

◆ 報 文 ◆

河川水質分布からみた再生水の評価

原田 新* 中田典秀** 鈴木 穰***

1. はじめに

近年、日本の大都市においては、必要な水の確保をその都市域外の流域に依存するなど、その水源の開発に伴い水循環系に少なからず影響を与えている¹⁾。このため、従来の使い捨て型の用排水システムに加えて、再利用型の用排水システムを都市の水利用システムの中に位置付け²⁾、下水処理水や雨水などを高度処理や地下浸透等の付加的な処理によって再生し、都市の自己水源として利用することが健全な水循環系の構築において重要であると考えられる。

これらの再生水の利用を推進するためには、水利用の視点から再生水の水質リスクをどこまで許容できるかについて検討することが重要である。しかし、指標として物質濃度の数値を単独で示されても、その値の持つ意味を理解することは一部の専門家以外には困難である。そのため、使用に適した水質かどうかを利用目的に応じて判断し選択するためには、幅広い視点から評価するためのわかりやすい「物差し」を用意する必要がある。

そこで、本報告では実際に身近に存在する河川水と再利用しようとする水との質的な比較から、再生水が水質からみて河川水質分布のどこに位置するかを示すことで、一般の人にもイメージしやすい相対的な評価基準（物差し）を提示することを目的とした。

なお本研究は、(独)科学技術振興機構の戦略的創造研究推進事業 [Core Research for Evolutional Science and Technology : CREST] における研究領域「水の循環系モデリングと利用システム」の中の研究課題「リスク管理型都市水循環系の構造と機能の定量化」として、大学や民間企業と共同研究で実施しているものである。

2. 研究方針

まず様々な用途に利用され、市民にも身近である河川の水質について全国的な調査を行い、河川の水質分布を再生水の水質評価のための相対的な基準の基礎データとすることを目指した。

また、微量化学物質等の分析や生物試験については時間的・コスト的制約があることから、分析できる数に限界があるため、国土交通省によって直接管理されている一級河川（以後直轄河川）の中から、調査対象河川の選定を行った。

次いで、これらのデータを基準とした河川水質分布において、評価対象となる再生水が相対的にどこに位置するのかについて検討を行った。

3. 研究方法

3.1 全国データの整理

3.1.1 一般水質項目

直轄河川における水質は、水質環境基準の項目であるBOD₅（以後BOD）等を対象に環境基準点において定期的に測定がなされ、結果がまとめられている。これらの測定項目の中で、特にBOD、総窒素（T-N）、総リン（T-P）のデータは、全ての直轄河川においてデータが充実しており、全国的なデータとして整理が可能である。そこで、これらの水質項目について109の直轄河川で国土交通省が2002年に毎月実施した調査³⁾の結果を年平均値として整理した。

3.1.2 エストロゲン様活性^(注1)

微量化学物質に関する項目としては、いわゆる環境ホルモン類に関連する指標として、エストロゲン様活性を取りあげた。エストロゲン様活性の

(注1)環境試料中に含まれる化学物質に起因する雌性ホルモン（エストロゲン）作用を、ヒトのエストロゲン受容体を組み込んだ遺伝子組み換え酵母により測定した活性値。環境ホルモン類に起因する生物影響のうち、エストロゲンの作用に関連する生物応答の総和の指標となる。環境試料中から検出される活性は、人畜由来のエストロゲンと、人工化学物質の両方に起因する。

データは、国土交通省が2001年に95の直轄河川で実施した調査⁴⁾のうち湖沼等を除く順流部で調査された93河川のデータを整理した。

3.1.3 流域情報

調査対象河川の選定に用いる情報として、流域面積⁵⁾についての整理を行った。

3.2 調査対象河川の選定

日本の河川についての代表性を検討する際には、それぞれの河川の特性を考慮する必要がある。そこで、日本の河川は地域ごとに配置されている9つの地方整備局によって管理されていることから、これらの地方整備局の管轄河川からそれぞれ代表を選ぶことで、全国の地理的条件を概ね網羅できるものと考えられる。

