

## 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、令和元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

令和 2 年度は、下水処理水中での消毒副生成物等としての存在および公共用水域への影響可能性が懸念される化学物質として有機ハロゲン化合物類に着目し、1) 懸濁物質を含む水試料中の全有機ハロゲン化合物 (TOX) のうち全有機塩素化合物 (TOCl) の分析手法の構築を試みるとともに、2) 塩素消毒副生成物の生成メカニズム検討と放流先河川における挙動の検討、3) 応急復旧段階を模した下水を用い、特に塩素消毒副生成物の影響の観点からムレミカヅキモ (*Raphidocelis subcapitata*) に対する影響評価を実施した。その結果、1) 下水試料中の TOCl 測定では、試料水の速やかな冷凍ならびに迅速な解凍作業により、1-2 ヶ月程度の冷凍保存が可能であり、通水後の活性炭カラムであれば 15 日程度冷蔵保存しても測定値に影響しないことが示唆された。また、高 SS 濃度水試料の TOCl 分析前処理方法として、メタノールと NaNO<sub>3</sub> (0.012mol/L) で事前洗浄をした酢酸セルローズろ紙を用いてろ過し、溶存態と懸濁態の形態別に分析する手法を見出した。2) 反応時間 20 分で塩素注入率 5~20mg/L の範囲において塩素注入率と生成 TOCl 濃度、残留塩素濃度と生成 TOCl 濃度の間に強い正の相関がみられた。塩素注入率 15mg/L で反応時間 10~80 分の範囲では反応時間と消毒副生成物の TOCl 生成に関係性は認められなかった。下水処理水の放流先河川において、TOCl、HCHO の放流負荷量は放流先河川の 1/10~1/16 であり、希釈倍率が高い場合は、放流水の放流先河川への影響は小さかった。また、放流口から下流約 22km 区間にお

### 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

る河川水中の TOCl 濃度、HCHO 濃度の減少はみられなかった。3) ムレミカヅキモを用いて、応急復旧段階を模した下水試料：①塩素混和池流入水（試験水①）、②塩素混和池流出水（試験水②）、③塩素混和池流出水+チオ硫酸 Na（試験水③）に対する影響評価を行ったところ、試験水②で最も影響が強く、試験水③で影響が軽減された。この結果から、消毒後に残留塩素を中和することで、藻類への影響が改善されることが推察された。試験水②に含まれる塩素消毒副生成物として、クロロホルム、トリクロロ酢酸、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドが検出されたが、ムレミカヅキモの増殖に影響を与える濃度は検出されなかった。ムレミカヅキモに対する影響が試験水③で検出された原因として、上記以外の副生成物の影響が推察された。

下水試料に適した大腸菌の定量法の提案に関する研究は、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。令和 2 年度は、上記①の達成目標に関わる調査・研究として、環境基準の見直しにより大腸菌群から大腸菌指標への移行が検討されていることを踏まえ、排水基準および下水道放流水質基準の見直しを含めた行政的対応に資するため、下水試料に適した大腸菌の定量法の提案を目的に、複数の特定酵素基質培地における回収率の把握、希釈水の違いが変動係数 (CV) に及ぼす影響についての評価を行った。また、従来指標との関連性を評価するため、下水試料における大腸菌群に占める大腸菌の割合を把握した。その結果、各種培地・手法における大腸菌の回収率は、混釈法が 81~93%、フィルター法が 86~95%の範囲内であった。各種培地・手法と希釈水の違いが変動係数 (CV) に与える影響は小さく、CV の平均値は混釈法、フィルター法ともに許容値である 30%以下であった。過年度の評価結果を含め、CV、回収率とも許容値を満たす測定法を提示できた。大腸菌群に占める大腸菌の割合については、流入下水、二次処理水ともに水温が 23℃付近を境として高まっており、その平均割合は 23℃以上において流入下水が 37%、二次処理水が 18%、23℃以下では各々 17%、7%であった。二次処理水の大腸菌割合が高まる要因の 1 つは、流入下水の大腸菌/群の割合が高まっていることによる可能性が示唆された。従来指標との関連性として、大腸菌群（デソキシコール酸塩培地）に占める大腸菌（特定酵素基質培地）の平均割合は二次処理水が 14%、残留塩素の平均濃度が 0.25mg/L の放流水では 12%であり、放流水質の技術上の基準値を検討するための知見が得られた。

ダム貯水池における動植物プランクトンの省力かつ高度な検出方法の確立のため、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動植物プランクトン等のモニタリング手法の開発と適用ならびに機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発に関して、令和 2 年度は、次のことを検討し、以下の知見を得ることができた。①微生物叢解析に使用するユニバーサルプライマーの網羅性を検討し、現在、広く使用されているプライマーでは、検出率が低い門が存在することを確認するとともに、より網羅性の高いプライマーの開発に繋がる知見を得た。②高濃度酸素溶解装置（WEP システム）が導入されているダム貯水池において、その効果確認を行った。その結果、WEP システムにより供給される高濃度酸素水の効果により、底層から溶出してきたリンや金属が表層へ移行できず、貯水池表層がリン制限となり藻類増殖の抑制に寄与している可能性を確認した。③機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発を進め、ダム管理所から実務に用いた画像を収集することで、効率的な自動画像分類モデルの構築が可能となり、認識率が 80-87%の分類モデルを作成することに成功した。

気候変動の影響によりダム貯水池において発生頻度が増大すると考えられているアオコ発生予測手法の開発に向けて機械学習手法を用いた Chl-a 濃度予測モデルの構築に取り組んだ。機械学習手法は全結合型の NN モデルと LSTM モデルによる手法構築を検討した。モデル構築の結果、最も高い相関係数を示したダムの精度は  $R=0.70$  であり、藻類の夏季の濃度ピークをある程度再現可能であった。一方で、Chl-a 濃度の変動が複雑なダムでは、予測精度が得られず、Chl-a 濃度のみでは珪藻や藍藻の違いによる増殖の傾向をとらえられていないため、予測精度の向上には異なった変数の学習データが必要と考えられた。また、最も高い精度が得られたダムを対象として変数群に対する感度解析を行った結果、水象データを除いたモデルで最も精度が低下し、対象としたダムにおいては水象の変化が Chl-a 濃度に大きな要因をもたらしていることが推察された。これらの結果から一部のダムでは機械学習手法によってアオコ発生の予測が可能になることが示唆された。

## (2) 水質リスク軽減のための処理技術の開発

令和2年度は、令和元年度の調査に使用した流動型担体処理実験装置の担体流動用曝気を機械攪拌に変更し、風量削減を行った条件でのNH<sub>4</sub>-N並びに医薬品4物質（アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン）の除去性能を調査した。その結果、担体の流動機能を機械攪拌に変更した場合でも、NH<sub>4</sub>-Nの除去率は92%が得られ、このときのアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン平均除去率は、令和元年度と同等の15%、13%、51%、75%となった。活性汚泥処理の後段に流動型担体処理を追加することにより、アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェンの下水処理工程での除去率を36%、51%、59%、96%程度まで向上できることがわかった。

また、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した。令和2年度は、上記②の達成目標に関わる調査・研究として、降雨時の実態調査に基づく合流式下水道越流水による放流先水域への影響評価を行った。また、③に関わる調査・研究では、台風で浸水被災した下水処理場にて暫定的な水質改善効果による消毒効果と消毒副生成物の抑制効果を評価した。その結果、越流水放流負荷の分流化並み、越流回数の半減とした暫定的な対策目標である合流改善事業後において、ノロウイルス（Norovirus:NoV）の流出抑制にも一定の効果があるものと推定されたが、降雨の状況に応じて越流水による放流先水域への影響が懸念された。合流改善事業においてNoVの放流負荷に関わる目標値は定められていないが、放流先水域が重要影響水域である場合には、将来的には衛生学的な観点からウイルスに対する安全性の確保に関する検討を行うことも考えられ、その参考となる知見が得られた。越流水影響下によるNoVの汚染状況を簡易に把握するため、濁度およびSSとの関連性を評価した結果、代替指標としてNoV汚染を簡易にモニタリングできる可能性が示唆された。越流水の影響下による河川水中のNoV濃度は、ろ過により90%程度低下することが明らかとなったことから、越流水対策として高濁度水を対象としたろ過プロセスの導入により、ウイルス負荷の低減が図れるものと考えられた。被災下水処理場において段階的な復旧対策技術による水質改善に伴う消毒効果および消毒副生成物抑制の向上効果を明らかにし、復旧段階に応じた塩素消毒の運転管理の適正化に資する知見を得た。

## (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

塩淡二層汽水湖の網走湖で塩水層の貧酸素解消を目的に、実水域で酸素溶解装置(WEP)の運用試験を行った。2ヶ月の装置運転でおよそ210,000 m<sup>2</sup>に酸素供給影響が確認された。一方で残存酸素量は装置の運転時間と含有硫化水素濃度に依存して、水塊移動と供給酸素濃度が重要であることが確認された。また装置の筐体耐久度も強還元状態の水中においては、2カ年ほどで破損を生じることが確認された。これらの知見から本報告の条件では運転費用に加え、2年おきの保守修繕費が必要となり、年間の維持費用として390～550万円が必要であることが明らかとなった。このことから、溶存酸素供給によって塩水性貧酸素水塊の水質改善が可能であるが、社会実装のためには隔離水塊等の有限容量での運用が有利であると推察された。

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でいる。令和2年度は、気候変動影響下におけるダム貯水池の濁質の変化傾向について解析した。さらに、得られた結果に対して、濁水対策に関する貯水池流動シミュレーションを実施し、その効果を評価した。結果として、将来気候においては現在気候と比較して濁水がより長期化することを示した。また、流動制御フェンス、選択取水による濁水放流、清水バイパスといった対策について濁水長期化に対する効果を評価した結果、期待される効果が最も高い対策は清水バイパスであることを示した。

## 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：山下洋正、平山孝浩、北村友一、  
對馬育夫、鈴木裕識、村田里美、  
小森行也、高沢麻里

#### 【要旨】

令和2年度は、下水処理水中での消毒副生成物等としての存在および公共用水域への影響可能性が懸念される化学物質として有機ハロゲン化合物類に着目し、1) 懸濁物質を含む水試料中の全有機ハロゲン化合物（TOX）のうち全有機塩素化合物（TOCl）の分析手法の構築を試みるとともに、2) 塩素消毒副生成物の生成メカニズム検討と放流先河川における挙動の検討、3) 応急復旧段階を模した下水を用い、特に塩素消毒副生成物の影響の観点からムレミカツキモ（*Raphidocelis subcapitata*）に対する影響評価を実施した。その結果、1) 下水試料中の TOCl 測定では、試料水の速やかな冷凍ならびに迅速な解凍作業により、1-2 ヶ月程度の冷凍保存が可能であり、通水後の活性炭カラムであれば 15 日程度冷蔵保存しても測定値に影響しないことが示唆された。また、高 SS 濃度水試料の TOCl 分析前処理方法として、メタノールと NaNO<sub>3</sub> (0.012mol/L) で事前洗浄をした酢酸セルロースろ紙を用いてろ過し、溶存態と懸濁態の形態別に分析する手法を見出した。2) 反応時間 20 分で塩素注入率 5~20mg/L の範囲において塩素注入率と生成 TOCl 濃度、残留塩素濃度と生成 TOCl 濃度の間に強い正の相関がみられた。塩素注入率 15mg/L で反応時間 10~80 分の範囲では反応時間と消毒副生成物の TOCl 生成に関係性は認められなかった。下水処理水の放流先河川において、TOCl、HCHO の放流負荷量は放流先河川の 1/10~1/16 であり、希釈倍率が高い場合は、放流水の放流先河川への影響は小さかった。また、放流口から下流約 22km 区間における河川水中の TOCl 濃度、HCHO 濃度の減少はみられなかった。3) ムレミカツキモを用いて、応急復旧段階を模した下水試料：①塩素混和池流入水（試験水①）、②塩素混和池流出水（試験水②）、③塩素混和池流出水+チオ硫酸 Na（試験水③）に対する影響評価を行ったところ、試験水②で最も影響が強く、試験水③で影響が軽減された。この結果から、消毒後に残留塩素を中和することで、藻類への影響が改善されることが推察された。試験水②に含まれる塩素消毒副生成物として、クロロホルム、トリクロロ酢酸、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドが検出されたが、ムレミカツキモの増殖に影響を与える濃度は検出されなかった。ムレミカツキモに対する影響が試験水③で検出された原因として、上記以外の副生成物の影響が推察された。

キーワード：モニタリング、全有機ハロゲン、下水、形態別分析、塩素消毒副生成物、藻類、影響評価

#### 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、分析技術を含む既往情報が充実して

いる個別物質群に対し、環境中の挙動やそのメカニズムに関する知見を集積しつつ、それらを活用したモニタリングの高度化を試みてきた。また、公共用水域中に存在する多様な化学物質に対し、効率的かつ網羅的なモニタリング手法を検討してきた。具体的には、医薬品類を対象として、都市流域の河川水中濃度に対する下水処理水の寄与の検討<sup>3)</sup>、河川水中の濃度変化に影響を及ぼす環境因子としての底質への収着メカニズムの検討<sup>4)</sup>、水系暴露解析モデルを用いた非定常解析による流域全体における医薬品の暴露濃度の網羅的予測<sup>5)</sup>実施した。また、液体クロマトグラフ-四重極飛行

時間型質量分析装置 LC-QTOF-MS で取得した精密質量測定データを用いた分析方法を検討し、多成分の簡易一斉スクリーニングを行う上で重要となる測定対象物質のデータベースの構築手順や、未知物質の探索を可能とするデータ解析手順を示した<sup>9)</sup>。

下水処理水中での消毒副生成物等としての存在および公共用水域への影響可能性が懸念される化学物質として有機ハロゲン化合物類がある。フッ素、塩素、臭素を含む多様な有機化合物であり、水環境における各々の存在実態に関する知見は十分でない。下水道では、流入水にも含まれる可能性があり、消毒プロセスでの副生成物発生と合わせて、多様な発生源と種類が想定しうることから、個別の把握は費用労力面からも難しく、全有機ハロゲン化合物 (TOX) 等の包括的指標の活用した把握・評価が有効と考えられる。本年度は TOX に着目し、1) 懸濁物質を含む水試料中の TOX 分析手法の構築を試みるとともに、2) 塩素消毒副生成物の生成メカニズム検討と放流先河川における挙動の検討、3) 応急復旧段階を模した下水を用い、特に塩素消毒副生成物の影響の観点からムレミカヅキモ (*Raphidocelis subcapitata*) に対する影響評価を実施した。

## 2. 懸濁物質を含む水試料中の全有機ハロゲン化合物の分析方法の検討

### 2.1 背景と目的

河川水質試験方法 (案) によれば、有機ハロゲン化合物は発ガン性、変異原性、肝毒性等、様々な生体影響を持った化合物群であるといわれており、全有機ハロゲン化合物 (Total Organic Halide, 以下 TOX とする) を測定することは、有機化合物による水の汚染度を示す指標として重要であるとされている<sup>7)</sup>。

PRTR 制度では、現在、人の健康や生態系に有害なおそれのある化学物質として全 462 物質が第一種指定化学物質に指定されているが、この中でハロゲンを構造内に持つ物質数は有機塩素化合物類として 82 種 (全 462 種の 17.7%)、有機フッ素化合物類として 29 種 (同 6.3%)、有機臭素化合物類として 18 種 (同 3.9%) であり、合わせると全体数の 1/4 以上を占める。その中には、炭素とハロゲンが直接結合しているペルフルオロオクタン酸 (PFOS)<sup>8)</sup> やジuron (除草剤の一種)<sup>9)</sup> のように難分解性でありながら河川水中での検出報告例があるものも存在する。

以上のことを踏まえると、TOX 分析は、全てでは

ないものの環境水中に存在する幅広い影響懸念物質群の簡易定量手法として活用できる可能性がある。しかしながら、これまでの TOX 分析では、浄水処理における消毒副生成物の発生挙動の評価を中心とした適用事例<sup>10)</sup>がほとんどであり、懸濁物質を含む環境水の分析方法の検討事例はみられない。そこで本研究では、環境水としては夾雑物が多い下水試料を対象として、比較的懸濁物質 (SS) 濃度が高い水試料に適用可能な TOX 分析手法を検討した。

## 2.2 実験の方法

### 2.2.1 燃焼イオンクロマトグラフィーの適用

本研究では代表的な TOX として全有機塩素化合物 (TOCl) について検討することとし、TOCl の分析は既報の燃焼イオンクロマトグラフィー手法<sup>11)</sup>を基本として検討した。装置は自動試料燃焼装置 (イオンクロマトグラフ用前処理装置、AQF2100H、日東精工アナリティック製、以下 TOX 計) を用いた。TOX 計はオートポートコントローラー、燃焼ユニット、吸収ユニットで構成され、ポートコントローラーにより燃焼ユニットに導入された試料は、アルゴンガス雰囲気下で熱分解された後、酸素と反応し、燃焼によりハロゲン化水素およびハロゲンガスを発生させる。吸収ユニットでは、発生したガスが吸収液 (過酸化水素) により捕集され、ハロゲン化物イオンを含む水溶液として、イオンクロマトグラフ (IC) への導入試料となる。IC には ICS-1100 (Thermo Fisher Scientific 製) を用い、塩化物イオン (Cl<sup>-</sup>) 濃度を測定することで、試料中の TOCl 濃度とした。定量は絶対検量線法により行った。IC 測定における Cl<sup>-</sup> の IDL (装置検出下限値) は 14 µg/L、IQL (装置定量下限値) は 47 µg/L であった。なお、吸収ユニットで吸収液量が変動することにより生じる濃度誤差は、吸収液に予め添加したリン酸イオンの測定濃度を用いて、補正した。

### 2.2.2 TOX 計導入前処理の検討

液体試料の TOX 計導入前処理としては、活性炭吸着-無機ハロゲン除去法<sup>12)</sup>がある。具体的には、水試料に対し、試料の 5% 量の硝酸ナトリウム (0.2 mol/L) を添加して活性炭プリパックドカラム (TXAPPC、日東精工アナリティック製) に通水した後、硝酸ナトリウム (0.012 mol/L) を適量通水し、無機態ハロゲンを除去するものである。一方で、本手法について、

1) 下水試料のように夾雑物が多い試料の保存性に関する検討事例、2) 下水試料のように SS 濃度の高い試料に適した前処理方法に関する検討事例が見られない。本検討では、1) および 2) について検討実験を行い、より適切な前処理の提案を試みた。なお、予備実験として TOCl を含まないイオン交換水に 4-bromo-2-chloro-1-fluorobenzene (Sigma-Aldrich 製) を 500 µg/L となるよう添加し ( $n=10$ )、前処理後に測定した時の回収率の平均値は 72.3%、変動係数は 10.8%であった。

### 1) TOCl 分析用下水試料の保存性の検討

試料採取から前処理を実施して測定するまでの間における TOCl 濃度の変化の有無を検証することを目的とし、水試料およびカラム通水後試料の保存性を検討した。具体的な実験条件を表-1 に示す。保存条件として、冷蔵 (4°C) と冷凍 (-20°C) を設定した。

冷蔵実験では、TXAPPC に通水するまでの保存期間を 0 日 (採取当日)、1 日、3 日、7 日、15 日、の 5 通りとし、また、通水後のカラムをパラフィルムとアルミホイルで包んで冷蔵保存し、燃焼操作まで保存する期間を 0 日 (通水当日) または 1 日、6 日、から 8 日、14 日または 15 日の 3 通りに設定した。

冷凍実験では、TXAPPC に通水するまでの保存期間を 0 日 (採取当日)、14 日、28 日、56 日、84 日の 5 通りを設定した。試料は沈殿させた流入下水の上澄み (以下、消毒処理なし試料。SS 濃度 32 mg/L) および同試料に塩素消毒処理を行ったもの (以下、消毒処理後試料。SS 濃度 26mg/L) を各 100 mL 準備し、それぞれの実験に供した。なお、塩素処理では、塩素注入率を 10 mg/L、反応時間を 20 分として処理した後、残留塩素を中和するために飽和濃度に調整したチオ硫酸ナトリウム溶液を試料に加え、5 分間反応させた。燃焼後の試料が IC で測定されるまでは 3 日以内であった。

### 2) 高 SS 濃度水試料の TOCl 分析前処理方法の検討

試料に多くの懸濁物が含まれる場合、TXAPPC に十分な量の通水ができず、試料定量下限値が悪化して低濃度までの測定ができなくなるだけでなく、適切な濃度評価ができなくなる恐れがある。また、試料をろ別し、ろ液を溶存態試料、ろ紙上の残渣を懸濁態試料として各々分析することで得られる形態別分析データは、環境中の挙動の把握や水処理の処理操作の評価において有効となる。

本検討では、ろ過後のろ紙上の残渣を懸濁態試料として燃焼イオンクロマトグラフィーに供するために

表-1 下水試料の保存性検討実験の概要

実験	試料 (流入下水の 沈殿上澄液)	試料量 (mL)	試料保存期間 (日)	
			TXAPPC 通水まで	TXAPPC通水後、 燃焼まで
冷蔵保存 (4°C) 実験	消毒処理なし	100	0, 1, 3, 7, 15	0, 1, 6, 7, 8, 14, 15
	消毒処理後			
実験	試料 (流入下水の 沈殿上澄液)	試料量 (mL)	TXAPPC通水までの 試料保存期間 (日)	
冷凍保存 (-20°C) 実験	消毒処理なし	100	0, 14, 28, 56, 84	
	消毒処理後			

TXAPPC: 活性炭ブリパッドカラム

重要な検討項目として、ろ紙材の選定、無機ハロゲン除去操作の検討、前処理後試料の保存を含めた一連の操作における精度と確度の確認を行った。

ろ紙材の検討では、SS 濃度測定で一般的に使用されるガラス繊維ろ紙 (GF/B, Φ 47mm, Whatman 製)、セルロース混合エステルろ紙 (MCE, Φ 47mm, ADVANTEC 製)、酢酸セルロースろ紙 (CA, Φ 47mm, ADVANTEC 製) の 3 種に対し、ろ紙由来のコンタミネーションの有無と測定再現性を確認した。

無機ハロゲン除去の検討では、液体 (水) 試料と同様に硝酸ナトリウム (0.012 mol/L) を用いることとし、ろ紙の洗浄量を 0,30,60,90,120 mL の 5 段階設定し、適切な洗浄量を検討した。また、使用するろ紙中の TOCl 除去を目的として、比較的極性の低いトルエンと比較的極性の高いメタノールによる事前洗浄操作を検討した。実験に用いた試料は、流入下水を沈殿させた上澄み液を塩素消毒処理後に NaCl を 60mg-Cl/L となるよう添加して調整し、各々 50 mL ずつろ過した残渣を用いた。

最後に、SS 濃度が 224 mg/L の流入下水を用いて各 25 mL をろ過した懸濁態試料を準備し、標準添加回収試験を実施した。標準物質には 4-bromo-2-chloro-1-fluorobenzene を用い、前処理実施前に 1250 µg/試料となるよう添加した試料と無添加試料を準備した。前処理ではまず、見出したろ紙を用いたろ過と洗浄方法を施した。次に、燃焼操作までの試料保存と効率的な燃焼のために試料の乾燥処理が必要であることを考慮して、上述の前処理を経た試料を凍結乾燥させてから TOX 計に供した。なお、高 SS 濃度の水試料に対する分析手法全体としての精度と確度を確認するため、ろ液についても TXAPPC 通水前の試料に同条件で標準添加を行い、測定時の回収率を算出した。また、凍結乾燥による測定への影響を確認するため、凍結乾燥前



後の懸濁態試料への標準添加回収試験も同条件で実施した。全ての試験を  $n=5$  で実施した。

## 2.3 結果

### 2.3.1 下水試料の TOCl 分析試料の保存性の検討

水試料および通水後カラム試料の冷蔵保存実験の結果を図-1に示す。なお、試料準備日に冷蔵保存をせずに TXAPPC に通水し、当日中に燃焼操作を終えた試料の測定データ（消毒処理なし:15.9  $\mu\text{g/L}$ 、消毒処理後試料: 37.0  $\mu\text{g/L}$ ）の測定データをそれぞれ TOCl 残存率 100%として、保存期間ごとの残存率を算出した。各冷蔵保存期間 ( $n=6$ ) の残存率の平均値は 112.6% (0日後)、80.4% (1日後)、71.0% (3日後)、79.0% (7日後)、79.8% (15日後) であり、開始日～1日後にかけて顕著な減少傾向がみられた。一方で、通水後に TXAPPC として保存したデータに着目すると、水試料としての冷蔵保存期間が 0日、あるいは7日、15日では若干のばらつきはあったものの、カラムでの保存期間による残存率への大きな影響はみられなかった。

水試料の冷凍保存実験の結果を図-2に示す。TOCl 残存率の算出方法は上述通りである。また、本実験は  $n=3$  で行ったが、全ての保存条件で測定値の変動係数が 10%以下（最大で 9.5%（消毒なしの 28日冷凍保存試料））であり、同じ試料群の再現性は良好であったため、グラフには平均値をプロットした。平均残存率は、消毒処理なし試料では 67.6% (14日後)、73.8% (28日後)、82.7% (56日後)、68.7% (84日後)、消毒処理後試料では 59.9% (15日後)、73.3% (28日後)、80.6% (56日後)、50.4% (84日後) であった。実験開始日とその他の保存試料の残存率の差の要因は、冷凍試料の解凍操作等に半日程度の作業時間がかかり、TOCl 濃度に変化が生じたためであると推察された。一方で、解凍操作中の濃度減少を除けば、56日（約2ヶ月）程度の保存であれば残存率への顕著な影響はないことが示唆された。

以上の結果を整理すると、試料中の TOCl 濃度をより適切に測定するためには、試料取得後速やかに TXAPPC への通水を開始することが望ましいことが示唆された。一方で、試料取得から実験室での通水作業までには1日程度を要することも想定されるため、水試料の速やかな冷凍ならびに迅速な解凍作業により、1-2ヶ月程度の冷凍保存が可能となることが示された。また、通水後の TXAPPC を 15日程度冷蔵保存しても

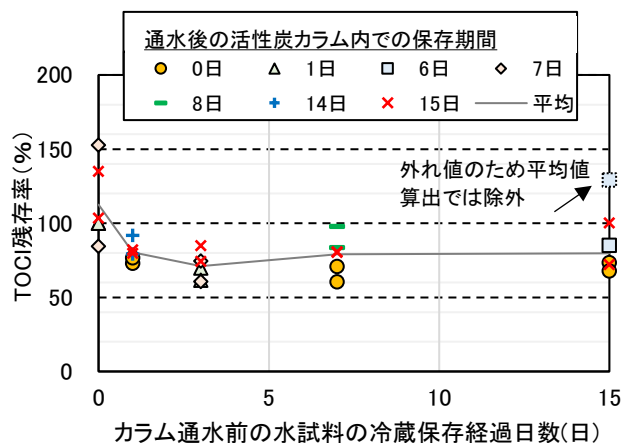


図-1 冷蔵保存試料の TOCl 残存率の推移

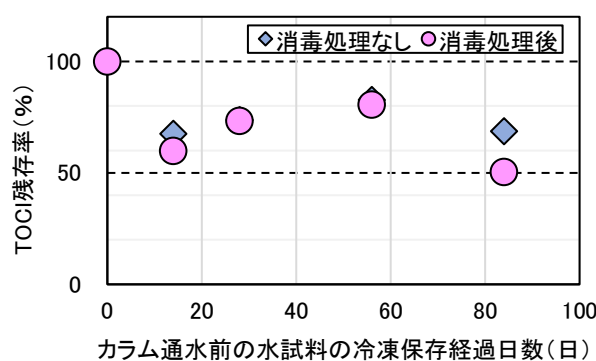


図-2 水試料の冷凍保存後の TOCl 残存率

測定値に影響しないことが示唆された。

### 2.3.2 懸濁態試料中の低濃度 TOCl 測定を目指したろ紙材と洗浄法の検討

SS 濃度が高い水試料中の TOCl 測定方法として適した条件を検討するために、異なるろ紙材と洗浄方法を用いてコンタミネーションの有無を確認した。その結果を図-3に示す。まず、MCE ろ紙を検討した結果、無洗浄での吸収液 (5mL 程度) の濃度が平均値 ( $n=3$ ) で 670  $\mu\text{g/L}$ 、 $\text{NaNO}_3$ による洗浄後で 435  $\mu\text{g/L}$  検出された。GF/B ろ紙の場合には、 $\text{NaNO}_3$ による洗浄後で 158  $\mu\text{g/L}$  検出された。これらの濃度は、装置定量下限値 (IQL) の 47  $\mu\text{g/L}$  よりも顕著に高く、ろ紙に含まれる塩素化合物によるコンタミネーションが示唆された。また、GF/B ろ紙の場合には燃焼後も燃焼ボートにガラス塊が残留してしまう課題もあった。一方、CA ろ紙では、無洗浄の場合でも 60.0  $\mu\text{g/L}$  の検出に留まり、MCE ろ紙や GF/B ろ紙と比べ、バックグラウンド濃度が大幅に改善した。また、 $\text{NaNO}_3$ による洗浄後では 50.9  $\mu\text{g/L}$  であった。さらにトルエン+



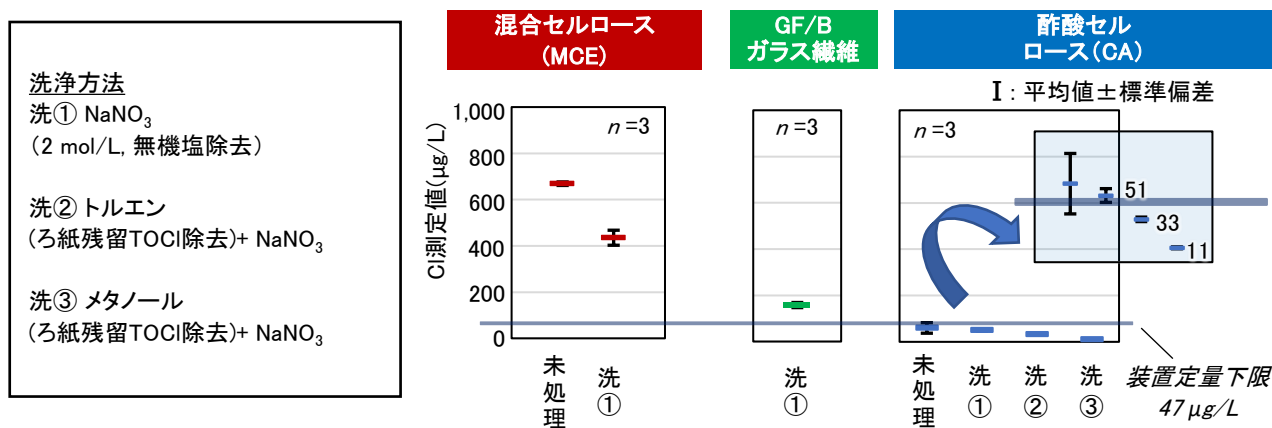


図-3 懸濁態試料中の低濃度 TOCl 測定を目指したろ紙材と洗淨法の検討

NaNO<sub>3</sub>洗淨後では 32.8 µg/L、メタノール+NaNO<sub>3</sub>洗淨後では 10.9 µg/L の検出に留り、IQL の 47 µg/L よりも低くなった。以上より、メタノールと NaNO<sub>3</sub> による事前洗淨をした CA ろ紙を採用することで、試料中 TOCl が数 µg/L~数十 µg/L の低濃度域まで測定できる可能性が示された。

見出した洗淨方法で準備した CA ろ紙を用いて、下水試料をろ過した残渣を含むろ紙に対して無機ハロゲン除去に必要な NaNO<sub>3</sub> (2.0 mol/L) 洗淨液量を検討した。結果を図-4 に示す。NaNO<sub>3</sub> 液量が 0, 30, 60, 90, 120 mL の時の TOCl 濃度はそれぞれ、99.4, 58.3, 34.7, 31.2, 36.5 µg/L であり、60 mL 以上では大きな差はみられなかった。60 mL の洗淨液量があれば作業が非効率化せず、十分に無機ハロゲン（無機塩素化合物）が除去されることが示唆された。

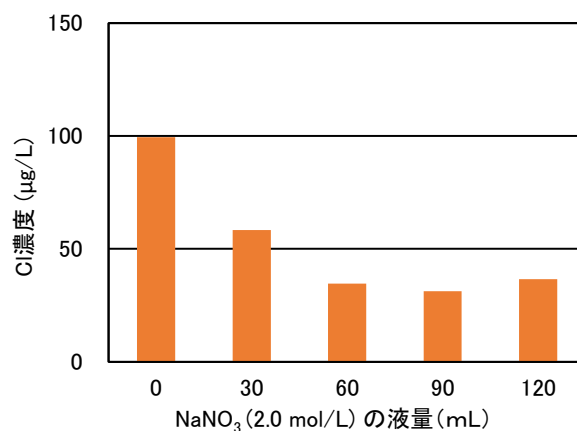


図-4 無機ハロゲン除去のための NaNO<sub>3</sub> 洗淨における液量別の CI 測定濃度

### 2.3.3 下水懸濁態試料への標準添加回収試験結果と凍結乾燥による TOCl 測定への影響の確認

実下水試料を用いた標準添加回収試験の結果を図-5 に示す。本研究で見出して 2.3.1 及び 2.3.2 に示した前処理方法（試料水の冷凍保存期間、通水後カラムの冷蔵保存期間、ろ紙の洗淨方法）で処理した後に凍結乾燥した上で TOX 計に供した懸濁態試料中の TOCl 標準添加回収率は 62.3% であり、その変動係数は 11.4% であった。また、溶存態試料を既往の手法で前処理し TOX 計に供した時の回収率は 62.1% であり、その変動係数は 3.4% であった。これらを比較すると、回収率の再現性は懸濁態試料でやや誤差が大きかったが、回収率自体は懸濁態と溶存態とで同様であった。一方、標準非添加試料の測定値から算出した試料中に元々含まれていた TOCl 濃度に着目すると、溶存態試料では

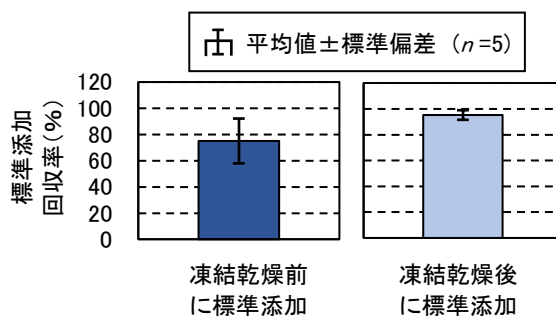


図-5 標準物質 4-bromo-2-chloro-1-fluorobenzene を用いた下水試料への添加回収試験結果と同試料中に元々含まれていた TOCl 濃度

平均値 27.5 µg/L (濃度の変動係数 3.4%) であったのに対し、懸濁態試料では平均値 118 µg/L (濃度の変動係数 33.8%) と変動が顕著に大きかった。この要因の一つには、標準添加試料中の TOCl 濃度 (25 mL 試料換算値で 8,460 µg/L) に対して、実試料中の TOCl 濃度が 2 オーダー程度低かったことが考えられた。

