

**immuno-PCR**

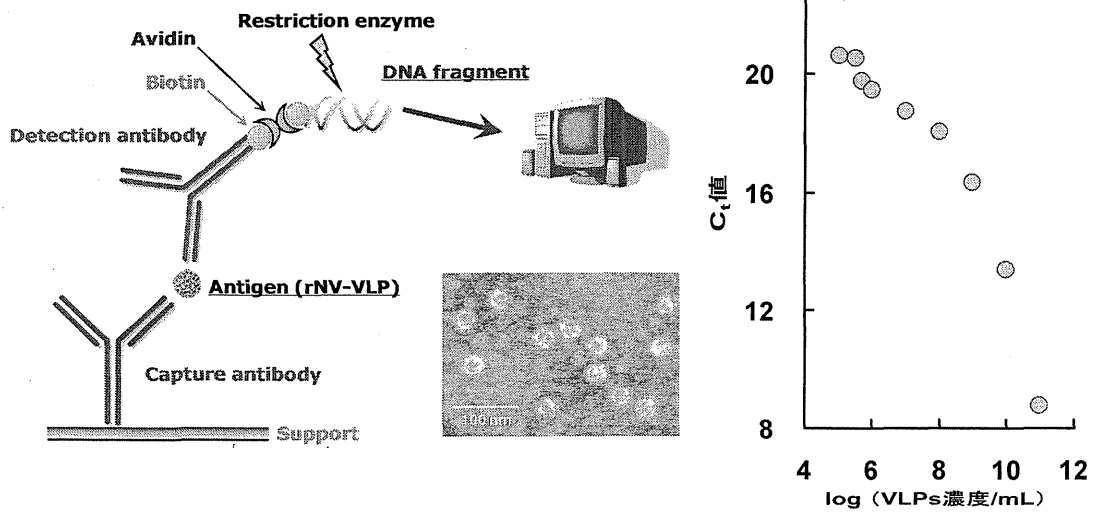


図3 immuno-PCRによるノロウイルス粒子検出法の模式図と検量線

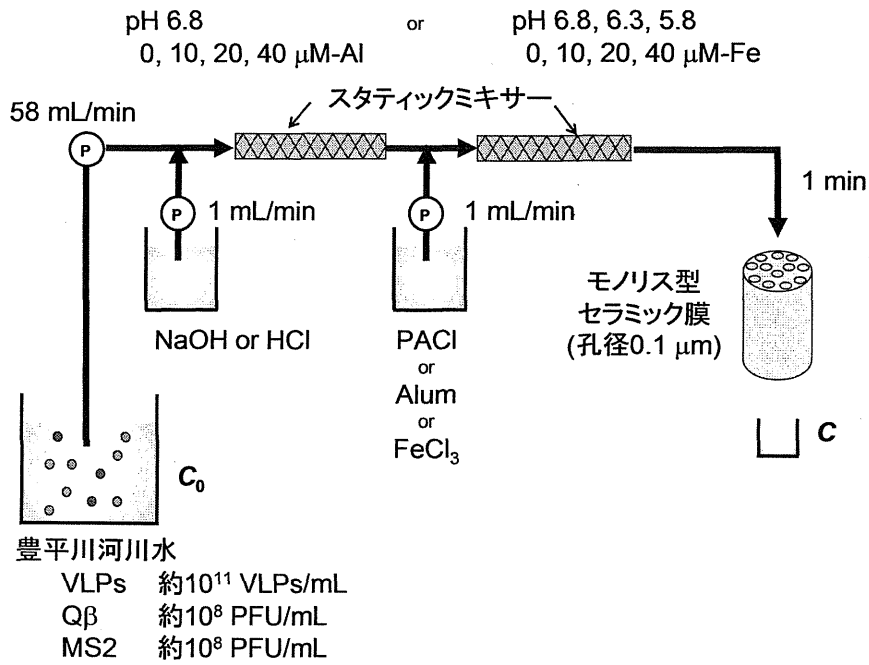


図4 凝集-MF膜ろ過処理実験の模式図

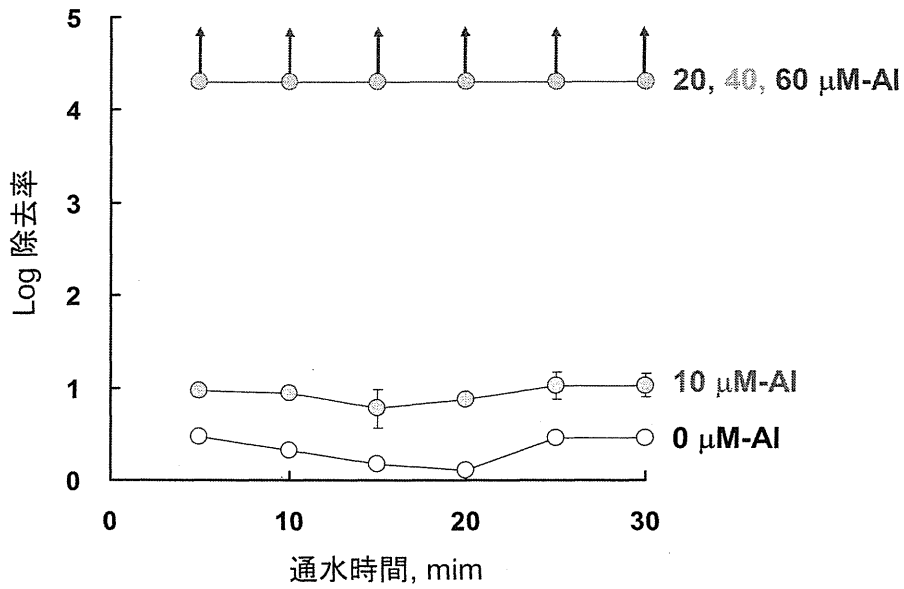


図5 PACによる凝集-MF膜ろ過によるノロウイルスVLPsの処理性

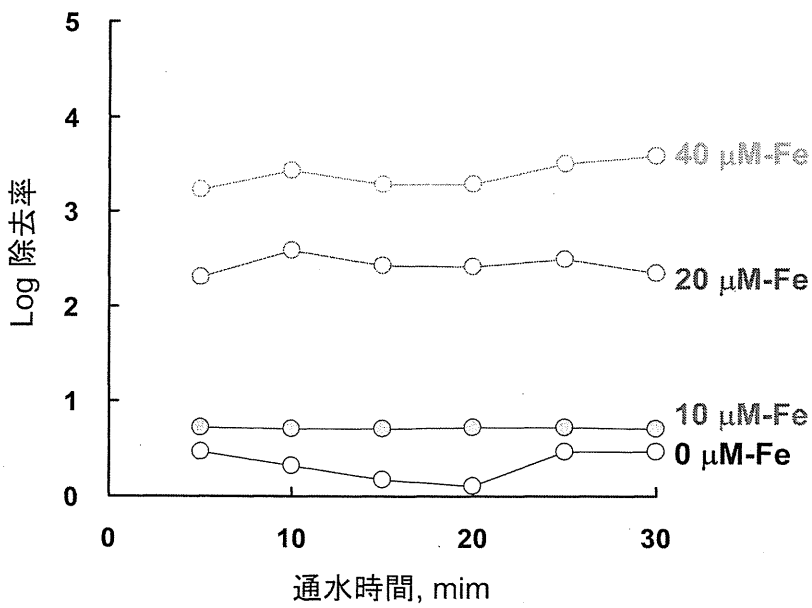


図6 鉄系凝集剤による凝集-MF膜ろ過によるノロウイルスVLPsの処理性

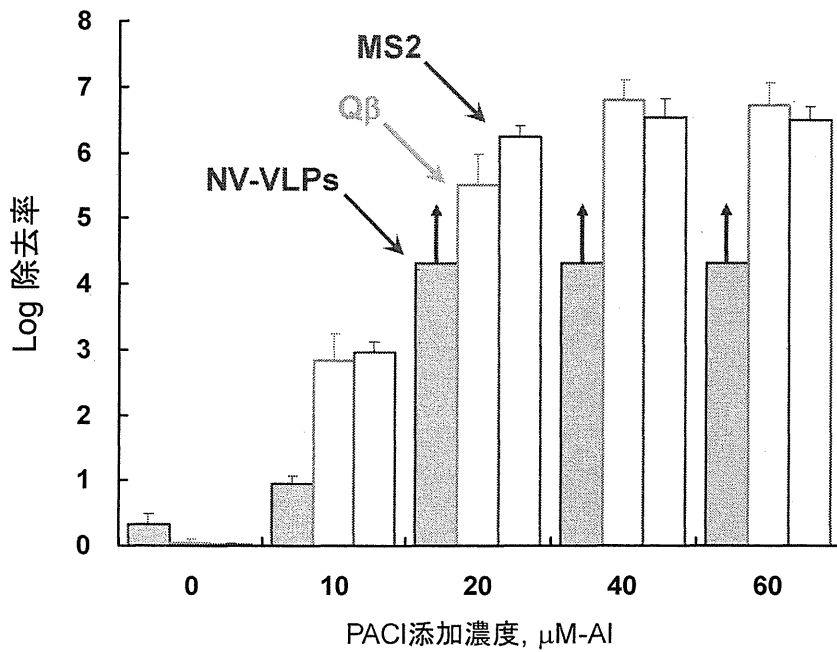


図7 PAC凝集-MF膜ろ過におけるノロウイルス VLPs (と大腸菌ファージ) の除去率

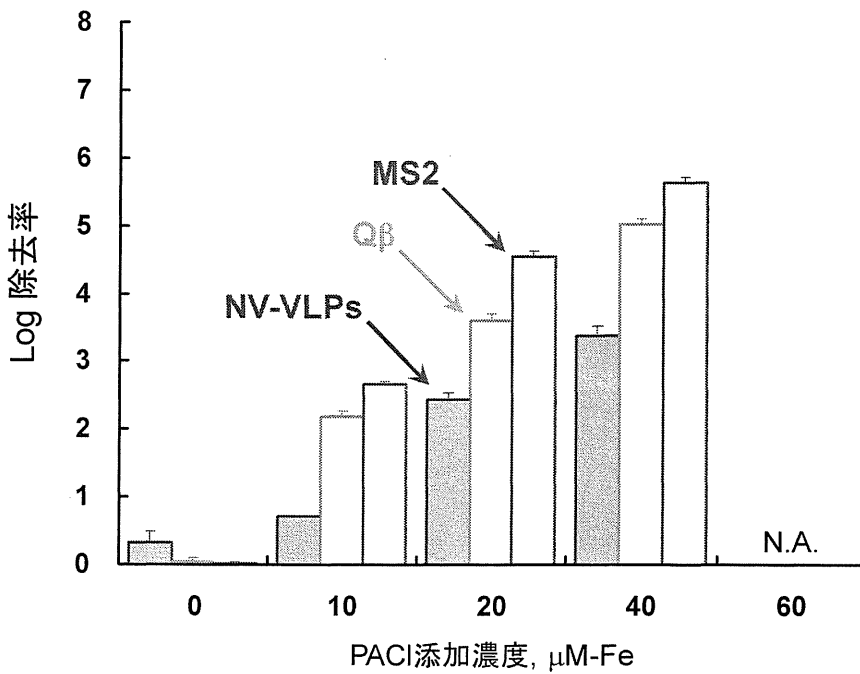


図8 鉄系凝集剤-MF膜ろ過におけるノロウイルス VLPs (と大腸菌ファージ) の除去率

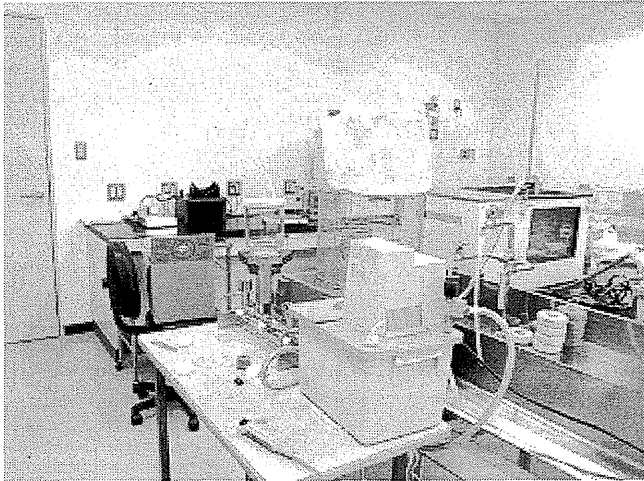


写真6 吸引ろ過による粉体ろ過法

表6 吸引ろ過による粉体ろ過法の捕捉性能評価

	捕捉性能評価(%)		
