNoVの除去効果は約3.2logであるのに対し、MLSSの上昇に伴い除去効果は向上し、最大の除去効果は5.2logとなった。MLSSとNoVの除去効果には相関関係が見られたが、MLSSが6,000mg/L以上となることで、NoVの除去効果にやや変動があるものの、除去効果の向上が見込めない状況であった。今回のMBRでのMF膜は公称孔径が0.1μmの平膜であり、ウイルスが通過できる孔径ではあるが、MLSSの上昇とともにNoVの除去効果が向上していることから、活性汚泥のフロック形成時にウイルスが取り込まれ、粒径の大きいフロックが膜に捕捉されることでNoVの除去効果が向上するものと推定された。また、MLSS上昇による膜透過流速の低下や膜面におけるケーキ層の形成なども考えられる。本調査期間中における

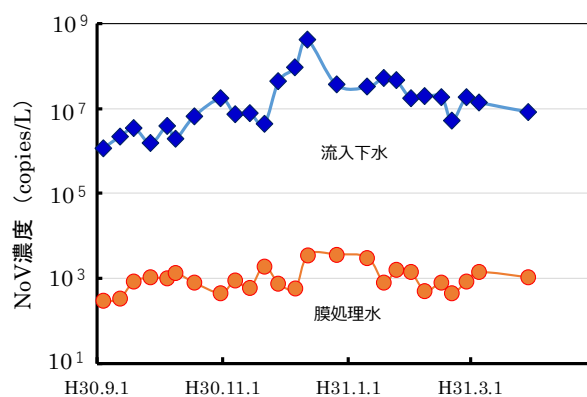


図-7 MBRでのNoV濃度の推移

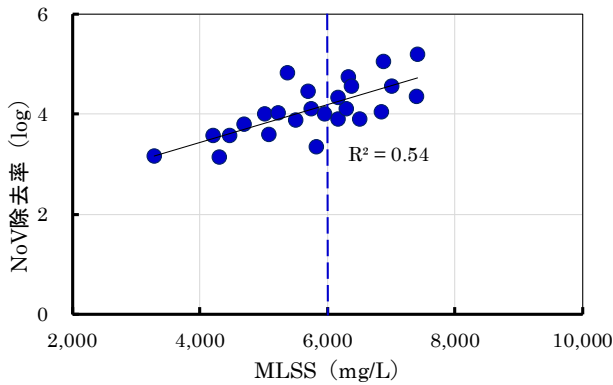


図-8 反応タンク内MLSSとNoV除去率の関係

NoVの最大除去効果は5.2log、MLSSが6,000mg/L以上の条件における平均除去効果は4.4log、同様に7,000mg/L以上では4.7logであった。MBRによるNoVの除去効果は通常の活性汚泥法と比較して2~3オーダー程度向上していた。

併せて測定を行った大腸菌の除去率の推移について図-9に示す。大腸菌は膜の公称孔径よりも大きいため過捕捉されることからNoVの除去効果よりも高い状況であった。流入下水の大腸菌濃度に影響を受け除去率が変動しているが、多くのデータは6log以上でありMBR処理水中の大腸菌濃度は定量限界値以下あるいは、採水時等において極微量の汚染の可能性があったことから、それに近い値となった。

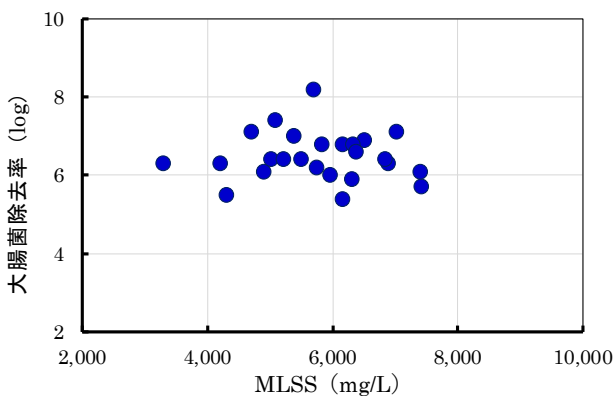


図-9 反応タンク内MLSSと大腸菌除去率の関係

#### 4. まとめ

本研究は、様々なリスク要因に対応した包括的な観点に基づく評価手法の構築と、放流先水利用や異常時・災害時に対応した水処理・消毒技術の開発を目的とするものである。30年度は、実態調査に基づき合流式下水道越流水対策技術の1つである雨天時活性汚泥法のNoV削減効果を明らかにした。また、活性汚泥法によるNoVの除去効率向上要因の解明のため、活性汚泥中に存在するタンパク質量がNoVの除去効果に及ぼす影響を評価した。次

いで、MBRによるNoVの除去率向上効果に関して調査を行なった。以下に得られた結果を示す。

#### 「公共用水域へ及ぼす越流水の影響評価と対策技術の提案」

1) 雨天時活性汚泥法によるNoV負荷の削減効果は、反応タンク内のMLSSが高まることでNoVの流出負荷が若干低くなる傾向が見られるものの、明確な関連性はない状況であった。

2) 全9回の降雨時調査におけるNoV流出負荷の平均は0.052であり流入負荷量に対する除去効果は約95%であった。

#### 「高度処理法などによる病原微生物の不活化・除去の向上評価」

3) 活性汚泥によるNoVの吸着除去効果にペプチドが深く関与している可能性が示唆された。

4) MBRによるNoVの除去効果は通常の活性汚泥法と比較して2~3オーダー程度向上していた。

#### 謝辞

本研究・調査を実施するにあたり、調査対象としたH市下水処理場、I下水処理場の下水道管理者には特段のご配慮・ご協力を頂いた。ここに記して謝意を表します。

#### 参考文献

- 1) 外務省：G7伊勢志摩首脳宣言、2016年5月27日、<https://www.mofa.go.jp/mofaj/files/000160267.pdf> (2019年9月閲覧)
- 2) CDC：ANTIBIOTIC RESISTANCE THREATS in the United States, 2013, <http://www.cdc.gov/drugresistance/threat-report-2013> (2019年9月閲覧)
- 3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部監視安全課：ノロウイルスの検出法について、2007, <https://www.mhlw.go.jp/topics/syokuchu/kanren/kanshi/031105-1.html> (2019年9月24日閲覧)
- 4) 諏訪守、岡本誠一郎、尾崎正明、陶山明子：下水処理のノロウイルス除去効果とその検出濃度に及ぼす濃縮法の影響、下水道協会誌論文集、Vol. 46(561), pp. 91-101, 2009
- 5) 諏訪守、岡本誠一郎、桜井健介：ノロウイルスの除去率に及ぼす下水処理法の影響因子、下水道協会誌論文集、Vol. 47(571) pp. 103-111, 2010
- 6) M. Ras, E. Girbal-Neuhauser, E. Paul, M. Sperandio, D. Lefebvre : Protein extraction from activated sludge: An analytical approach, *Water Res.*,42, pp. 1867-1878, 2008
- 7) Instruction of Pierce BCA Protein Assay Kit (Thermo Scientific).
- 8) 下水道膜処理技術会議：下水道への膜処理技術導入のためのガイドライン第2版、p.19、平成23年3月
- 9) 下水道におけるウイルス対策に関する調査委員会：報告書、p.11、平成22年3月

### 13.3 停滞性水域の底層環境・流入負荷変動に着目した水質管理技術の開発

#### 13.3.1 底層環境に着目した停滞性水域における水環境管理技術に関する研究（結氷する汽水湖の生物生息環境への支配要因の機構解明、結氷する汽水湖の貧酸素化予測手法の高度化、貧酸素化改善技術の開発と生物影響評価及び管理手法の提案）

担当チーム：寒地水圏研究グループ（水環境保全）  
研究担当者：村山雅昭、谷瀬敦、杉原幸樹

##### 【要旨】

網走湖において既往最大水位を更新した2016年の北海道豪雨時および2017年の融雪期に連続観測を行った。塩分、溶存酸素(DO)、濁度、3次元流速を1時間間隔で観測した。豪雨洪水時の観測結果から、湖水容量の2倍以上の流入があっても塩水が残存することが明らかとなった。さらに流出口では塩分が検出されず、DOが低下すること、湖心付近では塩淡境界が低下して塩分が流出する挙動が確認された。湖内に流入した淡水量と流出した塩水量から塩水が50倍ほどに希釈されるため、ほぼ塩分が検出されないこと、一方で塩水層に含有される硫化水素が残存するためDOが消費されることが分かった。流出塩水量を検討した結果、洪水イベントの総流入量と塩淡境界標高の変化量に相関関係があり、簡易推定が可能となった。さらに網走湖において塩水層の貧酸素水塊の解消を目的として、現地に気液溶解装置(WEP)を建設して酸素供給による水質変化について実水域で観測を行った。二ヶ月間の酸素供給を行った結果、装置周辺では溶存酸素の上昇が確認されたが、その範囲は非常に小さかった。硫化水素による酸素消費が大きく、溶存酸素として検出できないことが確認された。一方で酸素供給時に固体硫黄が析出して濁度が上昇することから、濁度をトレーサーとすると、底層水塊の流れに沿っておよそ120m四方に酸素供給効果が波及していることが確認された。また水質分析の結果から、WEPによる酸素供給によって、硫化水素の減少とともに、リン及び窒素の減少も確認された。このことから、特定標高の層における汽水性貧酸素水塊の無毒化及び栄養塩濃度の減少が可能であることが示唆された。

#### 1. 汽水湖沼の特性について

淡水と塩水が混合する汽水域は、生産力の高さから、漁業など生活の場として重要な水域である。一方で、汽水湖のように停滞性の強い場合には、塩水と淡水が明確な層構造を形成し、水域内の水質が鉛直方向に二分され、主に底層の塩水によって、水質障害が顕在化している<sup>1)</sup>。水質改善のためには塩水総量や長期変動を把握することは定量的な対策のためには必要不可欠である。猪鼻湖<sup>2)</sup>、十三湖<sup>3)、4)</sup>、宍道湖<sup>5)、6)</sup>など比較的浅い湖沼では風や潮汐によって塩水の消長が観測され、主に夏期に貧酸素水塊を形成して水質障害の原因となっている。一方で小川原湖<sup>7)、8)</sup>や網走湖<sup>9)、10)</sup>など深い湖沼では、塩水が局在化して恒常的に底層水質が悪化している挙動がみられる。局在化する塩水は無酸素化して、塩水層の水質悪化に加え、上層の淡水層にも影響を与える挙動が共通している。さらに塩淡境界位置は両湖沼ともに上昇傾向を示している。湖内水質を考慮する上で、塩水挙動を把握し、無酸