懸濁態試料において分析値の変動係数が比較的高かった結果を受け、前処理の後段で行う凍結乾燥処理による TOCl 測定結果への影響を検討した。結果を図-6に示す。凍結乾燥後に標準添加した試料では、回収率は 95.4%であり、その変動係数は 3.7%であった。一方で、凍結乾燥前の添加試料では回収率は 75.0%であり、その変動係数は 22.9%であった。この結果から、凍結乾燥処理により懸濁態試料中 TOCl のロスや測定誤差を生じていることが示唆された。一方で、凍結乾燥処理を除いて試料への影響が少ない乾燥操作は現状では提案は容易ではなく、凍結乾燥操作に対する対象方策の検討が必要であることが示された。

以上の検討結果より本研究で見出した TOCl の測定手順を図-7に示す。本手法では、50 mLの水試料を前処理した場合、TOCl の LOQ (試料定量下限値) は 4.7 µg/L となるが、現状の懸濁態分析手法では濃度が数十 µg/L 程度以下の低下水試料の分析では測定結果が一定のバラつきを含むため、複数試料の分析による誤差の確認が重要であると考えられた。また、全有機フッ素化合物類 (TOF) や、有機臭素化合物類 (TOBr) についても定量可能なことを確認しており、今後の活用を検討していく。

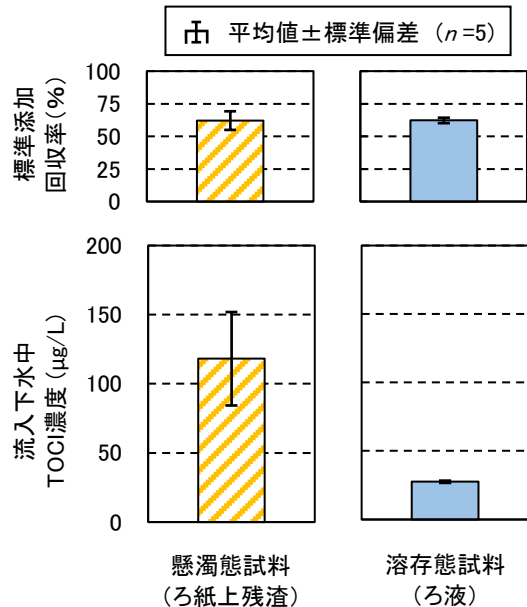


図-6 ろ紙試料の凍結乾燥処理の有無による TOCl 回収率の比較

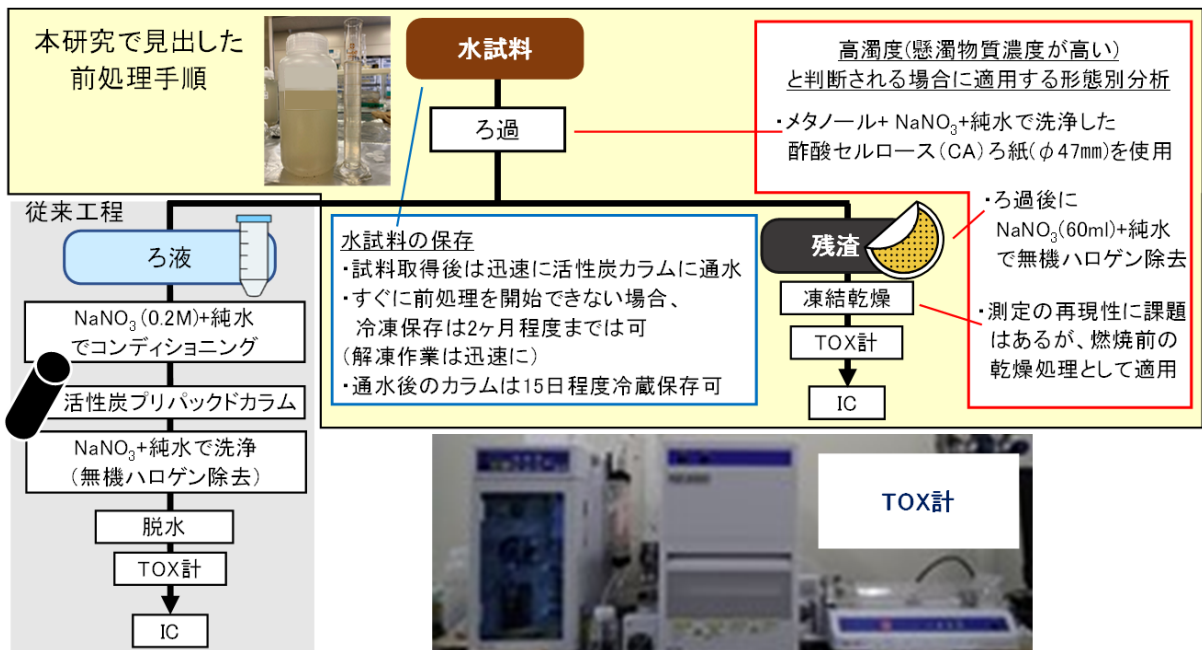


図-7 本研究で見出した TOCl の測定手順

### 3. 塩素消毒副生成物の生成メカニズム検討と放流先河川における挙動把握

#### 3.1 背景と目的

下水処理場が地震、豪雨等により被災しその処理機能が喪失した場合、被災後の緊急措置として未処理下水の消毒放流が行われ、また、応急復旧段階においては沈殿や簡易生物処理を行った後、消毒放流されている。これらの消毒放流についてはこれまでの知見から衛生学的な安全を確保するために必要な主要消毒技術の一つとして塩素消毒<sup>12)</sup>が用いられている。塩素注入率は放流水の大腸菌群数を 3,000 個/cm<sup>3</sup>以下に保ちつつ消毒塩素の放流先への影響を考慮し、残留塩素 0.1mg/L 程度が目安となっている。残留塩素が 1.0mg/L を超えた場合には、放流先の水生生物への影響懸念から還元剤による脱塩素や海水、環境水等による希釈が必要となる場合もある。また、下水処理の消毒の他、浄水処理の消毒においても用いられている塩素消毒は、有害なトリハロメタン、ニトロソアミン類、ホルムアルデヒド、全有機ハロゲン等の消毒副生成物を生成する反応を起こしうることが知られている<sup>13)~18)</sup>。

応急復旧段階の下水の塩素消毒は、通常の下水処理水の塩素消毒に比べ、塩素注入率が高いことから消毒副生成物の生成濃度が高くなることが予想されるが、応急復旧段階の消毒副生成物に関する調査・研究報告はみられず、その実態は不明である。また、これら消毒副生成物の放流先河川における挙動の調査報告は少なく、応急復旧段階の消毒放流を対象とした調査報告はみられない。

本研究は、応急復旧段階を模した下水を用い、消毒副生成物の生成メカニズム検討として塩素注入率と副生成物の関係、反応時間と副生成物の関係について室内実験を行った。また、消毒副生成物の放流先河川における挙動について応急復旧段階の下水処理場の放流先河川における現地調査を行った。

#### 3.2 方法

##### 3.2.1 消毒副生成物の生成メカニズム検討

塩素消毒における消毒副生成物の生成メカニズム検討については、塩素注入率、反応時間をパラメータとした消毒副生成物の生成実験を行った。消毒副生成物として全有機ハロゲン (TOX)、ホルムアルデヒド (HCHO)、ニトロソアミン類の N-ニトロソジメチルアミン (NDMA)、N-ニトロソジエチルアミン

(NDEA) を分析した。HCHO は公共用水域における水生生物保全の要監視項目でその淡水域の指針値は 1mg/L 以下とされている化学物質であり、水道水質基準の基準値が 80 µg/L 以下と設定されている。NDMA は水道水の要検討項目としてその目標値 0.1 µg/L が示されている化学物質である。

TOX の分析は、前述した 2.3.3 項に示す方法により行った。本研究は、塩素消毒副生成物の検討を主眼としていることから TOX 化合物のなかでも塩素化有機物について測定し TOCl 濃度として「µg-Cl/L」で示した。また、HCHO は、化学物質と環境平成 27 年度化学物質分析法開発報告書<sup>19)</sup>の方法により、ろ過無して分析した。NDMA、NDEA は、試料を孔径 1µm のガラス繊維ろ紙で自然ろ過した後、ろ液を上水試験方法-2011 年版・有機物編<sup>20)</sup>の方法により分析した。また、供試下水について水温、pH、ORP、SS、DOC、NH<sub>4</sub>-N を測定した。

##### 1) 塩素注入率と副生成物生成の関係

塩素注入率と副生成物生成の関係把握は、図-8 に示す 2L のポリビンに pH 計、ORP 計をセットした実験装置を 4 組用いて行った。塩素注入率は、流入下水の消毒において大腸菌群数を 3,000 個/cm<sup>3</sup>以下にするために必要な 7~12mg/L<sup>21),22)</sup>を参考に 5~20mg/L とし、また、反応時間は一般的な消毒槽の接触時間が 15 分以上<sup>22)</sup>を標準としていることを参考に 20 分に設定した。添加する塩素は、有効遊離塩素約 1,000mg/L の次亜塩素酸ナトリウム溶液とした。各装置に塩素注入率 5、10、15、20mg/L で塩素添加し、20 分攪拌した。残留塩素を測定した後、直ちに L-アスコルビン酸を 1g/L 加え残留塩素の中和を行った。残留塩素中和後の試料について消毒副生成物 (TOCl、HCHO、NDMA、NDEA) を分析した。

実験は実処理場の流入下水を用いて 2 回行った。実験 1 回目の試料は、ピット表層水を簡易沈殿下水の模擬下水として用いた。実験 2 回目は、ピット下水を採

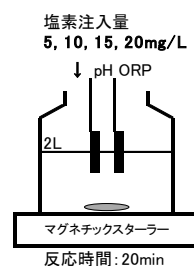


図-8 実験装置 (塩素注入率の影響実験)

取し嫌気化させる目的で3日間室温で放置し、再混合した後1時間静置した上澄液を還元性簡易沈澱下水の模擬下水とした。それぞれの供試下水の水質を表-2に示した。実験1回目に供した模擬簡易沈澱下水の水質は、ORP-125 mV、SS91mg/L、DOC26mg/L、NH<sub>4</sub>-N16mg/Lであった。また、実験2回目の供試下水は、3日間室温放置によりORPが-225mVと還元は進行し、模擬還元性簡易沈澱下水とすることができた。

2) 反応時間と副生成物生成の関係

反応時間と副生成物の関係把握は、前述の1)と同様に図-8の装置を4組用い、それぞれの塩素注入率を15mg/Lとし塩素添加から10、20、40、80分経過後に各試料の残留塩素を測定した後、直ちにL-アスコルビン酸を1g/L加え残留塩素の中和を行った。残留塩素中和後の試料について消毒副生成物(TOX、HCHO、NDMA、NDEA)を分析した(実験①)。

また、別々の装置による実験①では、バラツキがみられたことから同一ボトルを用い所定の反応時間経過後に分析試料を採取する方式の実験②を行った(図-9参照)。実験②では消毒副生成物はTOClのみ分析した。実験は試料6L、塩素注入率15mg/Lとし、塩素添加から10分経過後に試料約300mLを採取し残留塩素測定後、直ちにL-アスコルビン酸を1g/L加え残留塩素の中和を行いTOCl分析に供した。20分経過後、40分経過後、80分経過後においても10分経過後同様に試料採取、残留塩素測定、残留塩素中和を行いTOCl分析した。

供試下水の水質を表-3に示した。実験①の試料は実処理場の流入下水を午前中に採取し、直ちに実験に供し、実験②の試料は午後採取したピット表層下水を翌日まで室温保存したものを実験に供した。

3.2.2 消毒副生成物の放流先河川における挙動

消毒副生成物の放流先河川における挙動調査は、K浄化センターの放流先河川(A川)において実施した。分析試料は、下水処理場の放流口と放流先河川5地点

(放流口の上流約0.7km、下流約3km、約7.5km、約11.5km、約22km)で採取した。採取地点において水温、pH、ORP、EC、濁度、DO、TDS、残留塩素(遊離、全)を測定した。また、採取試料は、冷蔵状態で分析所に持ち込み、一般項目(SS、DOC、TP、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>x</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N)の測定と消毒副生成物(TOCl、HCHO、NDMA、NDEA)を分析した。TOCl測定は、試料のSS濃度が低いことから未ろ過

表-2 供試下水の水質 (塩素注入率の影響実験)

	水温 (°C)	pH (-)	ORP (mV)	SS (mg/L)	DOC (mg/L)	NH <sub>4</sub> -N (mg/L)
1回目	22	7.0	-125	91	26	16
2回目	16	6.9	-225	28	39	26

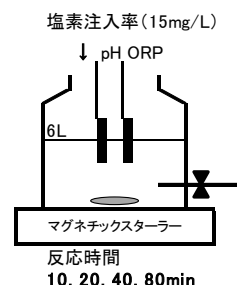


図-9 実験装置 (反応時間の影響実験)

表-3 供試下水の水質 (反応時間の影響実験)

	水温 (°C)	pH (-)	ORP (mV)	SS (mg/L)	DOC (mg/L)	NH <sub>4</sub> -N (mg/L)
実験①	21	7.1	-220	165	24	17
実験②	10	7.3	-74	103	41	26

表-4 塩素消毒後の水質 (塩素注入率の影響実験)

	塩素注入率 (mg/L)	残留塩素 (mg/L)		水温 (°C)	pH (-)	ORP (mV)	
		Free	Total				
1回目	5	添加20分後	0.20	0.02	22	7.1	-37
		中和後	—	—	22	4.1	64
	10	添加20分後	0.21	4.0	21	7.1	450
		中和後	—	0.00	21	4.2	74
	15	添加20分後	0.09	7.2	21	7.1	499
		中和後	—	0.00	21	4.3	67
	20	添加20分後	0.48	13	21	7.1	519
		中和後	—	0.00	21	4.3	68
2回目	5	添加20分後	0.06	0.00	17	7.1	-78
		中和後	—	—	17	4.6	-2
	10	添加20分後	0.06	1.1	16	7.0	349
		中和後	—	—	16	4.6	62
	15	添加20分後	0.12	5.0	16	7.1	430
		中和後	—	—	16	4.7	40
	20	添加20分後	0.16	11	16	7.1	450
		中和後	—	—	16	4.8	92

試料をそのまま活性炭カラムに通水した。

3.3 研究結果

3.3.1 消毒副生成物の生成メカニズム検討結果

1) 塩素注入率と副生成物生成の関係

塩素消毒後の水質を表-4に示した。各実験とも残留塩素は、遊離残留塩素の存在は少なく、ほとんどが結合残留塩素であった。結合残留塩素としてクロラミン(モノクロラミン、ジクロラミン、トリクロラミン)が知られているが、本研究ではクロラミンの形態につ

いては確認していない。また、いくつかの中和試料の残留塩素測定を行い、中和後に残留塩素が不検出であることを確認した。

pH は、塩素添加前後の変化はほとんど見られないが、残留塩素の中和剤として 1g/L の濃度で L-アスコルビン酸を添加した後は 4.1~4.8 と酸性を示した。また、ORP の変化から、還元状態の供試下水試料（表-2）が塩素添加後に酸化状態となっていることがわかる。還元剤としての作用をもつ L-アスコルビン酸の添加により ORP の値が少し低下しているが、残留塩素が中和されることによる。消毒副生成物の分析は、中和後の試料を用いた。

塩素無添加の TOCl 濃度、塩素注入率を 5、10、15、20mg/L で添加し反応時間 20 分とした試料の TOCl 濃度を図-10、HCHO 濃度を図-11 に示した。実験 1 回目の TOCl 測定は、孔径 1 $\mu$ m のミックスセルローズエステル (MCE) ろ紙、実験 2 回目は、孔径 0.8 $\mu$ m のセルロースアセテート (CA) ろ紙によりろ過したろ液（溶存態）とろ紙上残渣（懸濁態）に分けて行った。また、HCHO 測定は懸濁態を含む試料を PFBOA 誘導体化後、ヘキサン抽出し GC/MS により測定した。図-10 より塩素消毒により TOCl の生成がみられ、その生成濃度は、塩素注入率に比例し高くなる傾向がみられた。1 回目、2 回目の結果を比較すると、溶存態と懸濁態の比率が異なる結果となったが、懸濁態を捕捉するろ紙の孔径が 1 回目 1 $\mu$ m、2 回目 0.8 $\mu$ m と違うことが一因を考えられる。また、図-11 の HCHO については、塩素注入率との間に強い相関は認められなかった。塩素消毒の副生成物としての HCHO は、ヘキサメチレンテトラミン、トリメチルアミンの他種々の化学物質の存在下で生成することが報告<sup>17,18)</sup>されている。本試料においてもこれら前駆物質が一定程度含有されていたものと考えられる。

ニトロソアミン類の NDMA は、1 回目の塩素注入率 5mg/L の試料が 0.024 $\mu$ g/L であった他は、どの試料においても定量下限値 (0.018 $\mu$ g/L) 未満であった。また、NDEA はいずれの試料においても定量下限値 (0.045 $\mu$ g/L) 未満であった。本実験では、人健康の懸念となるレベルのニトロソアミン類の生成は認められなかった。

図-12 に塩素注入率と TOCl 生成濃度、図-13 に残留塩素と TOCl 生成濃度、図-14 に塩素消費量と生成 TOCl 濃度の関係を示した。懸濁態の TOCl 測定については、測定結果の再現性に課題がみられることから、

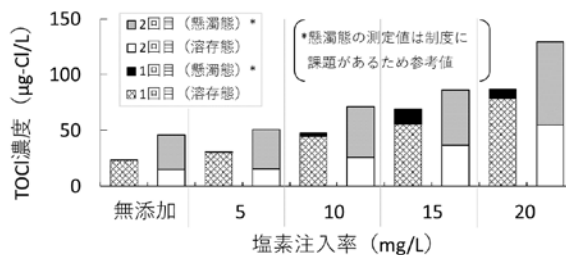


図-10 TOCl 測定結果 (塩素注入率の影響実験)

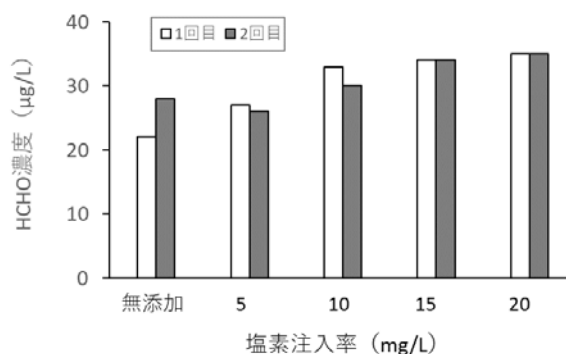


図-11 HCHO 測定結果 (塩素注入率の影響実験)

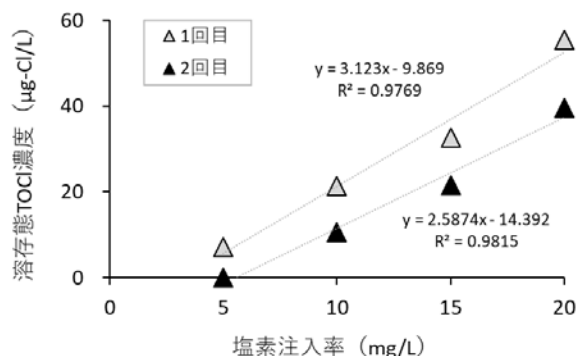


図-12 塩素注入率と生成 TOCl 濃度の関係

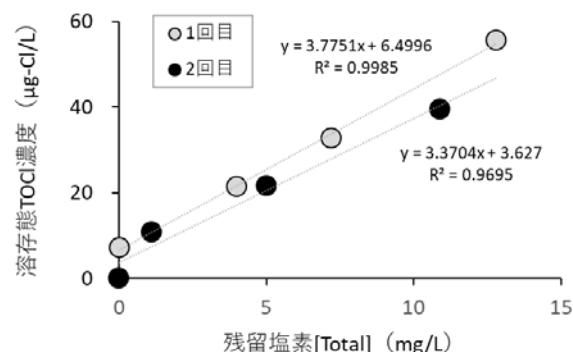


図-13 残留塩素濃度と生成 TOCl 濃度の関係

図-12、13、14 の塩素注入量、残留塩素、塩素消費量と生成 TOCl 濃度の関係については溶存態の測定デー

タを用いて図示した。縦軸の TOCl 濃度は、塩素添加後の試料の分析値から塩素無添加の値を減じた濃度とした。図-12、13 からわかるように塩素注入率と生成 TOCl 濃度、残留塩素濃度と生成 TOCl 濃度の間に強い正の相関がみられた。また、図-14 に示した塩素消費量と生成 TOCl 濃度の関係は、塩素消費量に比例し生成 TOCl 濃度が高くなる傾向は認められるが、塩素注入率、残留塩素に比べるとその相関は低い傾向であった。注入された塩素は、消毒副生成物生成に使われる他、還元性物質の酸化にも消費されることが原因と考えられる。

2) 反応時間と副生成物生成の関係

塩素消毒後の水質を表-5 に示した。残留塩素は、前述の 1) 同様、遊離残留塩素の存在は少なく、ほとんどが結合残留塩素であった。実験①は、それぞれ別のボトルを用いた実験だったこともあり残留塩素濃度のバラツキがみられる。実験②は、所定時間経過後に試料採取する方式としたことから大きな変動はみられなかった。pH は、L-アスコルビン酸の添加で酸性に変化すること、ORP は、供試下水試料(表-3)の還元状態から塩素添加後に酸化状態となっていること、還元剤の L-アスコルビン酸の添加後に値が少し低下するなど、前述の 1) と同様であった。

消毒副生成物の分析結果については、実験①、実験②の TOCl 測定結果を図-15、HCHO 測定結果を図-16 に示した。バラツキが大きい結果となったが、反応時間 10 分～80 分では TOCl 濃度が大きく異なることはなかった。この結果から、TOCl 生成反応は 10 分の反応時間で既に平衡に達していると考えられる。

HCHO、NDMA、NDEA は、実験①のみ分析した。図-16 に示すとおり、HCHO は反応時間が 10 分、20 分、40 分までは反応時間が長くなるに従い高くなり、80 分の値は 40 分とほぼ同じであった。反応時間と HCHO 生成の関係の明確化には再試験による確認などデータ蓄積が望ましいと考えられた。また、NDMA は、0.020～0.027µg/L と低濃度で定量されたがバラツキが大きく反応時間との関係はみられなかった。NDEA はいずれの試料も定量下限値(0.045µg/L)未満であった。

なお、本項で得られた TOCl 濃度は、塩素消毒前が約 25µg-Cl/L、塩素消毒試料は最大約 130µg-Cl/L であった。これらの値は、山根らの調査研究<sup>23)</sup>で報告されている流入下水の TOCl 濃度、高橋らの研究<sup>24)</sup>で報告されている塩素消毒下水の TOCl 濃度と同レベルで

あった。

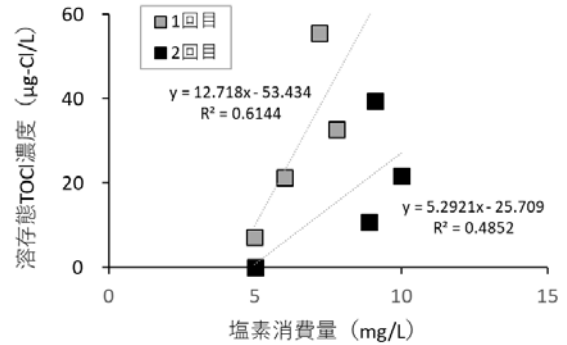


図-14 塩素消費量と生成 TOCl 濃度の関係

表-5 塩素消毒後の水質 (反応時間の影響実験)

	反応時間 (10分)	残留塩素 (mg/L)		水温 (°C)	pH (-)	ORP (mV)	
		Free	Total				
実験①	10	添加後10分 中和後	0.26 —	8.7 0.00	20 20	7.2 4.4	429 35
	20	添加後20分 中和後	0.19 —	6.3 0.00	20 20	7.2 4.3	443 40
	40	添加後40分 中和後	0.24 —	7.3 0.00	20 20	7.3 4.4	480 56
	80	添加後80分 中和後	0.19 —	6.3 0.00	20 20	7.4 4.3	487 79
実験②	10	添加後10分	0.08	12	11	7.4	414
	20	添加後20分	0.08	11	11	7.5	416
	40	添加後40分	0.11	12	11	7.5	416
	80	添加後80分	0.07	11	11	7.6	415

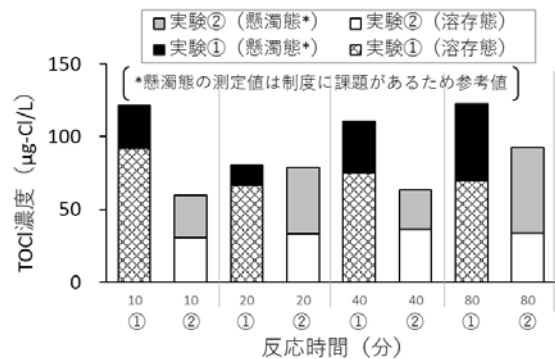


図-15 反応時間と TOX 濃度の関係

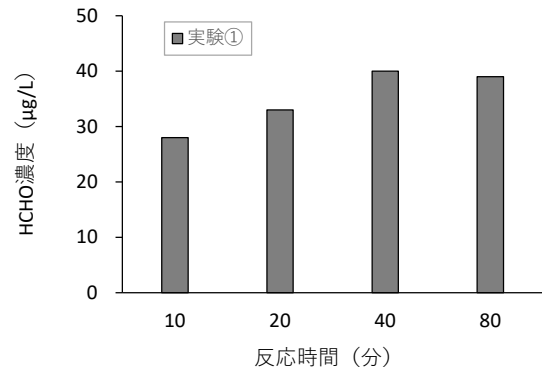


図-16 反応時間と HCHO 濃度の関係

### 3.3.2 消毒副生成物の放流先河川における挙動調査結果

河川調査結果一覧を表-6 に示した。放流口上流約 0.7km、下流約 3km～22km の各地点の一般水質項目 (SS、DOC、T-P 等々) の数値は概ね同じ値であった。放流口で採取した放流水の水質は、SS が河川水の約 3 倍、DOC が約 10 倍、T-P が約 20 倍であったが、放流水流入前後の河川水質にほとんど変化はみられず放流水の河川水質への影響は小さかった。放流水量が放流先河川水量の約 1/180 であったことなど放流負荷量が放流先河川の負荷量に比べ小さいことによると考えられる。他の一般水質項目についても同様であった。

TOCl、HCHO 濃度変化図を図-17 に示した。消毒副生成物の TOCl 濃度は、放流先河川水濃度は 1.2～1.9 $\mu\text{g-Cl/L}$ 、放流口で採取した放流水は 21 $\mu\text{g-Cl/L}$  であった。放流水の TOCl 濃度は、放流先河川の 10～17 倍であったが、水量が 1/180 であったことから、負荷量では約 1/10～1/16 であり、放流先河川への影響は小さいと考えられる。

HCHO についても放流先河川水の濃度は、2.2～5.0 $\mu\text{g/L}$ 、放流水の濃度は 16 $\mu\text{g/L}$  であり、TOCl 同様に放流水の放流先河川への影響は小さい。また、ニトロソアミン類の NDMA、NDEA は、放流水及び河川のどの地点においても定量下限値 (0.018 $\mu\text{g/L}$ 、0.045 $\mu\text{g/L}$ ) 未満であった。

なお、TOCl、HCHO の調査結果から放流口から下流約 22km の区間における濃度は減少することなく概ね同じ値であったことから、これらは河川水中において保存性が高いことがわかった。HCHO については、岡本ら<sup>25)</sup>が多摩川の中流域 11km 区間において実施した調査で減少係数は小さく、流下過程で減衰しにくい化学物質であることが報告されている。また、南山ら<sup>26)</sup>は HCHO 添加の二次処理水を用いた水路実験を行い、約 45 分の流下時間では減衰がみられなかったと報告している。今回の調査結果は、これらの既往知見と一致していた。

TOCl、HCHO は、現時点で環境基準や排水基準における規制項目ではない。HCHO は、水生生物の保全に係る要監視項目として、環境中の指針値が淡水域で 1mg/L とされており、今回の現地調査における放流水濃度および河川水濃度、ならびに模擬排水実験における生成濃度は、いずれも指針値を大幅に下回っていた。また、TOCl には同じく水生生物の保全に係る

表-6 河川調査結果一覧

	上流 約0.7km	放流口 (放流水)	下流 約3km	下流 約7.5km	下流 約11.5km	下流 約22km
水温 (°C)	19	22	18	17	17	17
pH (-)	7.4	7.2	7.2	6.9	6.8	6.6
ORP (mV)	150	360	170	140	150	190
EC (mS/cm)	0.21	0.46	0.19	0.20	0.22	0.21
濁度 (NTU)	9	50	12	14	14	16
DO (mg/L)	9.6	11	8.0	9.4	9.6	9.7
SS (mg/L)	8.9	30	8.7	12	12	13
DOC (mg/L)	1.7	22	2.0	1.6	1.7	1.8
T-P (mg/L)	0.08	2.1	0.08	0.09	0.09	0.09
PO <sub>4</sub> -P (mg/L)	0.04	1.5	0.04	0.04	0.04	0.05
NH <sub>4</sub> -N (mg/L)	0.06	17	0.15	0.13	0.14	0.11
NO <sub>x</sub> -N (mg/L)	0.85	0.23	0.83	0.84	0.84	0.84
NO <sub>2</sub> -N (mg/L)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05

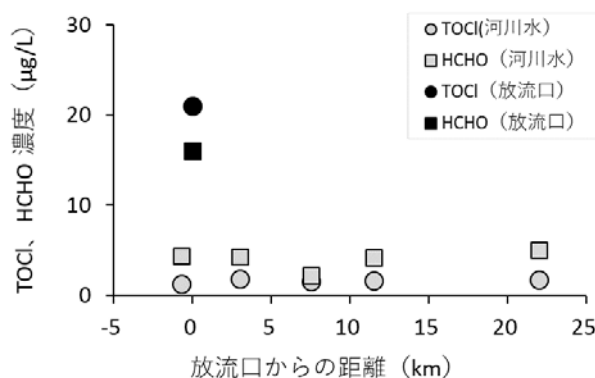


図-17 放流先河川における TOCl、HCHO 濃度

要監視項目であるクロロホルムが含まれるが、TOX 全体としては他のトリハロメタン類も含めた極めて多様な有機塩素化合物の包括指標であり、個別物質はその一部に過ぎないため、水環境影響の評価への包括指標の活用方策も含めて、今後検討していくことが望ましいと考えられた。

## 4. 応急復旧段階における下水処理水の水生生物に及ぼす影響評価

### 4.1 背景と目的

近年、震災や豪雨被害により下水処理施設の被災が増加しており、汚水処理機能の一次停止や復旧が長期間に及ぶ被害が報告されている。応急復旧段階では、流入下水を沈殿や簡易生物処理を行った後、消毒放流することが一般的であるが、この状態での処理水は有機物やアンモニア性窒素濃度が高く、また消毒の塩素添加量が平常時よりも多いため、消毒副生成物の生成も促進されることが考えられる<sup>26)</sup>。一方、応急復旧下における処理水の生物影響に関する調査報告は少なく、特に消毒副生成物の影響観点から考えると、影響



を受けやすいとされる藻類を用いて評価する必要があると考えられる。そこで本研究では、応急復旧段階を模した下水を用い、ムレミカヅキモ (*Raphidocelis subcapitata*) に対する影響評価を行った。

## 4.2 実験材料および実験方法

### 4.2.1 試験水の採取と調製

試験水は、2021年3月1日、K浄化センターからバッチ採取した。使用した試験水は、①塩素混和池流入水(試験水①)、②塩素混和池流出水(試験水②)、③塩素混和池流出水+チオ硫酸Na(試験水③)の3種である(図-18)。②の消毒用塩素には次亜塩素酸Naが用いられていた。事前にムレミカヅキモの生育に影響がないことを確認したチオ硫酸Na(1.1mM)を採取直後の試験水②に添加し、残留塩素を中和した水試料を試験水③とした。各サンプルは低温下で速やかに土木研究所に搬入し、試験に用いるまで4℃冷暗所に保管した。採取された各処理水は一般水質、消毒副生成物を測定し、ムレミカヅキモの影響試験に用いた。

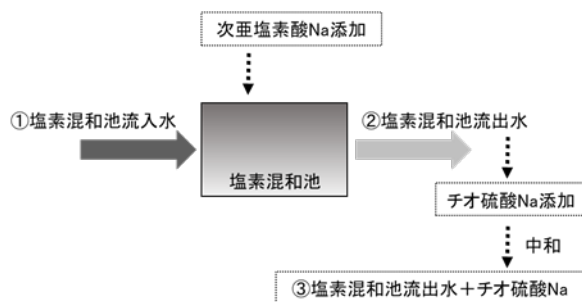


図-18 試験水採取場所の概略図

### 4.2.2 藻類を用いた処理水の影響試験

試験には国立研究開発法人国立環境研究所から分譲されたムレミカヅキモ (*R. subcapitata*; NIES-35株)を用いた。保存飼育時はAAP培地を用いてフラスコで培養し、25℃、3000 Lux(白色蛍光灯下)で明期16h/暗期8hで培養を行い、1週間おきに継代培養を行った。

本試験はOECD201を基に、96穴平底プレートを用いて検討を行った<sup>27)</sup>。Milli-Q水を用いて各処理水を0(Control)、1、5、10、20、40%濃度となるよう希釈調製し、10倍濃度のAAP培地を最終濃度1倍量になるよう添加して試験溶液を作製した。フィルター

滅菌した各試験溶液と前培養したムレミカヅキモ(最終濃度 $1 \times 10^4$  cells/ml)を全量200 $\mu$ Lになるよう96穴平底プレートに添加し、1週間静置培養を行った。培養条件は25℃、4,000 Luxで連続照射とした。藻類の増殖はクロロフィルaを指標とし、そこから比増殖速度を算出した。クロロフィルaはプレートリーダー(SoftMax® Pro、モレキュラーデバイスジャパン)を用いて、励起435/蛍光685nmを測定した。試験は各濃度6連で行った。

### 4.2.3 一般水質項目の測定

試験水①と②は、水温、pH、ORP、EC、DO、残留塩素(全塩素、遊離塩素)、SS、DOC、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>x</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nを測定した。残留塩素は、採水翌日にも全サンプルにおいて測定を行った。

### 4.2.4 TOXと消毒副生成物の測定

試験水①と②について、全有機ハロゲン化合物(TOX: Total Organic Halide、ハロゲンをXで表示)と消毒副生成物を測定した。消毒副生成物は、揮発性有機化合物(クロロホルム、ブロモジクロロメタン、ジブロモクロロメタン、ブロモホルム、ブロモクロロメタン、ジブロモメタン、トリクロロブロモメタン、テトラブロモメタン、クロロピクリン)、ハロアセトニトリル(ジクロロアセトニトリル、トリクロロアセトニトリル、プロモアセトニトリル、ジブロモアセトニトリル)、発泡クロラール、ハロ酢酸(クロロ酢酸、ジクロロ酢酸、トリクロロ酢酸)、アルデヒド(ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、イソブチルアルデヒド、イソバレルアルデヒド)を測定した。

TOXの測定は、前述した2.3.3項に示す方法により行い、水中に含まれる塩素の有機ハロゲン化合物の総量をTOClとして示した。

揮発性有機化合物、ハロアセトニトリル、発泡クロラール、ハロ酢酸測定用の試験水には、採取直後にアスコルビン酸ナトリウム(最終濃度1g/L)を添加し、アルデヒド測定用の試験水には、採取後に0.1mLチオ硫酸ナトリウム(0.3w/v%)を添加した。揮発性有機化合物の測定は、パージ・トラップガスクロマトグラフ質量分析法を用いた。ハロアセトニトリルと発泡クロラールの測定は、溶媒抽出ガスクロマトグラフ質量分析法を用いた。ハロ酢酸の測定では、溶媒抽出誘導体化・ガスクロマトグラフ質量分析法を用いた。