	測定値	2回実施分の 平均値	4回実施分 の平均値
粉体の脱気あり	97.7/93.4(2回実施)	95.6	93.6
粉体の脱気なし	96.2/87.0(2回実施)	91.6	

表7 吸引ろ過による粉体ろ過法の原水濁度とろ過量の関係

濁度(度)	ろ過量(L)
6	10.6
4	12.0
12	8.6

表 8 検鏡法と RT-PCR の河川表流水への添加回収比較実験

	試験方法	回収率 (%)	検出個数 (個/10L)	添加量 (個/10L)
クリプトスポリ ジウム	検鏡法	56.9	84	147.7
	qRT-PCR	79.8	117.8	
ジアルジア	検鏡法	54.6	345	631.3
	qRT-PCR	83.2	525	

表 9 実試料におけるクリプトスポリジウムの検鏡法と遺伝子検出法 (qRT-PCR) の比較

採水地点	濁度 (度)	採水日	検鏡結果 (個/10L)	qRT-PCR	
				(個/10L)	(Ct 値)
A (伏流水)	<0.1	2012.5.21	0	0	-
B (表流水)	2.6	2012.6.4	0	0	-
C (湧水)	0.1	2012.6.18	0	0	-
D (表流水)	2.7	2012.7.23	0(2)	0.083	39.3
D (表流水)	2.2	2012.9.5	2(3)	1.7	34.2
B (表流水)	4.1	2012.9.24	0	0	-