ところで、流域に存在する人為的な汚濁負荷量は流域面積が大きいくほど多くなると考えられるが、同時に河川流量も多くなるため、水質としては流域面積に関わらず均等になるといえる。しかし、極度に集中した都市域の場合、汚濁負荷量も通常の分布と比べて極端に大きくなることが想定され、特に大都市は利根川流域の首都圏や淀川流域の近畿圏のように、流域面積の大きな河川の流域に存在していることが多い。従って、流域面積の大小によって、水質汚濁の程度も変化すると考えられる。

そこで、9つの地方整備局から選定する河川は、流域面積を指標として指標値に偏りがないようにそれぞれ4河川を選定し、2河川ずつに分けて2ヶ年で調査することとした。

また、選定された各河川での採水地点としては、①国土交通省による定期調査結果を利用することで、一般的な水質項目の値を把握することのできる環境基準点、②潮汐の影響を受けない順流部、③流域全体の負荷を幅広く含む、という視点から各河川の順流部最下流の一地点を選定した。

3.3 選定河川の調査と妥当性の検討

調査は、降雨が少なく流量が安定して、極端な水質変動の生じることが少ないと考えられる冬期に、選定した各河川において1回行うこととした。河川水の採取は河川事務所の協力を得て2004年11月～12月の定期水質調査と同時にを行った。

採取した水について、全国データとの比較のためにBOD、T-N、T-P、及び全国データを得にくい項目の例としてアンモニア態窒素 (NH₄-N)、全

有機炭素 (TOC)、亜鉛 (Zn)、また前述したように微量物質の例としてエストロゲン様活性について分析を行った。T-N、NH₄-N及びT-Pについては、オートアナライザー (Bran Lubbe社、TRAACS800) を用いて分析を行った。また、TOCの分析については自動分析計 (SHIMADZU社、TOC-5000A) で測定を行った。亜鉛の分析についてはICP-MS (Agilent社、4500) を用いて測定した。また、エストロゲン様活性の測定は中田らの方法⁶⁾ に従い、ヒトのエストロゲン受容体が組み込まれた遺伝子組み換え酵母 (Sumpter株) を用いて行った。なお、BODについては、河川事務所による定期水質調査結果の提供を受けた。

得られた結果を水質項目ごとに非超過率として整理した。この非超過率のグラフを用いて、過去の国土交通省のデータをもととした全国河川における水質分布と、選定した河川の水質分布との間で濃度の分布に違いがあるかどうかを比較し、選定の妥当性を検討した。

3.4 評価対象とする再生水と水質分析

都市域においては下水処理水が大量に発生するが、基本的には河川または海域に放流され、再利用される割合は1.5%程度⁷⁾ と僅かである。また、その用途も多くの場合修景用水などに限られている¹¹⁾。そこで、再生水として一定の水量を現実的に確保できる可能性が高いことから、下水処理場において様々な方法で処理された処理水と、二次処理水を土壤浸透処理した水を対象とした。

3.4.1 下水処理工程における試料

下水処理工程における試料は、A下水処理場の各処理段階から採取した水を用いた。対象とした試料は、流入下水、二次処理水、砂ろ過水、オゾン処理水の4種とし、サンプリングは2003年7月と11月、2004年の6月に実施した。分析項目としてはエストロゲン様活性のみを測定し、有機物等の基本的な項目については必要に応じて処理場の水質管理データを用いることとした。

3.4.2 土壤浸透処理による試料

下水処理水を地下浸透させることを想定して土壤カラム実験を行った。この実験では土壤浸透処理水として、B下水処理場の二次処理水を土壤を詰めたカラムに通過させた。実験の手順はNakadaraの報告⁸⁾ に示された通りであり、実験方法の概略を図-1に示す。実験に用いた土壤は東京都内