素水塊量を簡便に算出することは重要な課題である。

そこで、本研究は網走湖の無酸素水塊挙動を明らかにするため、2016年8月～2017年6月まで湖内複数点で自記計による観測を実施した。このとき、2016年の北海道豪雨時を含む連続観測データが取得できた。既往最大水位を更新する洪水時の結果をまとめ、湖内塩水と河川流入量について考察を行った。

#### 2. 観測方法

##### (1) 対象水域

対象水域の網走湖(図1参照)は北海道北東部に位置し、面積32.3km<sup>2</sup>、最大水深16.1m、平均水深6.1m、貯水量約2億3千万m<sup>3</sup>の海跡湖である。主な流入河川は網走川と女満別(メマンベツ)川であり、網走川が流入河川水量の約97%を占めている。平均水位は標高0.39m(水文水質DBより1971～2016年の川尻観測所平均)である。また下流部では網走川を通じてオホーツク海に接

続し、海水が遡上して湖内では塩水と淡水の二層構造を形成している。網走湖では内水面漁業が重要な産業であり、ワカサギ、シジミなど国内でも有数の漁獲量である。一方で塩水層は湖内に局在化して無酸素化しているため、無酸素水塊中の硫化水素やアンモニアなど有害物質が、強風等で淡水層に暴露し、たびたび大規模な斃死が生じ、水質改善が重要な課題である。なお、網走湖は例年12月～3月まで湖面が全面結氷し、氷厚は1mほどになる。結氷前後も塩水密度が高いために塩水と淡水が混合せず循環期は存在しない、さらに氷板により水面からの酸素供給が遮断されるため、湖水全体の酸素濃度が低下する挙動を示す。加えて、2016年8月17日～23日に台風7、9、11号が連続して通過し、網走湖内の川尻水位観測所で既往最高水位(標高2.4 m)を更新する洪水が発生した。また、網走湖の水位は潮位や洪水により標高-0.2～2.4 mで変動し、塩淡境界は標高4～7 mで表面水位とは独立に変動する。

(2) 機器観測、水質分析外

a) 鉛直観測

2016年9月7日に湖内全域の18地点(図1参照)で鉛直投下式の水質計(Hydrolab社、DS5)を用いて、湖内の水質分布観測を実施した。観測項目は水深、水温、DO、濁度、塩分、観測時の網走湖の水位は標高0.9 mであった。

b) 連続観測

図1中St.1～6に自記式観測器を係留し、1時間間隔で連続観測を行った。図2に観測標高の断面図を示す。下流側のSt.1(標高-2.0 m)、St.3(標高-5.0 m)、上流側のSt.5(標高-6.5 m)、St.6(標高-4.0 m)に水温塩分計(JFEアドバンテック製、Compact-CT)、クロロフィル濁度計(JFEアドバンテック製、Infinity-CLW)、光学式溶存酸素計(JFEアドバンテック製、RINKO-W)を設置した。さらにSt.2(標高-4.0 m)、St.4(標高-8.0 m)に超音波流速計(RDI製、Workhorse sentinel 1200 kHz)及び圧力式水位計(Onset Computer製 HOBO-U20)を設置した。全ての機器は設定標高になるように立上係留または架台を用いて係留した。観測期間は2016年7月13日～2017年5月31日である。ただし2016年12月6日～2017年2月8日は薄氷や漁業のために欠測、2017年4月24日～2017年5月9日は強風のため再設置できずに欠測している。

c) データ収集

降雨量、潮位など気象データは気象庁ホームページより網走観測所のデータを引用した。図1中本郷、川尻、大曲地点の水位、流量は国土交通省水文水質データベースより対象期間のデータを引用した。各データは毎正時データとして整理した。さらに湖心における、塩淡境界標高値(鉛直分布観測から塩分10の標高)について網走開発建設部ホームページより定期水質データより収集した。

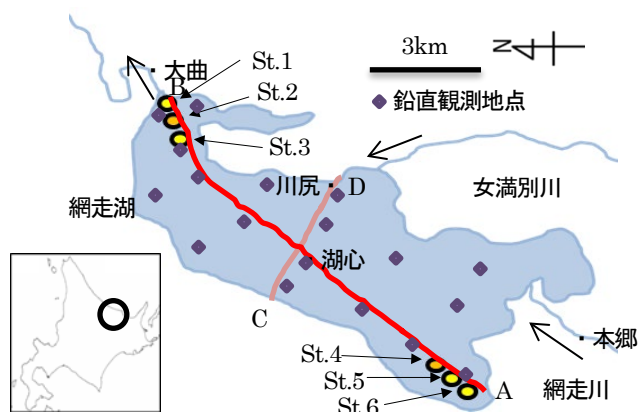


図1 観測地点図

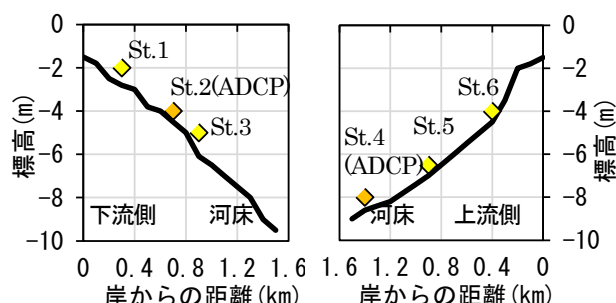


図2 設置断面図

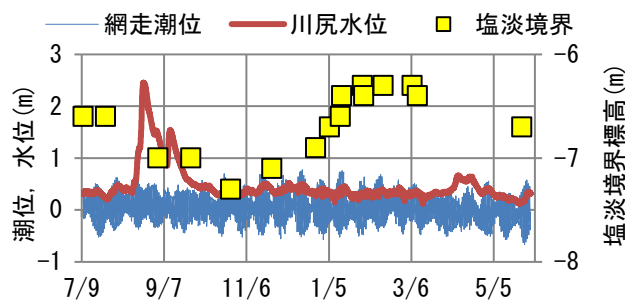


図3 水位、潮位、境界標高の変化

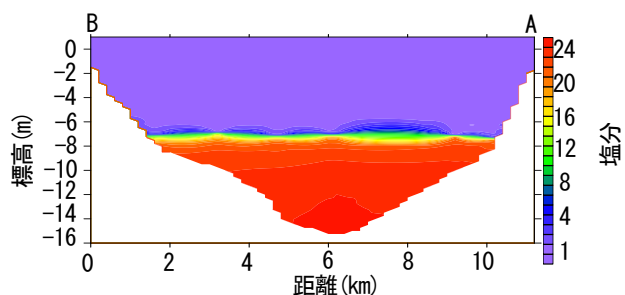


図4 AB断面の塩分分布(2016年9月7日)

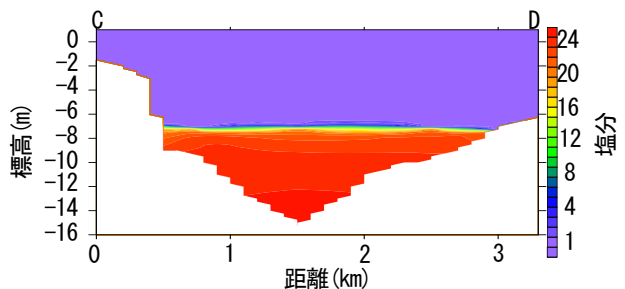


図5 CD断面の塩分分布(2016年9月7日)

### 3. 観測結果

#### (1) 鉛直観測結果

図3に2016年7月～2017年5月までの、湖内の川尻水位、河口潮位、湖心における塩淡水境界標高の経時変化を示す。8月下旬から洪水により湖内水位が上昇し、対応して塩淡水境界標高が下降している。12月からの結氷期には潮位が川尻水位を逆転する頻度が増加して、塩淡水境界標高は上昇に転じる。その後4月に融雪出水によって湖内水位の上昇と塩淡水境界標高の下降が起こっている。

本研究では流入河川水量と貯留塩水量の関係を明らかにするため、図3中2016年8月1日～2016年10月30日を夏期洪水、2017年3月15日～2017年5月31日を融雪洪水として抽出し、以下に整理する。

まず2017年9月7日に実施した鉛直機器観測より、図1中AB断面における塩分の観測結果を図4、CD断面を図5に鉛直断面コンターとして示す。なお、D点は湖内の漁港で岸壁である。標高-7mに明瞭な躍層を有し、湖内水平面内にはほぼ均一に躍層が分布して、明瞭な塩淡水二層構造を形成していた。このとき既往最大水位を更新した後であるが、底層に塩水水塊が残留することが明らかとなった。このため水温、DO、濁度も淡水と塩水で明瞭に分割され、淡水層内、塩水層内は各々、鉛直方向均一に分布する傾向が確認された。やや異なる特徴が確認されたAB断面のDO分布を図6に示す。塩水層は無酸素水塊が維持され、加えて下流側河床付近にDOの低下が確認された。洪水期間中のため塩水層の連行流下の影響と考えられるが、塩分は明瞭な上昇はみられなかった。

#### (2) 連続観測結果

##### a) 夏期洪水

当初、連続観測はセイシュによる塩水湧昇を観測する計画であった。結果的に塩水湧昇と思しき挙動は2時間ほどの継続で断続的にみられ、風速との関係は不明瞭であった。一方で、洪水時の連続データを取得した。