またアルデヒドの測定には、溶媒抽出-誘導体化-ガスクロマトグラフ-質量分析法を用いた。

#### 4.2.5 有機化学物質の精密質量分析

試験水①、②、③について、高沢ら<sup>28)</sup>の方法で固相抽出を行った。無添加のミリ Q 水をコントロール試料とした。前処理した各試料を液体クロマトグラフ-精密質量分析装置で測定し<sup>28)</sup>、各試料から検出された全スペクトル (m/z) を抽出した。抽出したスペクトルは、解析 (A) と解析 (B) で検討を行った。

**解析 (A) :** 抽出した全スペクトルのうち、コントロール試料におけるスペクトル強度が低く (<100)、かつ試験水①~③では高い (>1000) スペクトルのみをカウントした。

**解析 (B) :** 試料①で検出されたスペクトル強度に対し、試験水②および③においてスペクトル強度が 10 倍以上または以下のものをカウントした。

### 4.3 結果と考察

#### 4.3.1 使用した処理水の水質の特徴

試験水①と②の一般水質を表-7に示す。試験水②で DOC の増加が見られたが、他の一般水質項目では試験水①と②で大きな差は見られなかった。応急復旧段階の下水であるため、いずれも NH<sub>4</sub>-N 濃度が高く、試験水①で 23 mg/L、試験水②で 26 mg/L が検出された。また塩素消毒を行った試験水②では残留塩素が確認され、遊離塩素 0.25 mg/L、全塩素 1.55 mg/L が検出された。

#### 4.3.2 ムレミカツキモに対する処理水の影響評価

採水翌日にそれぞれの試験水を用いて、ムレミカツキモの影響評価を行った。始めに、各試験水の残留塩素の測定を行った (表-8)。全ての試験水で遊離塩素はほとんど検出されず、全塩素は試験水②のみ 0.15mg/L 検出されたが、前日の測定値の約 10% であった。次に各試験水がムレミカツキモの増殖に与える影響を検討した (図-19)。試験水①では処理水濃度 40% でもムレミカツキモに対する影響は見られなかった。試験水②における阻害率は処理水濃度 40% で 61.9%、処理水濃度 20% で 12.3%を示した。この結果は、消毒を目的として添加された塩素または消毒副生成物が試験水中に残存し、ムレミカツキモの増殖に影響を与えたことが推察される。一方、試験水③における阻害率は処理水濃度 40% で 40.2%であり、処

表-7 試験水①と②の一般水質項目

試料名		試験水①	試験水②
採水時間		13:45	13:25
水温 (°C)		16.3	17.4
pH (-)		7.85	7.74
ORP (mV)		-19.2	-20
EC (mS/cm)		469	500
DO (mg/L)		6.8	7.5
残留塩素 (mg/L)	遊離塩素	—	0.25
	全塩素	—	1.55
SS (mg/L)		42	46
DOC (mg/L)		14	27
NH <sub>4</sub> -N (mg/L)		23	26
NO <sub>x</sub> -N (mg/L)		1.12	0.59
NO <sub>2</sub> -N (mg/L)		0.45	0.23

表-8 各試験水で検出された残留塩素

サンプル	遊離塩素 (mg/L)	全塩素 (mg/L)
試験水①	0.03	0.04
試験水②	0.03	0.15
試験水③	0.02	0.00

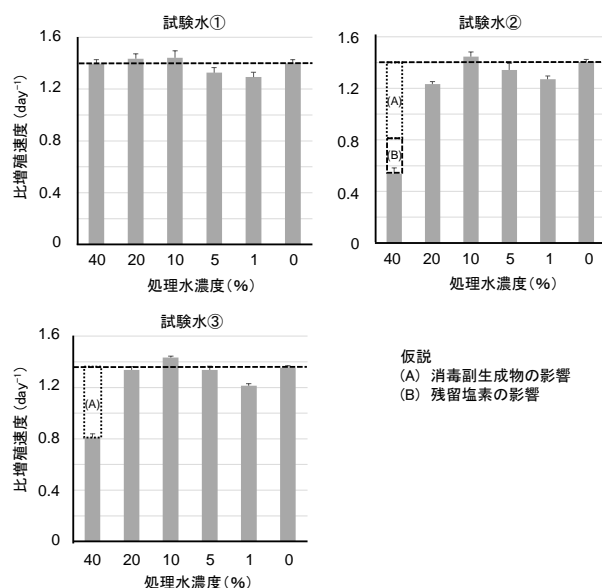


図-19 各水試料がムレミカツキモの生育速度に及ぼす影響

理水濃度 20%では影響が見られなかった。試験水②と比べて試験水③の増殖阻害の影響が改善されたことから、残留塩素がチオ硫酸 Na により中和され、ムレミカヅキモに対する影響が軽減されたことが推察される。本研究では、残留塩素としてのクロラミン類（モノクロラミン、ジクロラミン、トリクロラミン）の測定は行わなかったが、試験水②で検出された全塩素（0.15 mg/L）の一部はモノクロラミンであることが考えられる。ムレミカヅキモに対するモノクロラミンの影響は 0.018 mg/L (EC<sub>50</sub>) であることが報告されており<sup>29)</sup>、ここから、試験水②に含まれるモノクロラミンがムレミカヅキモに影響を与える可能性が推察された。一方、塩素中和後の試験水③において、試験水濃度 40%でも影響が完全に軽減されなかった理由としては、何らかの消毒副生成物が残留することが推察された。

#### 4.3.3 消毒副生成物の検出状況と影響検討

高濃度の有機物が含まれる流入水を塩素消毒した場合、塩素と有機物が反応し、消毒副生成物が生成されることが推察される。そこで試験水①と②の消毒副生成物について検討を行った。TOX 計を用いた溶存態 TOCl の測定では、試験水①で 26.9 μg-Cl/L、試験水②で 30.7 μg-Cl/L を示した。揮発性有機化合物、ハロアセトニトリル、発泡クロラール、ハロ酢酸の測定において、試験水①より試験水②で多く検出された消毒副生成物は、22 化学物質中、クロロホルム、トリクロロ酢酸、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドのみであり、最も検出濃度が高いアセトアルデヒドは、試験水②で 0.03 mg/L であった（表-9）。これらの化学物質が藻類に及ぼす影響は、クロロホルム：437 mg/L (EC<sub>50</sub>、*Skeletonema costatum*)<sup>30)</sup>、トリクロロ酢酸：3 mg/L（無影響濃度 NOEC、*Pseudokirchneriella subcapitata*)<sup>31)</sup>、ホルムアルデヒド：0.1 mg/L > (NOEC、*Phyllospora comosa*)<sup>32)</sup>、アセトアルデヒド：236.6 mg/L（5 日間半数生存濃度 TLm、*Nitzschia linearis*)<sup>33)</sup> であることが、報告されている。今回検出された濃度はこれらの既往報告の値より大幅に低いことから、今回検出された消毒副生成物はムレミカヅキモの生育に影響を与える可能性が低いことが推察された。

#### 4.3.4 下水消毒で生成される副生成物の検討

試験水①ではムレミカヅキモに対して影響は見ら

表-9 試験水①と②で検出された消毒副生成物 (mg/L)

	化学物質	①塩素混和池流入水	②塩素混和池流出水
揮発性有機化合物	クロロホルム	0.0013	<b>0.0033</b>
	ブロモジクロロメタン	0.0002	0.0002
	ジブロモジクロロメタン	0.0001	0.0001
	ブロモホルム	<0.0001	<0.0001
	ブロモクロロメタン	<0.0001	<0.0001
	ジブロモメタン	<0.0001	<0.0001
	トリクロロブロモメタン	<0.0001	<0.0001
	テトラブロモメタン	<0.0001	<0.0001
	クロロピクリン	<0.0001	<0.0001
ハロアセトニトリル、 発泡クロラール	ジクロロアセトニトリル	<0.001	<0.001
	トリクロロアセトニトリル	<0.001	<0.001
	ブロモアセトニトリル	<0.001	<0.001
	ジブロモアセトニトリル	<0.001	<0.001
	発泡クロラール	<0.001	<0.001
ハロ酢酸	クロロ酢酸	<0.002	<0.002
	ジクロロ酢酸	<0.002	<0.002
	トリクロロ酢酸	<0.001	<b>0.003</b>
アルデヒド	ホルムアルデヒド	<0.001	<b>0.006</b>
	アセトアルデヒド	0.01	<b>0.03</b>
	プロピオンアルデヒド	<0.02	<0.02
	インブチルアルデヒド	<0.01	<0.01
	イソバレルアルデヒド	<0.004	<0.004

れなかったが、試験水②、③では影響が確認された。しかし、今回測定した TOCl や表-9 に示す物質の影響とは考えられず、下水の消毒過程において、表-9 以外の副生成物を生じることが要因の一つとして考えられる。そこで原因物質同定のための初期解析として、液体クロマトグラフー精密質量分析装置を用いて、検出された質量スペクトルの整理を行った。試験水②と③でのみ共通して検出された質量スペクトルはポジティブモード (Posi) では 7,287 種、ネガティブモード (Nega) では 2,089 種であった（図-20）。その中で、試験水①に比べ試験水②と③でスペクトル強度が 10 倍以上・以下を示す質量スペクトルは Posi では 1,258 種、Nega では 842 種検出された。これらの結果から、下水の消毒過程で、様々な副生成物が生成している可能性が推察された。今回の結果では、藻類に影響する化学物質の特定は行っていないが、今後下水中の消毒副生成物の影響を考える上で、さらに知見の蓄積が必要であると考えられる。

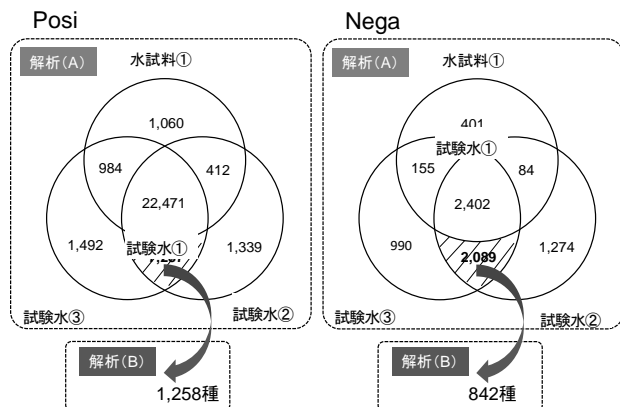


図-20 液体クロマトグラフィー精密質量分析装置を用いた、各水試料中の副生成物の検討

## 5. まとめ

本研究では、有機ハロゲン化合物類に着目し、1) 懸濁物質を含む水試料中の全有機ハロゲン化合物分析手法の構築を試みるとともに、2) 塩素消毒副生成物の生成メカニズム検討と放流先河川における挙動の検討、3) 応急復旧段階を模した下水を用い、特に消毒副生成物の影響の観点からムレミカヅキモに対する影響評価を実施した。得られた主な知見を以下に示す。

### 1) TOCl 分析用下水試料の保存性を検討した結果、

- 下水試料中の TOCl 濃度の適切な測定には、試料取得後速やかに活性炭カラムへの通水を開始することが望ましいが、試料水の速やかな冷凍ならびに迅速な解凍作業により、1-2 ヶ月程度の冷凍保存が可能となることが示された。また、通水後の活性炭カラムを 15 日程度冷蔵保存しても測定値に影響しないことが示唆された。

### 高 SS 濃度水試料の TOCl 分析前処理方法を検討し、

- メタノールと  $\text{NaNO}_3$  (0.012 mol/L) による事前洗浄をした酢酸セルロースろ紙を採用して下水試料をろ過し、残渣を  $\text{NaNO}_3$  (2 mol/L) 洗浄することで無機ハロゲンを除去する手法を見出した。
- 本研究で見出した高 SS 濃度水試料の溶存態と懸濁態の形態別分析手法では、両形態の回収率は概ね良好であったものの、懸濁態 TOCl 分析においては、濃度が数十  $\mu\text{g/L}$  程度の低い下水試料の分析では測定結果が一定のバラつきを含むため、複数試料の分析による誤差の確認が重要であると考えられた。

### 2) 模擬簡易沈澱下水を用いた消毒副生成物の生成メ

カニズム検討実験から、

- 反応時間 20 分で塩素注入率 5~20mg/L の範囲において塩素注入率と生成 TOCl 濃度、残留塩素濃度と生成 TOCl 濃度の間に強い正の相関がみられた。
- 塩素注入率 15mg/L で反応時間 10~80 分の範囲において TOCl 濃度に大きな違いはなく反応時間と消毒副生成物の TOCl 生成に係り性は認められなかった。

消毒副生成物の放流先河川における挙動調査から、

- 放流口から下流約 22km 区間における消毒副生成物の挙動調査において河川水中の TOCl 濃度、HCHO 濃度の減少はみられず、これらは河川水中において保存性が高いことがわかった。また、TOCl、HCHO の放流負荷量は放流先河川の 1/10 ~ 1/16 であり、放流先河川との流量比により希釈倍率が高い場合は、放流水の放流先河川への影響は小さかった。

### 3) 応急復旧段階を模した下水を用いたムレミカヅキモに対する影響評価から、

- ムレミカヅキモを用いて、①塩素混和池流入水 (試験水①)、②塩素混和池流出水 (試験水②)、③塩素混和池流出水+チオ硫酸 Na (試験水③) に対する影響評価を行ったところ、試験水②で最も影響が強く、試験水③で影響が軽減された。この結果から、消毒後に残留塩素を中和することで、藻類への影響が改善されることが推察された。
- 試験水②に含まれる消毒副生成物として、クロロホルム、トリクロロ酢酸、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドが検出されたが、ムレミカヅキモの増殖に影響を与える濃度は検出されなかった。
- ムレミカヅキモに対する影響が試験水③で検出された原因として、上記以外の副生成物の影響が推察された。

## 参考文献

- 土木研究所平成 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、2016
- 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講演集、p.165、2017

### 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

- 3) 土木研究所平成 28 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.4-7、2017
- 4) 土木研究所平成 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、2018
- 5) 土木研究所平成 30 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.4-10、2019
- 6) 土木研究所令和元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.5-14、2020
- 7) 田中周平、藤井滋穂、野添宗裕、木村功二：世界 10 カ国 21 都市の水環境における PFOS・PFOA 汚染の現況、水環境学会誌、31(11)、pp.665-670、2008
- 8) 佐久川弘、田原康作、青木一兼、荒井直朋、中谷暢丈、竹田一彦：広島県河川水中における除草剤ジウロンの濃度、分解速度、半減期、分解産物に関する研究、地球化学、44(1)、pp.1-15、2010
- 9) Echigo, S, Itoh, S, Natsui, T, Araki, T, Ando, R.: Contribution of brominated organic disinfection by-products to the mutagenicity of drinking water. *Water Sci. Technol.*, 50(5), pp. 321-328, 2004
- 10) 国土交通省水質連絡会：河川水質試験方法、2009 [https://www.mlit.go.jp/river/shishin\\_guideline/kasen/su-ishitsu/houhou.html](https://www.mlit.go.jp/river/shishin_guideline/kasen/su-ishitsu/houhou.html) (令和 3 年 6 月 1 日確認)
- 11) 鈴木裕識：全有機ハロゲン分析手法を用いた未知の有機フッ素化合物類の汚染分布調査、平成 28 年度水質保全研究助成、成果報告書 No.8、2017
- 12) 国土交通省国土技術政策総合研究所：災害時における下水の排除・処理に関する考え方(案)、pp.43-51、2012
- 13) 竹田茂、浅野寛子、岩堀恵祐：生活排水の塩素処理副生成物生成能の高度処理による低減効果、水環境学会誌、23(3)、pp.155-160、2000
- 14) 伏見絵里、深澤達矢、工藤憲三、清水達雄：下水処理水における塩素消毒副生成物の生成、第 9 回衛生工学シンポジウム論文集、pp.245-249、2001
- 15) 伊藤禎彦：消毒副生成物に関する国内外の研究動向、水環境学会誌、31(9)、pp.8-13、2008
- 16) 尹水鐵、中田典秀、山下尚之、田中宏明：下水処理場における N-ニトロソアミン類及びそれらの生成能の挙動、土木学会論文集 G (環境)、68(7)、pp.351-358、2012
- 17) 小林憲弘、杉本直樹、久保田領志、野本雅彦、五十嵐良明：ホルムアルデヒド水質汚染の原因物質の特定に至る経緯と水道水中の未規制物質の管理における今後の課題、日本リスク研究学会誌、23(2)、pp.65-70 2013
- 18) 浅見真理：水道水質リスク管理に関する日本の検討状況および海外の事例、第 59 回日本水環境学会セミナー講演資料集、pp.9-19、2014
- 19) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課：平成 27 年度 化学物質分析法開発調査報告書、化学物質と環境、平成 28 年 10 月、[https://www.nies.go.jp/kisplus/images/bunseki/pdfs/kurohon/2015/adoc2015\\_v2.pdf](https://www.nies.go.jp/kisplus/images/bunseki/pdfs/kurohon/2015/adoc2015_v2.pdf) (令和 3 年 2 月 10 日確認)
- 20) 公益社団法人日本水道協会：上水試験方法-2011 年版・IV 有機物編、pp.212-216、2011
- 21) 公益社団法人日本下水道協会：下水道維持管理指針(実務編)-2014 年版-、pp.662-672、2014
- 22) 公益社団法人日本下水道協会：下水道施設計画・設計指針と解説 後編-2019 年版-、pp.234-243、2019
- 23) 山根昭、横川佳重、木町元康、平野裕司：下水道施設における微量化学物質に関する現況と対策についての調査研究、1997 年度下水道新技術研究所年報(1/2 巻)、pp.105-110、1998
- 24) 高橋正宏、鈴木穰：塩素消毒技術の高度化に関する研究、平成 7 年度下水道関係調査研究年次報告書集、建設省土木研究所、pp.53-58、1996
- 25) 岡本誠一郎、小森行也、北村友一、真野浩行：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、平成 27 年度下水道関係調査年次報告書集(土木研究所資料第 4347 号)、pp.194-206、2017
- 26) 南山瑞彦、小森行也：消毒副生成物の水環境中での挙動とその影響に関する研究、平成 28 年度下水道関係調査年次報告書集(土木研究所資料第 4370 号)、pp.118-121、2018
- 27) Test No. 201: Freshwater Alga and Cyanobacteria, Growth Inhibition Test, OECD GUIDELINES FOR THE TESTING OF CHEMICALS, 2006
- 28) 高沢麻里、鈴木裕識、小森行也、對馬育夫、山下洋正、小口正弘：液体クロマトグラフ—精密質量分析計を用いた PRTR 物質の簡易スクリーニング手法の構築と下水試料への適用、環境科学誌、33、pp.114-125、2020

- 29) 金俊：生物応答試験を用いた下水道放流水の生態影響の評価、富山県立大学大学院博士論文、pp.36-38、2019
- 30) 環境省：クロロホルム、Ⅱ) 化学物質の環境リスク初期評価（13物質）の結果、2003、<https://www.env.go.jp/chemi/report/h15-01/pdf/chap01/02-2/07.pdf>
- 31) 環境省：[2] トリクロロ酢酸、[http://www.env.go.jp/chemi/report/y052-24/1\\_2\\_3\\_02%20Trichloroacetic%20acid.pdf](http://www.env.go.jp/chemi/report/y052-24/1_2_3_02%20Trichloroacetic%20acid.pdf)
- 32) 環境省：[37] ホルムアルデヒド、化学物質の環境リスク初期評価（平成9～12年度）結果[39物質]、<https://www.env.go.jp/chemi/report/h14-05/chap01/03/37.pdf>
- 33) 環境省：[2] アセトアルデヒド、化学物質の環境リスク初期評価（平成9～12年度）結果[39物質]、<https://www.env.go.jp/chemi/report/h14-05/chap01/03/02.pdf>

### 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（下水試料に適した大腸菌の定量法の提案）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：山下洋正、諏訪守

#### 【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。令和2年度は、上記①の達成目標に関わる調査・研究として、環境基準の見直しにより大腸菌群から大腸菌指標への移行が検討されていることを踏まえ、排水基準および下水道放流水質基準の見直しを含めた行政的対応に資するため、下水試料に適した大腸菌の定量法の提案を目的に、複数の特定酵素基質培地における回収率の把握、希釈水の違いが変動係数（CV）に及ぼす影響についての評価を行った。また、従来指標との関連性を評価するため、下水試料における大腸菌群に占める大腸菌の割合を把握した。

その結果、各種培地・手法における大腸菌の回収率は、混釈法が81～93%、フィルター法が86～95%の範囲内であった。各種培地・手法と希釈水の違いが変動係数（CV）に与える影響は小さく、CVの平均値は混釈法、フィルター法ともに許容値である30%以下であった。過年度の評価結果を含め、CV、回収率とも許容値を満たす測定法を提示できた。

大腸菌群に占める大腸菌の割合については、流入下水、二次処理水ともに水温が23℃付近を境として高まっており、その平均割合は23℃以上において流入下水が37%、二次処理水が18%、23℃以下では各々17%、7%であった。二次処理水の大腸菌割合が高まる要因の1つは、流入下水の大腸菌/群の割合が高まっていることによる可能性が示唆された。従来指標との関連性として、大腸菌群（デソキシコール酸塩培地）に占める大腸菌（特定酵素基質培地）の平均割合は二次処理水が14%、残留塩素の平均濃度が0.25mg/Lの放流水では12%であり、放流水質の技術上の基準値を検討するための知見が得られた。

キーワード：大腸菌、大腸菌群、特定酵素基質培地、回収率、希釈水

#### 1. はじめに

特定酵素基質培地を利用することで大腸菌の検出定量が容易となった。ふん便汚染指標として大腸菌指標が優れていることもあり、水道水質基準や下水処理水の再利用水質基準等マニュアルで採用されていることに加え、現在、環境基準項目でも大腸菌群から大腸菌指標への変更が検討されている。このため、下水道からの放流水質の技術上の基準項目である大腸菌群に関しても大腸菌への見直しについて今後検討が行われることが予想される。大腸菌への見直しにあたっては、基準値への適合を判断するため下水試料に適した測定法を検討して決定しなければならないが、複数の特定酵素基質培地が市販され培地組成が製造元により若干の違いがあり、また、平板培養法（混釈法）、メンブレンフィルター法（フィルター法）など測定手法の違いも存在する。このため、公定法の検討に必要な基本的なデータ（測定手法ごとの精度等）を取得する必要がある。また、大腸菌指標への移行にあ

っては、下水道からの放流水質の技術上の基準値を検討する上で、下水中の大腸菌の存在実態を把握するとともに、長い間に蓄積されてきた大腸菌群数のデータとの関連性の評価が必要である。

令和2年度は、下水試料に適した大腸菌の測定法の提案を目的に、各種の特定酵素基質培地における大腸菌回収率を把握するとともに、希釈水の違いが変動係数に及ぼす影響評価を行った。また、大腸菌群から大腸菌指標への移行にあたり、従来指標との関連性を評価するため、下水試料の大腸菌群に占める大腸菌の割合を把握し、その関連性を明らかにした。

#### 2. 大腸菌等の測定法の現状

大腸菌、大腸菌群の定量・定性試験について下水試験方法<sup>1)</sup>を参考に整理したものを図-1に示す。下水の水質の検定方法に関する省令（環境大臣が定める排水基準に係る検定方法告示でも同じ）で定める大腸菌群の検定方法は、



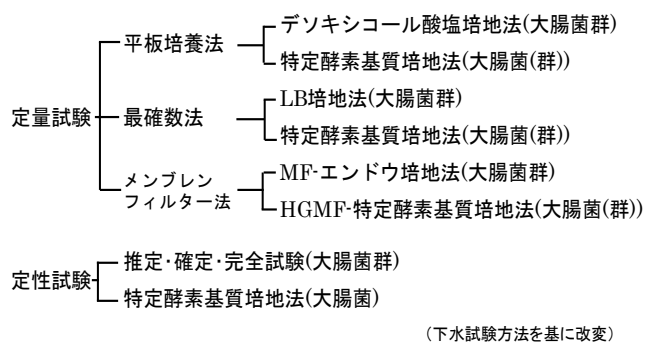


図-1 大腸菌(群)の定量・定性試験

デソキシコール酸塩培地による平板培養法が、水質汚濁に関わる大腸菌群の環境基準では、乳糖ブイオンブリアントグリーン乳糖胆汁ブイオン培地法(LB-BGLB)による最確数法が公定法として定められている。下水再生水利用に関しては、再生水の用途別に水洗、散水、親水利用では特定酵素基質培地法による大腸菌指標<sup>2)</sup>、修景利用では暫定的にエンドウ培地によるフィルター法の大腸菌群指標<sup>3)</sup>が採用されている。特定酵素基質培地はMMO-MUG培地、IPTG添加ONPG-MUG培地、XGal-MUG培地、ピルビン酸添加XGal-MUG培地のいずれかの培地を用いるものとされ、検水量を100 mLとした定性試験(大腸菌の有無判定)としている<sup>4)</sup>。下水試料等に関わる大腸菌群、大腸菌の定量法は公定法として上記の4手法である。現状では特定酵素基質培地による大腸菌の試験法は定性試験法が定められているのみであるが、環境基準の告示案として、大腸菌のメンブレンフィルター法(特定酵素基質培地)が提示、パブリックコメントがなされたところであり、今後、放流水質基準項目を大腸菌へ変更する際の基準値に対応した公定法についてもこれらの既存の手法を考慮しつつ検討する必要があると考えられる。

### 3. 評価方法

#### 3.1 各種特定酵素基質培地による回収率評価

評価対象とした特定酵素基質培地は、国内、海外メーカーから市販されている培地A~Fの6種類とし、混釈法とフィルター法にて、各々定量を行った。培養温度・時間については各培地の取り扱い説明書に従った。回収率試験は、A下水処理場の二次処理水を公称孔径が0.2 $\mu$ mのメンブレンフィルターでろ過を行い、無菌状態とした試料に大腸菌濃度が30CFU/mL程度となるよう菌株(バイオボール:ビオメリュー・ジャパン(株)製造・販売)を添加し、各培地・手法にて定量し回収率を評価した。試験は3回行いその平均値から回収率を求めたが、1試料あたりの定量数は5連(n=5)とした。

#### 3.2 希釈水の違いが変動係数に及ぼす影響評価

処理水や放流水中の大腸菌濃度等が高い場合には、定量精度を確保するため、測定試料の希釈が必要となる。希釈水としては生理食塩水やりん酸塩希釈水などがあるが、特定酵素基質培地の利用時において、希釈水の違いが大腸菌の定量精度に及ぼす影響に関する知見は少ない。このため、各培地・手法にて希釈水として生理食塩水、りん酸塩希釈水および滅菌蒸留水の3種類を利用した際の変動係数(CV)を比較評価した。二次処理水の大腸菌濃度が30CFU/mL程度となるよう各希釈水で希釈し、各培地・手法にて定量値を得てCVを求めた。試験は2回行いその平均値からCVを求めたが、1試料あたりの定量数は5連(n=5)とした。

#### 3.3 大腸菌群に占める大腸菌の割合の評価

大腸菌群に占める大腸菌の割合の評価は、A下水処理場にてほぼ通年(7~翌3月)にわたり下水試料を採水し大腸菌/群を定量することにより行った。対象試料は流入下水、二次処理水(生物学的高度処理水)、放流水とし、定量法は特定酵素基質培地のD培地とデソキシコール酸塩培地の混釈法とした。

なお、各培地・手法による大腸菌等の定量は、同一試料について同時測定、同一人物による操作とした。

### 4. 評価結果および考察

#### 4.1 各種特定酵素基質培地による回収率評価

各種培地・手法による大腸菌の回収率の評価結果を図-2に示す。各培地・手法にて概ね90%程度の回収率が得られており、混釈法が81~93%、フィルター法が86~95%の範囲内であった。

水道水質検査方法の妥当性評価ガイドライン<sup>5)</sup>によれば、細菌試験を含めた機器分析によらない検査方法は本ガイドラインの対象外としているが、1つの尺度として農薬類の定量に関わる目標値は、繰り返し精度(変動係数)が30%以内、真度(回収率)が70~120%とされている。

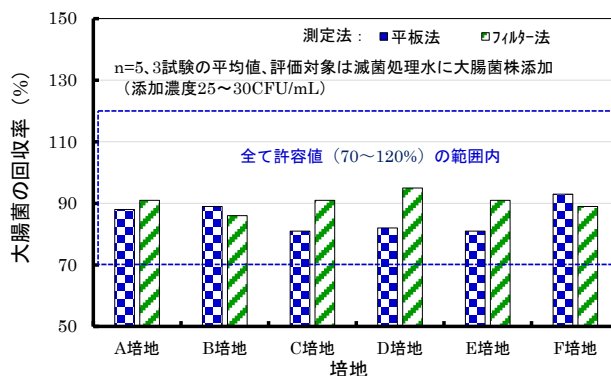


図-2 異なる培地・手法における大腸菌の回収率

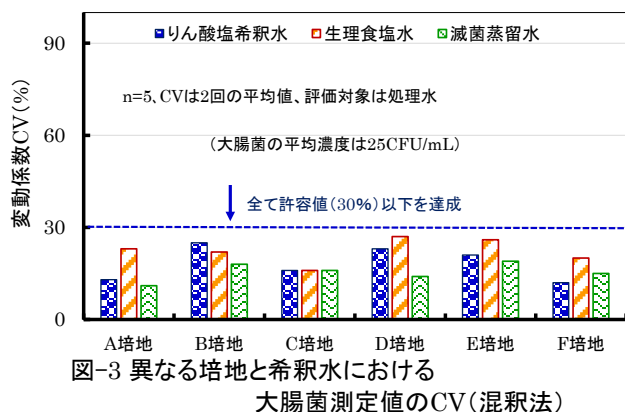


図-3 異なる培地と希釈水における大腸菌測定値のCV(混釈法)

大腸菌の定量法に関わる回収率や変動係数の目標値について確立された基準はないが、上述の目標値を参考として許容値とすると、本試験結果による真度（回収率）は培地・手法が異なっても概ね 90%で推移しており、許容値を満足するものと考えられた。

#### 4.2 希釈水の違いが変動係数に及ぼす影響評価

培地・手法と希釈水の違いが大腸菌数測定値の CV に与える影響について図-3、4 に示す。混釈法の各培地間において、りん酸塩希釈水を利用した際の CV の範囲は 12~25%（平均値 18%）、生理食塩水は 16~26%（22%）、滅菌蒸留水では 11~19%（16%）であった。

フィルター法（図-4）では各培地間において、りん酸塩希釈水の CV の範囲は 11~20%（平均値 15%）、生理食塩水が 8~23%（16%）、滅菌蒸留水は 8~17%（14%）であり、培地・手法と希釈水の違いが CV に与える影響は小さいものと考えられた。本試験結果における繰り返し精度（変動係数：CV）の平均値は混釈法、フィルター法ともに許容値である 30%以下であった。また、過年度に実施した各培地・手法間の繰り返し精度の評価<sup>7)</sup>では、塩素消毒により大腸菌濃度を 20CFU/mL 程度とした無希釈試料で定量を行った結果として、混釈法では 12~20%、フィルター法が 13~18%であったことから、希釈水の利用による変動係数への影響は小さいものと考えられた。過年度の評価結果<sup>7)</sup>を含め、CV、回収率とも許容値を満たす測定法を提示できた。

なお、上記の回収率試験、希釈水の影響評価では、各培地・手法において回収率や CV は許容値の範囲内であったが、大腸菌やその他の雑菌等が高濃度の場合には、フィルター法では大腸菌のコロニーとその他の菌が重なることでコロニーの発色が滲み、その発色状況から大腸菌であることの判断が難しくなる可能性が生じた。

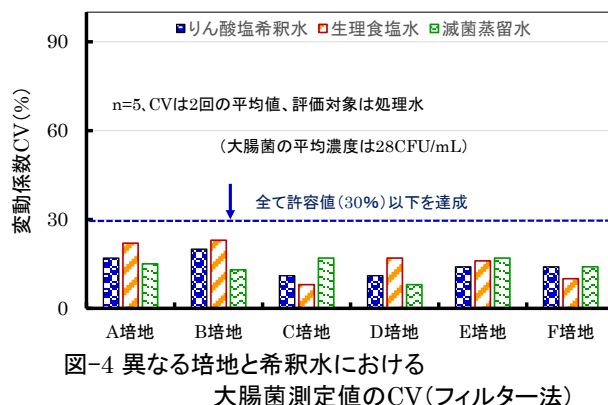


図-4 異なる培地と希釈水における大腸菌測定値のCV(フィルター法)

#### 4.3 大腸菌群に占める大腸菌の割合の評価

特定酵素基質培地の D 培地による大腸菌/群割合の評価結果について図-5、6 に示す。過年度の調査結果<sup>7)</sup>では水温が上昇することで大腸菌群に占める大腸菌の割合が上昇傾向を示したことから、水温と大腸菌/群の比の関係を整理した。過年度の調査結果<sup>7)</sup>（H31.4~R2.3 月）を含め整理を行ったが、流入下水、二次処理水ともに水温が 23°C 付近を境として割合が高まり、その平均割合は 23°C 以上において流入下水が 37%、二次処理水が 18%であった。23°C 以下では各々 17%、7%となっており、割合の変動要因として季節の影響が見られ、夏季の高水温期では割合が高く、冬季では低い状況であった。この時の流入下水の大腸菌濃度は、大腸菌/群の割合が 37%以上とそれ以下で平均濃度を整理すると  $9.1 \times 10^4$  CFU/mL に対し  $7.2 \times 10^4$  CFU/mL であり、高水温期は約 30%の濃度上昇が見られた。20°C の水温では大腸菌が増殖するとの報告<sup>6)</sup>があることから、高水温期では流入下水の流下過程において大腸菌が増殖することで割合が上昇したものと考えられた。また、流入下水と二次処理水の大腸菌/群の割合を整理した結果を図-7 に示す。相関関係があり水温の上昇により、二次処理水の大腸菌割合が高まる要因の 1 つは、流入下水の大腸菌/群の割合が高まっていることによる可能性が示唆された。一方、全国 54 箇所の下水処理場を対象にした既往の調査例では、各種下水試料の大腸菌群に占める大腸菌の平均割合は概ね 20%であったとする報告例<sup>8)</sup>がある。本調査の処理水等の平均割合と比較してやや高い状況にあるが、調査の継続期間の違いや、地域ごとに下水試料の水温等が異なることが要因となり、割合に違いが生じたものと推定される。