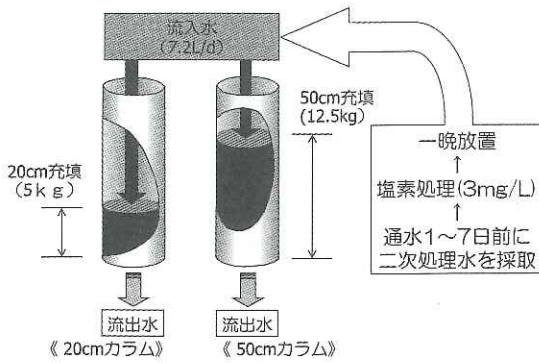


図-1 土壌浸透処理実験模式図

表-1 調査対象河川一覧

地整名	調査年度	河川名	流域面積 (km ²)	地整名	調査年度	河川名	流域面積 (km ²)
北海道	16	留萌川	270	近畿	16	北川	211
	17	沙流川	1,350		17	大和川	1,300
	17	常呂川	1,930		17	由良川	1,880
東北	16	石狩川	14,330	中国	16	淀川	8,240
	16	赤川	857		16	小瀬川	340
	17	鳴瀬川	1,130		17	芦田川	870
	17	米代川	4,100		17	旭川	1,810
関東	16	北上川	10,150	四国	16	江の川	3,900
	16	鶴見川	235		16	土器川	140
	17	久慈川	1,490		17	物部川	508
	17	那珂川	3,270		17	仁淀川	1,560
北陸	16	利根川	16,840	九州	16	吉野川	3,750
	16	梯川	271		16	本明川	87
	17	黒部川	682		17	肝属川	485
	17	荒川	1,150		17	大野川	1,465
中部	16	信濃川	11,900	16	筑後川	2,863	
	16	菊川	158				
	17	安倍川	567				
	17	庄内川	1,010				
	16	木曾川	9,100				

の公園で90～120cmの深さから採取したものである。この深度は関東ローム層（立川・武蔵野ローム）にあたり、化学的性状としては、以下の通りであった。土壌pH：6.1、灼熱減量：14.8%、全有機炭素量：18mg/g、全窒素：1.3mg/g、全リン：0.40mg/g。また、土壌粒径は、最大粒径：2mm、50%粒径：0.0734mmであった。

直径200mmのステンレス製カラムに上記の土壌を充填し、土壌層の厚さは20cmと50cmの2種類を設定した。実験は80日間連続して通水を行い、実験期間中に水質分析用試料のサンプリングを11回行った。

土壌浸透処理された試料の水質分析結果について、選定した河川の調査結果から得られた各水質値の分布と比較した。比較する水質項目としては、BODと同様の有機汚濁の指標としてTOCを、また、富栄養化に関わる項目として河川においても高頻度で調査されているT-N、T-Pに加えて条件によって生物毒性を示すNH₄-Nを対象とした。加えて、微量物質としてエストロゲン様活性及び全亜鉛についても対象とした。なお、ここで比較対象とした水質項目に関する土壌浸透処理後の濃度は、実験初期から終了時まで大きな変動がみられなかったことから、比較する数値としては全実験期間のデータをもとにした平均値を用いた。

4. 結果と考察

4.1 河川の選定

指標とする流域面積の数値が偏らず分散するように、これらの指標を数値順に並べ、最大の河川と最小の河川、及び40%順位の河川と70%順位の河川の合計4河川を各地方整備局が管轄する河川から抽出した。選定した結果を表-1と図-2に示す。

なお本報告では、分析及び結果の整理が完了した平成16年度の調査結果（18河川分）について報告する。対象となった河川は、各地方整備局管轄内河川から、流域面積が最大および最小のものとして抽出された18河川である。

4.2 全国河川と選定河川の比較

全国の河川におけるBOD、T-N、T-P（109河川分）、エストロゲン様活性（93河川分）についての既存データに基づく非超過率、及び選定された河川を対象に本調査において分析したデータ