※ ( ) は、5 $\mu$ m程度でFITCの特異蛍光を発していたが、試料の状態によりオーシストであると判別できなかった粒子

表10 相模川流域原虫試験結果(*Cryptosporidium*)

地点	採水月日	検鏡結果	LAMP (Tt値)	qRT-RCR						シーケンス解析	Accession number
				2µl			5µl				
				5µl	Ct値	コピー数	想定オーシスト数(10L中)	Ct値	コピー数		
社家取水口	2012/11/2	12	32.06	30.01	3.01E+02	4	29.42	4.68E+02	3	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
	2012/11/3	4	39.06	36.87	1.80E+00	0.03	36.29	2.78E+00	0.02	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
	2012/11/4	10	32.12	31.52	9.76E+01	1	30.72	1.77E+02	1	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
	2012/11/5	7	31.48	32.64	4.23E+01	1	31.43	1.04E+02	0.6	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
	2012/11/6	12	37.12	33.36	2.47E+01	0.3	33.06	3.10E+01	0.2	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
	2012/11/7	16	34.48	31.17	1.27E+02	2	30.68	1.83E+02	1	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
中津川橋	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
中津川第一鮎津橋	2012/11/5	64	33.42	28.83	7.27E+02	10	28.10	1.25E+03	7	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
小鮎川第二鮎津橋	2012/11/5	2	43.00	35.25	6.0E+00	0.084	35.02	7.17E+00	0.04	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1
相模川新相模大橋	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
A養豚排水口*	2012/11/28	37	30.5	37.87	8.55E-01	0.01	39.22	3.1E-01	0.002	<i>Cryptosporidium parvum</i>	DQ898160.1

表11 相模川流域原虫試験結果(*Giardia*)

地点	採水月日	検鏡結果	LAMP (Tt値)	qRT-qRCR						シーケンス解析	Accession number
				2µl			5µl				
				5µl	Ct値	コピー数	想定シスト数(10L中)	Ct値	コピー数		
社家取水口	2012/11/2	0	—	—	—	—	—	—	—		
	2012/11/3	0	—	40.09	6.5E-01	0.1	39.1	1.4E+00	0.1	<i>Giardia intestinalis</i> (A又(F))	JX275387.1
	2012/11/4	0	—	—	—	—	—	—	—		
	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
	2012/11/6	0	—	—	—	—	—	—	—		
	2012/11/7	4	44.06	33.11	1.3E+02	20	32.63	1.9E+02	12	<i>Giardia intestinalis</i> (A又(F))	JX275387.1
中津川橋	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
中津川第一鮎津橋	2012/11/5	0	—	33.76	8.2E+01	13	33.45	1.0E+02	6	<i>Giardia intestinalis</i> (A)	AF199450.1
小鮎川第二鮎津橋	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
相模川新相模大橋	2012/11/5	0	—	—	—	—	—	—	—		
A養豚排水口*	2012/11/28	0	—	—	—	—	—	—	—		

試料濃縮量はA養豚排水口以外は10L。\*A養豚排水口は100mL。

「—」は陰性

空欄は試験未実施

表 12 顕微鏡法と遺伝子検査法による全国の水道原水中のジアルジアの検出結果

顕微鏡観察		リアルタイム PCR	
検出率	検出濃度 cysts/10L	検出率	検出濃度 cysts/10L
9/30 (30%)	2~10	8/30 (27%)	0.55~27

表 14 各手法の陽性・陰性サンプル数

	顕微鏡 陽性	顕微鏡 陰性
リアルタイム PCR 法 陽性	4	5
リアルタイム PCR 法 陰性	4	17

表 15 全国水道原水から検出されたジアルジアの遺伝子型の分布

遺伝子型	感染性*
<i>G. intestinalis</i> assemblage AI	あり
<i>G. intestinalis</i> assemblage AII	あり
<i>G. intestinalis</i> assemblage BIV	あり

\*ヒトへの感染報告例

表 13 顕微鏡法と遺伝子検査法による試料毎の検出の比較

試料 No.	顕微鏡検査 (cysts/5L)	qPCR (cysts/5L)	LAMP (Tt 値, min)
1	-	-	-
2	-	-	-
3	-	-	-
4	-	0.28	39
5	-	2.2	-
6	-	-	-
7	-	-	-
8	1	-	-
9	3	-	-
10	-	-	-
11	1	14	55
12	5	-	-
13	3	11	37
14	-	3.8	39
15	-	-	-
16	-	-	-
17	-	-	-
18	-	0.82	53
19	5	0.97	39
20	3	3.2	57
21	2	-	-
22	-	-	-
23	-	-	-
24	-	-	-
25	-	-	-
26	-	-	-
27	-	-	-
28	3	-	-
29	-	-	-
30	-	-	-