図7に夏期洪水時の気象および水位を示す。8月15日から断続的な降雨が約1ヶ月継続し、川尻水位が平水位に回復する9月30日までの約45日間高水位が継続していた。図8に下流区間(図2参照)の濁度および川尻水位の変化を示す。St.1は水位の変動に追従して変動しており、St.3は本郷水位(図7参照)に追従して変動していた。最初の上昇挙動となる8月19日から濁度が上昇し、水位のピークである8月22日以降は水位上昇に同調して濁度の変動が観測された。同様に塩分とDOの変化を図9に示す。台風通過前の8月1日前後、通過後の10月20日前後に塩分の上昇が確認され、St.1からSt.3に向かい濃度が低下しており、塩水が逆流していることが確認される。洪水中は全地点で8月19日に塩分が1.5から0.5に低下していた。また、川尻水位上昇中の8月15日から9月30日までの間はSt.1に比べSt.3のDOが低濃度で推

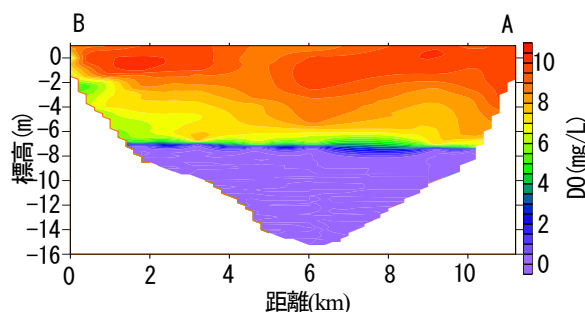


図6 AB断面のDO分布(2016年9月7日)

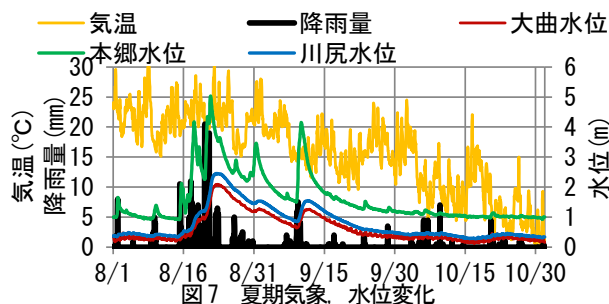


図7 夏期気象、水位変化

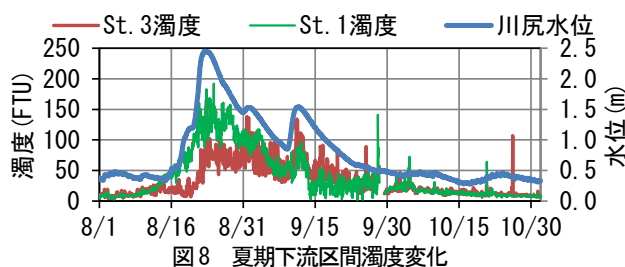


図8 夏期下流区間濁度変化

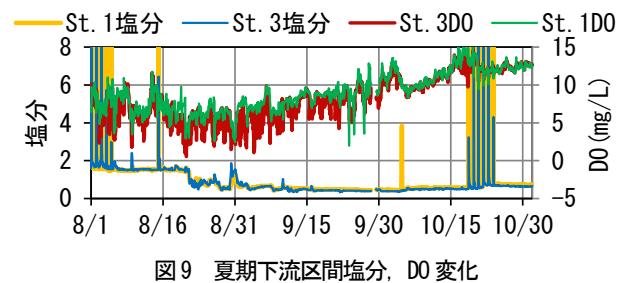


図9 夏期下流区間塩分、DO変化

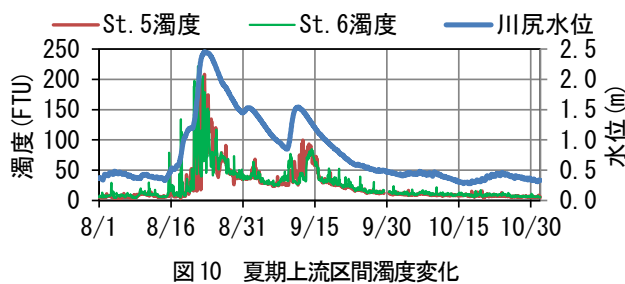


図10 夏期上流区間濁度変化

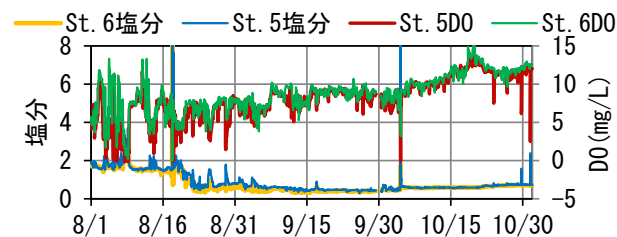


図11 夏期上流区間塩分、DO変化

移し、図6からも湖内塩水が流出したと考えられる。

図10に夏期出水時の上流側の濁度変化を示す。8月20日および9月10日前後に図8に比べ短期間の濁度上昇が確認され、標高毎の差はほぼ無かった。図11に上流側の塩分、DOの変化を示す。図9と同様に8月19日に塩分が1.5から0.5へと低下して、観測機器の設置標高-6.5m以浅では淡水となっていた。一方で8月17日、10月5日にSt.5の塩分上昇、DO低下がみられ、より浅いSt.6では対応する変動が小さかった。この挙動はセイシュに由来する塩水湧昇と推察されるが、St.1、St.3の挙動や風速などと明瞭な関係は見られなかった。DOをみると洪水前半の8月16日から8月31日まではSt.5はSt.6に比べ、やや低濃度で推移するが、その後は同程度であった。夏期洪水時は湖水位の上昇に伴って標高-6.5m以上で淡水化が進行し、標高が低いほど、DOの低下が観察された。加えて湖出口で淡水流出に伴う底層水の流出がDOの低下として顕著に観測された。7月9日(図3参照)の標高-7mの塩分は20であり、20倍以上の希釈によって塩分は1以下となり、連続観測塩分挙動に合致する。このとき塩水層にはアンモニアや硫化水素など還元性物質が多量に含まれおり<sup>1)</sup>、希釈されても溶存酸素を消費するには十分な濃度が存在していたと考えられる。

b) 融雪洪水

次に融雪洪水時の連続観測結果をまとめる。図12に融雪期の気象、水位変化を示す。4月1日より気温がプラスとなり水位上昇がみられ、4月25日には平水位となっていた。図13に下流側の濁度変化を示す。St.1の濁度は4月7日の水位ピークまで断続的に150FTUまで変動していたが、ピーク以降は濁度が低下し、清澄になっていた。St.3ではピークによらず低濁度で推移していた。このときの塩分、DO変化を図14に示す。4月17日~4月23日にSt.3で塩分の上昇とDOの低下が観測され、St.1に塩分上昇が見られないことから底層塩水の流出と考えられる。また、5月29日前後には塩水の逆流と降雨流入が同時に起こり、水位が上昇している。図15に上流側の濁度変化を示す。4月14日以降に濁度の上昇がみられるが、融雪期間では低濃度で推移している。塩分、DOを図16に示す。融雪洪水前の塩淡水境界標高は-6.4mであり、St.5の観測器は塩水層に貫入している。4月15日から4月16日にかけて一旦、塩分上昇(塩淡水境界が浅くなる)した後、淡水化(塩淡水境界標高が-6.7m)してDOが上昇する挙動を示した。4月前半の流入時には浅い層(St.1)に変化がみられるが、塩淡水境界付近には変化が見られなかった。しかし4月15日以降の流入時には塩水の流出、塩淡水境界の低下挙動が確認された。また、5月14日にはSt.6に及ぶまで塩水の湧昇が観察され、その後も断続的にDO低下が観察された。なお、4月1日前後のSt.6のDO挙動については要因が不明である。