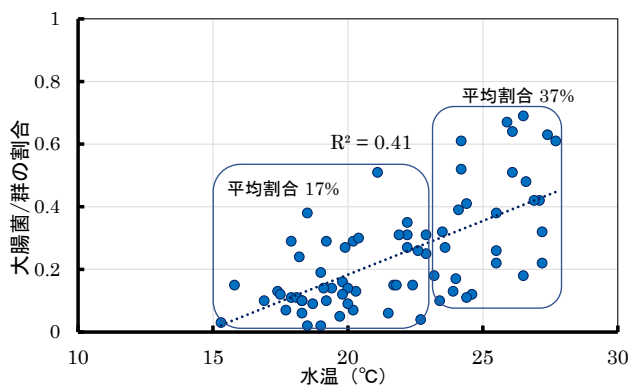


図-5 流入下水の水温変動と大腸菌/群割合の関係

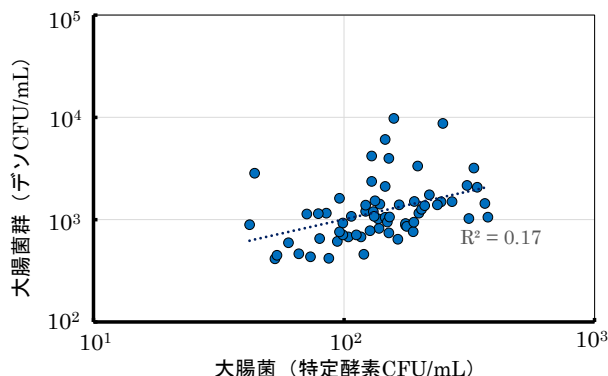


図-8 二次処理水の大腸菌と大腸菌群の関係

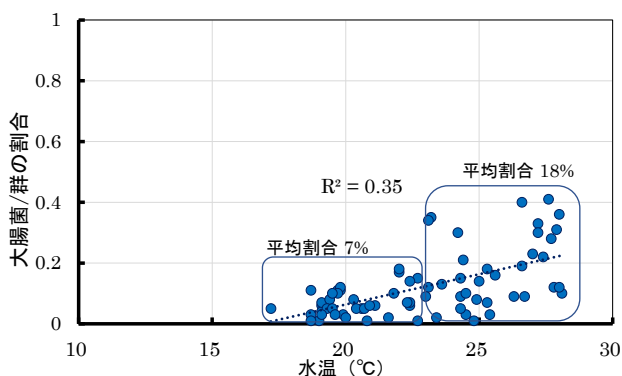


図-6 二次処理水の水温変動と大腸菌/群割合の関係

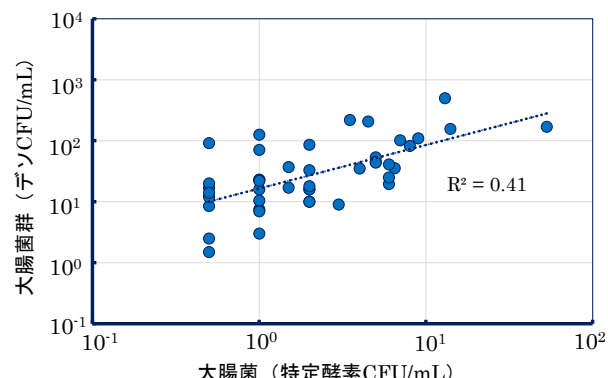


図-9 放流水の大腸菌と大腸菌群の関係

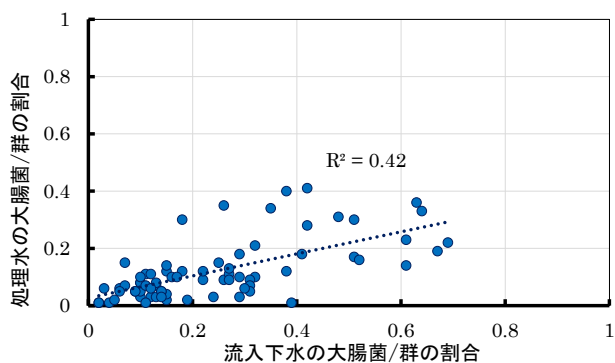


図-7 流入下水と処理水の大腸菌/群の割合

次いで、従来指標との関連性として二次処理水の大腸菌（特定酵素基質培地）と大腸菌群（デソキシコール酸塩培地）について整理した結果を図-8 に示す。やや弱い相関関係が見られており、大腸菌群に占める大腸菌の割合は2～35%の範囲内であり、平均割合は14%であった。また、放流水では相関関係が見られ、大腸菌群に占める大腸菌の割合は1～33%の範囲内であり、平均割合は12%であった（図-9）。この時の結合残留塩素濃度は0.13～0.51mg/Lの範囲内であり、平均濃度は0.25mg/Lであり、放流水質の技術上の基準値を検討するための知見が得られた。

### 5. まとめ

令和2年度は、下水試料に適した大腸菌の定量法の提案を目的に、各種の特定酵素基質培地における大腸菌回収率の把握と、希釈水の違いが変動係数に及ぼす影響評価を行い、CV、回収率とも許容値を満たす測定法を提示できた。また、大腸菌群から大腸菌指標への移行にあたり、従来指標との関連性を評価するため、下水試料における大腸菌群に占める大腸菌の割合を把握し、その関連性を明らかにし、放流水質の技術上の基準値を検討するための知見が得られた。以下に得られた結果を示す。

- 1) 各種培地・手法における大腸菌の回収率は、混釈法が81～93%、フィルター法が86～95%の範囲内であった。
- 2) 各種培地・手法と希釈水の違いがCVに与える影響は小さく、CVの平均値は混釈法、フィルター法ともに許容値である30%以下であった。
- 3) 大腸菌群に占める大腸菌の割合については、流入下水、二次処理水ともに水温が23℃付近を境として高まっており、その平均割合は23℃以上において流入下水が37%、二次処理水が18%、23℃以下では各々17%、7%であった。
- 4) 水温上昇時に二次処理水の大腸菌の割合が高まる要因の1つは、流入下水の大腸菌/群の割合が高まっている

ることによる可能性が示唆された。

- 5) 従来指標との関連性として、大腸菌群（デソキシコール酸塩培地）に占める大腸菌（特定酵素基質培地）の平均割合は二次処理水が 14%、残留塩素の平均濃度が 0.25mg/L の放流水では 12%であった。

#### 謝辞

本調査を実施するにあたり、調査対象とした A 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) 下水試験方法下巻、(公社) 日本下水道協会、2012 年版、pp225.
- 2) 平成 20 年国土交通大臣告示第 334 号.
- 3) 建設省高度処理会議、下水処理水の修景・親水利用水質検討マニュアル (案)、平成 2 年 3 月.
- 4) 国土交通省都市・地域整備局下水道部、国土交通省国土技術政策総合研究所、下水処理水の再利用水質基準等マニュアル、平成 17 年 4 月.
- 5) 厚生労働省、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドライン (最終改正:平成 29 年 10 月 18 日付け薬生水発 1018 号第 1 号).
- 6) 諏訪守、安井宣仁、南山瑞彦: 下水処理場における抗生物質耐性大腸菌の実態、下水道協会誌論文集、Vol. 54(652)、pp. 89-96、2017.
- 7) 土木研究所資料第 4402 号、令和元年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.36-49.
- 8) 諏訪守、李善太、重村浩之: 下水試料に対する大腸菌定量手法の評価と下水処理場における大腸菌と大腸菌群の実態調査、下水道協会誌論文集、Vol. 56(676)、pp. 85-92、2019.

### 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：山下洋正、對馬育夫

#### 【要旨】

本研究は、ダム貯水池における動植物プランクトンの省力かつ高度な検出方法の確立のため、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動植物プランクトン等のモニタリング手法の開発と適用ならびに機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発に取り組んでいる。令和 2 年度、微生物叢解析に使用するユニバーサルプライマーの網羅性を検討し、現在、広く使用されているプライマーでは、検出率が低い門が存在することを確認するとともに、より網羅性の高いプライマーの開発に繋がる知見を得た。また、高濃度酸素溶解装置（WEP システム）が導入されているダム貯水池において、その効果確認を行った。その結果、WEP システムにより供給される高濃度酸素水の効果により、底層から溶出してきたリンや金属が表層へ移行できず、貯水池表層がリン制限となり藻類増殖の抑制に寄与している可能性を確認した。さらに、機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発を進め、ダム管理所から実務に用いた画像を収集することで、効率的な自動画像分類モデルの構築が可能となり、認識率が 80-87% の分類モデルを作成することに成功した。

キーワード：ダム貯水池、次世代シーケンサー、WEP システム、プランクトン、自動画像分類

#### 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資源機構が管理するダム貯水池においても、環境基準設定地点の約 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。また、植物プランクトンの大量増殖が湖水の透明度や溶存酸素濃度の低下を引き起こすこともある<sup>2)</sup>。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>3)</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、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<sup>4)</sup>。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（NGS : New Generation Sequencer）を用いた DNA 塩基配列に基づく動植物プランクトン等のモニタリング手法の開発を目指している。平成 28~29 年度は、細菌が持つ 16S rRNA 遺伝子に着目し、検出方法の検討等を行った。平成 30 年度は、真核生物が持つ 18S RNA 遺伝子にも着目し、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した。令和元年度は、ダム貯水池から採取した水試料について、NGS を用いて検出された動植物プランクトンおよび細菌の結果と熟練者が光学顕微鏡を用いて検出した結果を比較し、NGS の有用性を確認した。また、顕微鏡では観察されたが NGS では検出されなかった種が存在したため、令和2年度は、解析条件の見直し、改善策の検討を行った。また、高濃度に酸素を溶解させた水を深層に供給できる気液溶解装置（以下、WEP システム）が導入されているダム貯水池における NGS 適用による水質改善効果の把握を行った。さらに、機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発に関する研究に関して、令和元年度は、国内のダム貯水池において頻繁に検出される 19 種の植物プランクトンについて、インターネット上から収集した画像を用い、機械学習による画像分類を試みた<sup>5)</sup>。令和2年度は、ダム管理所から実務に用いた画像を収集し、機械学習による画像分類システムの性能向上を試みた。

## 2. NGS 解析条件の検討

### 2.1 実験方法

本研究では、より汎用性が高く、将来的に Real-time PCR 用に定量に応用可能なプライマーを開発するため、表 1 に示すプライマーについて、データベース SILVA132\_SSURef\_Nr99 の登録配列の中から、0~2 ミスマッチ条件(1 プライマーセットにつき 9 条件)に該当する配列情報を抽出し、現行で使用実績のあるプライマーの網羅性を確認した。抽出は解析ソフト mothur の PCR seqs を用いた。

### 2.2 実験結果と考察

種を幅広く検出することが可能なユニバーサルプライマーとして使用実績のある 5 種類のプライマーセットについて、データベース SILVA132\_SSURef\_Nr99 登録配列(表 2) に対して、プライマーの配列と適合する登録数を確認した。データベースの中から、フォワードプライマーおよびリバースプライマーの相補配列と完全に一致する条件(F0R0 と記載)で抽出した。さらに、それぞれ 1~2 ミスマッチを許容した条件でも抽出を行った(例えば、F1R2 は、フォワードプライマーに 1 塩基ミスマッチ、リバースプライマーに 2 塩基ミスマッチを含む条件で抽出を行ったことを意味する)。それぞれの分類に含まれる配列登録数から抽出された配列数の割合を図 1 に示す。その結果、細菌 (Bacteria) および古細菌 (Archaea) を

表 1 本実験で用いたプライマーセット

プライマー名	プライマー配列(5'-3')
16S rRNA 遺伝子	
Bac341F	CCTACGGGNGGCWGCAG
Bac850R	GACTACHVGGGTATCTAATCC
Pro341F	CCTACGGGNBGCASCAG
Pro850R	GACTACNVGGGTATCTAATCC
18S rRNA 遺伝子	
TAReuk454	CCAGCASCYCGGTAATTC
TAReukREV3	ACTTTCGTTCTTGATYRA
SSU-F1	TAYCTGGTTGATYCTGCCAGT
SSU-R568	TGCTGGCACCAGACTTGCCCT
SSU-F1289	TGGAGYGATTTGTCTGGTTDATTCCG
SSU-R1772	TCACCTACGGAAACCTTGTTACG

表 2 本実験で用いたデータベースにおける各分類における配列登録数

分類	データ ベース 登録数	分類	データ ベース 登録数
<b>Bacteria</b>		<b>Bacteria</b>	
Acidobacteria	14,534	Betaproteobacteriales	43,156
Actinobacteria	60,510	Gammaproteobacteria	119,171
Armatimonadetes	752	Deltaproteobacteria	15,396
Bacteroidetes	55,663	Epsilonbacteraeota	5,422
Chloroflexi	9,245	<b>Archaea</b>	
Cyanobacteria	13,970	Euryarchaeota	12,957
Elusimicrobia	435	Crenarchaeota	4,611
Firmicutes	149,757	<b>Eukarya</b>	
Fusobacteria	2,216	Amoebozoa	867
Gemmatimonadetes	2,185	Archaeplastida	13,111
Hydrogenedentes	271	Centrohelida	93
Nitrospirae	1,297	Cryptophyceae	364
Patescibacteria	4,521	Excavata	1,326
Planctomycetes	9,014	Haptophyta	370
Spirochaetes	4,253	Incertae Sedis	237
Synergistetes	1,152	Opisthokonta	41,748
Tenericutes	2,561	Stramenopiles	4,329
Verrucomicrobia	4,419	Alveolata	11,651
Alphaproteobacteria	60,871	Rhizaria	3,376

ターゲットとする 16S rRNA 遺伝子を対象とした場合、Bac341F/850R では、Archaea である Euryarchaeota および Crenarchaeota がマッチした割合(カバー率)はそれぞれ 1.1%、0.1%と小さくほとんどの種が検出されないという結果だった。一方、Pro341F/850R では、Euryarchaeota および Crenarchaeota のカバー率は 85.5%、72.0%と Bac341F/850R と比較し高いものの、Patescibacteria や Planctomycetes については、48.1%、2.5%と低い結果となった。また、Chloroflexi や未分離種を多く含む Armatimonadetes に関しては、どちらのプライマーセットもカバー率はそれぞれ 39.2%-40.4%、

30.9%-31.0%と他の門と比べ低かった。2 ミスマッチまで許容した場合、どちらのプライマーセットでも全体として 95%まで向上した。また、フォワードプライマーの1 ミスマッチを解消するだけでも大幅にカバー率が上昇することがわかる。したがって、PCR 時のアニーリング温度を下げ、アニーリング率を高めるか、プライマーの混合、または塩基配列の改良をすることで、NGS 解析での網羅性が向上する可能性が示唆された。

一方、真核生物 (Eukarya) をターゲットとする 18S rRNA 遺伝子を対象とした場合、TAReuk454/REV3 の組み合わせにおいて、0 ミスマッチ (F0R0) の場合は 63.1%、2 ミスマッチまで許容した場合は 92.2%だった。また、SSU-F1/R568 の組み合わせにおいて、0 ミスマッチの場合は 4.2%、2 ミスマッチまで許容した場合は 51.5%、SSU-F1289/R17720 の組み合わせにおいて、0 ミスマッチの場合は 24.0%、2 ミスマッチまで許容した場合は 24.8%だった。したがって、TAReuk454/REV3 の組み合わせがダム貯水池の真核生物の検出には最も適していることが示唆された。また、TAReuk454/REV3 の組み合わせにおいて、各門のカバー率を比較すると、Excavata と Haptophyta のカバー率が低く、0 ミスマッチの場合は、それぞれ 3.2%、1.1%、2 ミスマッチまで許容した場合は 56.9%、96.2%だった。また、リバースプライマーの1 ミスマッチを解消するだけでも大幅にカバー率が上昇することがわかる。さらに、Excavata 中の *Euglenozoa* 属に着目すると、データベースに登録されている 865 種のうち、プライマーと一致する配列はなかった。実際、これまでも我々の研究の中で、*Euglenozoa* 属に関しては、顕微鏡では検出されるものの NGS では確認されないケースがあったが、プライマーの改良や PCR 条件の見直しにより、NGS 解析での検出が可能になると考えられる。

### 2. 3 NGS 解析条件の検討のまとめ

本研究では、NGS 解析で用いるユニバーサルプライマーの網羅性を確認した。16S rRNA 遺伝子を対象とした場合、検討したプライマーセットでは、カバー率の低い門が存在したが、フォワードプライマーの1 塩基ミスマッチを解消することで、飛躍的に網羅性が向上することが示唆された。また、18S rRNA 遺伝子を対象とした場合、TAReuk454/REV3 の組み合わせが突出して網羅性が高かったが、Excavata と Haptophyta については、カバー率が低かった。このプライマーについても、リバースプライマーの1 塩基ミスマッチを解消することで、大きく網羅性が向上し、より汎用性の高

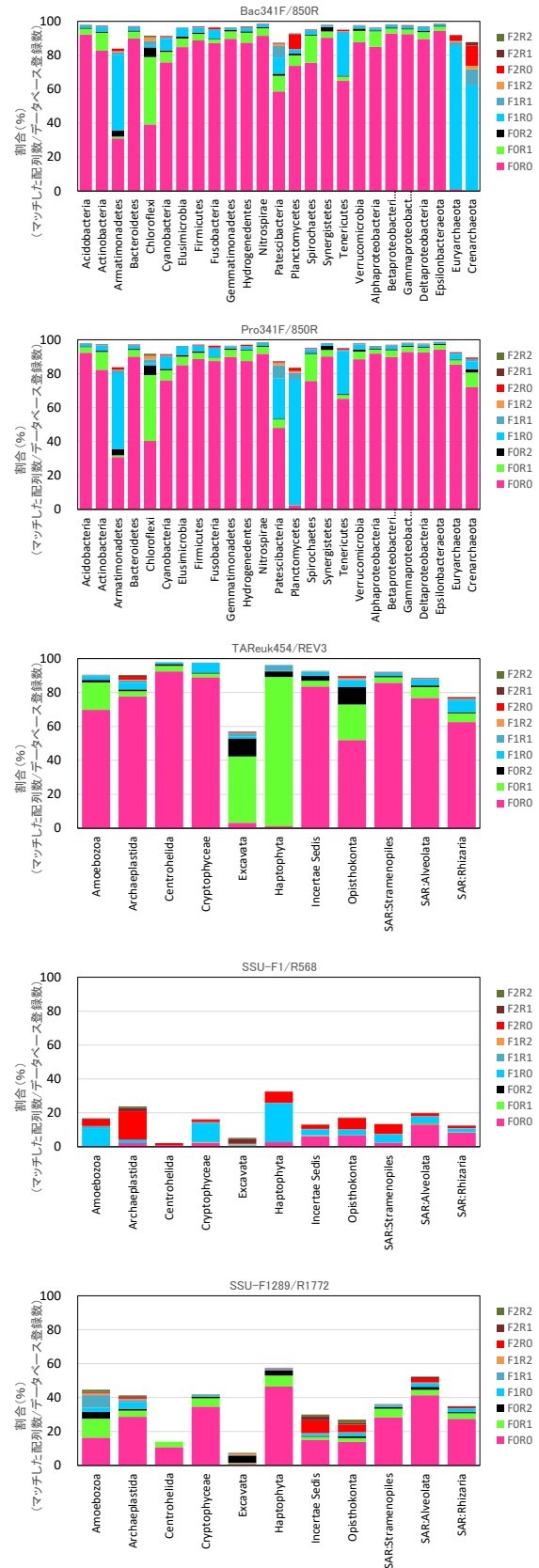


図1 データベース中の各分類におけるプライマー配列に一致した配列の割合



いプライマーが作成が可能になることが示唆された。

### 3. WEP システムを導入しているダムにおける水質改善効果の確認

#### 3. 1 実験方法

本研究では、WEP システムを導入しているダム貯水池において、令和2年8月と10月に現地調査および水質分析、検鏡によるプランクトンの同定、NGS を用いた微生物叢解析を行い、WEP システムの水質改善効果の確認を行った。

##### 3. 1. 1 調査概要

現地調査は、令和2年8月20日および令和2年10月5日の計2回実施し、湖内2地点 (St. A と St. B、図2) において多項目水質計を用いて水温、pH、酸化還元電位 (ORP)、溶存酸素濃度 (DO)、電気伝導率 (EC)、濁度について現地観測を行うとともに、St. A では6水深 (水深0.5m、5m、10m、15m、20m、25m)、WEP システム設置箇所から約600m離れたSt. Bでは4水深 (水深0.5m、5m、10m、13m) から採水を行い、表3に示す各種分析を行った。

##### 3. 1. 2 水質分析

水試料のNH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、T-N、PO<sub>4</sub>-P、T-Pはオートアナライザー (Bran Luebbe、TRAACS2000) により測定した。各種金属はICP-MS (Thermo Fisher SCIENTIFIC、X7CCT) により分析した。

##### 3. 1. 3 光学顕微鏡による同定

水試料を中性ホルマリンで固定し、光学顕微鏡を用いた検鏡試験を行い、種の同定を行った。分析方法は「平成28年度版河川水辺の国勢調査マニュアル【ダム湖版】」に従った。実際の同定試験は、専門の業者へ委託して行った。

##### 3. 1. 4 NGSによる塩基配列解読

採水後の試料について、ライブラリ調整までのプロセスは、以下の通りで、詳細な手順は使用したキットのマニュアルおよび過去の報告書の記載に従った<sup>6)</sup>。

- ・前処理 (0.2 μm フィルターによる濃縮)
- ・DNA 抽出、抽出 DNA の精製、DNA 濃度測定
- ・ライブラリ調整 (Amplicon PCR、PCR 産物の精製、Index PCR、PCR 産物の精製)

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クオリティーチェックおよび分類、統計処理は、QIIME2 (version2020.2) を用い、参照データベースには、SILVA132\_SSURef\_Nr99 を用いた。

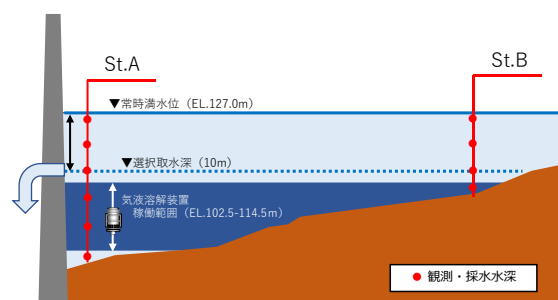
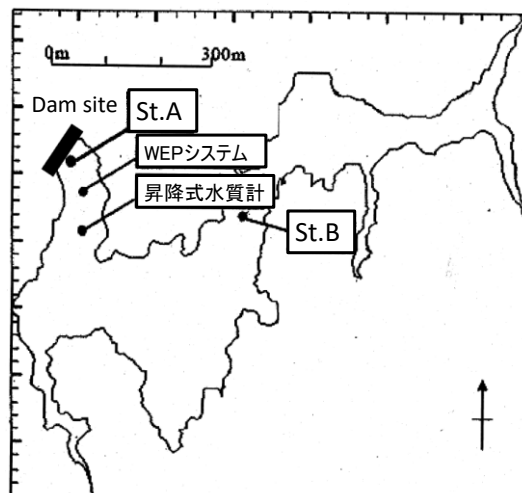


図2 対象としたダム貯水池における調査地点

表3 現地調査概要と分析項目

調査実施日	令和2年8月20日、令和2年10月5日
調査地点	St.A及びSt.B (図X参照)
現地観測	多項目水質計による
観測項目	水温、pH、EC、DO、ORP、濁度
観測水深	St.A : 0.5m、5m、10m、15m、20m、25m (湖底直上1m) St.B : 0.5m、5m、10m、13m (湖底直上1m)
採水地点	St.A : 0.5m、5m、10m、15m、20m、25m (湖底直上1m) St.B : 0.5m、5m、10m、13m (湖底直上1m)
水質分析	SS、VSS、DOC、各態窒素 (NO <sub>2</sub> +NO <sub>3</sub> -N、NH <sub>4</sub> -N及びT-N) と各態リン (PO <sub>4</sub> -P及びT-P)
金属分析 <sup>※1</sup>	Mg、Al、P、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Mo、Ag、Cd、Sn及びPb
顕微鏡分析 <sup>※2</sup>	植物プランクトン、動物プランクトン
NGS解析	16S rRNA遺伝子 (原核生物) 18S rRNA遺伝子 (真核生物)

※1 : St.Bは水深0.5m、5m、13mの3水深のみ分析対象とした

※2 : St.Aは水深0.5mと水深25m、St.Bは水深0.5mと13mの各2水深のみ分析対象とした

### 3. 2 実験結果と考察

#### 3. 2. 1 水温、DO、ORPについて

令和2年8月20日および10月5日調査時の各調査ポイントにおける多項目水質計による水温、DO、ORPの現地観測を図3に示す。8月調査時の水温分布は、WEP システム設置近傍箇所に位置する St. A では表層から水深10mまでは28.4°C~25.7°Cと高く、水温躍層

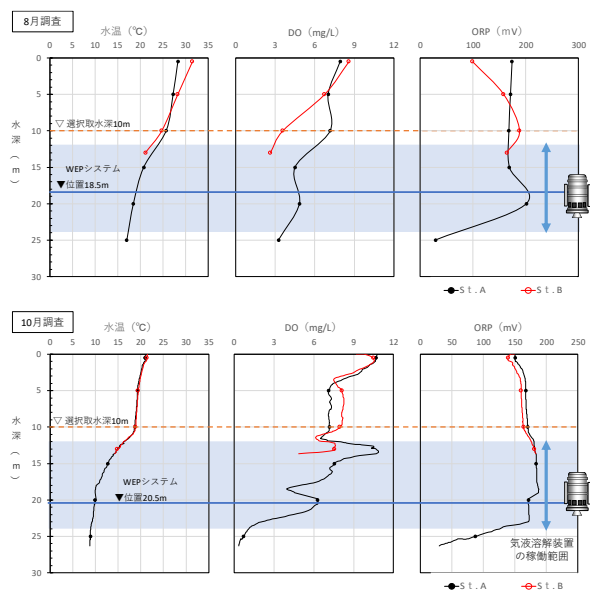


図3 水温、DO、ORPの現地観測結果

は水深10mから15mにかけて形成されており、その下層となる水深15m以深から水深25m（湖底直上+1.0m）では20.8°C～17.0°Cと緩やかに低下する傾向にあった。St.Bの水温分布は、表層0.5mおよび水深5mでは31.5°Cおよび28.3°CとSt.Aと比べて高く、水深10mおよび13mでは24.8°Cおよび21.2°Cと低い結果となった。10月調査時の水温分布は、St.Aの水温は表層0.5mから水深10mにかけて21.0°C～18.7°Cと8月調査に比べて低下していたが、水深15m以深から水深25mでも12.7°C～8.9°Cと低下していたため、水温躍層は依然として水深10mから15mにかけて形成されていた。また、St.Bの水温分布は、表層0.5mから水深13mにかけてSt.Aと同様の分布傾向にあり、8月調査時のような地点間での水温分布の違いは認められなかった。

8月調査時のDO分布は、St.Aでは水深0.5mで7.9mg/Lと最も高く、下層に向けて低下する傾向があった。特に水温躍層の上層側となる水深10mと下層側となる水深15m間ではDOが大きく低下しており、水温躍層下層への酸素供給が遮断されている様子が確認できた。St.BのDO分布は表層0.5mでは8.6mg/LとSt.Aよりも高い値が観測されたが、水深10mおよび13mでは3.6mg/Lおよび2.6mg/LとSt.Aの同水深よりも低い値が観測された。10月調査時のDO分布は、St.Aでは表層0.5mで10.7mg/Lと高く、また、水深10m以深でも断続的なDOの増減が認められたが、湖底直上1mとなる水深25mでは0.7mg/Lと8月調査時よりも貧酸素化が進行していた。St.BのDO

分布は表層0.5mではSt.Aと同等であったが、水深5mと10mでは約8mg/LとSt.Aの同水深よりも高い値が観測された。

8月調査時のORP分布は、St.Aでは表層0.5mから水深15mまでは約170mVと一定であったが、水深20mでは201mVと高く、水深25mでは29mVと急激に低下した。St.Bでは、表層0.5mでは99mVと低く、また水深5mから13mでは明確な分布傾向はなく、158mV～188mVで推移していた。10月調査時のORP分布は、St.Aでは表層0.5mから水深23m付近にかけて150～184mVで推移していたが、水深25mでは87mVと急激に低下した。St.Bでも、St.Aと同様の分布傾向にあり、表層0.5mから水深13mにかけて139～181mVで推移していた。

8月調査において、選択取水深付近（水深約10m、EL.117m）に形成される水温躍層により、その上層と下層の水塊は分断されると考えられる。また、St.Bでは水深の浅い上流部で受熱した表層水と滞筋を流下する水温の低い流入水の影響により、St.Aよりも鉛直方向の水温差が大きかったものと推察される。通常、水温躍層より下層側では酸素供給が遮断されるため、湖底付近から貧酸素水塊が形成され、還元状態へと至る。実際に、St.Bでは水深10mおよび13mではDOが4mg/L以下にまで低下していた。一方、St.Aでは水深15mに比べて20mで高いDO及びORP値が観測された。これは、この時期WEPシステムが水深18.5m（EL.108.5m）で運用されていたことから、装置から吐出された高濃度酸素水の効果によるものと考えられる。10月調査においても、水温躍層は選択取水深付近（水深約10m、EL.117m）に形成されている状態にあった。しかし、8月調査で確認されたSt.AとSt.Bとの縦断方向での鉛直水温分布の違いは解消されており、また水深10m以深の複数の水深にWEPシステムから供給された高濃度酸素水による影響と考えられる断続的に高いDOが確認された。特に、水深13m付近（EL.114.5mに相当）にはSt.AとSt.Bの双方で前後の水深よりも高いDOが観測されたことから、WEPシステムによる酸素供給範囲が少なくともSt.B近傍まで波及していたと推察される。

### 3.2.2 DOC、窒素、リンについて

各調査ポイントにおけるDOC、窒素、リンの測定結果を図4に示す。8月調査時のDOCはSt.Aでは表層0.5mと水深5mで高く、水深20mにかけて減少傾向を示したのち、水深25mで再び高い値が検出された。St.Bでは表層0.5mで他の採水層よりもやや高

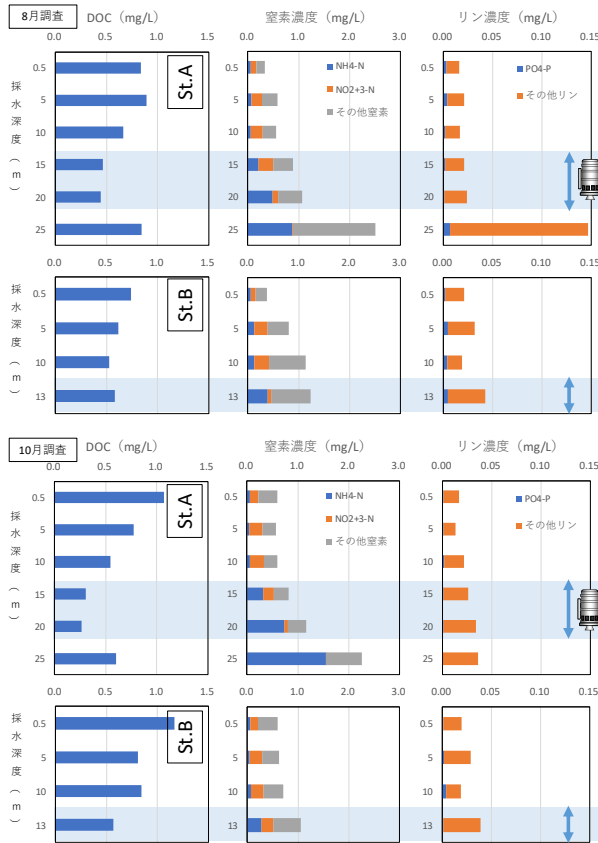


図4 DOC、窒素、リンの測定結果

い値が検出されたが、それ以外では明確な濃度の違いは認められなかった。10月調査時において、DOCは、St. A と St. B ともに表層 0.5 m で高く、水深方向で減少傾向を示したのち、St. A では水深 25 m で再び増加する傾向を示した。St. A において、WEP システムの稼働範囲以深である水深 25 m においては、DOC が増加する傾向があった。

8月調査時の各態窒素は、NH<sub>4</sub>-N とその他窒素 (T-N から NO<sub>2</sub>+NO<sub>3</sub>-N と NH<sub>4</sub>-N を差し引いた値) は水深方向で増大傾向を示し、NO<sub>2</sub>+NO<sub>3</sub>-N は表層 0.5 m と湖底直上 1 m (St. A 水深 25 m、St. B 水深 13 m) で低かった。10月調査時の各態窒素は、St. A と St. B ともに表層 0.5 m から水深 10 m 間で、表層 0.5 m の NO<sub>2</sub>+NO<sub>3</sub>-N がやや低いことを除き、概ね均一な結果であった。St. A において、水深 15 m 以深では、NH<sub>4</sub>-N が増加する傾向が確認された。これは、詳細なメカニズムは不明であるが、嫌気条件下において、タンパク質分解活性の高い嫌気性細菌属が優占し、それに伴い、タンパク質分解によって底質間隙中の NH<sub>4</sub>-N 濃度が増加・拡散<sup>7)</sup>、または、底泥中に溜まったガス泡が噴出し、直上水中に NH<sub>4</sub>-N が放出されること<sup>8)</sup> 等によるものと推察される。

8月調査時の各態リン濃度は、その大部分がその他リン (T-P から PO<sub>4</sub>-P を差し引いた値) であり、PO<sub>4</sub>-P は最大でも St. A 水深 25 m で 0.007 mg/L と低く推移していた。10月調査時の各態リン濃度も、その大部分がその他リンであり、PO<sub>4</sub>-P は最大でも St. B 水深 10 m で 0.004 mg/L と全地点で8月調査時よりも低濃度で推移していたことから、植物プランクトンは強いリン制限を受けていた可能性が考えられる。

### 3. 2. 3 金属分析について

本調査では、サンプル水中に含まれる金属について、総量と溶存態濃度をそれぞれ分析した。分析対象とした金属は、Mg、Al、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Mo、Ag、Cd、Sn 及び Pb の 18 項目であるが、これらのうち Cr、Co、Zn、Cd、Sn 及び Pb の 6 項目については、全試料が定量限界もしくは検出限界以下であった。また、Mg、K、Ca 及び V は全ての試料から検出されたが、地点間に明確な違いはなく、また大部分が溶解性であることから流水中に含まれるイオン成分を反映しているものと考えられる。したがって、特筆すべき Mn、Fe、As 濃度について整理した結果を図 5 に示す。8月調査時および10月調査時ともに、Mn や Fe、As は、貧酸素状態にあった St. A 水深 25 m において高濃度で検出されていた。このことは、底質からの溶出による影響を反映していると考えられる。また、水深 20 m では総量が大きく減少していた。これは、水深 20 m では ORP が高く保持されているため、底質から溶出した金属イオンが上層側に拡散しても、酸化を受けて粒子態となり、速やかに沈降するためと推察される。また、Fe と As は水深 20 m ではほとんど溶解性成分が検出されなかったのに対して、Mn は溶解性成分が多く残存していた。これらの違いは、それぞれの金属イオンの酸化速度と物質間の吸着特性を反映しているものと考察される。すなわち、速やかに酸化される Fe は水酸化鉄となり、また As は水酸化鉄に吸着・固定され共沈する一方、酸化を受けにくい Mn はイオン態として水中に残存していたと考えられる。

### 3. 2. 4 WEP システムの効果について

以上より、本貯水池では、WEP システムにより供給される高濃度酸素水の効果により、底層において貧酸素化に伴い溶出したリンや金属が表層へ移行できず、表層において、藻類増殖に必要な物質が制限されるため、藻類増殖が抑制されていた可能性が考えられる。