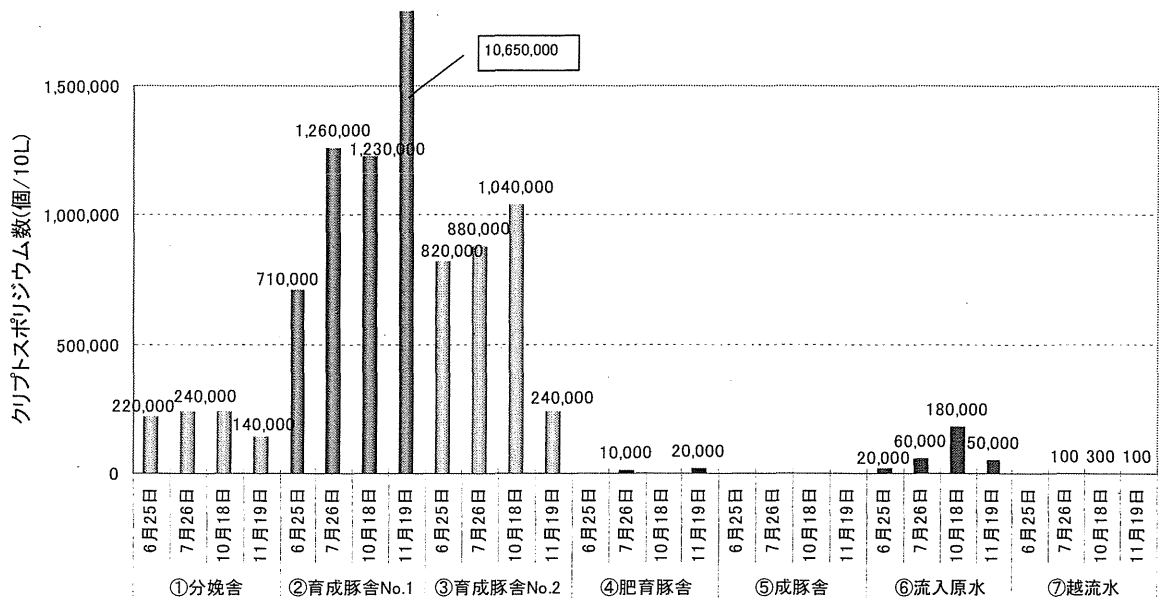


図9 豚舎別クリプトスポリジウム検出数

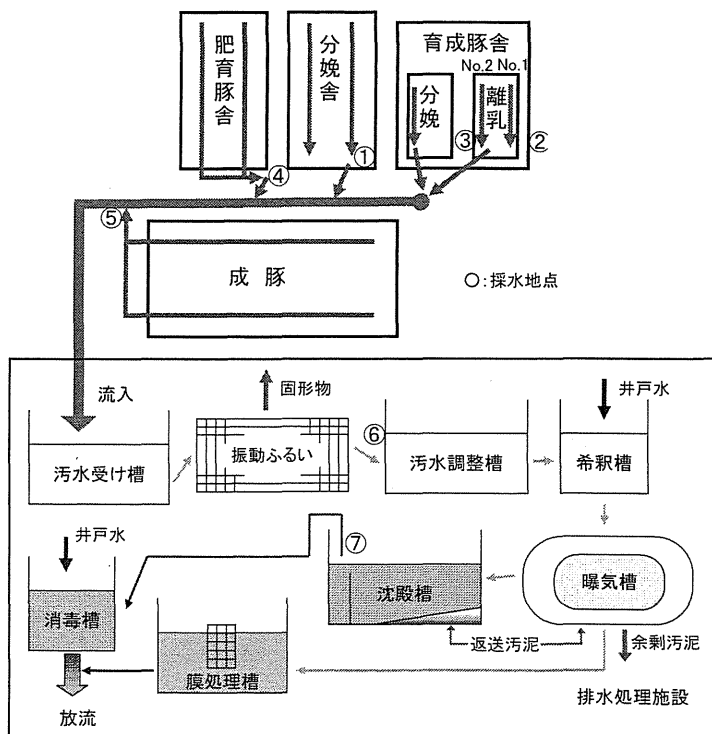


図10 調査豚舎の配置と採水地点



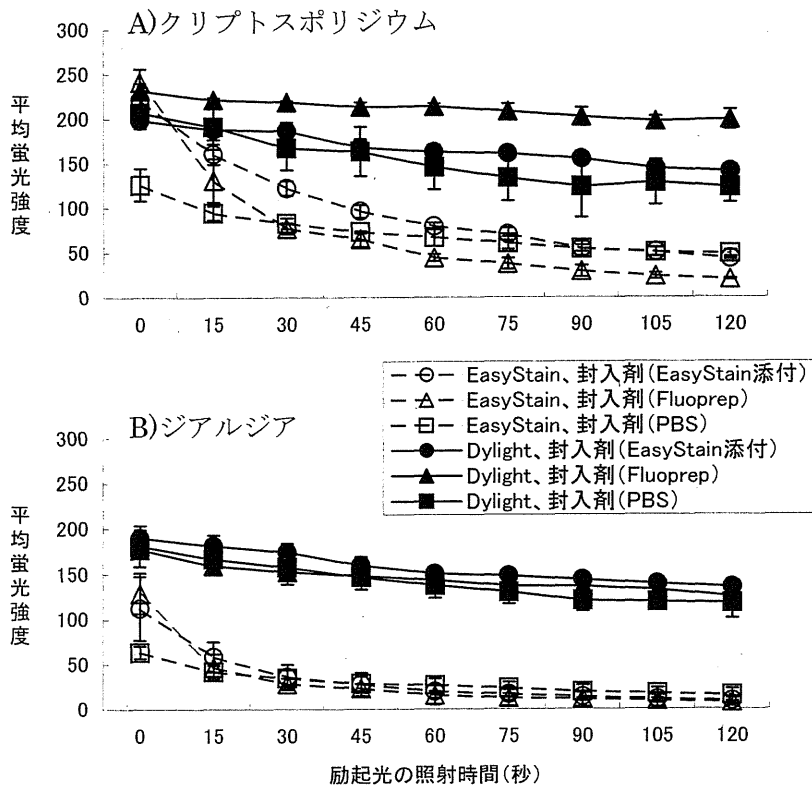


図 11 蛍光染色標本の観察時間による退色速度比較

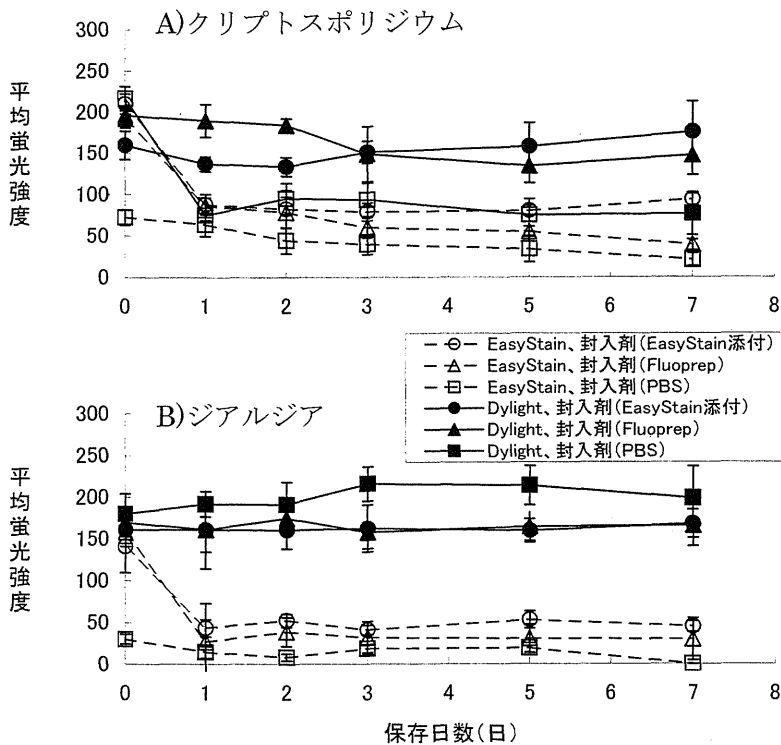


図 12 蛍光染色標本の経過日数による退色比較

平成 24 年度厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）  
分担研究報告書

水道における水質リスク評価および管理に関する総合研究

— 無機物質分科会 —

研究代表者	松井 佳彦	北海道大学大学院工学研究院 教授
研究分担者	伊藤 雅喜	国立保健医療科学院 生活環境研究部 上席主任研究官
研究協力者	大野 浩一	国立保健医療科学院 生活環境研究部 上席主任研究官
研究協力者	坂本 薫	千葉県水道局 水質センター 調査課 主査
研究協力者	荘司 浩史	茨城県企業局 水質管理センター 主任
研究協力者	小林 利男	東京都水道局 水質センター 検査課 課長補佐
研究協力者	森 健次	名古屋市上下水道局 技術本部 施設部 水質管理課 水質管理第一係
研究協力者	森實 圭二	大阪市水道局 工務部 水質試験所 担当係長
研究協力者	石橋 健二	福岡県南広域水道企業団 施設部 浄水課 水質係長
研究協力者	比嘉 元紀	沖縄県企業局 水質管理事務所
研究協力者	上杉 佳寛	(社)日本水道協会 工務部 水質課