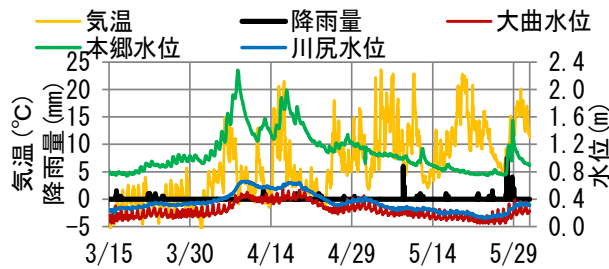


図12 融雪期気象、水位変化

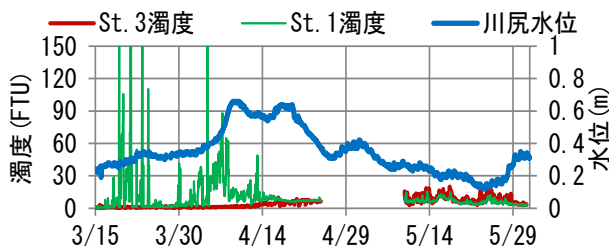


図13 融雪期下流区間濁度変化

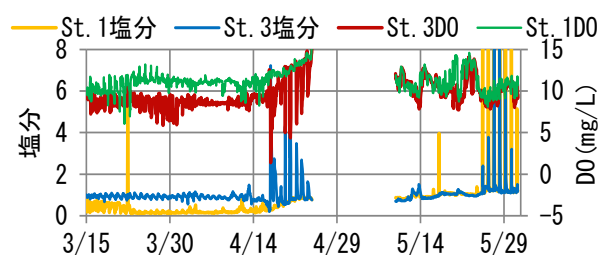


図14 融雪期下流区間塩分、DO変化

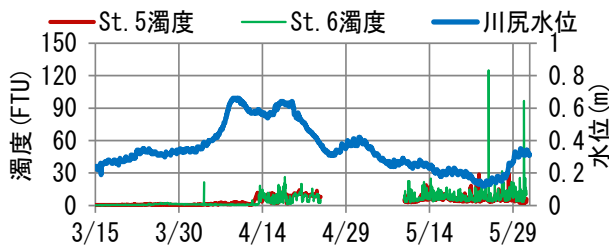


図15 融雪期上流区間濁度変化

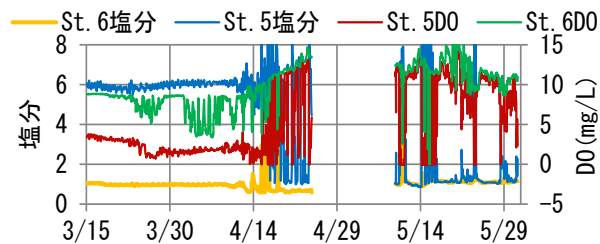


図16 融雪期上流区間塩分、DO変化

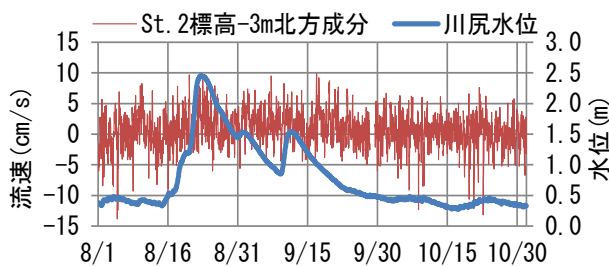


図17 超音波流速計観測結果例

c) 流向・流速変化

次に超音波流速計の観測結果をまとめる。図 17 に観測値の例として、夏期洪水時の St.2 の 8 割水深にあたる標高-3 m の北方流速の経時変化を示す。St.2 の他の標高および東方成分、St.4 の観測結果においても、川尻水位に応じた顕著な流速変化は確認されない。全ての観測結果はほぼ±15 cm/s で変動していた。このとき鉛直方向の流速は±1 cm/s で変動し、明確な湧昇流は観測されなかった。そこで平面内の水塊移動を検討するため、標高毎に北方成分と東方成分の流速値を各々、毎正時毎に正負そのまま加積算した分散図をまとめる。夏期洪水時は 8 月 1 日 0 時から 10 月 31 日 23 時までの積算、融雪洪水時は 3 月 15 日 0 時から 5 月 31 日 23 時までの積算とし、起算時を原点として作図した。なお、起算点により積算値は大きく異なるため、定性的な取扱いとする。図 18 に St.2 における積算値の分布を示す。なお、夏期洪水および融雪洪水時の St.2 の 8 割水深および 2 割水深に相当する標高-3 m、-1 m を抽出して図示する。St.2 では洪水の発生時期によらず東北東向きに水塊が移動していた。他の標高でのデータ 10 層分を含め鉛直方向均一に湖出口に向かって流出する挙動となっていた。また、塩水遡上時(図 9、図 14 参照)には西向きの流れが確認された。同様に St.4 における積算値の分布を図 19 に示す。なお、St.2 との比較のために同一標高と常に塩水中となる標高-7.5 m を抽出した。夏期洪水時には標高-1 m では初期は北西に移動するが、ピーク後の 8 月 22 日以降は南東方向に流向を変化させた。標高-3 m、標高-7.5 m では南東方向に移動し、ピーク後は南向きに流れを変えていた。融雪洪水時には全層で南向きに移動しており、St.4 においては洪水時に流下方向である北向きと逆方向に水塊が移動していることが確認された。また、積算量をだまかに比較すると St.2 と St.4 とともに夏期洪水時が融雪洪水の 3 倍程度多い結果となった。

(3) 塩水量の検討

洪水に伴い流出する塩水量を検討する。本郷、大曲地点(図 1 参照)の毎正時流量が 1 時間継続すると仮定して各洪水期間で積算した総水量、塩淡境界標高および横断測量結果から算出した塩水体積や湖水量をとりまとめ表 1 に示す。なお、大曲流量は塩分濃度を均一として平成 28 年の HQ 式より算出した。夏期洪水時の本郷総流入量は約 51 千万 m<sup>3</sup> に達し、平水時の網走湖容量の 2 倍に相当する流入であった。しかし塩水は残存し、流出した塩水は約 1 千万 m<sup>3</sup> である。これら本郷流入量と流出塩水量から塩水は約 50 倍に希釈されていると推察され、流出塩水層の塩分を 20 とすると洪水によって 0.4 まで濃度が低下する。このとき流出層には硫化水素が 100 mg/L 程度含まれ(標高-8m の硫化水素分析値および水塊酸素消費速度より<sup>11)</sup>)、50 倍希釈により 2 mg/L まで濃度が低下す

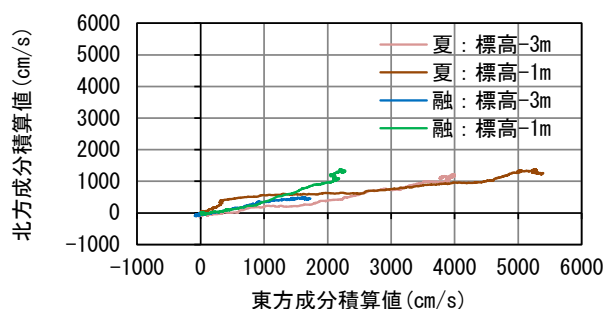


図 18 St. 2 における流速積算図

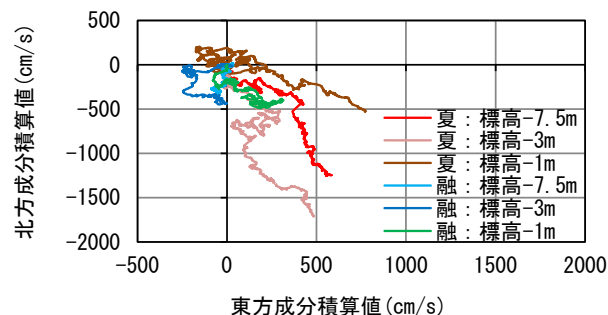


図 19 St. 4 における流速積算図

表 1 水収支とりまとめ

単位 : x10 <sup>7</sup> m <sup>3</sup>	夏期洪水	融雪洪水
本郷流入量	51.16	17.62
大曲逆流量	1.47	1.91
大曲流出量	52.04	21.56
塩水体積(洪水前)	8.07	8.38
塩水体積(洪水後)	7.04	7.91
塩水体積変化量	1.03	0.47

るが、同程度の酸素を消費することから図 6 に見られるように DO が 8 mg/L から 6 mg/L まで低下することになる。このため洪水時に塩分流出が観測されずに下流側の DO 低下が観測されることとなる。総量としての希釈効果はほぼ観測値と一致する結果であった。次に融雪洪水を見ると、本郷の総流入は約 18 千万 m<sup>3</sup> であり、夏期洪水が 3 倍ほど多く、超音波流速計の結果に反映されていることが推察される。また塩水の希釈は 36 倍に相当し、この場合も塩分濃度はほぼ検出されず、DO が低下すると考えられる。

塩淡境界標高と流入量の関係を検討するため、図 3 の結果に加え、図 16 の結果から 4 月 15 日の塩淡境界標高を-6.5 m とし、池永ら<sup>12)</sup> の 1998 年の観測結果を加え、図 20 に本郷積算流入量に対する塩淡境界標高の変化を示す。総流入量が増加するほど境界標高が低下しているが、初期値は様々である。このとき塩水容量は地形形状に影響を受けるため初期境界標高によって変化する。そこで洪水毎に境界標高の変化量として図 21 に示す。この結果から境界標高の変化量は初期値によらず流入量に依存する結果となった。一次式による最小二乗近似では決



定係数が0.91となり、相関性が強いことが示された。また塩淡水境界の初期値に依存しないことから、塩淡水界面のごく薄い層で、淡水と塩水が混合されると同時に流出が継続されて塩淡水境界が低下することが示唆される。さらに図21の結果から本郷積算流入量のみで塩水流出量が推定可能と示唆される。池永ら<sup>12)</sup>は流出塩分量を大曲地点(図1参照)の塩分濃度、流量、流出時間、流出水の密度で算出している。本研究の成果はより簡便に流出塩分を推定可能であるが、逆流による塩分供給を加味していないため、塩分の収支は表現できない。今後は塩分逆流を整理して、湖内の塩分収支を明らかにする。

#### 4. 湖内塩水量の変化とりまとめ

本研究で得られた知見を以下にまとめる。塩淡水層湖の網走湖において、水質や流速の連続観測を行った。このとき2016年の北海道東部豪雨時の連続データが取得され、この結果から塩水流出量の検討を行った。

- ・既往最大水位を更新する洪水でも、湖内の塩水は残存し、自然条件では塩水が局在化し続ける。
- ・流出水の塩分は希釈されて、ほぼ検出されないが、DOの低下など高濃度含有物に由来する水質変化が観察される。塩水流出は塩淡水界面に添って混合、希釈、流出すると推察される。
- ・複数の洪水イベントの解析より、塩淡水境界標高の変化量は積算流入量と相関性が強いことが示され、塩水流出量の簡易推定が可能となった。

#### 5. 河川汽水域の水質について

次に塩水層の水質について調査・検討を行う。ダム、湖沼、海域など停滞性水域における底層貧酸素化により漁業や水質の面で多くの問題が起こっている。これまでも底層貧酸素改善を目的に現地観測、モデル化などの研究<sup>13)-15)</sup>がなされ、また酸素供給等による直接的な改善に関する研究も行われている<sup>16)-20)</sup>。それらの結果から酸素供給による栄養塩濃度、金属イオン濃度の低下が観測され、溶存酸素濃度の上昇を報告している。また、海域においては窪地など特殊地形に限定的に酸素供給による効果が報告されている<sup>21)</sup>のみである。

一方で、塩水性水塊で流動影響が無視できない区域、結氷する水域での酸素供給影響については報告がない。そこで実際の結氷する汽水湖沼での酸素供給効果を検証することを目的とした。我々は網走湖の貧酸素塩水に水中型気液溶解装置(WEP:特許第3849986号、松江土建(株)・土木研究所)を用いて、酸素供給時に起こる化学的变化について現地で実験を行った結果を報告<sup>11)</sup>し、硫化水素の酸化によって固体硫黄が析出して無害化することを明らかにした。WEPの特徴として酸素供給が水平方向に卓越し<sup>21)</sup>、鉛直混合を起こさない特徴がある。汽水湖