### 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

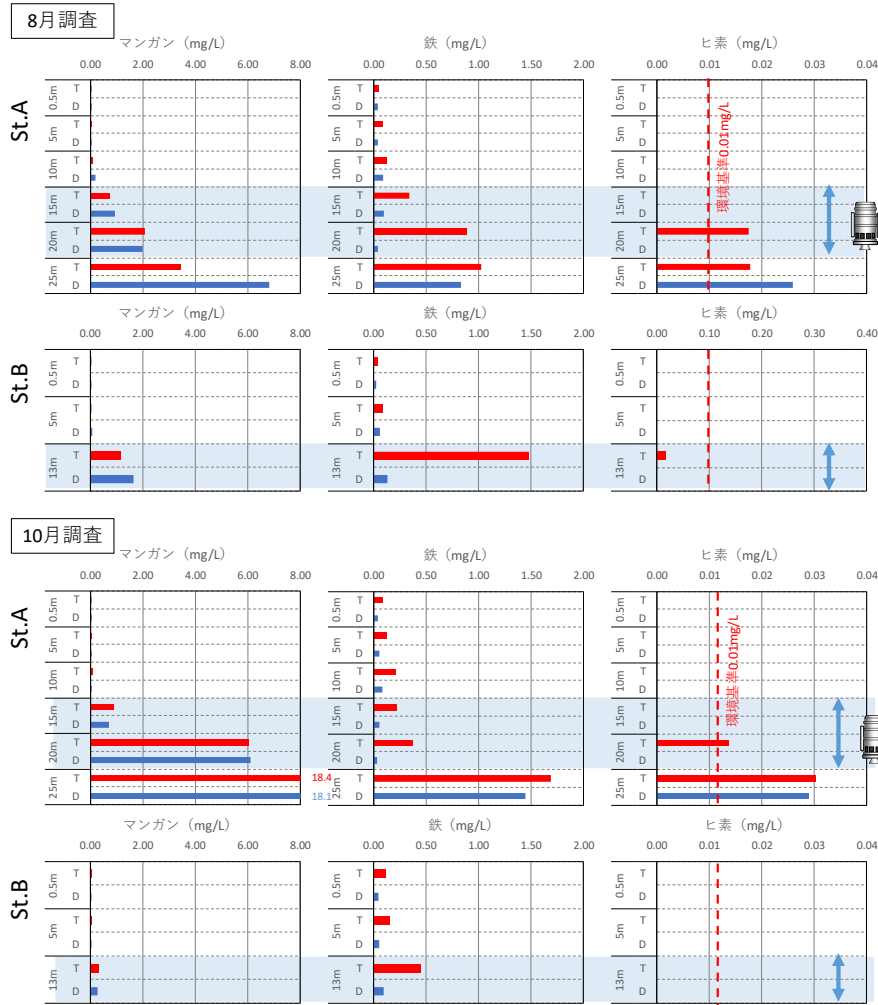


図5 金属濃度測定結果

### 3. 3 微生物解析

#### 3. 3. 1 顕微鏡との比較

光学顕微鏡での同定の結果、シアノバクテリア門は2種、植物プランクトンは34種、動物プランクトンは32種検出された。一方、同様の水試料のNGSによるDNA塩基配列解読では、データベースSILVA132\_SSURef\_Nr99を用いた場合、細菌2,232種(うちシアノバクテリア門は51種)、古細菌65種、植物プランクトン347種、動物プランクトン767種、分類不明種13種が検出された。また、前述のとおり、Excavataに含まれる*Euglena sp.*や*Trachelomonas sp.*は光学顕微鏡による同定では検出されるがNGSでは検出されなかった。

#### 3. 3. 2 16S rRNA 遺伝子 (古細菌・真正細菌)

16S rRNA 遺伝子を対象とした微生物叢解析の結果を図6に示す。8月調査時、選択取水深度(10m)より浅層側では独立栄養細菌であるシアノバクテリア門が多く、下層側では従属栄養細菌が多かった。また、

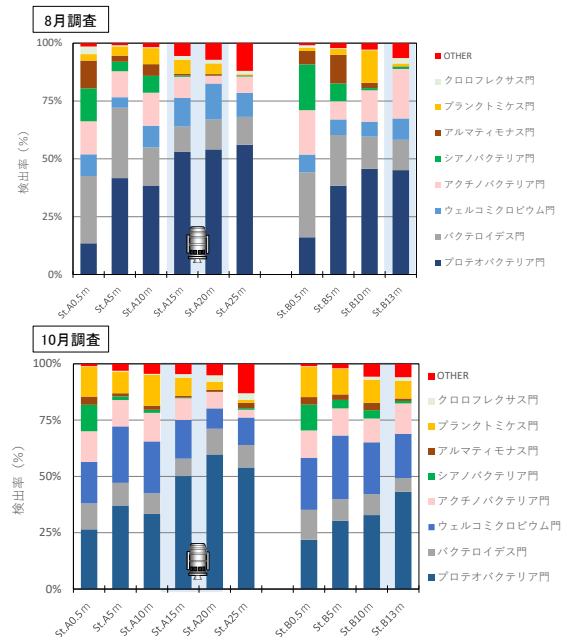


図6 16S rRNA 遺伝子を対象とした微生物叢解析



底層付近 (St. A25 m) からは、メタン生成古細菌 (Methanomicrobia) が検出されており、これらが生成したメタンを利用するメタン酸化細菌 (Methylophilaceae) も多く検出されていた。また、全地点で比較的多く検出された放線菌 (Sporichthyaceae) は、主に土壌に生息する細菌であり、流域の土壌から流入河川を通じてダム湖に流入した可能性が考えられる。

10月調査時の微生物叢の構成は、概ね8月調査時と類似していた。主な構成の変化としては、独立栄養細菌であるシアノバクテリア門およびバクテロイデス門の検出率が減少した一方、ウェルコミクロビウム門、およびプランクトミクス門の検出率は増加した。シアノバクテリア門はピコシアノバクテリアであるシアノバクテリウム属 (Cyanobium PCC-6307) の割合が高く、その変動は季節的な水温低下の影響を反映した可能性がある。また、プランクトミクス門では、Rubinisphaeraceae 科に属する細菌が大きく増加していた。この細菌は、下水処理施設において寒冷な時期に多く検出される分類群であることから、水温低下により有利に増殖できた可能性がある。なお、全地点で検出率が増加したウェルコミクロビウム門は、その生態的機能について十分な理解とまで至っていないものの、多様な炭素源 (キシラン、セルロース、ペクチン、糖、メタン) に対して高い分解能を有することが知られている。

シアノバクテリア門を構成する種の内訳を図7に示す。8月調査時では全調査ポイントから、10月調査時ではSt. Aの水深20mおよび25mを除く全調査ポイントにおいて、Cyanobium PCC-6307が高頻度で検出された。Cyanobium PCC-6307は淡水域に存在するピコシアノバクテリアで、高濃度により過障害などの問題を引き起こすがアオコやカビ臭には直接関与しない種である。また、8月調査時には、St. Aの水深25mのみで、ジェオスミン産生種であるDolichospermum NIES41が検出された。同時期、ジェオスミンが40ng/L検出されていたことから、本種はこのダムの主なジェオスミン産生種であると考えられる。また、10月調査時には、Dolichospermum NIES41はほとんど検出されず、2-MIB産生種であるPseudanabaena PCC-7429が全調査ポイントから検出された。特に、St. A水深5m~15m、St. B水深5m以深において高頻度で検出された。同時期、2-MIBが4ng/L検出されていたことから、本種はこのダムの主な2-MIB産生種である可能性が考えられる。なお、これらのカビ臭産生細菌は光学顕微

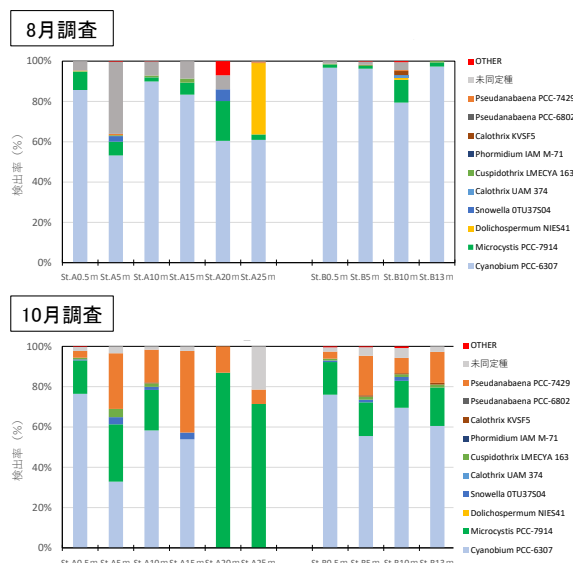


図7 検出されたシアノバクテリア門の内訳

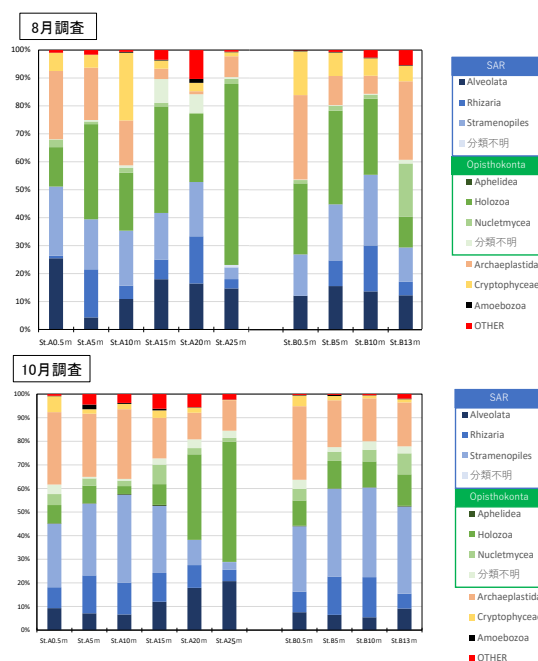


図8 18S rDNA 遺伝子を対象とした微生物叢解析

鏡での同定では検出されなかったことから、NGSは水質障害の原因種を特定するために効果的な手法であることが確かめられた。このダム貯水池では、平成29年度から令和元年度までの3年間において、ジェオスミンはほとんど検出されない年(H30)もあれば、1,000ng/Lを超える月(R1.6月)もあった。2-MIBも同様に、数ng/L検出された月(H30.7月)もあれば、500ng/Lを超過する濃度で検出された月もあった(H29.9月)。よって、令和2年度はカビ臭物質の発生が比較的少ない年であったと言える。

### 3. 3. 3 18S rRNA 遺伝子 (真核生物)

18S rRNA 遺伝子を対象とした微生物叢解析の結果を図 8 に示す。8 月調査時は、ストラメノパイル (Stramenopiles)、アルベオラータ (Alveolates)、リザリア (Rhizaria) を含む系統群である SAR スーパーグループ、動物 (Holozoa)、真菌 (Nudetmycea) 等を含むオピストコンタ (Opisthokonta)、及び緑藻、車軸藻類等を含むアーケプラスチダ (Archaeplastida) の検出率が高かった。SAR スーパーグループは、繊毛虫や渦鞭毛藻等を含むアルベオラータ (Alveolata) は、St. A では表層 0.5 m と湖底直上となる 25 m で検出率が高く、水深 5 m と 10 m では他の水深に比べて大きく減少したのに対して、St. B では水深方向での顕著な違いは認められなかった。また、肉質鞭毛虫 (アメーバ鞭毛虫) 等を含むリザリア (Rhizaria) は、St. A と St. B ともに中層付近 (水深 5~20 m) で多く検出された。珪藻類や黄色鞭毛藻類等を含むストラメノパイル (Stramenopiles) は、St. A 水深 25 m からの検出率が低いものの、水深方向での明確な違いは認められなかった。オピストコンタは、その大部分がホロゾアエによって占められており、St. A と B ともに、表層側ではカイアシ亜綱や単生殖巣綱が多く、選択取水深度 (水深 10 m) 以深では襟鞭毛虫綱が多く検出される傾向があった。アーケプラスチダは、その大部分が緑藻綱によって占められており、St. A では表層から選択取水水深 (10 m) で多く検出されていたのに対し、St. B では表層の検出率が高いものの、水深 5 m と 10 m では少なく、湖底直上となる 13 m からは多く検出された。

10 月調査時は、SAR スーパーグループ、オピストコンタおよびアーケプラスチダ (Archaeplastida) の検出率が全検出率の 90% を占めていた。SAR スーパーグループの検出率は、繊毛虫や渦鞭毛藻等を含むアルベオラータ (Alveolata) が 8 月調査に比べて減少傾向を示したのに対して、ストラメノパイル (Stramenopiles) の検出率は増加傾向を示し、特に St. A 表層 0.5 m~水深 15 m および St. B 全層で顕著であった。ストラメノパイルの検出率の増加は、主に珪藻綱 (*Ulnaria* 属及び *Aulacoseira* 属) のリード数の増加と一致していた。オピストコンタは、8 月調査に比べて、St. A 表層 0.5 m から水深 15 m、および St. B 全層においてホロゾアエの検出率が大きく低減したのに対し、St. A 水深 20 m と 25 m では減少幅はわずかであった。この原因は、カイアシ亜綱や単生殖巣綱のリード数が 8 月調査に比べて減少したのに対して、St. A 水深 20 m と 25 m では襟鞭毛虫綱のリード数は 8 月調査と同様に高く維持さ

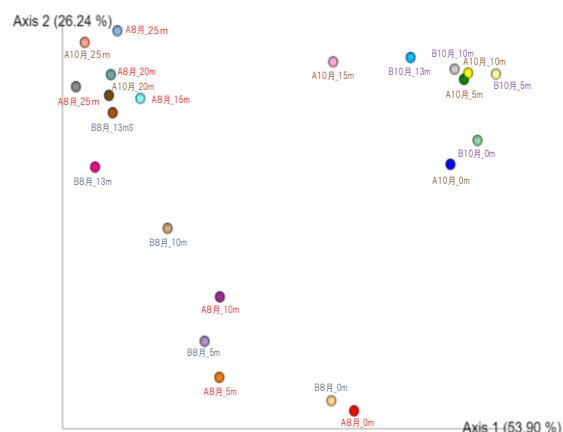


図 9 16S rDNA 遺伝子を対象とした主座標分析

れていたことによるものと考えられる。アーケプラスチダは、St. A と St. B ともに表層 0.5 m で最も検出率が高く、深度方向に減少する傾向が認められた。

### 3. 3. 4 細菌叢比較

16S rDNA 遺伝子を対象とした微生物叢を Weighted UniFrac 解析により類似度比較を行った結果を図 9 に示す。各試料における細菌・古細菌の群集構造は、第 1 軸により 53.9%、第 2 軸により 26.24% を説明することができた。第 1 軸による試料間の距離に着目すると、8 月調査時は、St. A と St. B ともに水深方向に従ってプロットが分散していることが分かる。10 月調査時は、St. A と B ともに水深 0.5 m から 15 m 付近までは、8 月調査時に比べて右側に移動しているが、St. A 20 m と 25 m は 8 月調査時とプロット範囲に明確な変化はない。すなわち、8 月から 10 月にかけての季節的な気温の低下、それに伴う水温構造の変化、さらには一次生産者であるシアノバクテリアを受けて、表層側 (水深 0.5 m~15 m) では、細菌・古細菌の群集構造が大きく変化したと考えられる。一方、水塊が停滞する底層では、表層側のような環境要因の変動が乏しく、また湖底直上では貧酸素環境が継続していたこともあり、細菌・古細菌の群集構造に変化が認められなかったものと考察される。

第 2 軸による試料間の距離に着目すると、8 月調査時は第 1 軸と同様に水深方向に従ってプロットが分散していることが分かる。しかし、10 月調査時は、St. A と St. B はともに第 2 軸 (縦方向) でのプロットは上方に集中しており、深度による違いが認められなかった。8 月調査時と 10 月調査時の群集構造を比較すると、8 月には表層付近で高かったバクテロイデス門の検出率が、10 月には水深方向で一様になっており、対

照的にウェルコミクロビウム門は全層で増加するなど、水深方向での違いが解消されている。このことから、第2軸の分散はバクテロイデス門及びウェルコミクロビウム門に属する菌種の存在比の変化により制御されている可能性がある。

### 3. 4 WEP システムを導入しているダムにおける水質改善効果の確認のまとめ

本研究では、WEP システムを導入しているダム貯水池において、WEP システムの水質改善効果の確認を行った。その結果、WEP システム設置点付近では、最下層で濃度が高かった溶解性のリンや鉄、マンガンが、WEP システムの稼働範囲において、急激に濃度が減少した。これは WEP システムから供給される高濃度酸素水により、底層から溶出した溶解性のリンや金属が粒子化され沈降することで、表層への移動が制限され、表層では植物プランクトンは強いリン制限を受けていた可能性が示唆された。また、WEP システムの効果は、約 600 m 離れた地点においても波及していたことが示唆された。

一方、NGS による微生物叢解析の結果、光学顕微鏡による同定結果と比べ、極めて多くの種類に分類することができた。さらに、光学顕微鏡では同定されなかったカビ臭産生細菌を NGS により検出することができた。このことから、NGS は水質障害の原因種を特定するために効果的な手法であることが示唆された。今後、調査を継続することで、水質が微生物叢に与える影響について、詳しく検討を進めていく予定である。

## 4. プランクトン自動判別技術の開発

本研究では、ダム管理所におけるプランクトンの定期モニタリング結果を収集し、機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発を試みた。

### 4. 1. 実験方法

#### 4. 1. 1 画像データ収集

国交省直轄ダムおよび水資源機構ダムから定期モニタリングで取得する直近 1~5 年分のダム貯水池水質調査要領「様式 1-1-14\_定期調査\_動植物プランクトン写真票」に準ずる画像データを収集した。

#### 4. 1. 2 分類モデル

本研究では、画像の分類に Residual Networks モデル (ResNet-152) を使用した。ResNet モデルは、He らが 2015 年に考案したニューラルネットワークのモデルである<sup>7)</sup>。ResNet モデルは、一般的な畳み込みニューラルネットワーク (Convolutional Neural Network: CNN)

表 4 プランクトン画像収集結果

順位	分類	備考	画像数
1	<i>Coscinodiscineae</i> (others)	その他の小型コアマケイソウ	577
2	<i>Cryptophyceae</i>	クリプト藻	392
3	<i>Asterionella formosa</i> complex	<i>Asterionella formosa</i> 群	331
4	<i>Polyarthra vulgaris</i>	ハネウデワムシ	321
5	<i>Chrysophyceae</i> (others)	その他の黄金藻	307
6	<i>Tintinnopsis</i>		230
7	<i>Copepoda</i> (nauplius)	カイアシ亜綱(ノープリウス)	208
8	<i>Aulacoseira pusilla</i> complex	<i>Aulacoseira pusilla</i> 群	206
9	Other green flagellate	その他の緑色鞭毛藻	196
10	<i>Synchaeta</i>	ドロワムシ属	185
11	<i>Fragilaria crotonensis</i>		149
12	<i>Nitzschia</i> (others)	その他の <i>Nitzschia</i> 属	149
13	<i>Aulacoseira granulata</i> f. <i>granulata</i>		144
14	<i>Dinobryon</i>		126
15	<i>Peridinium</i> (others)	その他の <i>Peridinium</i> 属	114
16	<i>Peridinium bipes</i>		111
17	<i>Eudorina</i>		96
18	<i>Bosmina longirostris</i>	ゾウミジンコ	83
19	<i>Lindavia</i>		76
20	<i>Ploesoma truncatum</i>	スジワムシ	71
21	<i>Trichocerca</i>	ネズミワムシ属	70
22	<i>Pandorina morum</i>		67
23	<i>Thalassiosiraceae</i> (others)	その他のタラシオシラ科珪藻	67
24	<i>Diatoma</i>		61
25	<i>Naviculaceae</i> (others)	その他のハネケイソウ科珪藻	54
26	<i>Bosminopsis deitersi</i>	ゾウミジンコモドキ	52
27	<i>Achnanthyidium</i> (sensu lato)	<i>Achnanthyidium</i> 属(広義)	52
28	<i>Cymbella</i> (sensu lato)	<i>Cymbella</i> 属(広義)	52
29	<i>Dolichospermum-Sphaerospermopsis</i>		51
30	<i>Aulacoseira ambigua</i> f. <i>ambigua</i>		51

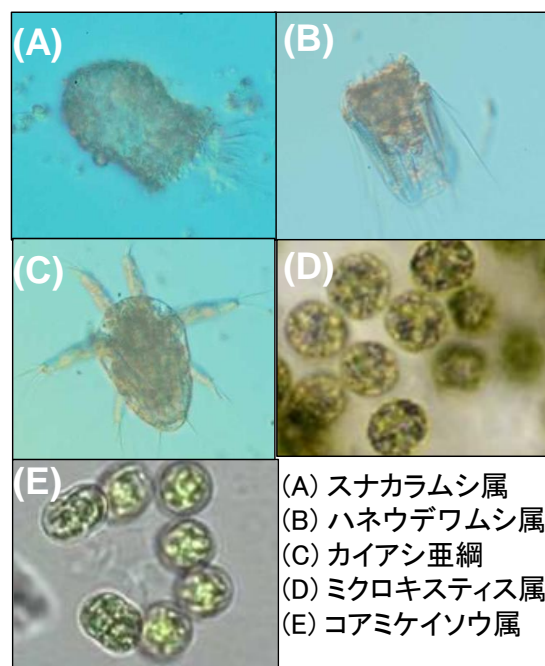


図 10 分類に用いたプランクトン画像の例

に加えて、基本的な恒等写像を学習することを目的として開発されたショートカット構造が、複数の畳み込み層をスキップするように組み込まれているため、深い層においても、学習が進むという利点を持っている。

## 4. 2 実験結果と考察

### 4. 2. 1 画像の収集

各管理所から収集した報告書 356 編からプランクト



ン画像約 6,500 枚を抽出した。抽出された上位 30 位のプランクトン種を表 4 に示す。そのうち、多くのダムにおいて高頻度で検出される繊毛虫門多膜綱スナカラムシ科スナカラムシ属 (*Tintinnopsis* spp.)、輪形動物門ワムシ綱ヒゲワムシ科ハネウデワムシ属 (*Polyarthra vulgaris*)、節足動物門カイアシ綱カイアシ亜綱 (*Copepoda* sp.) の 3 種およびアオコの原因となるシアノバクテリア門クロオコッカス目マイクロキスティス属 (*Microcystis aeruginosa*)、アオコと形状の似ているオクロ植物門珪藻類コアミケイソウ属 (*Coscinodiscus* sp.) について (図 10)、深層学習を行い、画像分類を試みた。

#### 4. 2. 2 スナカラムシ属、ハネウデワムシ属、カイアシ亜綱の画像識別

スナカラムシ属とハネウデワムシ属について、深層学習を行った結果について、表 5 に示す。本研究では、10 回以上学習させても認識率が向上しない場合、学習を打ち切った。No.1~No.3 に関して、訓練画像の枚数を変えず、種類を変えて学習を行った結果、訓練画像の選び方次第で、認識率は 0.85~1.00 と異なった。訓練データ数を 100 とした No.4 は、学習は収束せず、認識率は低かった。この原因として、訓練データの画像の中には、対象が不鮮明のものや小さ過ぎるものが含まれていたことが考えられた。No.5~No.8 では、訓練データの中から、対象が不鮮明なものや小さ過ぎるものを除外した。その結果、特に、多くの訓練画像を用いた No.8 において、大きく認識率が向上した。しかし、この場合においても、8 回目の学習以降は認識率が低下していった。これは訓練データ数の不足によるものと思われる。カイアシ亜綱 (*Copepoda* sp.) を加えた 3 種分類の結果を表 6 に示す。訓練画像を 30 枚とした No.1~No.5 では認識率が 0.73-0.97 と 2 種分類の場合と比べ、若干低下した。また、訓練データ数を増やした場合は、認識率は 0.80-0.87 となった。認識率としては決して低い値ではないが、実用化を考慮した場合、より高い認識率が求められる。今後、質の高い訓練データ数を増やすことにより認識率は向上するものと思われる。

#### 4. 2. 3 ミクロキスティス属およびコアミケイソウ属の画像識別

マイクロキスティス属とコアミケイソウ属について、深層学習を行った結果について、表 7 に示す。マイクロキスティス属の収集画像数が少なく 1 パターンしか深層学習を行えなかったが、認識率は 0.83 と本研究における平均的な認識率となった。マイクロキスティス属は

表 5 スナカラムシ属とハネウデワムシ属の深層学習結果

No	訓練画像	検証画像	訓練画像の認識率	認識率	最良時の学習回数(*20)	最大学習回数時の認識率	打ち切り時の学習回数
1	30	10	1.00	0.85	13	0.85	
2	30	10	1.00	1.00	13	0.95	
3	30	10	1.00	0.95	20	0.95	
4	100	10	0.56	0.80	1	0.80	11
5	30	10	0.82	1.00	3	0.75	13
6	30	10	0.98	0.90	13	0.90	
7	30	10	0.97	0.90	6	0.80	16
8	100	10	0.99	0.90	8	0.90	18

表 6 表 5 の検討にカイアシ亜綱を加えた 3 種分類の結果

No	訓練画像	検証画像	訓練画像の認識率	認識率	最良時の学習回数(*20)	最大学習回数時の認識率	打ち切り時の学習回数
1	30	10	0.94	0.80	7	0.77	17
2	30	10	1.00	0.93	20	0.93	
3	30	10	1.00	0.97	19	0.93	
4	30	10	0.95	0.77	7	0.63	17
5	30	10	0.98	0.73	7	0.67	17
6	99	10	0.97	0.80	3	0.70	13
7	99	10	0.99	0.87	10	0.83	20
8	99	10	1.00	0.87	6	0.87	

表 7 ミクロキスティス属とコアミケイソウ属の深層学習結果

No	訓練画像	検証画像	訓練画像の認識率	認識率	最良時の学習回数(*20)	最大学習回数時の認識率	打ち切り時の学習回数
1	30	10	0.99	0.83	17	0.83	

アオコ形成の原因となるダム水質管理において極めて重要な種である。また、群体を形成し存在するため、群体の形状が認識率に影響を与えると考えられる。今後は、マイクロキスティス属の自動分類を進める予定である。

#### 4. 3 プランクトン自動判別技術の開発のまとめ

本研究では、ダム管理所が実務で行っているプランクトンの定期モニタリング調査結果からプランクトン画像を抽出することで、効率的に画像データを収集することが可能になった。機械学習によるプランクトンの自動判別を試みた結果、試行したパターンにおける認識率は 0.73-1.00 であった。今後、継続的にダム管理所から画像を収集し、質の高い訓練データ数を増やすことにより、認識率が向上すると思われる。また、今後は、ダム水質管理に重要な種について、重点的に検討を進める予定である。

#### 4. まとめ

本研究では、ダム貯水池水質モニタリングの効率化に資する NGS 解析手法確立のため、微生物叢解析に使用するユニバーサルプライマーの網羅性を検討し、より網羅性の高いプライマーの改良に繋がる知見を得ることができた。また、WEP システムが導入されているダム貯水池において、ダム貯水池表層でリン制限になっており、それが WEP システムにより供給される高濃度酸素水による効果であることが示唆された。また、NGS は水質障害の原因種を特定するために効果的な手法であることが示唆された。機械学習による自動画像認識技術を用いたプランクトンの判別技術の開発に関して、ダム管理所から実務に用いた画像を収集することで、効率的な自動画像分類モデルの構築が可能となり、認識率が 80-87% の分類モデルを作成することができた。今後は、継続的に画像データを収集することで、精度が向上するものと思われる。

今後は、ダム貯水池における低コストで迅速・効率的な動植物プランクトンモニタリング手法の開発、水質障害原因種の検出、効果的な水質保全施設運転方法の提案に向け、研究を進めていく予定である。

#### 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) 大杉奉功、谷本茂、天野邦彦：河川水辺の国勢調査の改善に関する研究(プランクトン調査マニュアルの改訂)、一般財団法人 水源地環境センター 平成 26 年度研究論文(所報)、pp. 40-46、2014
- 3) 国土交通省：河川水辺の国勢調査基本調査マニユア

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

- 4) 野田尚宏、関口勇地：次世代 DNA シーケンシング技術による環境中の複合微生物相解析の現状と今後の展望、水環境学会誌、35 (9)、pp. 290-297、2012
- 5) 對馬育夫：ダム湖周辺の水環境改善に向けた植物プランクトン試験効率化システムの開発、令和 2 年度河川基金研究成果発表会 [https://www.kasen.or.jp/Portals/0/pdf\\_jyosei/%E9%85%8D%E5%B8%83%E8%B3%87%E6%96%99\\_%E3%82%B3%E3%83%BC%E3%82%B9%E2%91%A0.pdf](https://www.kasen.or.jp/Portals/0/pdf_jyosei/%E9%85%8D%E5%B8%83%E8%B3%87%E6%96%99_%E3%82%B3%E3%83%BC%E3%82%B9%E2%91%A0.pdf)
- 6) 對馬育夫、小川文章：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)、平成 30 年度 研究開発プログラム報告書 (13. 地域の水利利用と水生生態系の保全のための水質管理技術の開発)、国立研究開発法人 土木研究所、pp. 17-21、2019
- 7) 今井章雄：湖沼のブラックボックス負荷「底泥溶出」の定量評価に関する研究、平成 27 年度環境研究総合推進費 終了 成果 報告 書、[https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo\\_report/h27/pdf/5-1304.pdf](https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo_report/h27/pdf/5-1304.pdf)
- 8) 中菌孝裕、阿部千雅、鈴木譲：霞ヶ浦の底泥表層の巻き上げ時における栄養塩類と鉄・マンガン溶出特性、EICA、14、pp. 45-52、2009
- 9) Kaiming He, Xiangyu Zhang, Shaoqing Ren, and Jian Sun. Deep residual learning for image recognition. In Proceedings of the IEEE conference on computer vision and pattern recognition, pp. 770-778, 2016

### 13.1.4 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（機械学習手法を用いたダム貯水池におけるアオコ発生予測の検討）

担当チーム：水環境研究グループ（水質チーム）  
 研究担当者：山下洋正、對馬育夫、服部啓太  
 担当チーム：水工研究グループ（水理チーム）  
 研究担当者：石神孝之、猪股広典

#### 【要旨】

本研究では、気候変動の影響によりダム貯水池において発生頻度が増大すると考えられているアオコ発生予測手法の開発に向けて、機械学習手法を用いた Chl-a 濃度予測モデルの構築に取り組んだ。モデルの構築においては、機械学習手法として全結合型の NN モデルと LSTM モデルの 2 つを採用し、ダム貯水池の水質や水象等のデータを入力データ、Chl-a 濃度を出力データとするモデルを構築した。モデル構築の結果、最も高い予測精度を示したダムにおけるモデルの相関係数は  $R=0.70$  であり、藻類の夏季の濃度ピークをある程度再現可能であった。一方で、Chl-a 濃度の変動が複雑なダムでは十分な予測精度が得られなかった。これらの原因は Chl-a 濃度のみでは藻類種に応じた増殖の特性をとらえられていないためと推測され、予測精度の向上には異なった変数の学習データが必要と考えられた。また、最も高い精度が得られたダムを対象として変数群に対する感度解析を行った結果、水象データを除いたモデルで最も精度が低下し、対象としたダムにおいては水象データが Chl-a 濃度予測に大きく影響していることが推察された。これらの結果から、一部のダムでは機械学習手法によってアオコ発生の予測が可能になることが示唆された。

キーワード：気候変動、ダム貯水池、アオコ発生、Chl-a 濃度予測、機械学習

#### 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>。水環境に対する影響は、気温上昇に伴う水温上昇や、降雨形態の変化による流量・流出負荷量の変化が考えられ、これらの条件変化によりダム貯水池においても水質の変化が発生することが想定される。

令和元年度までの研究では、気候変動の水質に与える影響の評価を目的とし、仮想のダム貯水池を対象とした水質シミュレーションをダム貯水池の規模別に行った。ダム貯水池の規模と気候変動シナリオごとにシミュレーションを行った結果、富栄養化の進行が各シナリオで見られ、気温上昇が大きいシナリオではより強い影響を受けることが示唆された。

このような結果から、ダム貯水池ではアオコ発生の頻度や期間が増加することが考えられ、対策を効率的に行うためにもアオコ発生の予測技術が求められる。しかし、従来の物理・化学・生物学的プロセスを基に

した生態系モデルではアオコ現象の短期的に再現性の高い予測が難しい。また、貯水池の流動と生態系を計算する水質シミュレーションは高度な専門知識を必要とするため、個々のダム貯水池ごとに独自で実施することは困難である。近年、水質予測の分野においては、統計学的手法を用いた再現・予測モデルが様々な研究で検討されており、霞ヶ浦におけるアオコ発生を検討した既往研究では、機械学習手法を生態系モデルに組み込んだ予測手法の構築を行い、優れた予測精度が得られたことを示している<sup>2)</sup>。このように機械学習手法は、過去のデータが充実している現象に対する再現・予測手法として画期的なアプローチとなることがある。

そこで本研究では、アオコ発生が確認されているダム貯水池を対象として水質や気象、水象、その他データの収集を行い、既存のデータを基にした Chl-a 濃度予測モデルの構築に取り組んだ。

#### 2. 方法

##### 2.1 解析対象としたダムとデータ

本研究においては、アオコの発生が確認されている

中国地方の5つのダムを対象として解析を行った。

5つのダムのアオコ発生に関する諸元と解析対象の期間を以下に記す。

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。本研究では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。本研究では2012年1月から2017年2月を解析対象期間とした。

C 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。本研究では2011年3月から2017年12月を解析対象期間とした。

D 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。なお、Dダムは2008年以降、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、本研究では2000年1月から2007年12月までを解析対象期間とした。

E 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。研究では2004年6月から2016年8月を解析対象期間とした。

これらのダムで取得・管理されているデータを本研究では解析用のデータとした。検討に用いたデータの一覧を表-1に示す。湖沼・貯水池における藻類の増殖に強く影響すると考えられる気象・水象・貯水池水質・流入水質の大項目にデータを分類し、それらの中で取得可能なデータを下記の通りに整理して入力変数とした。また、これらの季節に関わる情報が重要であると考えたため季節変数を入力変数に加えた。

## 2.2 機械学習手法による予測モデルの構築

本研究では、機械学習手法として代表的な手法である全結合型のニューラルネットワークモデル（NNモデル）と時系列データの取り扱いに優れるとされる長短期記憶モデル（LSTMモデル）を用いてChl-a濃度予測モデルの構築に取り組んだ。NNモデルやLSTMモデルについては参考文献で詳細が述べられているため<sup>3)</sup>、本報では数学的な説明等を省略する。中間層の活性化関数は代表的な関数であるReLU関数、恒等関数、hard sigmoid関数の3つについて感度解析を行い、最も精度が高く得られた関数をそれぞれのダムにおけ

表-1 解析に用いたデータ

項目		観測・算出	単位	備考	
気象	気温	日平均気温	観測	°C	
		前30日平均気温	算出	°C	
	日射	日平均日射量	観測	MJ/m <sup>2</sup>	
		前30日平均日射量	算出	MJ/m <sup>2</sup>	
	風速	日平均風速	観測	m/s	
雨量	ダム地点雨量	観測	mm		
水象	流量	ダム流入量	観測	m <sup>3</sup> /s	
		前30日平均流入量	算出	m <sup>3</sup> /s	
	運用	ダム放流量	観測	m <sup>3</sup> /s	
		貯水位	観測	m	
		貯水量	算出	m <sup>3</sup>	H-V式から算出
灌水面積	算出	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	°C	
		水深5m水温	観測	°C	
		水温勾配	算出	°C	
	濁度	水深0.5m濁度	算出	度	自動観測データ
	栄養塩	貯水池上層T-P	観測	mg/L	※1
貯水池上層T-N		観測	mg/L	※1	
流入 水質	水温	流入水温	観測	°C	
		貯水池上層T-P	観測	mg/L	※1
	貯水池上層T-N	観測	mg/L	※1	
季節変数	月	※各データの対応する月を表す変数	観測	-	
出力	Chl-a	水深0.5mChl-a	観測	µg/L	