研究要旨

本年度の研究では残留アルミニウム対策のヒアリング、実施設における高塩基度 PAC による浄水処理とアルミニウム制御、給水装置からのレアメタル類の浸出性能試験、放射性物質除去を想定した非放射性セシウムを用いた除去実験を行った。

残留アルミニウム対策では酸注入(pH 調整)、PSI、高塩基度 PAC とも一定の効果は見られる。PSI はコストと操作の煩雑さが、高塩基度 PAC は原水水質により従来 PAC と差がない場合があることがデメリットになる。高塩基度 PAC が有効な場合は比較的高 pH での操作も可能なため、酸剤、アルカリ剤の使用量を削減できる可能性がある。酸注入(pH 調整)は通常 PAC の場合でも効果があり、高塩基度 PAC の効果がない場合でも残留アルミニウム低減のための方策となりうる。

給水装置からのレアメタル類の浸出試験では、ニッケルはすべての製品で検出され、補正值としても最大で 200  $\mu\text{g/L}$ (現在の目標値 10  $\mu\text{g/L}$ ) 以上の値であった。めっきの回り込みからの浸出が原因と考えられ、製品毎のばらつきが多い理由であると思われる。

セシウム(Cs)は水中の懸濁物質に吸着するとされているが、懸濁質の種類により吸着量には差があることが明らかとなった。また、水中の有機物への吸着は見られなかった。溶存態 Cs は凝集沈澱処理では濃度が変化せず、浄水場での処理は難しいと考えられる。凝集時に粉末活性炭のように濁質を添加することにより、ある程度の処理を期待することができる。

## A. 研究目的

無機物質分科会では水質基準改定の動向を視野に入れ、処理、低減化の検討を行うほか、水道用資機材等からの無機物質の溶出による水質汚染のおそれについても検討対象としている。

本年度の研究では浄水処理で最も多く使われる無機アルミニウム系凝集剤に起因する残留アルミニウム対策の現状と制御、給水用具からの重金属類の浸出性能の調査、検討、および放射性物質の処理性に関する調査研究を行った。

水道水中のアルミニウム濃度については平成 16 年 4 月から水質基準として 0.2mg/L が施行され、平成 21 年 4 月に水質管理目標設定項目として 0.1 mg/L が施行となった。これまでのアンケート調査では約 3 割の浄水場でアルミニウム対策を講じていたが、対策の必要性を認識しているにもかかわらず無体策の事業者もあった。対策としての酸注入(凝集 pH 制御)は PAC の注入率、発生汚泥量の低減に効果があることが明らかになっている。一方、凝集剤注入強化による対応では、対応後の実態について十分調査されているとは言えず、実態を明らかにする必要があることが課題となっていた。

残留アルミニウム制御のための方策として高塩基度 PAC による処理実験を継続してきたが、本年度は実浄水場で使用しその効果を検討した。

給水用具からの重金属類の溶出については、水質基準項目については毎年水道課の要請を受け国立保健医療科学院で実施している。基準値以外の項目については実態分かっていない。

昨年度に接触容積測定の留意点等を含む浸出試験の手引きを作成したことを受け、本年度はそれに基づいた浸出試験を実施した。

さらに本年度は東日本大震災で問題となった放射性物質について、浄水処理における挙

動を調査した。対象物質は比較的半減期が長く現在でも問題となっているセシウムを対象とした。

## B. 研究方法

### (1) 残留アルミニウム対策に関する実態調査

平成 22, 23 年度のアンケート結果で、浄水中に残留するアルミニウム対策として酸注入による pH 調整、凝集剤の注入強化などがあった。昨年度はアルミニウム対策として凝集剤の注入強化での対応方法についてヒアリング調査を行った。本年度は凝集剤注入強化を行っている浄水場を対象とする予定であったが、それらの浄水場では十分な結果が得られなかったためか、様々な対策を検討していたため、ヒアリングにより各種の対策の効果を調査した。

### (2) 実浄水場における高塩基度 PAC の評価

水道水中のアルミニウム濃度の低減を目的として新たに開発されている高塩基度 PAC について凝集効果の評価を行った。これまで小型浄水処理実験装置による凝集・沈澱・ろ過の評価を行ってきたが、本年度は福岡県南広域水道企業団荒木浄水場の実プラントを使用して以下の 3 つの水質条件を設定し、従来の凝集剤を用いた系(対照系)と高塩基度凝集剤を用いた系(実験系)の比較検討を行った。3)の冬期原水系については比較実験を行わず、全系列に高塩基度 PAC を適用し凝集 pH を 7.0 から 7.3 まで段階的に変化させて処理水質の挙動を評価した。

- 1) 生物の炭酸同化作用に伴う原水高 pH 時における処理性評価
- 2) 原水中のピコプランクトン増殖時における処理性評価
- 3) 冬期原水(低水温、低濁度、高 pH)に対する処理性評価

荒木浄水場の浄水処理フローを図 1 に示す。荒木浄水場は、筑後川表流水を主な原水とし、凝集沈殿・急速ろ過の一般的な処理プロセス

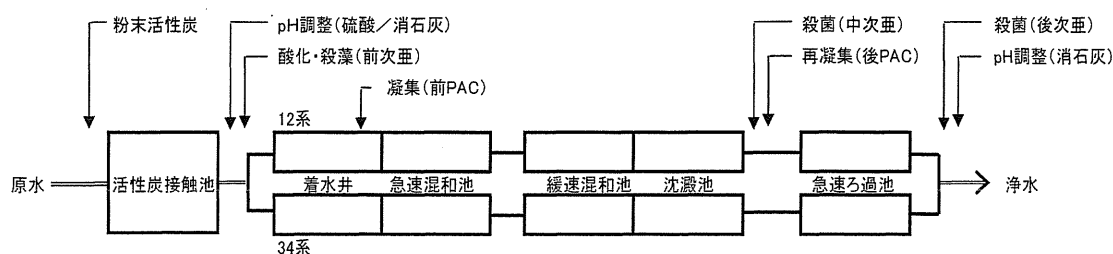


図1. 荒木浄水場の浄水処理フロー

である。浄水場は 2 系列になっているため通常の PAC と高塩基度 PAC の系列を並行して実験を行った。浄水場では通常 PAC を使用している場合凝集 pH 調整のため硫酸の注入を行っているが、この注入点は 2 系列に分岐する前にあるためどちらの系列も同じ原水 pH で凝集剤を注入している。PAC 注入は原水濁度に応じて自動制御した。

### (3) 給水装置からのレアメタル類の溶出に関する研究

対象とした給水装置は台所、洗面所で使用する湯水混合水栓 16 品目とした。これらは末端給水用具として定義されるものであり、末端以外の給水用具に比べ厳しい条件が適用される。