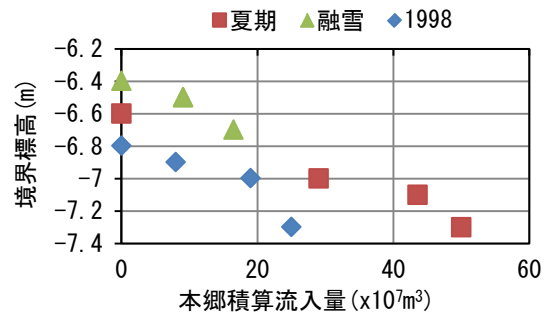


図20 本郷流入量と塩淡水境界標高の関係

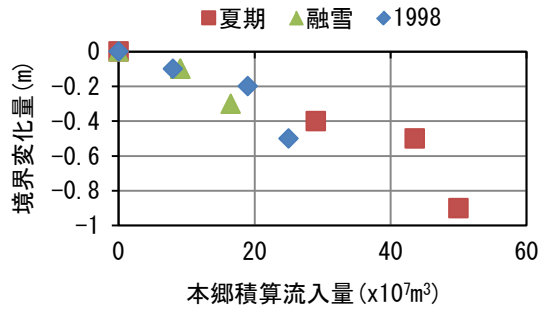


図21 本郷流入量と境界変化量の関係

のように塩淡水二層構造を有する場合には塩水と淡水を鉛直混合すると、淡水層の貧酸素化や有害物質暴露など水質課題を鉛直方向に拡大させる可能性があるため、特定の層で水質改善を行い、かつ鉛直混合を抑制する対策が必要となる。そこで本研究は、現地にWEP酸素供給プラントを建設し、運用による水質変化について各種観測を実施し、その結果をまとめる。

#### 6. 試験設備の建設と観測

##### (1) 試験設備

試験水域を網走湖とし、網走湖内の呼人港に酸素精製機など陸上設備、および岸壁から160m湖心側(図22中B2地点)の標高-7mの位置にWEPなど水中設備を建設・設置し、概略を図23に示す。なお、網走湖は国定公園かつ河川管理区間であり、漁港が存在し、漁業権を有する水域である。このため公園法、河川法、港湾法、公共水面に関する申請等を実施して施工・調査を行っている。水中設備は大きさ20m<sup>3</sup>、陸上重量1.2tで吐出量120m<sup>3</sup>/hのポンプを搭載し、浮力が100kgになるように浮子を取り付けた。図24に岸壁からの断面図および2017年8月28日のB2での鉛直投下式の水質計(Hydrolab社、DS5)での鉛直水質観測結果を示す。B2において標高-6.2mに明瞭な塩淡水境界が存在し、塩水層は無酸素状態であった。水中設備はB2地点に図23に示す様に係留した。500kgのアンカーで固定、吐出口が標高-7.3m、吸入口が標高-6.8mになるように係留した。設置時の塩淡水境界は標高-6.2mであったが、残気吐出口は塩水の連行が起きないように標高-3.5mに設定した。陸上設備は酸素圧

送するための圧縮機や配電盤を装備し、送気管と電線を水中設備に接続させた。2017年8月28日に施工、調整完了し、2017年8月29日より24時間の連続運転を開始した。なお、2017年11月3日までに故障等による運転停止はなく、冬期を含めて連続運転を継続中である。

(2) 現地観測

a) 鉛直観測

投下式水質計を用いて、図22中B2地点とA地点(B2より40m沖)で鉛直観測を実施した。実施日は運転前、運転後1日、3日、7日、14日、1ヶ月、2ヶ月とし、結水が始まる2017年11月上旬までとした。また運転2ヶ月後にはB2を中心に300m四方内の18地点で水質鉛直分布観測を行い、空間的な水質観測を実施した。

b) 自記観測

図22中A地点に超音波流速計(TELEDYNE RD Instruments Workhorse sentinel 1200 kHz)と圧力式水位計(Onset Computer Corporation HOBO-U20)を標高9mに係留した。流速は60分間隔で1秒あたり5回の測定を60秒行った平均値を取得した。また、B1、B2、B3の各地点の標高-7.5mに塩分水温計(JFE アドバンテック Compact-CT)、光学式溶存酸素計(JFE アドバンテック RINKO-W)、クロロフィル濁度計(JFE アドバンテック Infinity-CLW)を係留した。B1とB2間、B2とB3間は25mの距離をとって南北方向に配置した。2017年8月28日～2017年11月3日の期間中、1時間間隔でデータを取得した。

c) 水質分析

鉛直観測と同一日にB2地点およびA地点の標高-3m(淡水)と標高-7.5m(塩水)で採水を行い、日本工業規格に準じた水質分析を行った。分析項目は全有機炭素(TOC)、溶存態有機炭素(DOC)、全リン(T-P)、オルトリン酸態リン(PO4-P)、全窒素(T-N)、アンモニウム態窒素(NH4-N)、亜硝酸態窒素(NO2-N)、硝酸態窒素(NO3-N)である。加えて、硫化水素については、菅原ら<sup>22)</sup>の手法を用いて、採水直後の試験水を酢酸亜鉛固定法により定量した。また、参考として北海道開発局網走開発建設部のホームページで公開されている定期水質観測結果から湖心のデータを比較した。

7. 観測結果

(1) 鉛直観測

図25に酸素供給後のB2地点での鉛直分布の時間変化を示す。塩分は塩淡水境界位置が10cmほど変動するが、鉛直分布に大きな差は見られない。DOは標高-6.2m以上の淡水部は、ほぼ鉛直均一に分布し、8~12mg/Lとなっていた。塩水部は標高-7.3mにピークを有する分布となり、底層方向にも濃度の拡散が確認された。濁度は標

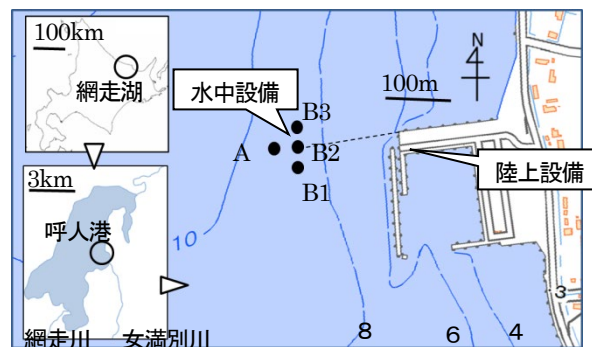


図22 調査位置図

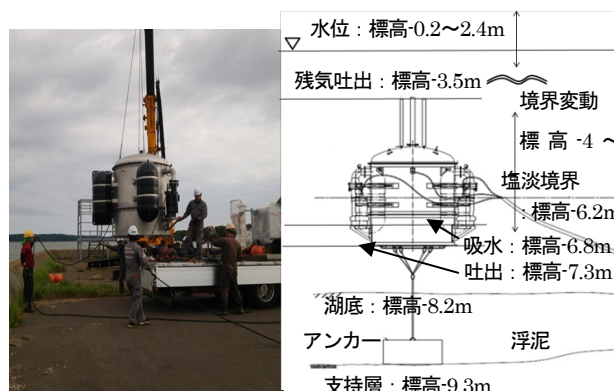


図23 左：水中設備外観と右：水中設置概略立面図

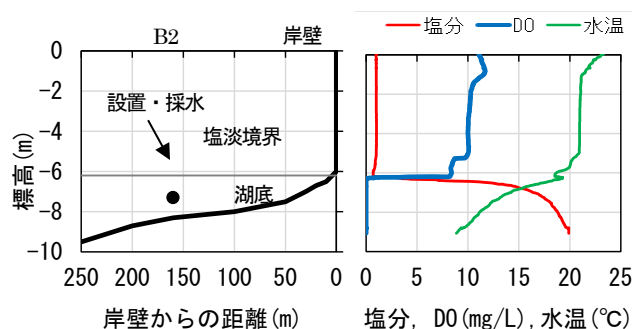


図24 断面位置図と鉛直水質分布 (B2地点：8/28)

高-7.3mに特異的にピークを有する分布となっていた。この結果から試験プラントにより現地スケールにおいても、設定標高に選択的に酸素供給を行い、硫化水素の酸化によって固体硫黄が生成して濁度上昇<sup>11)</sup>となっていることが確認された。なお標高-7.3mにおける別途採水分析した硫化水素、全鉄、全マンガンの濃度は110mg/L、1mg/L、0.8mg/Lであり、生成する固体の成分組成<sup>11)</sup>からも鉄やマンガンの影響は小さいことを確認している。塩分の分布からも塩淡水境界を破壊することなく酸素供給できていることが確認される。このときB2地点の標高-7.3mのDOと濁度のピーク値の経時変化を図26に示す。この結果から、濁度はDOの変動に追従するように変化し、DOと濁度は単一な増加傾向を示さず、濃度の増減を繰り返した。

(2) 自記観測結果

まず、WEP 運転期間中の気象庁網走観測所の降雨量と風速のデータ、国土交通省網走潮位データ、湖水位は本研究の観測データを図 27 にまとめる。運転開始から 9 月 14 日までは降雨も無く、湖水位も安定して風が継続していた。9 月 20 日に風速が 14 m/s 以上となり、その後は断続的に強風や降雨がみられる。なお、強風発生時の風向はほぼ南南西であった。一方で湖水位はほぼ標高 0.2 ~ 0.4 m で変動しており、降雨時に水位が標高 1 m にも到達せず、例年同時期と比較すると極めて水位変動が小さい年であった。さらに湖水位と潮位が逆転する時が散見され、2017 年は例年に比べ降雨流入が非常に小さく、海水の逆流頻度が非常に高い年であった。