※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

表-2 各ダムにおけるモデル構築の結果

ダム名	Aダム		Bダム		Cダム		Dダム		Eダム	
	全結合	LSTM	全結合	LSTM	全結合	LSTM	全結合	LSTM	全結合	LSTM
モデル										
入力変数	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32
中間層数	4	1	4	1	1	1	5	1	1	1
ユニット数	32	5	64	10	16	5	64	1	10	2
	32		64				32			
	32		32				32			
	16		32				32			
							32			
学習率	0.0001	0.01	0.001	0.01	0.0001	0.01	0.0001	0.01	0.00001	0.0001
活性化関数	linear	linear	hard sigmoid	relu	linear	hard sigmoid	relu	relu	linear	linear
最適化	rmsprop	rmsprop	Adam	Adam	rmsprop	rmsprop	rmsprop	Adam	rmsprop	rmsprop
エポック	100	100	200	100	100	100	100	100	300	100
バッチサイズ	64	32	64	8	16	16	16	256	128	256
平均二乗誤差(RMSE)	7.33	6.66	33.39	33.02	9.12	9.38	11.27	12.93	21.50	20.98
相関係数	0.46	0.70	0.16	0.19	0.57	0.56	0.23	0.01	-0.15	-0.04

るモデルで採用した。また、中間層の層数及び中間層の各ニューロン数については感度解析を行い、最も精度が良かったモデルの形状をそれぞれのダムで用いた。

モデルの構築においては、精度検証のために対象のデータを教師データとテストデータに分割した。教師データで作成したモデルの予測値をテストデータと比較することで、それぞれのモデルの精度を検証した。

加えて、一定の予測精度が得られたダムについて一部の入力データを変化させたモデルの構築を行い、入力変数の種類に関する感度解析を行った。これらの解析では、気象・水象・貯水池水質・流入水質・季節変数の大項目から一つずつ項目を除外し、モデルの精度の変化を確認した。

### 3. 解析結果

#### 3.1 各ダムにおけるモデル構築結果

表-2 に各ダムにおけるモデルの構築結果を示す。AダムやCダムにおいては相関係数が0.5を超え、一定の精度を示すモデルが構築されたが、B、D、Eダムにおいては相関係数がすべて0.3以下であり、十分な予測精度を得ることが難しかった。

図-1 に各ダムのテストデータ期間におけるChl-a濃度の実測と高い精度を示したモデルによる予測値を示す。Aダムにおいては9~11月のChl-a濃度の上昇傾向を再現することができており、これらは夏~秋季の藍藻由来の植物プランクトンの増殖をある程度表現していると考えられた。Cダムにおいては6~7月のChl-a濃度の上昇傾向をある程度再現していたが、4~5月の珪藻由来と考えられるChl-a濃度の上昇傾向については再現が難しかった。B、D、EダムにおいてはChl-a濃度のピークが年間で複数のタイミングで観測されており、それらの変動傾向を再現することは難しく、十分な予測精度が得られなかった。

表-3 入力変数の項目群の組み合わせによる感度解析の結果

	Case-0	Case-1	Case-2	Case-3	Case-4	Case-5
気象	○		○	○	○	○
水象	○	○		○	○	○
貯水池水質	○	○	○		○	○
流入水質	○	○	○	○		○
季節変数	○	○	○	○	○	
RMSE	6.66	850.11	inf	7.51	314.64	6.82
相関係数	0.70	0.49	0.01	0.38	0.52	0.61

上記の結果から、Aダムにおいては本手法によるChl-a濃度予測が有効となる可能性が考えられたが、B、D、Eダムでは適用が難しいことが考えられた。これらの要因として、AダムにおいてはChl-a濃度の上昇が9~11月の時期に限られており、春季の珪藻由来と考えられるChl-a濃度の上昇が起こらないダムであるため濃度変化の予測が容易であると推察された。一方で、B、D、Eダムのような1年間を通じて複数のタイミングでChl-a濃度の上昇ピークが存在するようなダムでは、珪藻や藍藻等の植物プランクトン種の違いによる複数の濃度ピークが存在すると考えられ、これらの違いに起因する変動傾向を学習することは本研究で使用したデータからは難しいと推察された。

#### 3.2 入力変数を変化させた感度解析の結果

3.1にて最も高い精度が得られたAダムを対象として入力変数を変化させた感度解析を行った。それらの結果を表-3に示す。Aダムにおいては、すべての変数を入力データに使用したモデル(Case-0)に対して、大項目の変数群を一つずつ除いたそれぞれのモデル(Case-1~Case-5)は相関係数が低下する結果となったが、その低下の度合いは除いた変数群に応じて異なっていた。構築したそれぞれのモデルを比較したときに、水象データを除いたモデル(Case-2)は相関係数が0.01となり精度の低下が著しく、AダムのChl-a濃

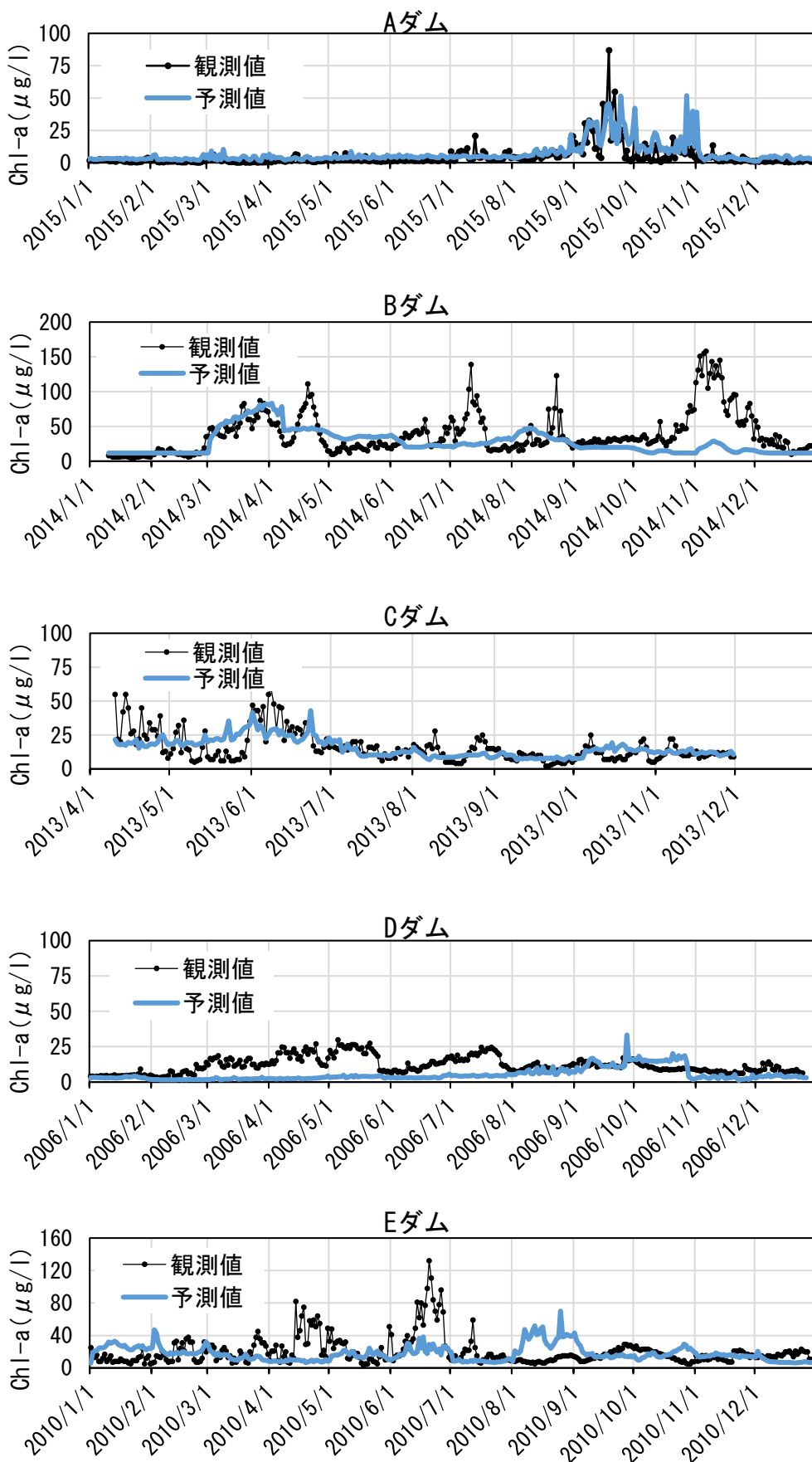


図-1 各ダムにおけるChl-a予測と実測値の比較

度予測に最も影響を与えている変数群であることが示唆された。一方で、季節変数を除いたモデル (Case-5) の精度低下は限定的であり、気象や貯水池水質などに含まれる気温や水温などのパラメーターが季節変数と同様の役割を果たすため、精度低下が限定的であると考えられた。

#### 4. まとめ

中国地方の5つのダムを対象として機械学習手法を用いた Chl-a 濃度予測モデルの構築を試みた。一部のダムでは夏季の Chl-a 濃度のピークを再現できアオコ発生 (藍藻類の異常増殖) を予測可能となることが示唆された。一方で、春季の珪藻ブルームのような年間を通じて複数の Chl-a 濃度の上昇ピークが存在するようなダムでは相関係数が低く、予測が難しかった。

また、最も高い予測精度を示したダムにおいて、変数の大項目を一つずつ外したモデルの構築を行い、モデルの入力変数を変化させた感度解析を行った。その結果、対象としたダムにおいては水象データを外した

際に予測精度が最も低下し、水象データが対象としたダムの Chl-a 濃度予測に大きな影響を与えている変数群であることが推察された。

今後は、上記の課題を踏まえた効果的な予測手法や精度向上に必要な学習データについて検討していく。また、既存データを用いた統計学的予測手法だけでなく、数理モデルと統計学的なモデルを組み合わせた短期・長期の藻類濃度やアオコ発生の予測手法の可能性についても検討していく。

#### 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) 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
- 3) 斎藤康毅：ゼロから作る Deep Learning 2 -自然言語処理編、オライリージャパン、2018



## 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：山下洋正、平山孝浩、北村友一、  
對馬育夫、鈴木裕識、小森行也、  
厚朴大祐、高沢麻里

#### 【要旨】

令和2年度は、令和元年度の調査に使用した流動型担体処理実験装置の担体流動用曝気を機械攪拌に変更し、風量削減を行った条件でのNH<sub>4</sub>-N並びに医薬品4物質（アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン）の除去性能を調査した。その結果、担体の流動機能を機械攪拌に変更した場合でも、NH<sub>4</sub>-Nの除去率は92%が得られ、このときのアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン平均除去率は、令和元年度と同等の15%、13%、51%、75%となった。活性汚泥処理の後段に流動型担体処理を追加することにより、アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェンの下水処理工程での除去率を36%、51%、59%、96%程度まで向上できることがわかった。

キーワード：下水処理水、医薬品、アンモニア性窒素、微生物保持担体

#### 1. はじめに

アンモニアの水生生物への影響が報告されており<sup>1)</sup>、今後、水生生物の保全の観点からアンモニア性窒素(以下、NH<sub>4</sub>-Nとする)の濃度の低減について議論される可能性がある。濃度の目標値が低く設定された場合に対応するため、特に、硝化の促進運転が難しい下水処理方式に対応可能なNH<sub>4</sub>-Nの低減法を検討しておく必要がある。NH<sub>4</sub>-Nの他にも、下水放流水中に含まれる医薬品についても水生生物への影響が懸念されており、環境省では医薬品の有害性についての検討が行われている。医薬品の中で抗生物質であるクラリスロマイシンの予測無影響濃度(PNEC)が69 ng/Lという低濃度となることが報告<sup>2)</sup>され、下水処理水からこれを上回る濃度で検出される場合<sup>3)4)5)</sup>もあることが明らかになってきた。そこで、下水処理水放流先の水生生物保全のため、下水処理過程でのNH<sub>4</sub>-Nと医薬品の双方に対応した低減法の開発を進めている。

硝化時は一部の医薬品の除去率が向上するとの報告もあり<sup>6)</sup>、NH<sub>4</sub>-Nの除去と医薬品の低減が同時に進行できれば有効な処理法となる。令和元年度は流動型担体処理でのNH<sub>4</sub>-Nと医薬品の除去効果を調査した。

その結果、流動型担体法ではNH<sub>4</sub>-Nを1mg/Lまで低減するのに3時間程度のHRTが必要であることがわかった。令和2年度は、流動型担体実験装置の担体流動用曝気を機械攪拌に変更し、風量削減を行った条件での、NH<sub>4</sub>-Nと医薬品の同時除去効果を調査した。

#### 2. 実験方法

本実験で用いた流動型担体処理装置の概要を図-1に、外観を写真-1に示した。表-1は運転条件である。容量60Lのステンレス製反応槽を2つ連結し、各反応槽にポリプロピレン製中空円筒状担体(4mm<sup>OD</sup>×3mm<sup>ID</sup>×5mm<sup>L</sup>)を嵩比率35%で充填した。各反応槽には、攪拌装置を設置し、充填した担体が軽く流動する程度の回転数(80rpm)に設定した。原水は、実流入下水を活性汚泥処理実験装置で硝化抑制運転し、下水二次処理水中にNH<sub>4</sub>-Nを残留させたものである。本実験では、NH<sub>4</sub>-N濃度のオンラインモニタリングとNH<sub>4</sub>-N負荷変動に応じた曝気量制御運転のために、アンモニアセンサーを下水二次処理水貯留槽および各担体処理槽に設置した。また、DOモニタリング用にオンラインDO

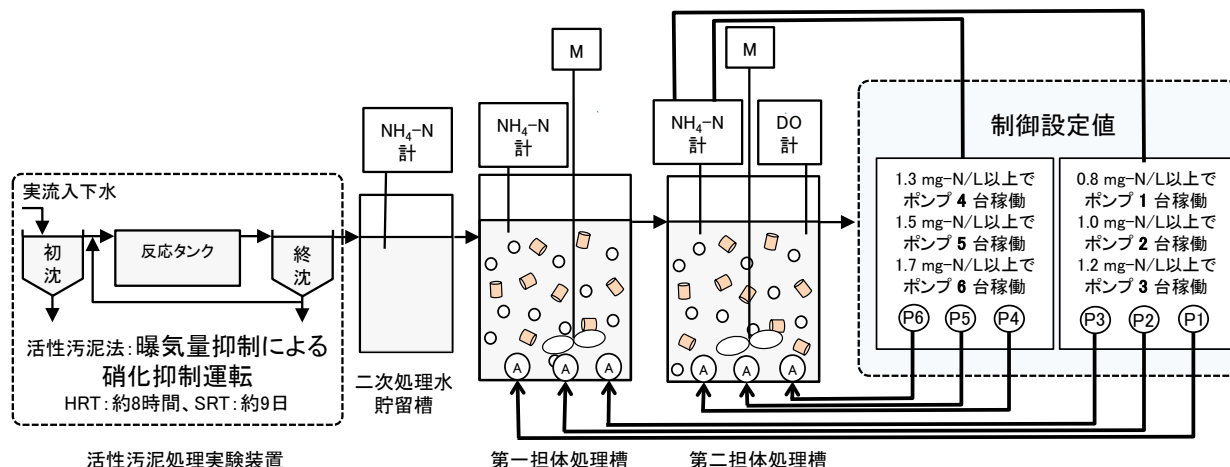


図-1 活性汚泥処理装置と流動型担体処理実験装置（機械攪拌）の概要

表-1 微生物保持担体の処理条件

HRT (2槽当たり)	実験期間	二次処理水流量 (L/分)	第一担体槽曝気量 (L/分) ※			第二担体槽曝気量 (L/分) ※		
			ポンプ1	ポンプ2	ポンプ3	ポンプ4	ポンプ5	ポンプ6
180分	2020年10月9日 ~2021年2月10日	0.61	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8

※曝気量は第二担体処理槽のNH<sub>4</sub>-N濃度に応じた制御

センサーを第二担体処理槽に設置した。曝気量制御方法はフィードバック方式で図-1中に記載した。

分析対象とした医薬品は、PNECが低く<sup>2)5)</sup>、下水処理水中に残存すると考えられる<sup>3)4)5)</sup>アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェンである。原水と担体処理槽流出水をスポット採水し、医薬品の分析を行った。測定頻度は実験期間中、週一回とし、採水回数は17回となった。医薬品測定の前処理は、遠心分離(3500rpm、5分)のみとし、その上澄水を分析試料とした。分析法は、LC/MS (Waters製 Xevo G2-XS)によるMS<sup>E</sup>モードでの同位

体希釈法である。分析試料はメタノールで1:1に希釈したものを60μL分析装置に注入した。医薬品の他に、担体処理時のNH<sub>4</sub>-Nと有機物の除去能を確認するため、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2+3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nを自動流れ分析(ビーエルテック製 QuAAtro2-HR)で、DOCを全有機炭素計(島津製作所 TOC-5000)で測定した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 機械攪拌を設置した流動型担体処理によるNH<sub>4</sub>-Nの除去

実験期間中、第二担体処理槽水中のアンモニアセンサーの値は1.3mg-N/L程度で安定していた。図-2に原水と担体処理水のNH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-Nの濃度を、図-3にNH<sub>4</sub>-N除去率を示す。二次処理水のNH<sub>4</sub>-N濃度は約16.5mg/Lで、機械攪拌方式での除去率は、令和元年度の曝気攪拌と同等の92%が得られた。図-4は担体処理水中のDOC濃度で約5mg/Lが残存していた。DOC除去率の平均値は8.7%であり、令和元年度同様にDOCの顕著な低減は見られなかった。図-5は第二担体処理槽のDO濃度である。DO濃度は令和元年度の曝気攪拌では2.3mg/Lであったが、機械攪拌方式では1.2mg/Lと低めの値となった。

#### 3.2 機械攪拌を設置した流動型担体処理による医薬品の除去効果



写真-1 流動型担体処理実験装置の概要

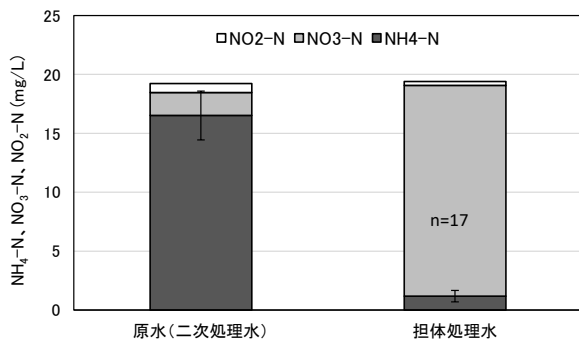


図-2 原水と担体処理水（機械攪拌）の  $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度

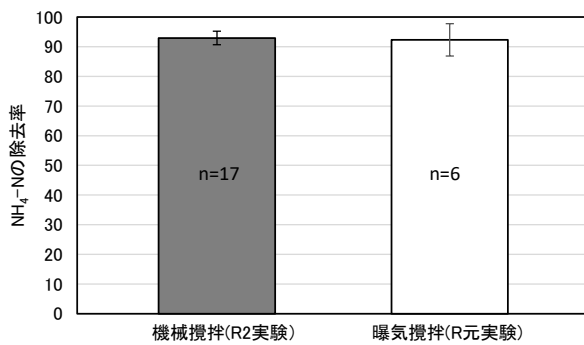


図-3 機械と曝気攪拌方式での  $\text{NH}_4\text{-N}$  の除去率

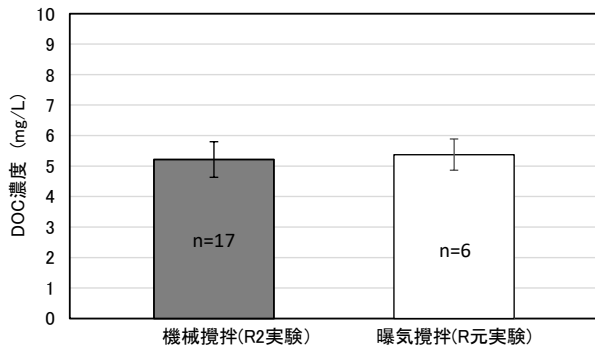


図-4 機械と曝気攪拌方式での処理中 DOC 濃度

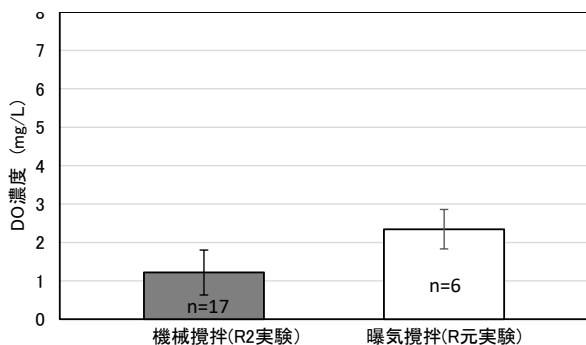


図-5 機械と曝気攪拌方式での第二担体処理槽の DO 濃度

図-6 に令和 2 年度の実験原水と担体処理水中の各医薬品の平均濃度、図-7 に各医薬品の除去率を示した。図-7 には令和元年度の曝気攪拌方式による流動型担体法での医薬品の除去率も掲載した。

原水中のアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン濃度の平均値は、約 0.34、0.24、1.37、0.45  $\mu\text{g/L}$ 、処理水では約 0.27、

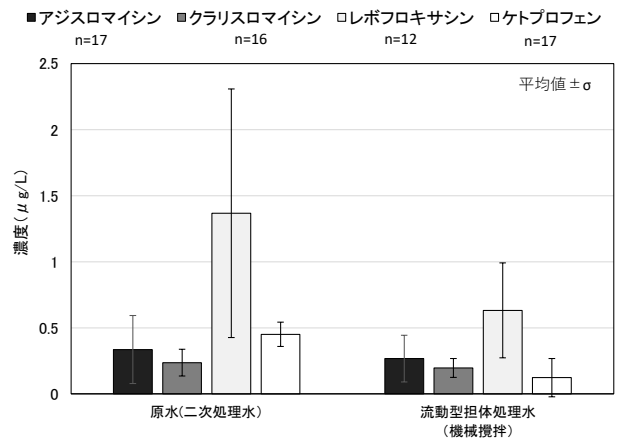


図-6 原水と担体処理水中の医薬品濃度

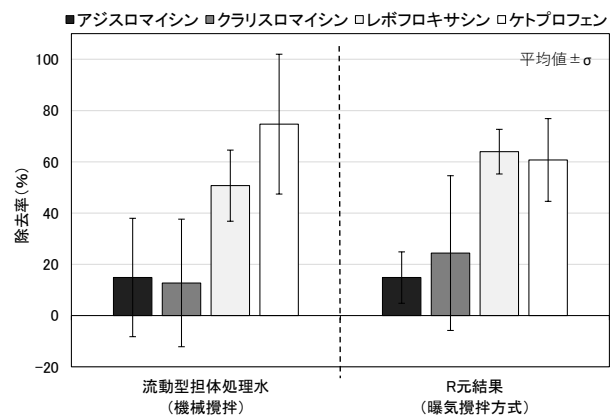


図-7 機械攪拌と曝気攪拌方式での医薬品の除去率

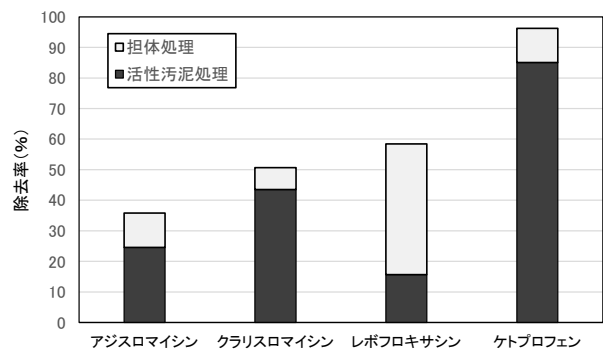


図-8 活性汚泥処理（硝化抑制）の後段に担体処理を追加した時の全処理工程での除去率

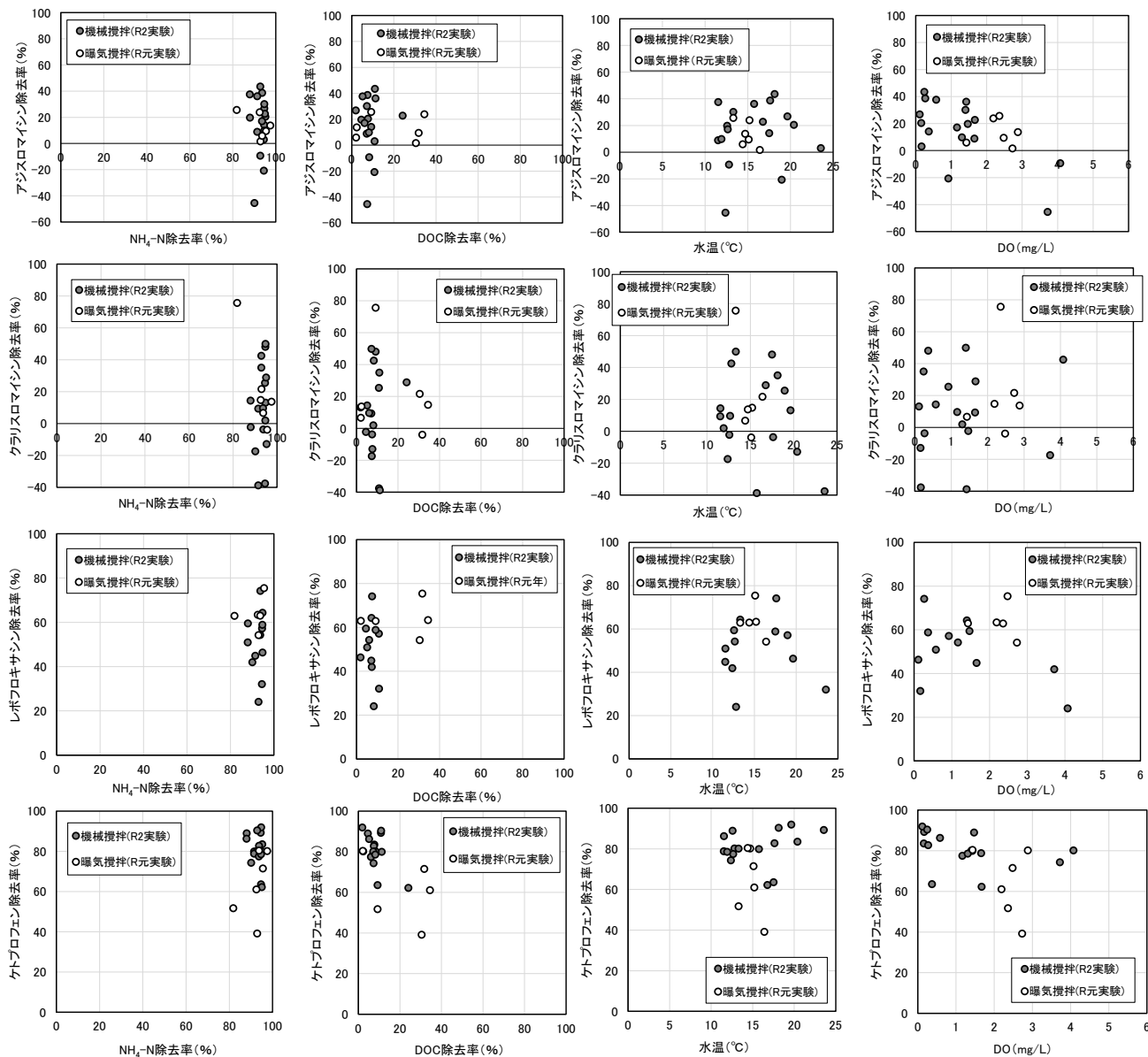


図-9 流動型担体処理での NH<sub>4</sub>-N 除去率、DOC 除去率、第二担体処理槽水温と DO と各医薬品の除去率の関係

0.20、0.63、0.12 μg/L となった。毎回の採水から得られた除去率を平均すると 15%、13%、51%、75% となった。

令和 2 年度の曝気攪拌方式の流動型担体でのアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン平均除去率は、15%、24%、64%、61% であったが、機械攪拌方式でも同等の除去率を得ることができた。機械攪拌方式では第二担体処理槽で DO の低下が見られたが、医薬品の除去率への悪影響を生じないことがわかった。

図-8 に担体処理の前段で硝化抑制運転をしていた活性汚泥処理と機械攪拌方式での流動型担体処理でのアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサ

シン、ケトプロフェンの除去率を積み重ねて示した。活性汚泥処理での各医薬品の除去率は 25%、44%、16%、85% であった（濃度測定は 1 回（2021/3/24 時間連続採水）のみ）が、担体処理の追加により、下水処理過程での各医薬品の除去率を 36%、51%、59%、96% 程度まで向上できることがわかった。図より、特に、レボフロキサシンは、担体処理で除去率を向上できる可能性があることがわかる。レボフロキサシンの除去率が向上した理由は、本実験からは明らかではないが、硝化抑制運転での活性汚泥処理での除去率が 16% と低く、担体処理による硝化運転時の除去率が 64% と高かったこと、硝化が進行した二次処理水を原水とした担体処理実験では、除去率が低いことから、

硝化により除去が促進された可能性はあると考えられる。

図-9 に NH<sub>4</sub>-N 除去率、DOC 除去率、第二担体槽の水温、DO と各医薬品除去率に関係を示した。図には令和元年度の曝気攪拌の結果も合わせてプロットした。医薬品の中で特にアジスロマイシン、クラリスロマイシン除去率の変動が大きく、各水質項目と医薬品除去率の間に明確な関係性は見いだせなかった。除去率の向上や安定した除去率を得るためには、除去に寄与する因子の解明が重要となる。

今後は、NH<sub>4</sub>-N の処理のさらなる効率化を可能とする担体の選定および当該条件での医薬品の除去特性、除去率に関連する水質因子についての調査を継続する予定である。

#### 4. まとめ

令和2年度は、令和元年度の調査に使用した流動型担体処理実験装置の担体流動用曝気を機械攪拌に変更し、風量削減を行った条件での NH<sub>4</sub>-N 並びに医薬品4物質（アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン）の除去性能を調査した。その結果、担体の流動を機械攪拌に変更した場合でも、NH<sub>4</sub>-N の除去率は92%が得られ、このときのアジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェン除去率は、15%、13%、51%、75%が得られた。これらの結果は令和元年度と同等の除去率であった。活性汚泥処理の後段の流動型担体を追加することにより、アジスロマイシン、クラリスロマイシン、レボフロキサシン、ケトプロフェンの下水処理工程での除去率を36%、51%、59%、96%程度まで向上できることがわかった。

#### 参考文献

- 1) U.S. EPA: Aquatic life ambient water quality criteria for ammonia – Freshwater 2013
- 2) 環境省環境リスク評価室：化学物質の生態リスク初期評価（1物質：追加実施分）の結果、クラリスロマイシン、化学物質の環境リスク評価 第16巻、平成30年3月 <https://www.env.go.jp/chemi/report/risk30-01/1-2-3-01.pdf>
- 3) 八十島誠、小林義和、中田典秀、小森行也、鈴木穰、田中宏明：下水処理場における人用抗生物質の挙動、土木学会環境工学研究論文集、42、pp.357-368、2005
- 4) 成宮正倫、奥田隆、中田典秀、山下尚之、田中宏明、佐藤和志、末岡峯数、大岩俊雄：下水処理過程における医薬品類の存在実態と挙動、土木学会環境工学研究論文集、46、pp.175-186、2009
- 5) 南山瑞彦、小森行也、北村友一、鈴木穰、岡安裕司：下水道における生理活性物質の実態把握と制御に関する調査、平成22年度下水道関係調査研究年次報告書集、pp.199-212、土木研究所資料 第4212号
- 6) Ngoc HanTran, Taro Urase, Osamu Kusakabe: The characteristics of enriched nitrifier culture in the degradation of selected pharmaceutically active compounds, Journal of Hazardous Materials, 171, 1-3, pp.1051-1057, 2009
- 7) 小森行也、岡本誠一郎：運転条件の異なる微生物担体処理における医薬品の除去特性、EICA、19、2.3、pp.15-17、2014

## 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および災害時に対応した水処理・塩素消毒の評価）

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：山下洋正、諏訪守、小森行也

### 【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。令和2年度は、上記②の達成目標に関わる調査・研究として、降雨時の実態調査に基づく合流式下水道越流水による放流先水域への影響評価を行った。また、③に関わる調査・研究では、台風で浸水被災した下水処理場にて暫定的な水質改善効果による消毒効果と消毒副生成物の抑制効果を評価した。

その結果、越流水放流負荷の分流化並み、越流回数の半減とした暫定的な対策目標である合流改善事業後において、ノロウイルス（Norovirus:NoV）の流出抑制にも一定の効果があるものと推定されたが、降雨の状況に応じて越流水による放流先水域への影響が懸念された。合流改善事業においてNoVの放流負荷に関わる目標値は定められていないが、放流先水域が重要影響水域である場合には、将来的には衛生学的な観点からウイルスに対する安全性の確保に関する検討を行うことも考えられ、その参考となる知見が得られた。越流水影響下によるNoVの汚染状況を簡易に把握するため、濁度およびSSとの関連性を評価した結果、代替指標としてNoV汚染を簡易にモニタリングできる可能性が示唆された。越流水の影響下による河川水中のNoV濃度は、ろ過により90%程度低下することが明らかとなったことから、越流水対策として高濁度水を対象としたろ過プロセスの導入により、ウイルス負荷の低減が図れるものと考えられた。被災下水処理場において段階的な復旧対策技術による水質改善に伴う消毒効果および消毒副生成物抑制の向上効果を明らかにし、復旧段階に応じた塩素消毒の運転管理の適正化に資する知見を得た。

キーワード：合流式下水道越流水、ノロウイルス、濁度、SS、復旧対策技術

### 1. はじめに

下水道は公衆衛生の向上に寄与することを目的の一つとしていることから、グローバル化にともなう多様な感染症を含めた水系感染症拡大防止にも貢献することが期待<sup>1)</sup>されている。公衆衛生をめぐる社会情勢の変化へ対応するため、感染拡大防止に資する下水道システムを確立することが求められている。従来、公衆衛生の観点では、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、現在、新型コロナウイルスの世界的流行例もあることから、今後、多種多様な病原微生物の出現も予想される。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>2)、3)</sup>となっているが、対策手法構築のために必要な研究・調査は途上段階にある。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。令和2年度は、合流式下水道越流水の影響評価を目的として、NoVを指標とした汚染実態を把握した。併せて、被災下水処理場の応急復旧段階における水質改善が消毒効果向上および消毒副生成物の生成抑制に及ぼす影響を評価した。

### 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大都市を中心に、下水と雨水の排除を同一の管渠とした合流式下水道が採用されてきた（全国191都市）。合流式下水道では降雨時において、雨水量が増加し下水道施設において対応が困難になる場合には、未処理下水等が公共用水域へ放