浸出操作は原則として厚生省告示第 111 号「給水装置の構造及び材質の基準に係る試験」に示す末端給水器具の定める方法で実施したが、まずコンディショニング無しの条件で浸出を行い、続けてコンディショニング有りの条件で浸出を行った。測定項目は、リチウム、コバルト、ゲルマニウム、ストロンチウムの 4 項目と給水装置のめっきに使われ、水質管理目標設定項目に入っているニッケル(目標値 10  $\mu\text{g/L}$ )の合計 5 項目とした。

結果は分析値および補正值で評価した。湯水混合水栓を試験対象としたため、補正係数は通常の接触容積、接触面積比から算出した補正係数に「飲用に供する水(加熱された水を除く)」の定義に従い、1/2 を乗じたものを用いた。

### (4) セシウムの濁質による吸着および凝集沈澱による挙動の検討

環境中の放射性セシウム(Cs)は懸濁態または溶存態で存在しており、その形態により浄水処理における挙動が異なる。一般には Cs は土壌粒子には吸着しやすいとされるため、濁質の共存下では通常の凝集沈澱で除去可能と考えられている。

本研究では非放射性 Cs-133 を用いて、濁質成分、有機成分が共存した場合の Cs の挙動についてジャーテストにより評価を行った。

実験は脱塩素水に Cs を添加した溶液を使用し、濁質としてはくどう度(カオリン)またはベントナイトを加え一定時間放置後、溶存態 Cs 濃度を測定し、濁質への吸着量を測定した。また、凝集沈澱による処理実験では所定の濁質に飽和する以上の Cs を加え、溶存態 Cs の存在下におけるジャーテストを行った。有機物との相互作用を確認するため、天然有機物(IHSS Suwannee River NOM)と Cs が共存する条件でもジャーテストを行った。

### C・D. 研究結果と考察

#### (1) 残留アルミニウム対策に関する実態調査

##### 1) A 浄水場

A 浄水場は表流水を取水し、凝集沈澱急速ろ過方式で浄水処理を行っている。従来品の PAC(塩基度 50%)を用いて浄水処理を行っていた時には、原水 pH の上昇時は浄水中のアルミニウム濃度が 0.2  $\text{mg/L}$  近くまで上昇することがあった。この対策として、PSI(鉄濃度 4

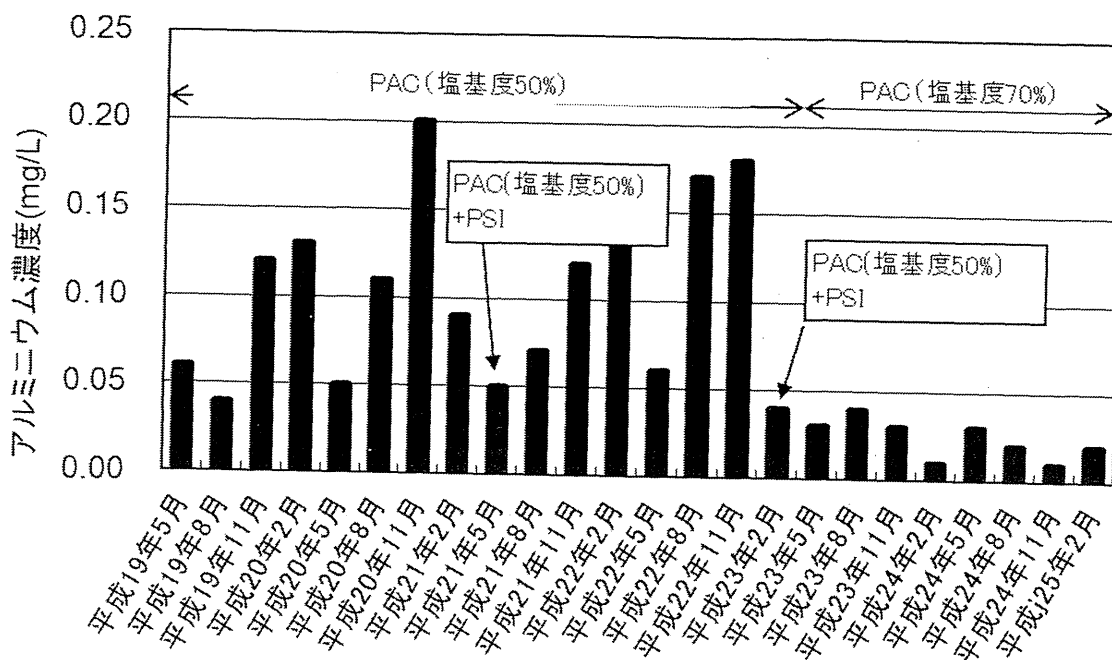


図2 浄水中のアルミニウム濃度

wt%)を用いた浄水処理及び高塩基度 PAC(塩基度 70%)を用いた浄水処理を行った。従来 PAC、PSI 及び高塩基度 PAC で浄水処理を行った時の浄水中のアルミニウム濃度は図 2 のとおりである。

従来 PAC を用いて浄水処理を行っていた平成 22 年 11 月までは、原水 pH 値の上昇により浄水中のアルミニウム濃度が水質管理目標設定項目の目標値である 0.1 mg/L を超えることがあったが、高塩基度 PAC を用いて浄水処理を始めた平成 23 年 4 月以降については、浄水中のアルミニウム濃度は 0.1 mg/L 以下で管理することができている。

また、高塩基度 PAC を使用することにより、原水 pH 値の上昇時、又は原水濁度の上昇時(最大値:pH 値 8.5~9.0、濁度 250 度)に高塩基度 PAC の注入率を一定(注入率約 35 mg/L)のまま処理を行っても浄水濁度は 0.05 未満で処理することができていた。

PSI については、平成 21 年 5 月及び平成 23 年 2 月に従来 PAC と併用して実施設での検証を行っている。従来 PAC との併用により浄水中のアルミニウム濃度を低下させることは

できたが、PSI の 1 日の使用量が多くなり薬品費が PAC 単独の処理時と比較して割高になること、最適な注入率を設定することが難しいこと、pH 調整設備がないため配水の pH 値が低下し、赤水の原因となること等を理由として採用していない。

## 2) B 浄水場

B 浄水場はダムから直接取水し、PAC を使用して凝集沈澱急速ろ過を行っている。原水濁度は年間を通して 4~6 度で、原水 pH は 8.0~8.5(平成 22 年度平均)と高く、pH 上昇時には 9 を超えることがある。原水 pH の上昇時には、PAC 注入量の増加で対応しているが、PAC 使用量、発生汚泥、次亜塩素酸ナトリウムの注入量の増加等の問題が発生している。さらに凝集不良による浄水へのアルミニウムの溶出が懸念され、水質基準値 0.2mg/L 以下ではあるが、水質管理目標値である 0.1mg/L を超えることもあるため、浄水処理について検討を行ってきている。