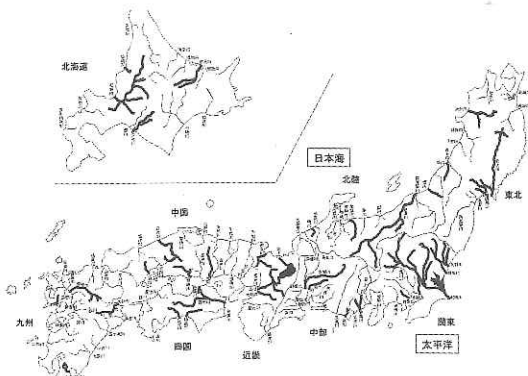


図-2 調査対象河川位置図

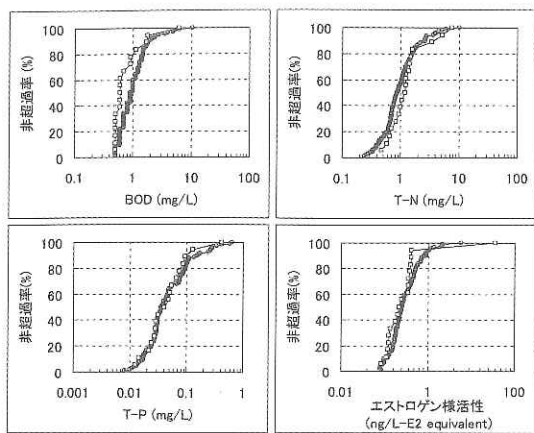


図-3 選定河川と全国河川の水質分布比較

(18河川分)を整理して比較を行った(図-3)。この結果、全国河川における各水質項目の濃度範囲は、BODはN.D.~10(mg/L)であり、T-Nは0.2~10(mg/L)、T-Pは0.01~0.6(mg/L)、エストロゲン様活性はN.D.~6(ng/L-E2 equivalent)(注2であった。また、選定された河川の濃度分布も、全国河川の分布とほぼ同じ傾向を示した。

なお、BODでは全国河川の水質分布と選択河川の水質分布で若干のズレが生じている部分もあるが、BODの1mg/L以下の値は分析手法上精度が下がる濃度範囲であり、ここでみられるズレもこの濃度域であることから誤差範囲と認められる。

このことから、ここで選定した河川を対象とした場合、少ない地点数で、また時期が限定された調査によっても全国の傾向を表すために必要なデータの組み合わせを得ることができたといえる。従って、全国の統一した既存データが入手しにくい他の水質項目についても、ここで選定した河川の試料を測定することで、全国のデータを基にした場合とほぼ同等の濃度分布の概要を把握することができると考えられた。

4.3 河川水質非超過率からみた再生水の位置付け

下水処理場の試料と土壌カラム実験の試料について、それぞれの水質分析値を選定河川(T-N、T-P、エストロゲン様活性については全国河川も加える)の非超過率の分布と比較した。

(注2)エストロゲン様活性は、人畜由来のエストロゲンの中で最も作用強度が高い17β-エストラジオール(E2)換算濃度として測定・表現される。

4.3.1 下水処理工程における変化

下水処理場における処理工程ごとのサンプルについてのエストロゲン様活性測定結果と河川水の水質分布との比較を図-4に示す。この結果から、処理工程が流入から二次処理、砂ろ過と進むに従って、各処理水のエストロゲン様活性が低下していく状況が確認された。特にオゾン処理後では大きく低下し、約0.2(ng/L-E2 equivalent)となった。この値は、河川水のエストロゲン様活性値の分布において、約40%に相当するものであった。従って、エストロゲン様活性については、砂ろ過処理を行っても河川水としては最も悪いレベルの水質に相当していたものが、オゾン処理を行うことで、二次処理水が代表的な河川水なみの水質にまで改善されることが示された。

4.3.2 土壌浸透処理による変化

土壌カラム実験における土壌浸透処理による各水質項目の変化について、同様の方法で河川の水質分布と比較した結果を図-5に示す。エストロゲン様活性については、土壌浸透処理前の約27(ng/L-E2 equivalent)から、0.3~0.1(ng/L-E2 equivalent)へと低下した。これは土壌浸透処理前には河川水の非超過率でみると90%以上に相当していたものが、20cmカラムで50%程度、50cmカラムでは40%前後まで低減され、その効果はオゾン処理と同程度と評価された。

また、TOCは河川水の非超過率で90%以上のレベルから、エストロゲン様活性における効果と同程度の40~50%に低下した。さらに、T-Pについては土壌浸透処理前には非超過率90%以上だったものが、処理後には通常の河川水の濃度範囲を下回るレベルにまで低減され、土壌浸透処理の有効性が示唆された。