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。平成15年の下水道施行令改正を踏まえ、合流式下水道緊急改善事業（以下、合流改善事業という）が実施され、処理区域の面積が1,500ヘクタール未満（流域関連は5,000ヘクタール未満）の都市は平成25年度までに、それ以上の規模の都市は令和5年度までに対策を完了すべく進められてきている。合流式下水道緊急改善計画における当面の改善目標としては、汚濁負荷量の削減、公衆衛生上の安全確保、夾雑物の削減の3つが挙げられている。合流改善事業の具体的な対策としては、雨水浸透施設の設置、完全（部分）分流化、下水処理場の処理能力の増強（遮集容量の増強、雨天時活性汚泥法の適用など）、雨天時下水の貯留などである<sup>4)</sup>。一方、公共用水域の衛生学的な指標として主に大腸菌群数が用いられているが、越流水の影響調査にて適切なリスク評価の観点から、ウイルスの直接計測が必要との報告<sup>5)</sup>がある。また、雨天時の簡易処理放流の大腸菌、F特異大腸菌ファージの排出負荷量は、年間負荷量の半分以上を占めることから放流先水域への衛生学的安全性確保のため、簡易処理放流対策が必要との報告があるが<sup>6)</sup>、これらウイルス等を対象とした調査・研究事例は限られている。

このような背景から本研究では、ウイルス指標としてNoVを対象に、合流改善事業による低減効果や越流水が放流先水域へ及ぼす影響評価を目的として、降雨時において実態調査を行った。

令和元年度からは、公共用水域へ及ぼす越流水の影響を明らかにするため、A市を対象として実態調査を行った。A市での主な合流改善事業としては合流下水の貯留施設の建設であり、その期待される効果をシミュレーションした結果は、雨天放流時のBOD負荷を分流式並み、越流回数の半減である。

雨天時調査は1降雨あたりの総降雨量が約10~120mmの4降雨時（過年度の3回の降雨時調査を含む）において、2箇所の雨水吐き地点（採水箇所から上流約1,000mと約4,000mに位置）の下流にて河川水を採水した。調査の実施は3~10月であったことから、冬季の感染性胃腸炎の流行期ではなかったと考えられる。ウイルス指標としてNoV、他の水質項目として濁度、SSを測定した。また、越流水影響下での河川水中のNoVの存在形態を推測するため、SS濃度が異なる一部の河川水試料を用いてる過（GF/B）によるNoV濃度の低減効果を把握した。

## 2.2 NoVの測定法

試料のNoVは、PEG沈殿法により濃縮し、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、リアルタイムRT-PCR法により定量を行った。詳細は次のとおりである。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0.5µgをランダムプライマー、Omniscrypt RT Kit（QIAGEN社）を用い全量50µLの系で逆転写反応によりcDNAを作製し5µLをリアルタイムPCRに供した。NoV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>7)</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、PEG沈殿法では、遺伝子抽出カラムへの濃縮試料のSS負荷量を低減させることで、陰電荷膜法に比較してNoVの検出濃度を高められることから、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、抽出カラム1本あたり0.05mg-SSとなるように統一した<sup>8)</sup>。他の水質分析項目の濁度は現地にてポータブル濁度計による計測、SSはGF/Bろ紙による定量とした。

## 2.3 応急復旧段階における水質改善が消毒効果向上および消毒副生成物の生成抑制に及ぼす影響評価

東日本大震災や台風では津波・浸水により下水処理場は壊滅的な被害を受け、水・汚泥処理の復旧に長期間を要した。簡易沈殿処理や簡易生物処理などの応急復旧段階を経て本復旧へ至るが、応急復旧段階の下水の消毒は、通常の塩素消毒に比べ塩素注入濃度を高める必要がある。応急復旧段階で処理水質が悪化している状況において、塩素注入濃度を高めることは、消毒副生成物の生成を促進することが懸念されるが、応急復旧段階の消毒副生成物に関する調査・研究例は少なく、その実態は不明である。

このような背景から本研究では、段階的な復旧対策技術による水質改善効果が消毒効果および消毒副生成物の生成へ及ぼす影響評価を目的に、台風による浸水被害を受けたB下水処理場を対象として復旧段階ごとの下水試料を採水し塩素消毒実験を行った。消毒実験は大腸菌群数が基準値以下となるよう次亜塩素酸ナトリウムの添加濃度を変動させ、接触時間を20分間とした。消毒効果は



大腸菌群数（デソキシコール酸塩培地の平板培養法）、消毒副生成物は TOCl（前述の 13.1.1 に示す方法）を指標とした。

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

過年度の調査結果を含めた調査時の降雨状況を図-1、2 に示す。時間最大降雨量は 2.5、9.5、14、20mm/h、累積降雨量は概ね 10、30、60、120mm であり、全て異なった降雨状況での実態調査となった。雨天調査時の NoV 濃度の推移を図-3、4 に示す。1 降雨あたりの累積降雨量が 10mm 程度であれば NoV 濃度の顕著な上昇は認められず、概ね 10<sup>4</sup>copies/L レベルで推移しており、調査開始当

初から大きな変動は見られなかった。しかし、累積降雨量が約 30mm 以上となったケースにて放流先河川水の NoV 濃度は上昇しており、降雨初期の調査開始時と比較して 2 オーダーの濃度上昇が認められ、その最大濃度は 10<sup>6</sup>~10<sup>7</sup>copies/L となった。

当面の暫定的な達成目標である雨天放流時の BOD 負荷を分流式並み、越流回数の半減とした A 市における合流改善事業後において、NoV の流出抑制にも一定の効果があるものと推定されたが、降雨の状況に応じて越流水による放流先水域への影響が懸念された。合流改善事業において NoV の放流負荷に関わる目標値は定められていないが、放流先水域が重要影響水域である場合には、将来的には衛生的な観点からウイルスに対する安全性の確保に関する検討を行うことも考えられ、その参考となる知見が得られた。

次いで、越流水の影響下による NoV の汚染状況を簡易に把握するため、水質指標として濁度と SS との関連性を評価した結果を図-5、6 に示す。累積降雨量が 10mm 程度では河川水の NoV 濃度の顕著な上昇は見られなかったため、濁度等との明確な関連性は見出せなかった。その他の降雨状況（約 30~120mm）として、越流水越流前後の河川水の NoV 濃度では、越流水の影響を受け濁度、SS の顕著な上昇が認められることで、NoV 濃度が高ま

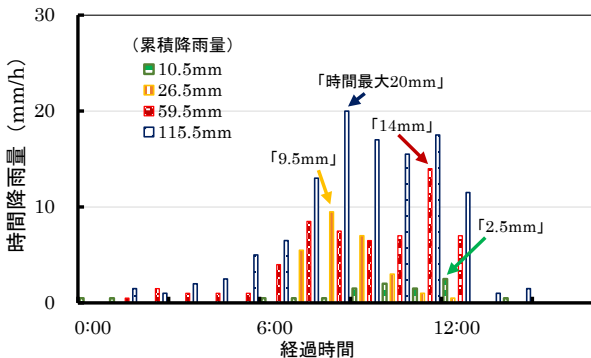


図-1 調査時の時間降雨量

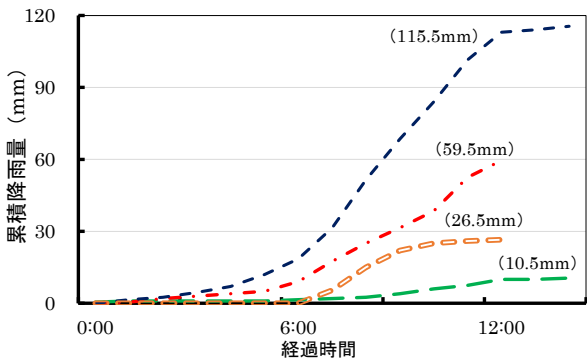


図-2 調査時の累積降雨量

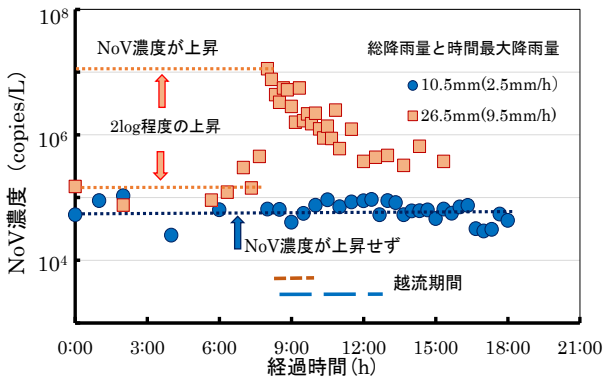


図-3 越流水影響下による河川水のNoV濃度の推移 (総降雨量約10~30mm)

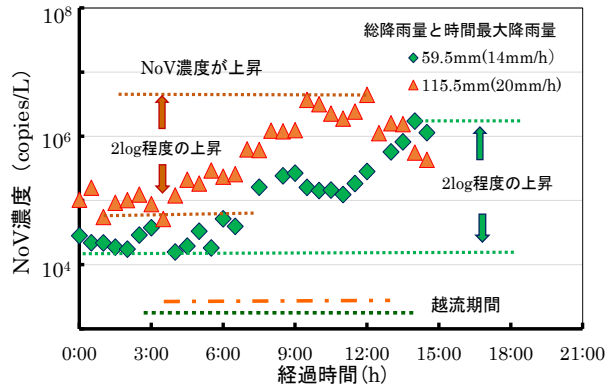


図-4 越流水影響下による河川水のNoV濃度の推移 (総降雨量約60~120mm)

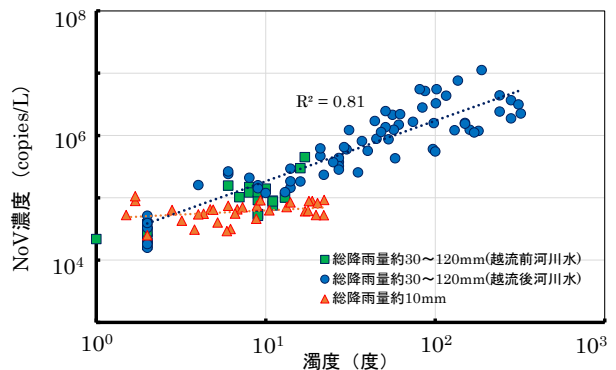


図-5 河川水の濁度とNoV濃度の関係

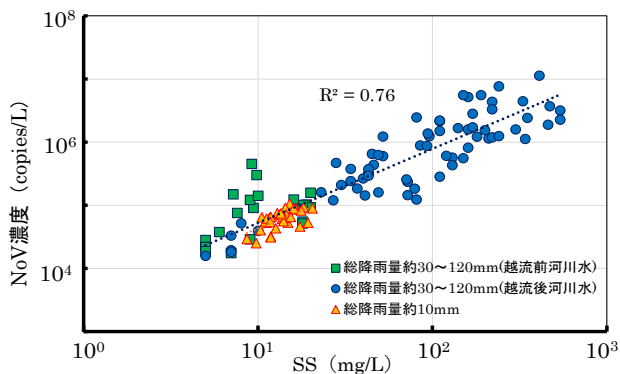


図-6 河川水のSSとNoV濃度の関係

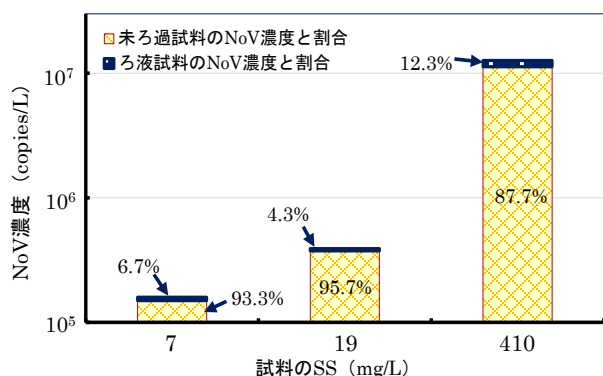


図-7 未ろ過試料とろ液試料のNoV濃度と割合

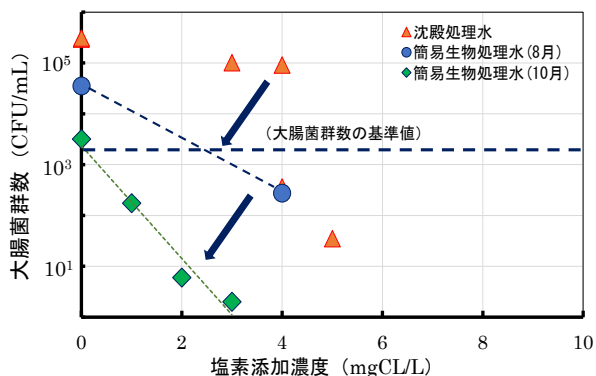


図-8 水質改善による消毒効果の向上

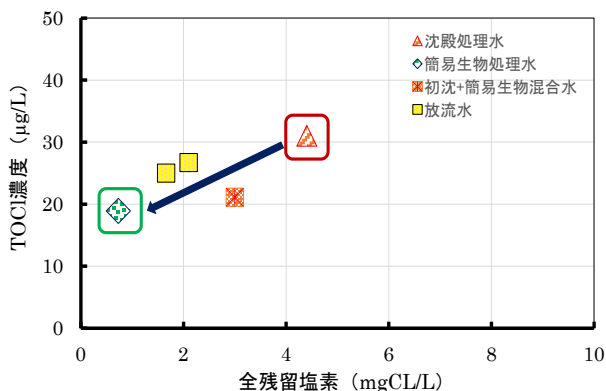


図-9 水質改善による消毒副生成物の抑制

っており、濁度とSSは、代替指標としてNoV汚染を簡易にモニタリングできる可能性が示唆された。

越流水影響下での河川水の濁度、SSとNoV濃度との関連性が認められたため、越流水のSS等の制御がNoV対策に有効となる可能性がある。このため、SSが異なる河川水試料を対象に、ろ過(GF/B)によるNoV濃度の低減効果の評価した。越流水の影響割合が異なる河川水試料として、SSが7、19、410mg/Lの試料を評価対象とした。評価結果を図-7に示すが、ろ液中のNoV濃度は未ろ過試料のNoV濃度に対して概ね10%程度であり、ろ過によってNoV濃度を90%程度低減できることが明らかとなった。

### 3.2 応急復旧段階における水質改善が消毒効果向上および消毒副生成物の生成抑制に及ぼす影響評価

B下水処理場の下水試料を対象とした消毒実験結果より、水質改善による消毒効果の向上について図-8に示す。応急復旧の初期段階である沈殿処理水では、次亜塩素酸ナトリウムの添加濃度を5mgCl/L以上としなければ大腸菌群数の基準値を達成できない状況であったが、段階的な復旧として簡易生物処理へ移行することで、基準値達成のための塩素添加濃度を低くすることができた。ただし、簡易生物処理への移行において、基準値達成のための塩素添加濃度をより低減できるまでに約2ヶ月を要したことから、簡易生物処理へ移行しても処理水質が安定するまで一定の期間を要することが考えられた。

次いで水質改善による消毒副生成物の抑制効果について図-9に示す。図中のプロットは大腸菌群数の基準値を達成している消毒条件である。沈殿処理から簡易生物処理への移行により、水質が改善することで基準値達成のための塩素添加濃度を低くできるとともに、TOClの生成が抑制されることが確認できた。消毒効果や消毒副生成物の生成抑制の観点から、復旧段階に応じた塩素消毒の運転管理の適正化に資する知見を得た。なお、図中の初沈+簡易生物混合は、沈殿処理水と簡易生物処理水が混合(ほぼ1:1の割合)された下水試料、放流水はその混合水を塩素混和池にて消毒した試料である。

## 4. まとめ

本研究は、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。令和2年度は、合流式下水道越流水の影響評価を目的として、NoVを指標とした汚染実態を把握した。併せて、被災下水処理場の応急復旧段階における水質改善が消毒効果向上および消毒副生成物の生成抑制に及ぼす影響を評価した。以下に得られた結果を示す。

1) 越流水放流負荷の分流化並び、越流回数の半減とした暫定的な対策目標である合流改善事業後において、NoV

の流出抑制にも一定の効果があるものと推定されたが、降雨の状況に応じて越流水による放流先水域への影響が懸念された。合流改善事業において NoV の放流負荷に関わる目標値は定められていないが、放流先水域が重要影響水域である場合には、将来的には衛生的な観点からウイルスに対する安全性の確保に関する検討を行うことも考えられ、その参考となる知見が得られた。

- 2) 濁度と SS は、代替指標として NoV 汚染を簡易にモニタリングできる可能性が示唆された。
- 3) 越流水の影響下による河川水中の NoV 濃度は、ろ過により 90%程度低下することが明らかとなった。越流水対策として高濁度水を対象としたろ過プロセスの導入により、ウイルス負荷の低減が図れるものと考えられた。
- 4) 被災下水処理場において段階的な復旧対策技術による水質改善に伴う消毒効果および消毒副生成物抑制の向上効果を明らかにし、復旧段階に応じた塩素消毒の運転管理の適正化に資する知見を得た。

#### 謝辞

本研究・調査を実施するにあたり、調査対象とした A 市、B 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) 国土交通省水管理・国土保全局下水道部、公益社団法人日本下水道協会、新下水道ビジョン、平成 26 年 7 月。

- 2) 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)
- 3) 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)
- 4) 国土交通省都市地域整備局下水道部、効率的な合流式下水道緊急改善計画策定の手引き（案）。
- 5) 鯉淵幸生、小野澤恵一、中村格之、原本英二、片山浩之、古米弘明、佐藤慎司、岡安章夫、磯部雅彦：東京湾お台場海浜公園における雨天時合流式下水道越流水の影響調査、海岸工学論文集、Vol. 52、pp. 886-890、2005。
- 6) 西田光希、張浩然、井原賢、田中宏明：下水処理場から水域へ放流される年間微生物負荷量の推定、土木学会論文集 G (環境)、Vol.76(7)、III-441-448、2020。
- 7) 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)
- 8) 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。

### 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と貧酸素化予測手法の高度化、および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：巖倉啓子、野上毅、杉原幸樹

##### 【要旨】

塩淡水二層汽水湖の網走湖で塩水層の貧酸素解消を目的に、実水域で酸素溶解装置(WEP)の運用試験を行った。2ヶ月の装置運転でおよそ 210,000 m<sup>2</sup> に酸素供給影響が確認された。一方で残存酸素量は装置の運転時間と含有硫化水素濃度に依存して、水塊移動と供給酸素濃度が重要であることが確認された。また装置の筐体耐久度も強還元状態の水中においては、2カ年ほどで破損を生じることが確認された。これらの知見から本論文の条件では運転費用に加え、2年おきの保守修繕費が必要となり、年間の維持費用として390～550万円が必要であることが明らかとなった。このことから、溶存酸素供給によって塩水性貧酸素水塊の水質改善が可能であるが、社会実装のためには隔離水塊等の有限容量での運用が有利であると推察された。

キーワード：汽水湖、硫化水素、貧酸素、WEP、酸素供給

##### 1. はじめに

停滞性水域の底層貧酸素改善を目的に様々な研究<sup>1) 2)</sup>がなされている。直接的な貧酸素改善のため、酸素供給等も行われている<sup>3)</sup>。隔離水塊での鉛直循環<sup>4)</sup>やマイクロバブルによる曝気<sup>5)</sup>、高濃度酸素水製造装置によるダム貯水池での酸素供給試験<sup>6)</sup>、曝気噴流による手法<sup>7)</sup>など、淡水域を対象とし、主に流速を発生させる手法で貧酸素改善が行われている。これらは酸素供給により栄養塩濃度、金属イオン濃度の低下が観測され、溶存酸素量(DO)の上昇を報告されている。しかし、海域および汽水湖においては浚渫窪地など特殊地形における酸素供給効果が報告されている<sup>8)</sup>のみである。

そこで我々は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て、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、実水域で通年での運用試験を実施して、DO供給時に起こる化学的変化について報告<sup>9)</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。さらに現地にWEP酸素供給プラントを建設し、秋期のプラント運用による水質変化の観測結果から、目的とする水深(当時報告時は標高-7.5m)に選択的にDO供給し、実水域においても水質が改善することを報告<sup>10)</sup>した。さらに結氷下や融雪期の運用試験を行い、運用上不利となる寒冷地においても通年で選

択した水深で溶存酸素を供給して、水質改善することを報告してきた<sup>11)</sup>。そこで本研究は、吐出標高を変更した場合の水質観測を行うと同時に、2カ年稼働時点での本対象水域の条件での維持費や筐体変化をとりまとめ、社会実装に向けた課題を抽出する。

##### 2. 試験装置の建設と観測

###### 2.1 対象水域

北海道北東部に位置する網走湖(図-1 参照)を対象水域とした。網走湖は面積32.3km<sup>2</sup>、最大水深16.1mの海跡湖で、主な流入河川は網走川であり、流入河川水量の約97%を占めている。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。網走湖の水位は潮位や洪水により標高-0.2～2.4mで変動するが、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。なお、塩淡水界面は標高-4.0～-7.0mで変動し、表面水位とは独立に変動する。このため水深基準では表面水位の変動で、高さを規定できないため、本稿では標高で統一する。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 1 m ほどになる。結氷前後も塩水密度が高いため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<sup>12)</sup>を示す。塩水層は通年での海水逆流や夏季降雨に伴う流出などの変動を受けるが、塩水層は残存して局在化する特徴がある<sup>13)</sup>、残存量は塩水交換量に比べ大量なため、塩水層の水質は無酸素、嫌気溶出が継続する水塊構造となっている。そのため塩水層の栄養塩濃度や硫化水素濃度は経年増加傾向にある。

## 2.2 試験装置

網走湖内の呼人港に酸素精製機など陸上装置、および岸壁から網走湖内の呼人港に酸素精製機など陸上設備、および岸壁から湖心側に WEP など水中設備を設置した。2017 年は(図-1 中標高-9 m 付近)の標高-7 m の位置に 2017 年 8 月 28 日に建設・設置し、2018 年は(図-1 中 B 地点)の湖底標高-10 m の位置に WEP など水中装置を 2018 年 8 月 26 日に移設・再設置した。再設置時の概略を図-2 に示す。水中設備は大きさ 20 m<sup>3</sup>、陸上重量 1.2 t で吐出量 120 m<sup>3</sup>/h のポンプを搭載し、浮力が 100 kg になるように浮子を取り付け、B 地点に図-2 に示す様に水中立上で係留設置した。図-3 に岸壁からの断面図および 2017 年設置日の鉛直投下式の水質計(環境システム、DS5)での水質鉛直観測結果を示す。B 地点において標高-6.2 m に明瞭な塩淡境界が存在し、塩水層は無酸素状態であった。2017 年は境界面付近に DO 供給するため、500 kg のアンカーで固定、吐出口が標高-7.3 m、吸入口が標高-6.8 m になるように係留した。ここで、陸上で精製された酸素ガス(濃度 92 %)は水中設備に圧送し、圧送総量の 80 %が水中溶解する。そのため余剰酸素を残気吐出口から排気する必要がある。設置時の塩淡境界は標高-6.2 m であったが、残気吐出口は、気泡上昇による塩水の連行が起きないように標高-3.5 m 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 29 日より 24 時間の連続運転を開始した。次に 2018 年 8 月 26 日からは吐出口を標高-9.0 m に再設置して 2 時間毎の運転と休止を繰り返す間欠運転とした。この時、吐出口は陸上装置のコンプレッサーで圧送できる限界水深である 10 m 以浅とし、なおかつ底面付近の吐出とした。また、予算の制約により 24 時間運転が困難となり、間欠運転を採用した。なお、2018 年 10 月 28 日～2019 年 1 月 29 日までは故障が発生して WEP の運転を停止している。故障修理後 2019 年 8 月 25 日まで 2 時間毎の間欠運転を継続し、2019 年 8 月 25 日に WEP を水中より引き揚げ

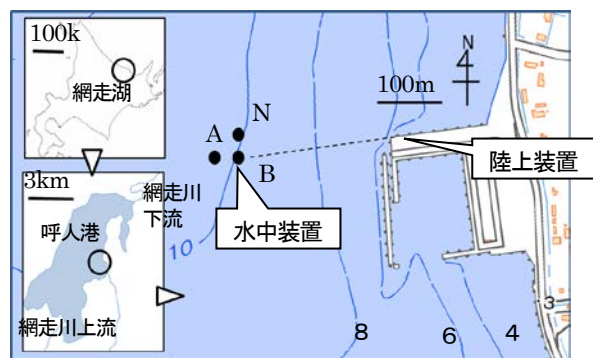


図-1 調査位置図

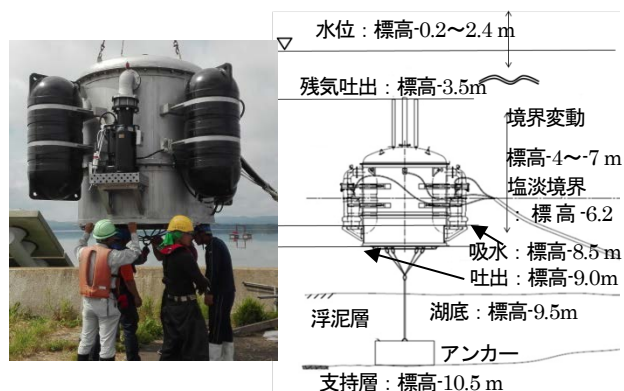


図-2 左：水中装置外観と右：水中設置概略立面図

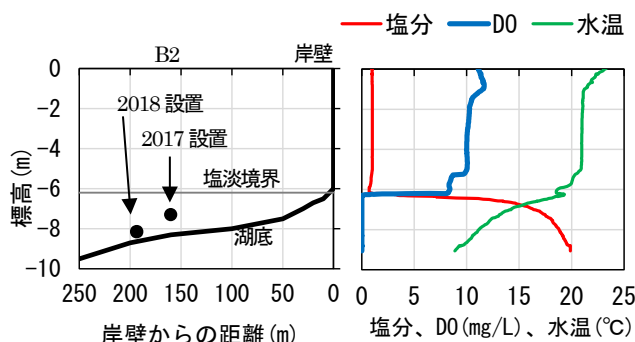


図-3 断面位置図と

設置時水質鉛直分布 (設置地点：2017/8/28)

て、筐体の点検を行った。

## 2.3 現地観測

### 2.3.1 自記計観測

運転期間中は吐出口の標高にあわせて、A 地点(水中装置の西側 40 m 位置)に超音波流速計(TELEDYNE RD Instruments、Workhorse sentinel 1200 kHz)を標高-10 m (吐出口が標高-7.3 m のときの係留高さは標高-9.0 m)に係留した。流速は 60 分間隔で毎秒 5 回の測定を 60 秒行った平均値を取得した。また、B 地点(水中装置設置位置)、N 地点(B 地点の北側 25 m 位置)の標高-9.0 m(吐出口が標高-7.3 m のときの係留高さは標高-7.5 m)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)を係留設置した。設置期間中は 1 時間間隔でデータを取得した。

### 2.3.2 鉛直観測

投下式水質計(環境システム、DS5)で B 地点を中心に 300 m 四方内の 13 箇所を基準として水質鉛直分布観測を行い、空間的な水質観測を実施した。この時、酸化反応の痕跡を追跡して鉛直観測を実施しており、上述範囲と個所数は最低限の値である。観測項目は水温、塩分、DO、濁度とし、各年水中装置設置後から2週間後、1ヶ月後、2ヶ月後に観測を実施した。

### 2.3.3 水質分析、底質分析

鉛直観測と同一日に 2017 年は水中装置設置地点の標高-7.5 m、2018 年は B 地点の標高-9.0 m で採水を行い、硫化水素について管原ら<sup>14)</sup>の手法を用いて、酢酸亜鉛固定法により定量した。また 2017 年 8 月 30 日、2018 年 8 月 20 日および 2019 年 6 月 25 日には湖心で標高-9.0 m で採水を行い、硫化水素の分析を行った。なお、日本工業規格に準じた分析項目の全有機炭素(TOC)、全リン(T-P)、オルトリン酸態リン(PO<sub>4</sub>-P)、全窒素(T-N)、アンモニウム態窒素(NH<sub>4</sub>-N)、亜硝酸態窒素(NO<sub>2</sub>-N)、硝酸態窒素(NO<sub>3</sub>-N)についても水質分析を実施した。

## 3. 観測結果

### 3.1 自記計観測結果

塩分観測の結果から水中装置の運転期間中は塩分値の変動がなく、塩水や淡水の鉛直混合を引き起こさず、選択した標高で吸水と吐出ができていたことが確認された。既往報告<sup>9) 10) 11)</sup>で示したように、DO を供給しても、水塊中の硫化水素濃度が高いために、DO はすぐに消費され、酸化反応の痕跡である固体硫黄の生成によって濁度の上昇として計測される。B 地点および N 地点の 2018 年 8 月 26 日から 10 月 25 日までの 60 日間の DO と濁度の統計値を表-1 にまとめる。なお、参考として 2017 年の同時期の統計値<sup>10)</sup>も加える。

2017 年と 2018 年は観測標高や運転時間が異なるが、標高が低いほど DO が低く、濁度が高くなる結果となった。次に B 地点と N 地点の挙動をみると、観測標高によらず、B 地点では N 地点よりも DO が高く、濁度が低い挙動が一致していた。WEP の最大の特徴は標高選択性である。網走湖の栄養塩や硫化水素など含有物質の水質分布の特徴は水平方向均一で、鉛直方向に低層ほど高濃度に分布する<sup>10) 11)</sup>こと(図-5 参照)、間欠運転では連続運転に比べて供給 DO は半分であるが、B 地点の DO 平均値は連続運転の半分以下となり、これらの差は含有する硫化水素の濃度に起因していると推察される。

次に各標高の水塊の軌跡を図-4 に示す。A 地点で計測した標高-9.0 m の超音波流速計の結果より 2018 年 8 月 26 日から 10 月 25 日までの 60 日間の流速を北方および東方成分毎に積算して軌跡としたものである。なお、参考として 2017 年 8 月 29 日から 10 月 28 日までの 60 日

表-1 自記水質計観測値の統計

時期	項目	統計値	B	N
2017秋期 EL-7.5m 連続運転	DO	平均値	11.69	1.11
		標準偏差	7.61	3.01
	濁度	平均値	21.35	41.59
		標準偏差	28.61	41.59
2018秋期 EL-9.0m 間欠運転	DO	平均値	2.25	0.39
		標準偏差	4.60	0.96
	濁度	平均値	48.60	97.06
		標準偏差	86.32	75.44

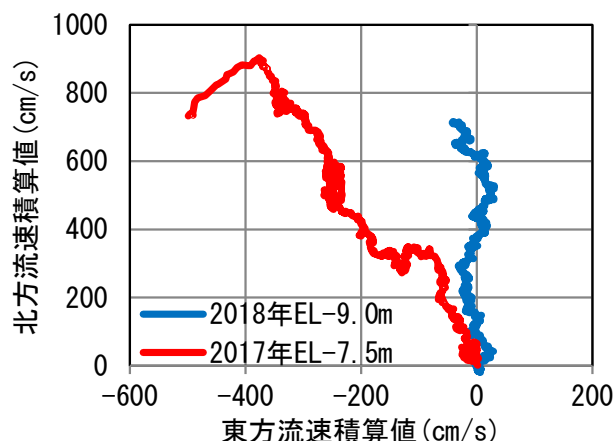


図-4 各標高の 60 日間の積算流速の変化

間の軌跡<sup>10)</sup>を加える。この結果から A 地点での秋期の塩水層は標高が低いほど流速が遅く、東西に揺らぎながらほぼ北向きに移動していることが確認された。標高-7.5 m では塩淡水境界が近く淡水層の影響が強いため、南向きの流れや東西方向にも大きく変動し、水塊の混合が促進されていることが示唆される。一方で標高-9.0 m においては淡水の影響が小さくなり、混合影響も小さくなるために安定した水塊の移動となっていた。なお、各年の 60 日間の平均流速は 2017 年が東方-0.22 cm/s、北方 0.53 cm/s であり、2018 年が東方-0.02 cm/s、北方 0.43 cm/s であった。これより、低標高(水深が深い)ほど流速が遅く、北向きに偏向することがわかった。

### 3.2 鉛直観測結果

図-5 に水中装置の再設置後の運転 7 日後の B 地点における DO、濁度と塩分の鉛直分布と 2017 年の結果、および湖心における硫化水素の鉛直分布を示す。なお、湖心の最低標高は-16 m であるが機器観測結果と比較するため標高-10 m までを抽出した。ここで、計測時の塩淡水境界標高は 2017 年で標高-6.0 m、2018 年で標高-6.8 m であった。両年ともに吐出口を施工した標高に DO と濁度の上昇が計測された。濁度の分布をみると吐出水塊の標高選択性が非常に高く、ピーク幅は 40 cm ほどであった。一方で貧酸素層の DO ピークは幅が 1 m ほどになっていた。DO センサーは蛍光式光学センサーであり、濁度センサーと時定数は同程度であることから、ピーク幅の違いは計測時の落下速度に起因するとは考えづらく、

水塊中の含有物質に由来していると推察されるが、詳細は不明である。なお、N地点におけるDOと濁度の鉛直分布のピーク標高はB地点と同じで2017年は標高-7.5m、2018年は標高-9.0mに観測され、DOピーク値が小さく、濁度ピーク値が大きくなり、表-1に示す傾向に反映されている。このとき塩分の鉛直分布にDOや濁度のピーク標高に対応する標高に急激な変化は見られず、標高が低いほど塩分が増加して、装置の運転による強制的な鉛直混合が起きていないことが確認された。

鉛直観測を平面的に実施し、2017年は標高-7.5m、2018年は標高-9.0mを抽出して、コンター図として図-6に示す。2017年は水中装置を中心に300m四方の範囲で計測し、2018年は明瞭な濁度を検出できなくなるまで範囲を拡大して計測している。2017年は装置の北西の範囲に濁度の上昇が確認された。2018年は装置から北側に600mの距離まで濁度上昇が確認された。観測範囲内の濁度上昇は幅300mで南北方向700mの210,000m<sup>2</sup>に広がり、酸素供給影響が確認された。図-4の水塊移動の痕跡を参考すると、DO供給して生成した固体硫黄は水塊の移動に追従して広がっていることが明らかとなった。なお、2017年時は塩淡水境界近傍でDO供給を行い、2018年時は2017年に比べて深い位置としている。このことから兩年の差は塩淡水境界の影響が強いと推察される。図-4の結果から、2017年の軌跡が2018年に比較して同一期間での南北、東西方向の変化が大きく(流向の変化および流速が大きい)、塩淡水境界近傍では水平面の水塊の混合や往復移動が大きいと推察され、生成固体硫黄の沈降が促進されて濁度の広がりが小さいと考えられる。また図-6から濁度の上昇が水中装置より北側に600mまで観測されており、2018年の濁質の移動速度は60日で600m移動したとすると、0.012cm/sとなる。一方で観測期間中の水塊の北向の平均流速は図-4より0.43cm/sであった。つまり水塊の移動よりも濁度の移動が遅くなっていた。これらは濁度を構成する固体硫黄が沈降しているために、見かけ上の濁度の広がる速度が水塊の移動速度と一致しないためと考えられる。

### 3.3 水質観測結果

2017年の観測結果からT-NやT-Pは20%ほど濃度が低下する挙動が確認された<sup>10), 11)</sup>が、2018年の標高-9.0mにおいてはT-Nは20mg/L、T-Pは4.1mg/Lで季節によらずほぼ一定しており、装置運転による濃度の変化はほぼ見られず、最も大きく変化しても10%以下の濃度低下となっていた。TOCについても標高-9.0mにおいては7.0mg/Lほどで一定して推移し、装置運転による明瞭な差異は確認できなかった。