### i) 炭酸ガス注入による pH 制御

酸注入による原水 pH 値の管理について、使用する酸剤は安全性、環境への配慮等から

炭酸ガスとした。通常は、PAC 注入率を 40mg/L で浄水処理を行っているが、実験期間中は着水井の pH 値が 7.2 となるよう炭酸ガスを注入し、PAC 注入率を 20mg/L と 15mg/L に設定して行った。

実験途中に測定計器の一部の洗浄があったため沈澱水、ろ過水濁度の明確な変化は得られなかったが、炭酸ガス注入を行うことにより、PAC 注入率を従来の半分以下に減らしても同等の処理結果を得ることができた。

#### ii) 高塩基度 PAC による凝集処理

高塩基度 PAC (塩基度 70%) のものを用いたジャーテストによる検討を行った。結果を図 3, 4 に示す。高塩基度 PAC と従来 PAC を比較した結果、濁度について処理性に大きな差はなかった。また、残留アルミニウム濃度についても、水質管理設定項目の目標値 0.1 mg/L を超えており、良好な結果は得られなかった。

A 浄水場では高 pH や濁度上昇時 (pH 8.5 ~ 9, 濁度 250 度程度) でも高塩基度 PAC を一定注入率で処理をしても浄水濁度 0.05 度以下、残留アルミニウム濃度 0.1 mg/L 以下で処理が可能であるのに対し、B 浄水場では高塩基度 PAC の使用による処理性の明確な改善効果は見られなかった。高塩基度 PAC の効果が発揮できる条件についてはこれまでの実験でも明確な結果は得られておらず、さらに検討をする必要があると考えられる。

### (2) 実浄水場における高塩基度 PAC の評価

#### 1) 生物の炭酸同化作用に伴う原水高 pH 時における処理性評価

沈澱水 pH (凝集時 pH) は、期間を通じて実験系の処理水が対照系に比べて高かった。その差は平常時で約 0.1、降雨時で約 0.2 と、PAC 注入率が高くアルカリ度が低下した降雨時において顕著であった。

有機物指標である色度、UV254 は、期間を

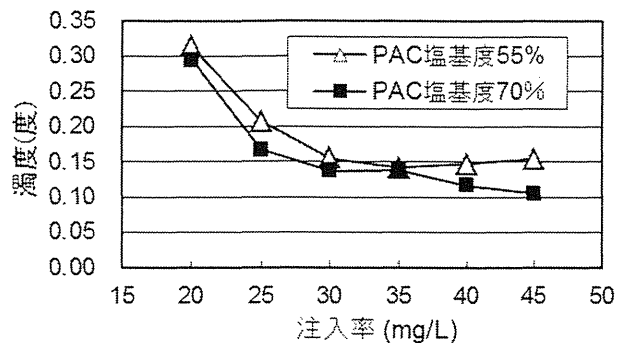


図3 ジャーテスト結果(濁度)

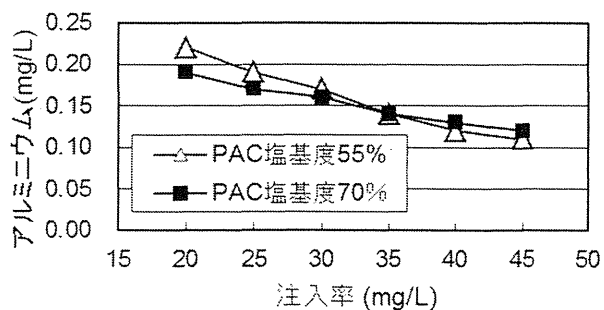


図4 ジャーテスト結果(残留アルミニウム)

通じて実験系処理水の方が何れも低い傾向にあった。色度については、降雨時において両凝集剤ともに値の上昇傾向が見られ、(高塩基度 PAC の従来 PAC に対する)低減率の低下が見られたが、UV254 は、平常時と降雨時を問わず、概ね 10~20%の低減率を維持することができた。

濁度は、色度と同様に、平常時において低減効果が顕著に見られたものの、降雨時に何れも濁度の上昇傾向が見られ、低減率は低下した。しかし、期間を通じて実験系の処理水濁度が対照系の値を上回ることなく、前者の処理効果は有意であった。

ろ過水の濁度は、平常時において、後 PAC 2 mg/L の注入を行った対照系が平均 0.012 度で推移したのに対し、実験系は平均 0.001 度と、高塩基度型 PAC の顕著な濁度の低減効果を確認することができた。ろ過水のアルミニウムは、実験系において平常時及び降雨時を問わず 0.020 mg/L 前後の低いレベルで制御できた。また、実験系におけるアルミニウムの形態は、そのほとんどが何れも溶解性であった。一方、対照系では、平常時において総

アルミニウムが平均で 0.048 mg/L と実験系 (0.025 mg/L) に対して約 2 倍高い値で推移し、また、総アルミニウムに対して約 25% の懸濁性アルミニウムが存在していることがわかった。この懸濁性のアルミニウムは漏出濁度の一部がフロックに由来するものであると考えられる。

### 2) 原水中のピコプランクトン増殖時における処理性評価

夏期実験では、荒木浄水場の原水でピコプランクトンの増殖(最大 17,000 個/ml)が確認された期間において、処理水質(ろ過水のアルミニウム及び濁度等)を比較評価した。期間中、PAC 注入率は 20 ~ 25mg/L(原水濁度に応じた自動制御)、凝集 pH は 7.0 の一定条件で制御した。また、対照系においては、ろ過濁度のレベルに応じて適宜後 PAC を 2mg/L 注入した。

実験期間におけるろ過水の総アルミニウム及び濁度の経時変化を図 5 に示した。ろ過水の総アルミニウムは、実験系

及び対照系の平均値で各々 0.028、0.045 mg/L と、前者の顕著な低減効果が確認された。また、アルミニウムの形態は、両 PAC 共にそのほとんどが溶解性のものであった。ろ過水の濁度は、後 PAC 2 mg/L の注入を一定期間行った対照系において平均 0.017 度で推移したのに対し、実験系では、原水中のピコプランクトン数が比較的高い値で検出された時期に関わらず、期間を通じて 0.001 度以下の極めて低いレベルで制御することができた。