次に A 地点の超音波流速計の観測結果より標高-7.5 m を抽出して北方成分と東方成分を図 28 に示す。強風に対応して流速が増加するような挙動がみられるが、おおよそ ±5 cm/s の間で変動していた。2 ヶ月間の平均流速は北方成分 0.47 cm/s、東方成分 -0.32 cm/s であり、北北西方向に 0.57 cm/s であった。1 時間同一流速とするならば、時間あたり 20 m ほどの移動に相当する。なお、鉛直方向の流速は ±1 cm/s 以下で変動し、平均は 0.03 cm/s であった。次に水塊の移動を確認するため、図 28 の結果を成分毎の流速を加算して軌跡として図 29 に示す。積算期間は 2017 年 8 月 29 日 15 : 00 ~ 11 月 2 日 12 : 00 である。起算時刻や積算期間によって距離や方向が変化するため厳密な定量的取扱いはないが、この軌跡は約 2 ヶ月間の定性的な水塊移動を示している。運転開始直後は原点付近に水塊が固まり最大限に酸素供給効果が現れると推察される。9 月 4 日に、おおよそ 7 m/s の風の発生にともない北北西方向に水塊が移動しはじめ、強風発生時に対応して流向に変化がみられ、おおまかに強風時に南向きに流向が変化する挙動を繰り返すことが確認される。この結果から B2 地点で酸素供給した水塊は南北方向にゆらぎながら、北北西に移動すると推察される。なお、淡水層（標高-6 m 以上）では南向きに卓越する流れが観測され、その流速は塩水層の 10 倍ほどであった。よって塩水層の流れは、降雨や風波による淡水層流速による摩擦や水面変動に伴う動水勾配の発生に起因すると考えられる。

次に B1、B2、B3 における DO の観測値を図 30 に、濁度の観測値を図 31 に示す。B1 は酸素供給点(B2) の南側、B3 は北側に位置している。DO は B2 で最も濃度が高く、0 ~ 25 mg/L で変動している。次いで B3 で 0 ~ 15 mg/L の濃度が検出されているが、10 月 20 日以降は DO が検出されなかった。B1 では、ほぼ DO が検出されないが、強風発生時に対応して DO が増加していた。流速の観測結果ともよく一致しており、北向きに流れが卓越して、強風時に南向きに变化する水塊の挙動を反映してい

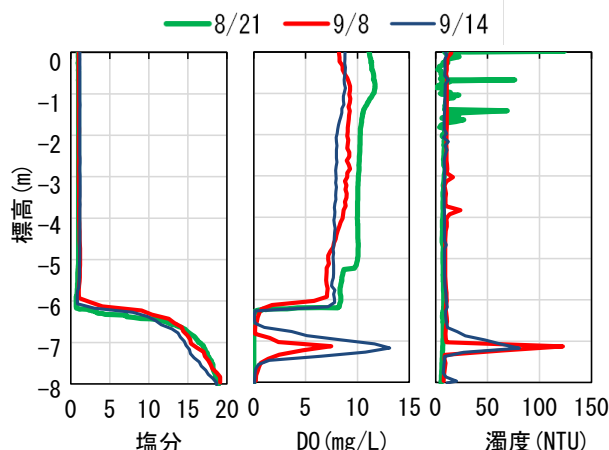


図 25 B2 地点の鉛直分布の変化(左:塩分, 中:DO, 右:濁度)

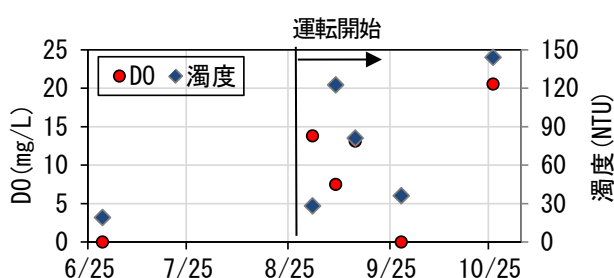


図 26 B2 地点の標高-7.3mにおける DO と濁度の経時変化

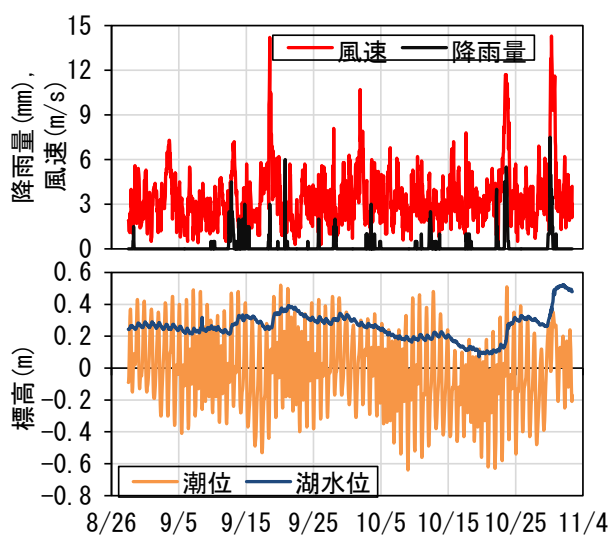


図 27 気象、水文状況

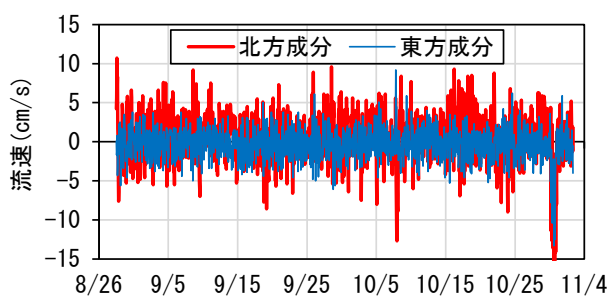


図 28 流速観測結果(A 地点標高-7.5m 抽出)

る。なお、風波による塩水層の鉛直混合や酸素供給は網走湖では確認されていない<sup>23)</sup>、<sup>24)</sup> ため、これら DO 上昇は酸素供給に由来する現象である。また現地底層水に一時的に酸素供給を行った水槽実験の結果から、現状硫化水素濃度での酸素消費速度<sup>11)</sup>では、20 mg/L で DO を供給しても約 30 分でゼロとなる。さらに流動によって多量の硫化水素を含む無酸素水塊が新たに供給されるため、供給した DO は速やかに消費されて変動が大きくなっていると考えられる。次に濁度の観測結果をみると、B3 では B2 よりも平均的に高い濁度で推移し、強風速発生時に対応して B1 の濁度上昇が顕著となっていた。硫化水素が酸化され、DO が消費されることで固体硫黄が水中に分散し、濁度が上昇する<sup>11)</sup>挙動が現地スケールで明確に発現していると推定される。固体硫黄は移流輸送と沈降が同時進行するために観測データが一定値とならずに変動が大きくなると考えられる。しかしながら塩水性貧酸素水塊において、硫化水素が高濃度の場合には DO を検出することは困難であり、濁度をトレーサーとして活用することで、酸素供給影響を把握できることを示唆している。図 30 と図 31 の結果から DO と濁度には直接的な相関関係はみられない。そこで表 2 に各観測データの統計値をまとめると、B2 で酸素供給と硫黄生成し、流動にそって下流側の B3 に流され、その間に DO を消費するために DO は検出できないが、濁度が増加傾向を示し、硫化水素の反応が進行しながら硫黄が輸送されることが推察される。

次に WEP 運転 58 日後に WEP 設置位置を中心として、面的に鉛直観測を行い標高-7.5 m の DO と濁度を抽出し、クリギング法により内挿したコンター図を図 32、図 33 に示す。図 32 の DO は中心付近に 20 mg/L の高濃度がみられるが、5 m ほどの距離で 3 mg/L 以下となっていた。北北西方向および南方向に有酸素がみられるが、DO 濃度は低く、40 m 四方の範囲であった。図 33 に濁度の分布を示す。濁度は中心から北側に広く分布し、その範囲は 120 m 四方に及んでいる。また、東側 100 m ほどの地点にも高濁度帯がみられ、酸素供給の影響とも考えられるが、図 24 から確認できるようにほぼ湖底に位置する地点であり、底泥の巻き上げ等の観測影響も考えられる。今回の観測ではこれらの詳細や分離法は不明であるが、酸素供給による硫化水素の酸化は水塊の移動に添って北北西方向に拡大していることが確認された。

(3) 水質分析結果

水質分析結果について B2、A(B2 からの距離 40 m)、湖心(B2 から距離 1.7 km)の 3 地点で淡水(標高-3 m)と塩水(標高-7.5 m)の 2 層の比較を行う。図 34 に T-P の時系列変化を示す。淡水層では B2、湖心ともにほぼ同様の単一増加する挙動を示し、水平方向の水質が均一に分布していることが推察される。湖心の塩水層では淡水に比べ

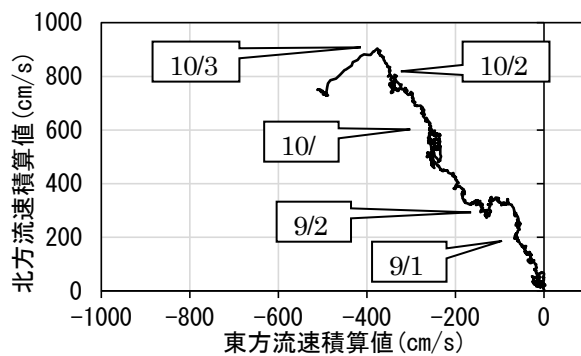


図 29 水塊の相対軌跡

(A 地点標高-7.5 m, 起算 8/29, 期間 64 日)

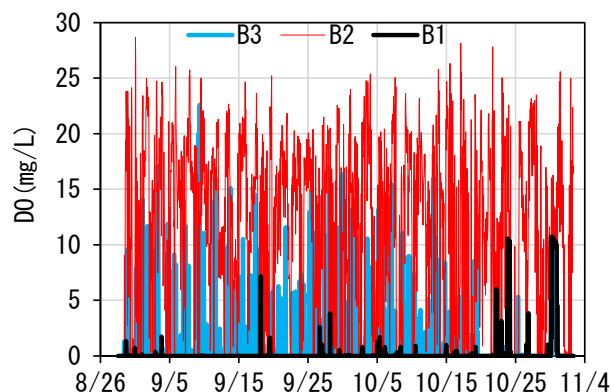


図 30 各地点 DO の連続観測結果

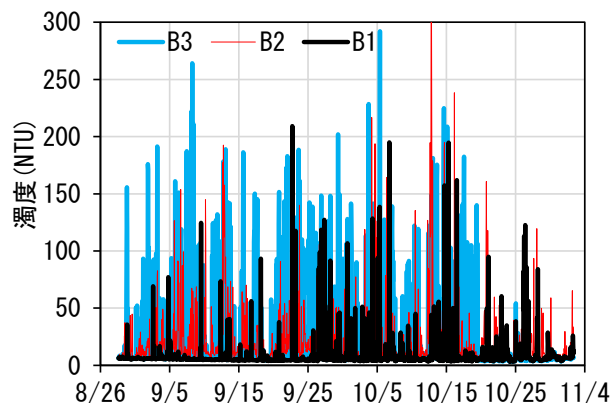


図 31 各地点濁度の連続観測結果

表 2 DO と濁度観測値の統計値

観測	項目	B1	B2	B3
DO	平均	0.18	11.69	1.11
	標準偏差	1.23	7.61	3.01
濁度	平均	9.03	21.35	25.91
	標準偏差	16.68	28.61	41.59