一方で硫化水素については装置運転により明確な差異が確認された。B地点の吐出口標高を抽出し、時系列の変化として図-7に示す。B地点から3kmはなれた湖心

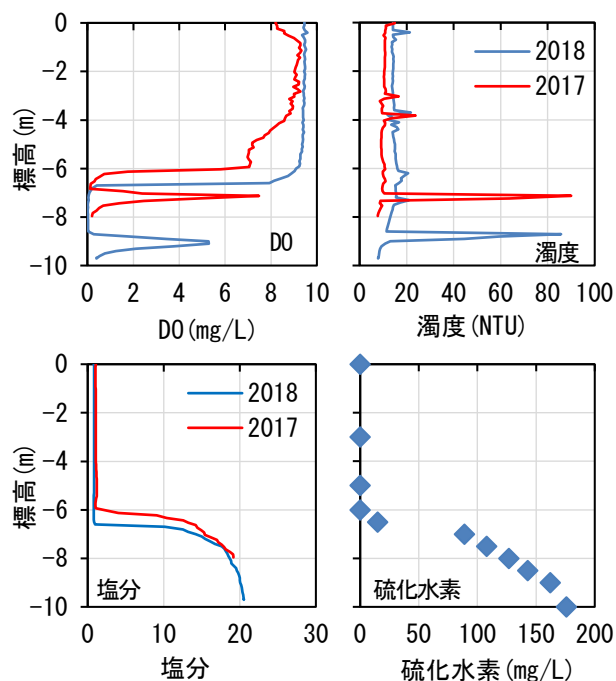


図-5 B地点での再稼働7日後の鉛直分布比較 (2017/9/7, 2018/9/4) および湖心での硫化水素鉛直分布 (2018/8/20)

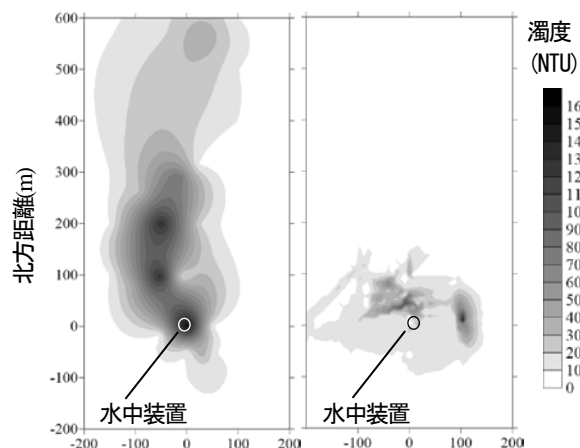


図-6 運転2カ月後の濁度分布 (左: 2018年標高-9.0m, 2018/10/25 ; 右: 2017年標高-7.5m, 2017/10/20)

における同一標高の値も加えている。まず2017年6月～2018年8月までは湖心の標高-7.5mでは時間の経過とともに60mg/Lから90mg/Lに濃度が上昇していた。B地点では24時間連続運転を継続し、湖心に比べて約45mg/L濃度が低下しながら、時間軸方向では増加傾向を示していた。この時、湖心の硫化水素の増加率を便宜的に直線回帰によって見積もると日当たり0.071mg/Lとなった。同様にB地点の増加率を見積もると0.077mg/Lとほぼ一致していた。ここで、酸素供給により反応する硫化水素量を推定する。硫化水素の酸化反応<sup>9)</sup>から硫化水素と酸素分子の物質量は2mol:1molである。これより反応する原子質量比を算出すると硫黄原子:酸素原



子=1.06:1となる。ここで水質分析による結果から硫化水素は硫黄原子換算、DOは酸素原子換算の質量濃度である。これより同一体積内の反応を考慮するとほぼ同質量が反応して硫化水素が酸化され、DOが消費されることになる。B地点で供給される水塊は吐出DOが40~50 mg/L(平均43.6 mg/L)で、時間あたりの吐出量が120 m<sup>3</sup>/hである。B地点で連続してDOを供給し、沖合から連続して硫化水素がB地点に流入する場合には、B地点での硫化水素低下量は供給したDOとほぼ等しくなると考えられる。硫化水素の低下量は46.2 mg/Lとなり、平均吐出DOの観測結果(43.6 mg/Lの1.06倍)とほぼ一致した。この結果から、硫化水素濃度が供給DOより高い場合、供給したDOはすべて硫化水素の酸化のために消費されることがわかる。このとき原水の硫化水素濃度が経時的に増加する場合、供給DOはほぼ一定であるため、供給DOよりも硫化水素濃度が高いと、酸化後の残存する硫化水素濃度が経時的に増加する挙動となると考えられる。

次に2018年8月から2019年6月までの標高-9.0 mの変化をみる。この期間中の2018年11月から2019年1月までは故障のため装置が停止している。標高-7.5 mと同様に酸素供給による硫化水素低下を把握する。湖心での硫化水素増加率は日あたり0.080 mg/Lであった。停止期間を除いたB地点での増加率は0.079 mg/Lであり、同程度で増加していた。B地点では湖心に比べて24 mg/L低下しており、経時的には増加挙動を示した。2018年は2時間おきの間欠運転であり、供給DOのおよそ半分相当の硫化水素低下を示していた。また運転を停止すると、湖心とほぼ同程度まで、硫化水素が増加していた。

#### 4. 維持費用

これまで複数年にわたり、現地に試験プラントを建造して運用を実施した。その結果、運転費用や保守費用、管体の耐久性や点検頻度などの知見が得られた。これらの知見を以下にまとめる。

##### 4.1 使用電力

本システムは陸上で空気より酸素を濃縮して、酸素濃度92%ほどの気体を水深10 mまで圧送して、水中装置に供給している。加えて、結露や凍結、過熱対策として、陸上装置には空調機器を併設している。このため、酸素濃縮器やコンプレッサー等を電力稼働させており、運転のために電力を必要とする。本試験においては、電力のすべては電気供給会社との契約により使用している。毎月の検針結果より日当たりの使用電力量を算出し、図-8に示す。2017年9月~2018年8月までは24時間連続運転を継続しており、期間平均で1日あたり516 kWを使用していた。2018年9月以降は2時間おきの間欠運転では期間平均で1日あたり272 kWを使用していた。2018年12月~2019年1月は機器故障による運転停止となり

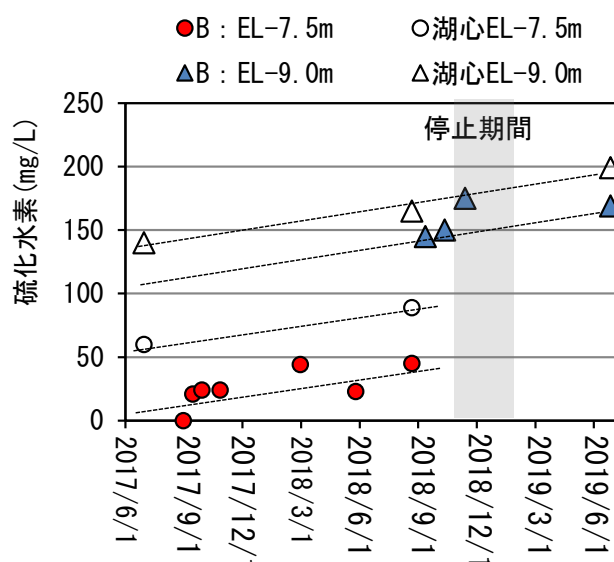


図-7 硫化水素濃度の変化

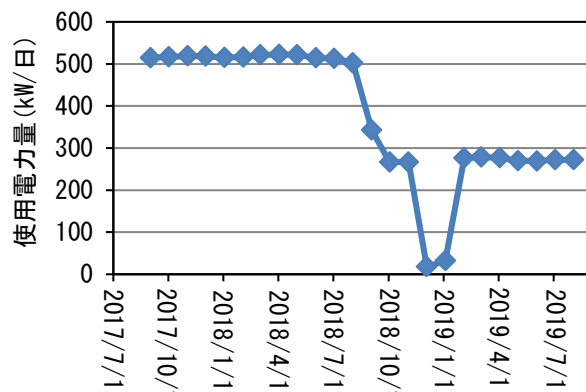


図-8 使用電力量の推移(日換算)

電力使用は極端に減少している。このときの1日あたりの電気料金は24時間運転時で11,000円、間欠運転時は6,600円であった。本試験では水深10 mに酸素圧送するためコンプレッサーは11.4 kW/hの電気容量のものを使用している。コンプレッサーを20 kW/hにすると水深18 mまで対応可能となるが、使用電力量は2倍となる。コンプレッサーを40 kW/hにすると水深37 mまで対応できるが、使用電力量は4倍となり、目標水深によって運転費用はより高額になる。

##### 4.2 水中装置維持

酸素供給を継続すると、水中硫化水素が酸化され、固体硫黄として析出する<sup>9)</sup>。このため、水中ポンプの吸水口に硫黄が固着する挙動が確認された。写真-1に2018年8月26日から2019年8月25日までの1年間(実質10カ月の間欠運転)の運転による、吸水口の状況を示す。ポンプはロータリー式のため、枝などが混入しないように保護具を装着している(右写真参照)。左の写真から明らかのように、保護具に硫黄が固着し、通水障害となっていた。原水の硫化水素濃度は標高が低いほど高濃度になっている<sup>10)</sup>、固着する硫黄量は原水の硫化水素濃度に

依存すると考えられ、2017-2018年の吸水口標高-6.8mのときよりも2018-2019年の吸水口標高-8.5mの時のほうが硫黄の固着が顕著であった。

また、塩水に金属管体を設置することから、電気防食のため亜鉛板を接合させている。写真-2に示すように約2年の設置で、2kgの亜鉛板がほぼ消失していた。管体重量から水中装置合計で8kgの亜鉛板を使用した。2年でほぼ消失していた。加えて耐久試験のため、ボルトなどを鉄、ステンレス、チタンなど様々な材質を用いて、劣化確認も行ったが、防食機能が維持されており、いずれの材質においても重大な欠損は確認されなかった。

これらの挙動から水中装置においては少なくとも2年に1度の点検、補修が必要であることが明らかとなった。水中装置の陸揚げや再設置には、用船や部材費を含めて200万円ほどの維持費が必要となる。

#### 4.3 陸上装置維持

陸上装置における消耗品は酸素精製装置やコンプレッサーの電磁弁やパッキン、フィルターなどがある。これらは年数もしくは開閉回数で交換目安が設定されている。本試験における陸上装置では2年で交換が必要となり、およそ100万円の費用が発生した。

一方で、想定外の故障による支出が発生する場合もある。2018年10月28日に装置が緊急停止し、酸素精製装置の異常警報があった。開放用電磁弁のパネが折損して弁に噛み込み、閉塞しないことが原因であったが、原因が判明して修理するまでに2カ月を要し、2019年1月29日まで酸素供給を停止することとなった。今回の故障は陸上装置であったため、比較的容易に修理が可能であったが、今後は水中装置の故障についても対応策を検討する必要がある。

#### 4.4 維持費用

これらの結果から水深10m圧送で1日12時間~24時間の運転で電気料金は年間240~400万円、また2年に1度の頻度で保守点検や部品交換で300万円が必要となる。このことから年平均として390~550万円の維持費用が発生することが確認された。この他にも想定外の支出は起こりうるが、保守点検を厳守することで、発生頻度は抑制できると思われる。

#### 4.5 課題

本試験から得られた課題を以下に示す。本システムを本試験規模の装置を新造して導入する場合には約5,000万円の初期投資が必要である。目標の水深と水量によって陸上装置のコンプレッサーおよび水中装置の水中ポンプの吐出量が決まり、必要とする電気容量によって使用電力が概算される。目標水深が深く、大量の吐出を行うほど運転費用は増大し、本試験機を基準に10m深くなるごとに運転費用は2倍となる。また、対象水塊が解放水塊で流れがある場合は本試験の装置仕様の範囲では、



写真-1 吸水口の閉塞状況  
(左：EL-9.0 mで1年稼働後、右：設置時)

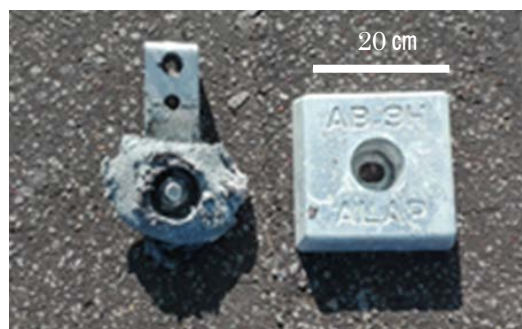


写真-2 電気防食のための亜鉛板状況  
(左：2年稼働後、右：設置時)

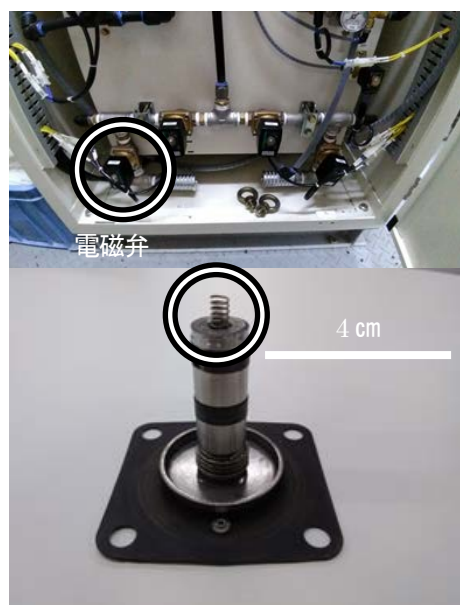


写真-3 酸素精製装置の故障箇所  
(上：装置内部、下：パネの欠損)

平均水塊流速が0.5 cm/s以上で一定方向に卓越するときは、DO供給効果は流れに沿って流下する。また流れのある場合に無害化できる硫化水素濃度は供給DOに依存して、最大でも45 mg/L程度である。冬季の観測結果<sup>11)</sup>から水塊流速が遅い場合には、DO供給効果は流出せずに吐出口から同心円に拡大し、DOも残存することを確認している。このことから、対象水塊の流況と原水の含有硫化水素濃度によって効果の発現および発現範囲が変化すると考えられる。一方で、冬季には氷によるケーブル等の損傷、陸上装置の保温が必要であることなど、低

温対策も必要となる。本稿の維持費にはこれら低温対策費用も含まれており、本仕様の陸上装置の維持費としては、ほぼ上限である。今後の課題として、未溶解の残存酸素の排気、水中ポンプの硫黄固着による吸入口の閉塞などの対策が必要となる。

これらの結果から、2019年より硫黄吸入回避のため、吸入口と吐出口の位置をはなすよう、付属装置の開発および運用実験を行っている。結果として付属装置の不具合や施工の困難さから、2019年はほとんどデータが取得出来なかった。2020年の9月に装置の稼働を確認し、現在はデータを蓄積している段階である。

## 5. まとめ

塩淡二層湖の塩水貧酸素改善のために、吐出口標高を変化させて酸素溶解装置によるDO供給を行ったときの、水質変化や維持費等の運用費用の算出を行った。本研究により得られた成果を以下にまとめる。

○標高が低い(水深が深い)ほど、硫化水素の酸化痕跡が残存し、210,000m<sup>2</sup>(300m×700m)の範囲に影響が確認された。

○硫化水素の低下量は、供給酸素濃度と運転時間および水塊移動速度に依存する。

○水深10m対応の酸素供給装置の維持費用は年間390～550万円が必要となる。

以上の結果から、平均水塊速度が0.5cm/s以上であり、原水の硫化水素濃度が45mg/L以上ならば、一台の運用では硫化水素の完全酸化は困難であることが示唆された。結水下の結果や維持費用を鑑みても隔離水塊等の流速が遅く、有限容量の改善手法とするほうが、効果の確認と改善達成までの期間の面で有利と考えられる。本機の最大の特徴は標高選択的な高濃度DO供給である。硫化水素を含む塩水水塊においては、酸素供給能力は高いがライフサイクルコストは改善の余地がある。漁業や景観、水生生物を維持するための、硫化水素や無酸素被害の緊急対策が必要な場合や維持費を上回る便益のある場合には解放水塊での導入も検討されるが、その場合でも目標とする改善範囲が本結果以上の場合には、運転期間の長期化もしくは複数台のシステムが必要であることが推察された。

また、副生成物の付着を回避もしくは低減することで、維持費用の圧縮や水質改善効率の上昇が見込まれる。2021年度には付属装置の効果を確認する予定であり、副生成物自体の回収技術については次期中長期計画において検討を行う予定である。

## 参考文献

- 1) 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.
- 2) 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.
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) Singleton, V.L., Little, J.C.:Designing Hypolimnetic Aeration and Oxygenation Systems-A Review, Environ.Sci.Technol., Vol.40, pp.7512-7520, 2006.
- 8) 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.
- 9) 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, III\_351-III\_356、2017.
- 10) 杉原幸樹、増木新吾、菅原庄吾、新目竜一：汽水湖の底層貧酸素改善に関する現地試験、土木学会論文集 G(環境)、Vol. 74, No. 7, III\_35-III\_41、2018.
- 11) 杉原幸樹、増木新吾、菅原庄吾、村山雅昭：酸素溶解装置の結水期を含む連続運用による汽水湖の貧酸素改善の検証、土木学会論文集 G(環境)、Vol. 75, No. 7, III\_299-III\_307、2019.
- 12) 杉原幸樹、平井康幸：塩淡境界を持つ汽水湖の結水下の水質挙動、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 72, No. 4, pp. I\_655-I\_660、2016
- 13) 杉原幸樹、新目竜一：2016年北海道豪雨時および2017年融雪期の網走湖における塩水挙動の現地観測、土木学会論文集 B1(水工学)、Vol. 74, No. 5, pp. I\_499-I\_504、2018
- 14) 菅原庄吾、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.

### 13.3.2 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、猪股広典、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：山下洋正、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。令和2年度は、気候変動影響下におけるダム貯水池の濁質の変化傾向について解析した。さらに、得られた結果に対して、濁水対策に関する貯水池流動シミュレーションを実施し、その効果を評価した。結果として、将来気候においては現在気候と比較して濁水がより長期化することを示した。また、流動制御フェンス、選択取水による濁水放流、清水バイパスといった対策について濁水長期化に対する効果を評価した結果、期待される効果が最も高い対策は清水バイパスであることを示した。

キーワード：地球温暖化、湖沼・ダム貯水池、水質変動予測モデル、濁水長期化

#### 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。将来発生する可能性がある貯水池水質悪化に対して適切に対策するためには、気候変動が貯水池の水質に与える影響を定量的に評価するとともに、水質が悪化すると予測される場合においては対策の効果を評価することが重要である。

以上の背景を踏まえ本研究では最初に、流出計算モデルを用いて、流域から貯水池に流入する栄養塩、SSなどの負荷量算出の高度化を行った後に、貯水池内流動モデルの高度化、簡略化について検討を行った。次

に流出計算モデル及び貯水池流動モデルを用いて気候変動下における貯水池の富栄養化及び底層貧酸素化の予測並びにそれらの対策について検討を行った。

令和2年度は、仮想的なダム貯水池を対象として気候変動が濁水長期化に与える影響及び各種対策により得られる効果について検討を行った。

#### 2. ダム貯水池のSSに関する将来予測計算手法

ここでは、次の流れによりダム貯水池のSSについて将来予測計算を実施した。最初に、仮想的なダム貯水池を対象として、ダム貯水池への将来気候における流入量を流出計算モデルと気候変動予測データを用いて計算する。得られた流入量からダム貯水池に流入するSSの負荷量を算出した後、得られた値を貯水池流動モデルに入力することで濁水長期化について計算する。

##### 2.1 計算対象ダム

御所ダム貯水池の横断形状を台形型に簡素化し、総貯水容量を120,000,000 m<sup>3</sup>に調整した仮想的なダムを対象とする。ダム貯水池の形状としては上述の通り仮想的な形状とするが、ダムの位置、流域面積、流入河川をはじめとした各種条件については御所ダムの条件を用いた。

##### 2.2 温暖化予測データ



本検討において用いる温暖化予測データは、環境省の地域気候変動予測データ（協力：気象庁）<sup>4)</sup>に含まれる、現在気候 1 ケース（ケース名：HPA\_m02、計算対象期間：1984/09/01-2004/08/31）、将来気候 3 ケース（ケース名：RCP4.5\_c1, RCP6.0\_c1, RCP8.5\_c1、計算対象期間：2080/09/01-2100/08/31）の 4 ケースを用いることとした。

### 2. 3 流出計算モデル

降雨からダム貯水池への流入量を計算するための流出計算モデルとして、分布型流出モデルである WEP (Water and Energy transfer Process) モデルを用いた。WEP モデルは、土木研究所において開発された流域スケールで水・エネルギー量の解析を行う計算モデルであり<sup>5)</sup>、融雪量を計算するための改良を行った。気候変動予測データを WEP モデルに入力して計算する前に、御所ダム流域における過去の実績雨量を WEP モデルに入力し、得られた計算結果と実績流入量を比較し、計算結果と御所ダムの実績流入量が整合するように WEP モデルのパラメータを調整した。

### 2. 4 貯水池流動モデル

使用した貯水池流動モデルは、流れの場（濁水の流動等）を解析する水理モデルと富栄養化現象を含む生態系モデルの両方を計算可能な鉛直 2 次元モデルである。モデルの概要を表-1 に示す。本モデルを用いることで、ダム貯水池の流動、水温による成層流、濁水の流動、表-1 に示す各水質項目の変化、放流水質を計算することができる。選択取水設備からの放流については、流入水温と同じ水温の高さから取水することとし、流入水温と同じ水温が存在しない場合は表層から取水することとした。

### 2. 5 流入 SS 濃度の設定方法

流入 SS 濃度は、LQ 式により算出する。全国のダムの流入 SS 濃度の情報等を参考に、LQ 式を基に計算した年間総 SS 流入量を年間総流入量で割った値が 75 mg/l となるようパラメータを定め、以下の LQ 式を定めた。

比流量が 0.1 より小さい場合：

$$SS \text{ 負荷量 (g/s/km}^2) = 11.3q^{1.1} \quad \text{式(1)}$$

比流量が 0.1 以上の場合：

$$SS \text{ 負荷量 (g/s/km}^2) = 987q^3 \quad \text{式(2)}$$

ここで、q：比流量 (m<sup>3</sup>/s/km<sup>2</sup>)

### 2. 6 コンジットゲートの位置

洪水時における濁質の放流量によって、洪水後の貯水池内での SS 濃度が変化することが考えられる。特に大規模な洪水が発生する場合においては、濁質はダ

表-1 使用する貯水池流動モデル

モデル	項目	内容
水理モデル	モデル	鉛直 2 次元モデル
	予測項目	貯水池内の流速・水温・SS 放流水の水温・SS
生態系モデル	予測項目	以下の貯水池水質及び放流水質
		<ul style="list-style-type: none"> <li>• 植物プランクトン</li> <li>• 動物プランクトン</li> <li>• 懸濁態有機炭素</li> <li>• 懸濁態有機リン</li> <li>• 懸濁態有機窒素</li> <li>• 溶存態有機炭素</li> <li>• 溶存態有機リン</li> <li>• 溶存態有機窒素</li> <li>• リン酸塩</li> <li>• アンモニア性窒素</li> <li>• 亜硝酸性窒素</li> <li>• 硝酸性窒素</li> <li>• 溶存酸素</li> <li>• COD</li> </ul>
予測可能な現象		<ul style="list-style-type: none"> <li>• ダム貯水池の縦断的な流動</li> <li>• 水温による成層流</li> <li>• 濁水の流動</li> <li>• 各水質項目の変化</li> <li>• 放流水質</li> </ul>

ム貯水池の下層に侵入することが考えられるため、洪水時に大きい放流量で放流を行うコンジットゲートの位置が下層に位置していると効率的に濁質を洪水時に放流できることが考えられる。このように、コンジットゲートの位置が濁水長期化に影響を及ぼすことが考えられるため、ここではコンジットゲートが下層に設置されている場合及び表層に設置されている場合について計算を実施した。ここで表層の条件では、洪水貯留準備水位から-0.5 m の位置にコンジットゲートを設定し、下層の条件では常時満水位から堤体直上流の河床標高の間の 3 割の水深の位置（洪水貯留準備水位から-21.0 m）にコンジットゲートを設定した。

## 3. 将来予測計算結果

### 3. 1 流入 SS 濃度の将来予測計算結果

図-1 は、流出計算モデルに対して 2.2 で述べた温暖

化予測データを入力することで流入量を算出し、得られた流入量から 2.5 で示した LQ 式を用いて計算した流入 SS 濃度の将来予測計算結果である。図-1 に示す各ケースの棒グラフは下記の式(3)、エラーバーの上限及び下限は下記の式(4)、(5)で計算された値を示す。将来気候については、いずれのシナリオにおいても流入 SS 濃度が現在気候と比較して増加することが示された。

$$Q_{s\_ave}(m) = \left( \left( \sum_{y=1}^{20} Q_s(y, m) \right) / 20 \right) \quad \text{式(3)}$$

$$Q_{s\_max} = \max\{Q_{s\_ave}(1), Q_{s\_ave}(2), \dots, Q_{s\_ave}(12)\} \quad \text{式(4)}$$

$$Q_{s\_min} = \min\{Q_{s\_ave}(1), Q_{s\_ave}(2), \dots, Q_{s\_ave}(12)\} \quad \text{式(5)}$$

ここで、 $y$  : 年、 $m$  : 月、 $Q_s(y, m)$  :  $y$ 年 $m$ 月における流入 SS 濃度の平均値(mg/l)、 $Q_{s\_ave}(m)$  :  $m$ 月における流入 SS 濃度の 20 年間平均値(mg/l)、 $Q_{s\_max}$  : 月毎の流入 SS 濃度の 20 年間平均値の最大値(mg/l)、 $Q_{s\_min}$  : 月毎の流入 SS 濃度の 20 年間平均値の最小値(mg/l)

### 3. 2 放流 SS 濃度の将来予測計算結果

また図-2 に、放流水の SS 濃度の計算結果について放流水の SS 濃度が 25 mg/l を超過する日数をシナリオ毎、コンジットゲートの位置毎に整理して示す。将来気候においては、RCP4.5\_c1 の場合は現在気候と比較して大きく変化しないものの、RCP6.0\_c1 及び RCP8.5\_c1 については、現在気候よりも放流水の SS 濃度が 25 mg/l を超過する日数が増加することが示された。また併せて、コンジットゲートが表層に位置するよりも、下層に位置する場合の方が、放流水の SS 濃度が 25 mg/l を超過する日数が低下することがいずれのケースについても示された。

図-3 に貯水池への流入量、コンジットゲートの位置別に、貯水池下層における SS 濃度のシミュレーションを実施した結果の一部を示す。この図から、コンジットゲートが下層に位置する場合、コンジットゲートが上層に位置する場合と比較して出水中は SS 濃度が高いものの SS 濃度の低下が速いことが分かる。この要因は以下のように考えらえる。一般的に濁質は洪水時において貯水池の下層に流入し、コンジットゲートが下層に位置する場合、洪水時においては多くの濁質が下層にあるコンジットゲートに引き込まれるため下層の SS 濃度が高くなる。それに対しコンジットゲートが表層に位置する場合、下層に流入する濁質を洪水中に効率的に放流できないため、コンジットゲ

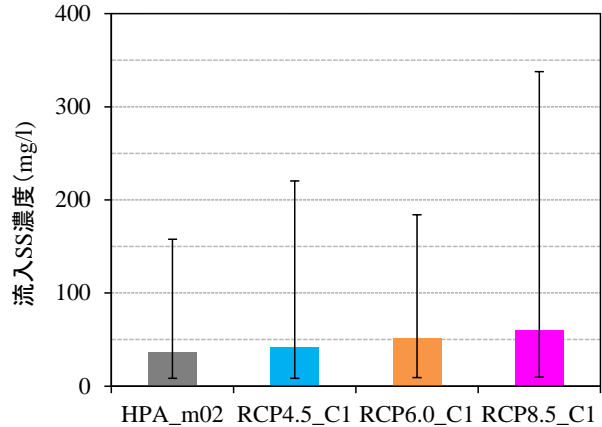


図-1 流入 SS 濃度の計算結果

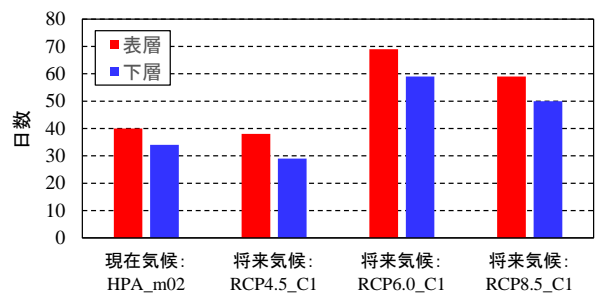


図-2 放流水の SS 濃度が 25 mg/l を超過する日数(年平均)

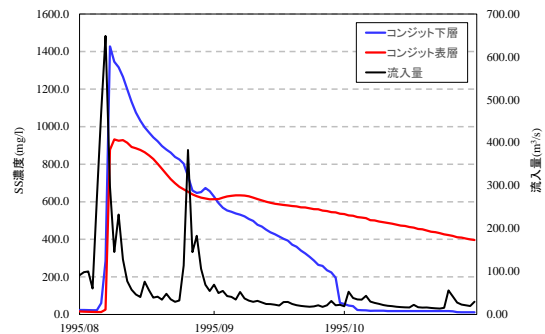


図-3 コンジットゲートの位置別の貯水池下層における SS 濃度

トが下層に位置する場合と比較して洪水中の SS 濃度は低いものの、洪水後濁質が長期間貯水池内に留まり、SS 濃度の減衰が緩やかになると考えられた。

## 4. 対策に関するシミュレーション

### 4. 1 対策

ここでは濁水対策として一般的に用いられている手法及びその組み合わせにより下記 5 種類の対策効果について検討を行うこととした。各対策の検討概要を



下記に示す。

1) 流動制御フェンス

ダム堤体より上流に、深さ 5 m のフェンスを設置する。設置位置は、貯水位が洪水貯留準備水位にある時の貯水池の縦断距離に対して 2/3 を乗じた距離をダム堤体から離れた位置とする。

2) 選択取水による濁水早期放流

3.におけるシミュレーションで得られた SS 濃度の鉛直分布を確認したところ、水深 5~10 m 程度の位置に SS 濃度のピークが見られることから、水深 5 m 地点で選択取水を行う。実施期間は、出水時~1 週間後まで及び出水時~2 週間後までの 2 通りとする。

3) 流動制御フェンス+選択取水

1)及び 2)を組み合わせる。選択取水の実施期間は 2 週間とした。

4) 清水バイパス

清水バイパスは、ダム貯水池に流入する前の SS 濃度が低い水をダム貯水池に流入させずにダム下流に迂回させる手法である。これまで実施されている清水バイパスの運用実績等を参考に、バイパス放流量を 12.0 m<sup>3</sup>/s 及び 35.0 m<sup>3</sup>/s の 2 通りについて検討する。出水時にはダム流入水の SS 濃度が上昇して希釈効果が得られないため、出水時以外の期間において運用されるものとした。具体的には、ダム貯水池の流入 SS 濃度が 25.0 mg/l 以下の際に運用されるものとした。

4. 2 対策に関するシミュレーション結果

図-4 及び図-5 に、4.1 で挙げた対策を実施した際の放流水における SS 濃度別年平均放流日数を示す。図-4 は、コンジットゲートが表層、図-5 はコンジットゲートが下層に位置している場合の結果であり、両図ともに流入 SS 濃度が 25 mg/l を超過している日については除外して整理している。図-4 及び図-5 を比較すると、どの対策を実施した場合においても、図-4 に示したコンジットゲートが表層に位置する場合よりも、図-5 に示したコンジットゲートが下層に位置する場合の方が値は小さくなった。これは、前節で述べた通り、コンジットゲートが下層に設置されている場合のほうが洪水時に効率的に濁質を排出できるからと考えられる。また、フェンスや選択取水については、無対策の場合と比較してそれほど大きな効果は得られなかった。その理由としては、フェンスは上層に侵入した濁質を下層に誘導する効果を有するが、下層に侵入してきた濁質に対しては効果が出にくいためである。また選択取水については、放流量が小さいため、濁質を排出する効果が小さいものと考えられる。選択

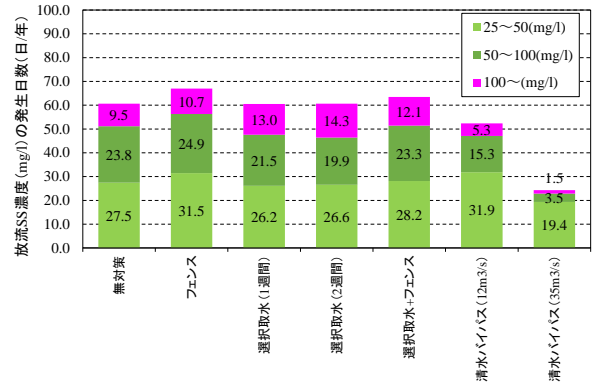


図-4 放流水における SS 濃度別年平均放流日数 (コンジットゲート：表層)

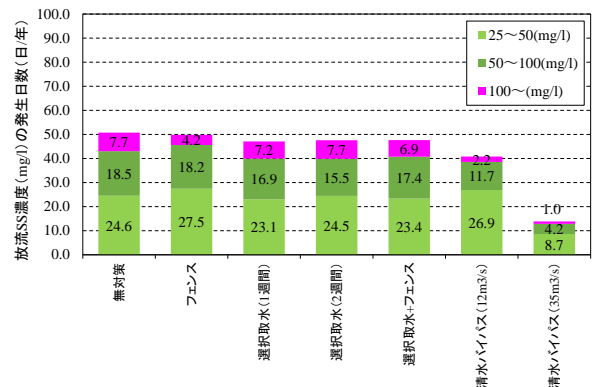


図-5 放流水における SS 濃度別年平均放流日数 (コンジットゲート：下層)

取水とフェンスを合わせた対策についても大きな効果は得られなかった。その一方で清水バイパスは、その他の対策と比較して効果が大きく、コンジットゲートの位置について表層、下層を問わずに効果が得られている。ただし、コンジットゲートが下層に位置している場合の方が、表層に位置している場合と比較して放流水の SS 濃度は低くなっている。

5. まとめ

令和 2 年度は、気候変動に伴う、ダム貯水池における濁質の変化傾向について解析した。さらに、得られた結果に対して、複数の濁水対策を考慮したシミュレーションを実施し、その効果を評価した。結果として、将来気候においては現在気候と比較して濁水がより長期化することを示した。また、流動制御フェンス、選択取水による濁水放流、清水バイパスといった対策について濁水長期化に対する効果を評価した結果、清水バイパスが最も効果が高いことを示した。

**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（2020 年 3 月参照）
- 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（2020 年 3 月参照）
- 4) 気象研究所：気象研究所技術報告、第 73 号、[https://www.mri-jma.go.jp/Publish/Technical/DATA/VOL\\_73/07.pdf](https://www.mri-jma.go.jp/Publish/Technical/DATA/VOL_73/07.pdf)、2015（2021 年 3 月参照）
- 5) Jia Y, Kawahara Y, Suetugi T: Development of WEP model and its application to an urban watershed, Hydrological Processes 15, 2175-2194, 2001.