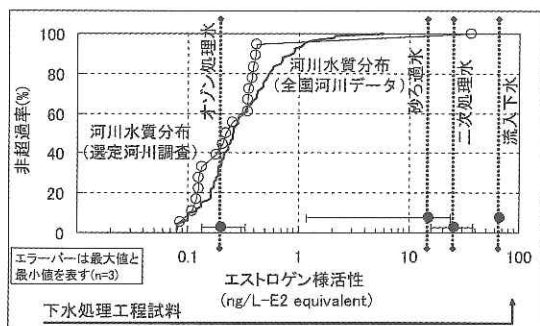
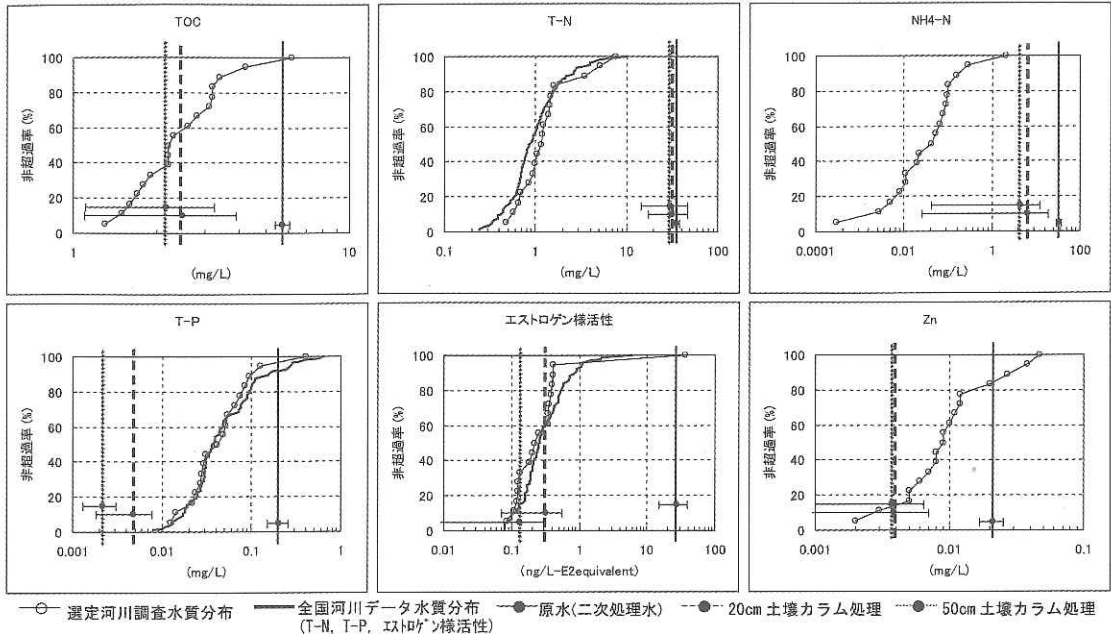


図-4 下水処理工程の水質変化と河川水質分布



注：エラーバーは80日間（11回測定）の平均と標準偏差

図-5 土壌浸透処理実験における水質分析結果と河川水質分布との比較

逆に、窒素は土壌浸透処理においてはほとんど水質レベルの改善はみられず、T-N、NH₄-Nともに河川水の水質濃度範囲を大きく上回り、土壌浸透処理後も非超過率で100%を超えていた。

一方、亜鉛については河川水の非超過率において90%弱のレベルであったものが、土壌浸透処理によって10%程度まで低減された。この時の濃度は0.003~0.004 (mg/L) であり、河川の環境基準である0.03 (mg/L) と同程度であった原水（二次処理水）について、環境基準を一桁近く下回る濃度まで低減させることができ、土壌浸透処理水は河川水の中でも低濃度のレベルに位置付けられることがわかった。

5. まとめ

以上の結果を整理すると、以下のようにまとめられる。

(1) 抽出選定した一定数の河川についての調査結果からでも、主要な水質項目に関する全国の分布を、ほぼ把握できた。このことから、微量化学物質など他の水質項目の濃度分布についても、これらの河川を調査することで全国の分布を推定することができると類推される。

(2) 一級河川では実際に水利用が行われていることから、本論文で報告した水質分布データは、安全性の判定基準がない様々なリスクについての「物差し」として適用できる可能性がある。具体的な適用先としては、下水処理水などのほか、付加的な処理や、土壌を通して地下水に涵養するなどした再生水の安全性に関する相対的評価などが考えられる。