40 倍ほど濃度が高く、ほぼ 3~4 mg/L の間で大きな変動なく推移している。B2 は WEP 運転前は湖心と同程度であったが、運転後は濃度が低下していた。A 地点では湖

心と B2 の中間となり、時間とともに湖心濃度に漸近する挙動であった。開発局の分析は無機態リンを計測していないため、本研究で分析した B2 地点と A 地点について PO4-P の結果をみると、T-P 中の PO4-P の割合は、いずれの分析日についても淡水層では 50%前後、塩水層では 90%以上であった。このことは酸素供給によって塩水層の PO4-P が減少し、淡水層には供給されないことを示唆しており、塩水層内で土粒子や硫化物などに吸着されて濃度の減少となると推察される。

次に図 35 に T-N の時系列変化を示す。淡水層では湖心と B2 地点はほぼ同様の 9 月前半に最低値となる谷状の変化挙動を示した。湖心の塩水層では淡水層の 15 倍ほどの T-N 濃度で 14~18 mg/L でほぼ横ばいで推移した。B2 地点や A 地点では酸素供給後に濃度が低下し、吐出点から離れるほど湖心濃度に漸近する挙動を示し、T-P と同様の挙動となった。無機態窒素について分析した結果は、淡水層では NO3-N のみが検出され、T-N に占める割合は 10~40%で冬に近づくほど割合が高くなった。水温の低下にともない有機体窒素が減少して無機態窒素が余剰することに起因していると思われる。一方で塩水層での無機態窒素は NH4-N のみが検出された。

B2 地点の塩水層（標高-7.5 m）と淡水層（標高-3 m）および A 地点の塩水層（標高-7.5 m）における TOC の変化を図 36 に示す。B2 淡水層の TOC はほぼ一定値で推移し、塩水層では酸素供給によって濃度が低下していた。なお、TOC のほぼ 100%が DOC であった。網走湖の水質分布は同一標高で平面的に均一に分布し、無氷期には塩分分布が躍層構造を維持することから塩水と淡水はほとんど混合しない特徴<sup>23), 24)</sup>がある。そのため有機物の減少は水平移流や鉛直混合希釈ではなく、底層である塩水層でのみ減少することを示している。また硫酸化物や金属硫化物の存在下では有機物の分解や分子吸着、窒素化合物の脱窒や分子吸着<sup>25), 26)</sup>などが報告されており、底泥の金属硫化物の酸化によってリン酸の吸着が助長される<sup>27)</sup>ことから、T-P や T-N および TOC の変化は塩水層内で何らかの形態で分解や吸着・沈降除去によって濃度低下にいたると推察される。ここで、形態別窒素の変化を図 37 にまとめる。無機態窒素は NH4-N、NO2-N、NO3-N の合算と考えられるが、無酸素塩水層中では NH4-N のみが検出されているため、NH4-N 濃度のみを図中に示す。差分は T-N から NH4-N を減じた値である。図より酸素供給前は T-N は 95%が NH4-N であったが、酸素供給後には NH4-N が減少すると同時に T-N も減少した、NH4-N は T-N の 50%ほどとなり、差分が増加する挙動となった。通常において差分は有機態窒素として考察されるが、図 36 の挙動と一致しないことから、差分に分類される成分は本研究で分析した形態以外であることが示唆される。現在詳細を検討中であり、詳細は不明である

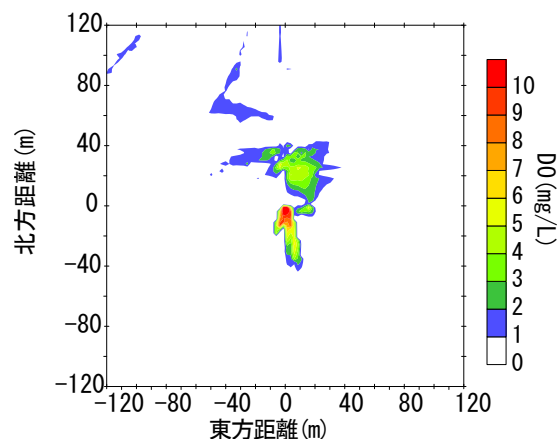


図 32 標高-7.5m の DO 平面分布 (運転 58 日後)

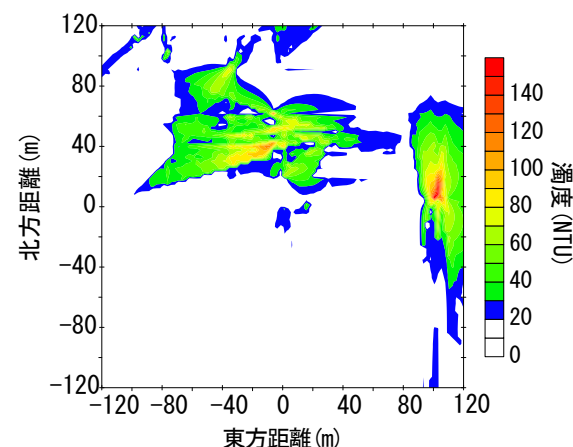


図 33 標高-7.5m の濁度平面分布 (運転 58 日後)

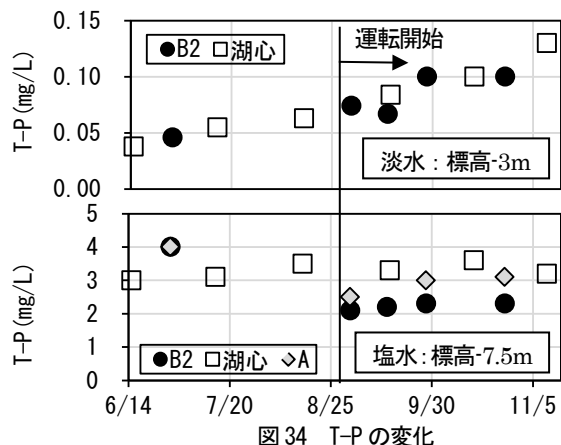


図 34 T-P の変化

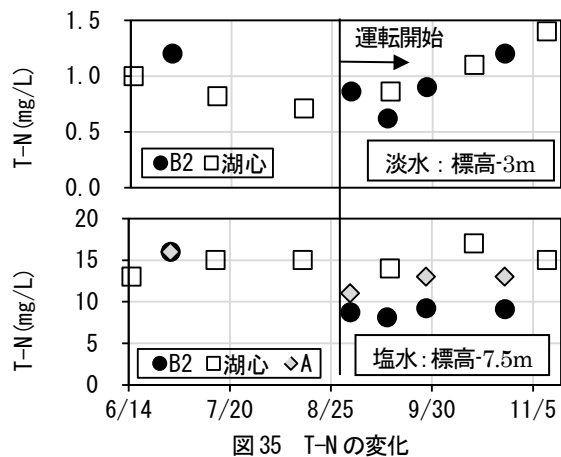


図 35 T-N の変化

が、アンモニアや炭素が減少することから尿素などの影響を想定している。以上から酸素供給によってリン、炭素、窒素の濃度低下が観測された。これらは上層の淡水層との混合による拡散希釈ではなく、塩水層のみで進行する反応である。現状ではリン、炭素、窒素のいずれも、析出する硫黄に由来する物質や底泥に吸着され、沈降しているものと推察される。

次に B2 地点における、硫化水素の鉛直分布の変化を図 38 に示す。WEP 運転前の 6 月 30 日では塩水層(標高-6.5 m)以深で濃度が急増し、深いほど濃度が高く、B2 地点の湖底付近では 112 mg/L となっている。WEP の吐出口である標高-7.5 m 付近では 57 mg/L となっていた。WEP 運転を開始して 1 日後の 8 月 30 日には塩淡水境界は標高-6.2 m であり、標高-6.2 m~-7.5 m は塩水層であるが、硫化水素がゼロとなっていた。さらに湖底付近も 56 mg/L まで濃度が低下していた。その後は湖水の流動によって沖合の硫化水素が供給されることで、濃度が上昇する挙動となった。標高-7.5 m では継続的に 24 mg/L となっており、湖水が循環するなかで約 60%の硫化水素削減が持続される結果となった。残留濃度としては高い値を維持しているが、B2 地点の標高-7.3 m からの酸素供給によって B2 地点では湖底におよぶまでの塩水層内(標高-6.2 m~-8.2 m)全体で、約 50%の硫化水素の濃度低下が確認された。さらに、B2 直下の底泥中の硫化水素濃度の鉛直分布を図 39 に示す。底泥をコアサンプリングして、底泥表面から 10 cm までを 1 cm 間隔で分割して、含有硫化水素を分析した。その他 12.5 cm、15 cm、25 cm の位置も 1 cm 厚さで分割して分析を行った。酸素供給前は底泥表面で 150 mg/L、深度 5~10 cm では約 300 mg/L まで硫化水素が含有されていた。しかし、酸素を供給して 30 日後の分布は全体的に濃度が減少していた。底泥表面でも 50 mg/L まで濃度が低下し、底泥中にも酸素供給の効果が波及していることを確認した。