(3) エストロゲン様活性の比較では、河川水の非超過率において90%弱のレベルであった二次処理水がオゾン処理によって40%程度まで改善された。また、二次処理水を土壌浸透処理した場合における改善効果も、オゾン処理の場合と同程度であった。

(4) 土壌カラム実験における水質分析結果と河川水質分布との比較から、再生水の原水の一つとなる二次処理水に対し、土壌浸透処理によってT-NとNH₄-Nを除く多くの項目について水質レベルを改善し、河川水における非超過率が0~50%の相対的に良好な状態にできる可能性が示された。しかし、T-NやNH₄-Nといった項目については土壌浸透処理による除去効果が低いことから、再生水処理あるいは水利

用段階での対策が必要になることが示唆された。

今後は、選定した河川における2年目の調査結果の追加や、地下水などの河川水以外の身近な環境水についても調査を行い、比較対象としての水質分布のデータを蓄積していくことを目指す。さらに、相対的な基準となる環境水や比較対象となる再生水の水質について、重金属や微量化学物質、生物試験など、他の分析項目についても同様の方法を用いて多様な物差しを作成し、再生水のリスク評価のための指標に適用することも目指している。

また、このような手法で得られた水質項目ごとの相対的な位置付けを、それぞれに重み付けを行いながら統合された評価指標としてまとめていくことが課題となる。

謝 辞

この研究テーマの共同研究者である京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センターの山下尚之講師、いであ株式会社環境創造研究所の佐藤修之氏および伊藤光明氏には対象試料の水質分析を分担して頂き、また、京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センターの田中宏明教授および東京大学大学院工学系研究科附属水環境制御研究センターの古米弘明教授には、研究のデザインや解析方法について貴重かつ重要な御助言を頂いたことをここに記し感謝の言葉とする。

さらに、河川水試料の採水及び流域情報や水質の資料提供に御協力いただいた、国土交通省並びに各地方整備局、各河川事務所に感謝の意を表す。

参考文献

- 1) 丹保憲仁：流域構成と都市水代謝、自然と共生した流域圏・都市の再生, pp.3-38、山海堂, 2005
- 2) 谷口孚幸：都市水代謝デザイン, pp.11-28、理工図書株式会社, 2002
- 3) 国土交通省河川局監修、(社)日本河川協会編：2002日本河川水質年鑑、CD-ROM、山海堂, 2004
- 4) 国土交通省河川局環境河川課資料：平成13年度水環境における内分泌攪乱化学物質に関する実態調査結果, 2002
- 5) 国交省河川局ホームページ：河川百科事典統計データ一級河川水系別延長等、<<http://www.mlit.go.jp/river/jiten/toukei/birn84p.html>>
- 6) 中田典秀、東 谷忠、宮島 潔、小森行也、鈴木 穰：下水および河川水試料に含まれるエストロゲン様物質の検索手法の検討、環境化学, Vol.16, No.3, pp.389-401, 2006
- 7) 国土交通省都市地域整備局下水道部監修：平成16年日本の下水道, 11-5. 下水道資源及び施設の有効利用, pp.137-153, 2004
- 8) N. NAKADA, N. YAMASHITA, K. MIYAJIMA, Y. SUZUKI, H. TANAKA, H. SHINOHARA, H. TAKADA, N. SATO, M. SUZUKI, M. ITO, F. NAKAJIMA and H. FURUMAI: Multiple Evaluation of Soil Aquifer Treatment for Water Reclamation using Instrumental Analysis and Bioassay, "The Second International Symposium on Southeast Asian Water Environment" held in Hanoi, 2004

原田 新*



独立行政法人土木研究所つくば
中央研究所水環境研究グループ
水質チーム専門研究員
Arata HARADA

中田典秀**



独立行政法人土木研究所つくば
中央研究所水環境研究グループ
水質チームCREST研究員
Norihide NAKADA

鈴木 穰***



独立行政法人土木研究所つくば
中央研究所水環境研究グループ
水質チーム上席研究員
Yutaka SUZUKI