### 8. 酸素溶解装置の運用効果

網走湖の底層貧酸素改善のため、現地に酸素供給装置を建設し、現地スケールでの運用試験を実施した。

純度 90%の酸素を精製・圧送して水塊中で酸素を溶解させ、吐出量 120 m<sup>3</sup>/h のポンプで DO を供給した結果、吐出点近傍では DO が 20 mg/L まで上昇した。しかし無酸素塩水中の硫化水素による酸素消費が大きく、DO として検出できる範囲は非常に小さかった。一方で硫化水素の酸化によって生成する固体硫黄を濁度として追跡することで、影響範囲を検出可能となった。湖水流動にそって、影響範囲が拡大し、24 時間の 2 ヶ月稼働で約 120 m<sup>2</sup> の範囲で酸化反応の影響が確認され、リン、窒素、有機態炭素、硫化水素の濃度低下が確認された。硫化水素については吐出標高が最も酸化が進行するが、塩水層内の

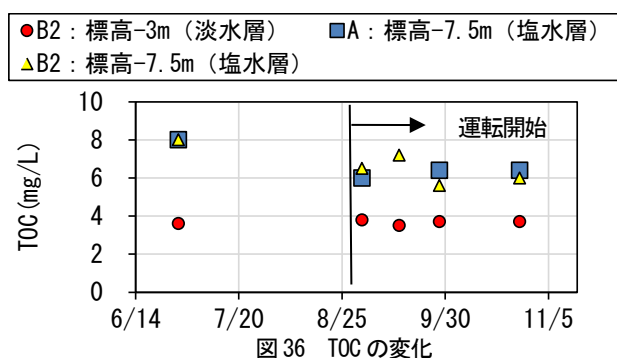


図 36 TOC の変化

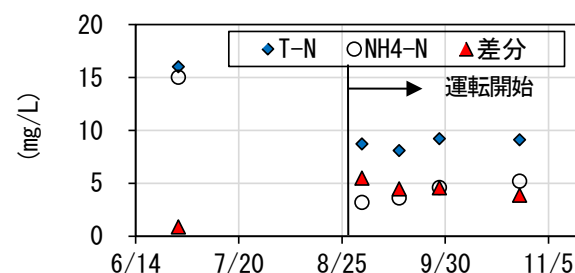


図 37 形態別窒素の変化 (B2 地点標高-7.5m)

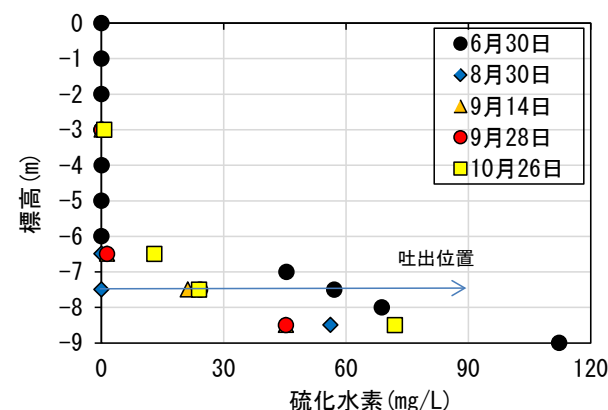


図 38 硫化水素の変化 (B2 地点)

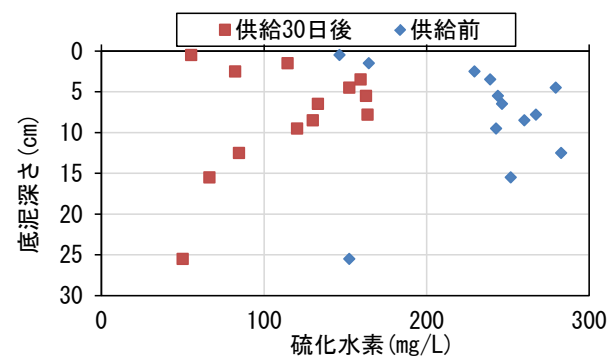


図 39 底泥中硫化水素の変化 (B2 地点)

鉛直方向にも影響が波及し、吐出地点では継続的に硫化水素の 50%削減となっていた。その影響は底泥にも波及し、効果的に水質改善傾向を示すことが確認された。今後はより長期の運用を行い、詳細を観測する予定である。

### 参考文献

- 1) 環境省 水・大気環境局 水環境課：日本の汽水湖～汽

- 水湖の水環境の現状と保全～、湖沼環境対策資料、2014
- 2) 青木伸一、水野亮、岡本光雄：猪鼻湖における貧酸素水塊の消長に及ぼす気象擾乱の影響、海岸工学論文集、Vol.49、pp. 1036-1040、2002
  - 3) 松根駿太郎、梅田信、田中仁、佐々木幹夫：十三湖における汽水環境の長期的な変化要因の検討、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 69、No. 4、pp. I\_1507-I\_1512、2013
  - 4) Pracoyo Atas、梅田信、田中仁、佐々木幹夫：汽水環境解析のための十三湖水戸口流量の推定方法に関する検討、土木学会論文集 B2(海岸工学)、Vol. 66、No. 1、pp. 981-985、2010
  - 5) 奥田節夫：汽水湖における水塊の移動と混合過程、沿岸海洋研究、Vol. 35、No. 1、pp. 5-13、1997
  - 6) 溝山勇、大屋敬之、福岡捷二：連結系汽水湖における流動機構と長期流動シミュレーション、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 67、No. 3、pp. 101-120、2011
  - 7) 西田修三、佐野俊幸、中辻啓二：汽水湖における流動構造と物質循環過程、海岸工学論文集、Vol. 48、pp. 1116-1120、2001
  - 8) 小泉祐二、藤原広和、松尾悠佑、沼山天馬：近年の小川原湖における水質変化の特徴、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 70、No. 4、pp. I\_1579-I\_1584、2014
  - 9) 池永均、山田正、向山公人、大島伸介、内島邦秀：網走湖の塩水化の機構と塩淡二成層の長期変動特性に関する研究、土木学会論文集、No. 600/II-44、pp. 85-104、1998
  - 10) 杉原幸樹、平井康幸：塩淡境界を持つ汽水湖の結氷下の水質挙動、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 72、No. 4、pp. I\_655-I\_660、2016
  - 11) 杉原幸樹、新目竜一：汽水湖の貧酸素改善手法に関する実験的研究、土木学会論文集G(環境)、Vol. 73、No. 7、pp. III\_351-III\_356、2017
  - 12) 池永均、吉本健太郎、山田正：網走湖における洪水の流入形態と洪水流入に伴う塩水吐き出し効果に関する研究、土木学会論文集、No. 775/II-69、pp. 29-43、2004
  - 13) Paul E. B.: Total Phosphorus and Dissolved Oxygen Trends in the Central Basin of Lake Erie、1970-1991、Journal of Great Lakes Research、Vol.19、No.2、pp.224-236、1993.40、pp.97-105、1983
  - 14) Antonopoulos、V.Z.、Gianniou、S.K. : Simulation of water temperature and dissolved oxygen distribution in Lake Vegoritis、Greece、Ecological Modelling、Vol. 160、No. 1、pp. 39-53、2003
  - 15) Zackary、W. M.、Cayelan、C.C.、Alexandra、B.G.、Kathleen、D. H.、Jonathan、P.D.、Spencer、D.K.、Ryan、P.M.、Madeline、E.S.:Effectiveness of hypolimnetic oxygenation for preventing accumulation of Fe and Mn in a drinking water reservoir、Water Research、Vol. 106、pp. 1-14、2016
  - 16) Beutel、M.W.、Horne、A.J. : A review of the effect of hypolimnetic oxygenation on lake and reservoir water quality、Lake and Reservoir Management、Vol. 15、No. 4、pp. 285-297、1999
  - 17) 小松利光、岡田知也、中村由行、中島信一、長谷部崇、藤田和夫、井芹寧：閉鎖性水域底層への表層水供給による水質改善効果、海岸工学論文集、Vol.46、pp.1111-1115、1999
  - 18) 道奥康治、神田徹、大成博文、西川孝晴、松尾克美、木戸崇博：マイクロバブル・エアレータによる貯水池の水質浄化実験、水工学論文集、Vol.44、pp.1119-1124、2000
  - 19) 今井剛、浮田正夫、関根雅彦、樋口隆哉：閉鎖性水域における底層部への高濃度酸素水導入による水質改善効果に関する研究、環境工学研究論文集、Vol.41、pp.635-643、2004
  - 20) 今井剛、村上奉行、樋口隆哉、関根雅彦：閉鎖性水域における水質環境が高濃度酸素水の底層部への拡散およびその水質改善に及ぼす影響、環境工学研究論文集、Vol.45、pp.121-129、2008
  - 21) 増木新吾、矢島啓、清家泰：WEPを用いた中海（米子湾）浚渫窪地底層への高濃度酸素水導入実験、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol.67、No.4、I\_1525-I\_1530、2011
  - 22) 管原庄吾、鮎川和泰、千賀有希子、奥村稔、清家 泰：砂泥堆積物中溶存硫化物の分析法の開発及びその現場への適用、科学研究費補助金研究成果報告書（研究番号：19201016）、pp.40-48、2010
  - 23) 池永均、山田正、向山公人、大島伸介、内島邦秀：網走湖の塩水化の機構と塩淡二成層の長期変動特性に関する研究、土木学会論文集、No.600/II-44、pp.85-104、1998
  - 24) 杉原幸樹、平井康幸：塩淡境界を持つ汽水湖の結氷下の水質挙動、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 72、No. 4、pp. I\_655-I\_660、2016
  - 25) Tian-wei Hao、Peng-yu Xiang、Hamish、R. M.、Kun Chi、Hui Lu、Ho-kwong Chui、Mark、C. M. V.、Guang-Hao Chen: A review of biological sulfate conversions in wastewater treatment、Water Research、No. 65、pp. 1-21、2014
  - 26) Anastasiia、K.、Stefano、P.、Luigi、F.、Maria、R. M.、Estefania、P.、Gavin、C.、Piet、N. L. L.、Giovanni、E.:Elemental sufer-based autotrophic denitrification and microbially catalyzed sulfer hydrolysis and nitrogen conversions、Journal of Environmental Management、No. 211、pp. 313-322、2018
  - 27) 篠原隆一郎、古里栄一：湖沼におけるリンの動態研究に関する近年の動向、地球環境、No. 51、pp. 159-170、2017