### 3) 冬期原水(低水温、低濁度、高 pH)に対する処理性評価

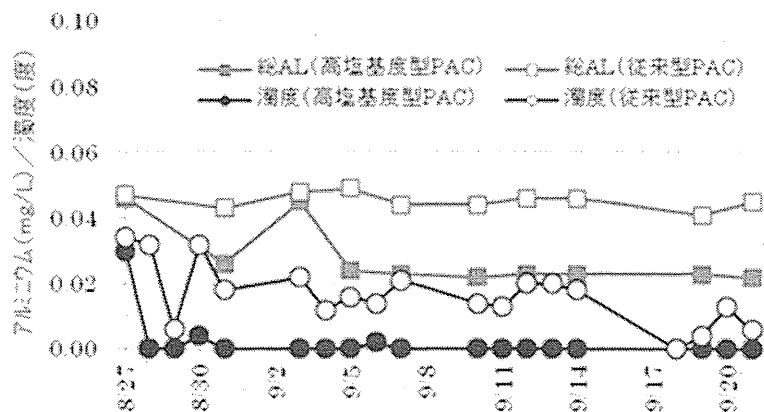


図 5 ろ過水総アルミニウム濃度および濁度の経時変化

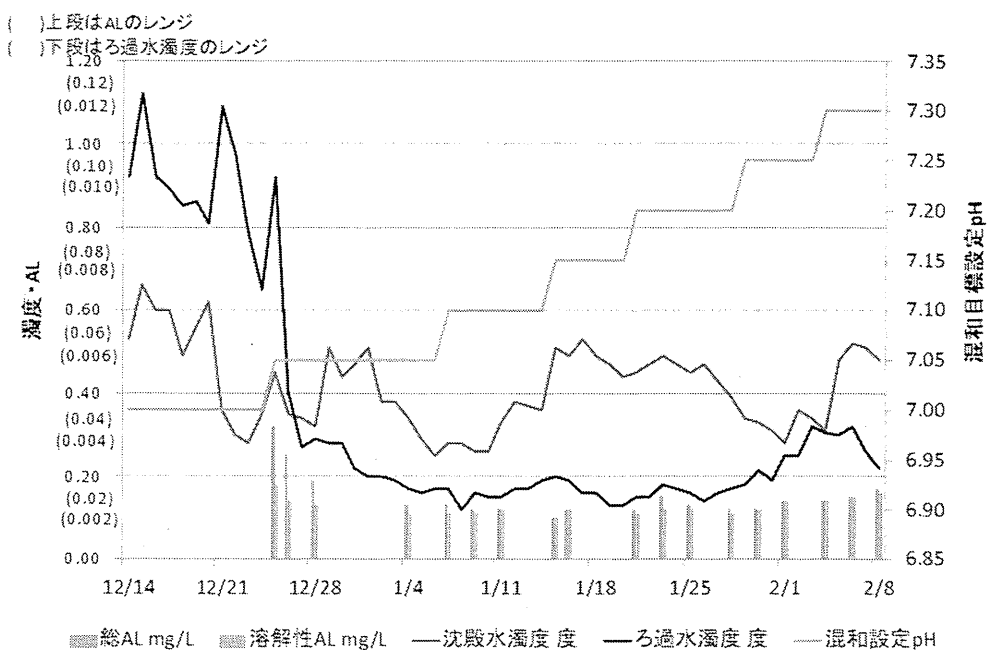


図 6 冬期実験期間中の処理水水質等の推移

実験期間中は、不定期に纏まった降雨があったため、原水水質は幾分その影響が見られた。期間中における原水の水温、濁度、pH 及び UV254 の平均値は各々 8.6 °C、4.3 度、7.64 及び 0.095 Abs/5cm で推移した。

処理水質の状況を図 6 に示した。12/25 に高塩基度 PAC への切替を行い、その翌日以降から沈殿水及びろ過水濁度の低下が確認された。切替の前後において、沈殿水濁度は平均 0.58 度から平均 0.40 度と 3 割程度の減少が見られ、ろ過水濁度は平均 0.01 度から平均 0.002 度と約 8 割の値の減少が確認された。

アルミニウムの測定結果では、注入開始約 3 日間で徐々に総アルミニウムの低下が見られ、その間は懸濁性アルミニウムの減少が顕著に見られた。以降は、これまでの実験結果と同様に、残留アルミニウムのほとんどは概ね溶

解性分として推移した。

また、期間中は凝集時 pH を段階的に 7.0 から 7.3 まで上昇させたが、処理水質は概ね安定的に良好な水質レベルを維持することができただけでなく、酸剤(硫酸)及び後アルカリ剤(消石灰)の注入率を 1/3 程度まで低減することができた。

### (3) 給水装置からのレアメタル類の溶出に関する研究

浸出試験の分析値(補正前の浸出水そのものの濃度)を表 1 に示す。コバルト、ゲルマニウム、ストロンチウム、テルルはすべてのサンプルで不検出となったが、リチウムについては No.4 サンプルのコンディショニングなし、No.5 のコンディショニング無し・有りの 3 つのケースのみ検出下限値以上の浸出が認められた。通

表1 給水装置の浸出試験結果(分析値;補正前の値)

No.	コンディショニング	項目 (単位:µg/L)						容量 (mL)
		リチウム	コバルト	ニッケル	ゲルマニウム	ストロンチウム	テルル	
1	あり	<0.4	<0.4	12	<2	<20	<0.4	140
	なし	<0.4	<0.4	17	<2	<20	<0.4	
2	あり	<0.4	<0.4	9	<2	<20	<0.4	143
	なし	<0.4	<0.4	40	<2	<20	<0.4	
3	あり	<0.4	<0.4	931	<2	<20	<0.4	234
	なし	<0.4	<0.4	722	<2	<20	<0.4	
4	あり	<0.4	<0.4	156	<2	<20	<0.4	200
	なし	10.2	<0.4	483	<2	<20	<0.4	
5	あり	1.4	<0.4	650	<2	<20	<0.4	180
	なし	7.9	<0.4	260	<2	<20	<0.4	
6	あり	<0.4	<0.4	39	<2	<20	<0.4	109
	なし	<0.4	<0.4	120	<2	<20	<0.4	
7	あり	<0.4	<0.4	20	<2	<20	<0.4	180
	なし	<0.4	<0.4	50	<2	<20	<0.4	
8	あり	<0.4	<0.4	4	<2	<20	<0.4	145
	なし	<0.4	<0.4	28	<2	<20	<0.4	
9	あり	<0.4	<0.4	4	<2	<20	<0.4	110
	なし	<0.4	<0.4	6	<2	<20	<0.4	
10	あり	<0.4	<0.4	2186	<2	<20	<0.4	240
	なし	<0.4	<0.4	1843	<2	<20	<0.4	
11	あり	<0.4	<0.4	24	<2	<20	<0.4	150
	なし	<0.4	<0.4	78	<2	<20	<0.4	
12	あり	<0.4	<0.4	1	<2	<20	<0.4	145
	なし	<0.4	<0.4	22	<2	<20	<0.4	
13	あり	<0.4	<0.4	354	<2	<20	<0.4	126
	なし	<0.4	<0.4	111	<2	<20	<0.4	
14	あり	<0.4	<0.4	16	<2	<20	<0.4	154
	なし	<0.4	<0.4	10	<2	<20	<0.4	
15	あり	<0.4	<0.4	850	<2	<20	<0.4	300
	なし	<0.4	<0.4	225	<2	<20	<0.4	
16	あり	<0.4	<0.4	17	<2	<20	<0.4	105
	なし	<0.4	<0.4	888	<2	<20	<0.4	



常、コンディショニング有りの条件で補正を行うので0.13 µg/Lとなる。基準値等はないのでこの値についてどう対応するかということではないが、今回の試験では浸出試験の補正值として浸出があっても1 µg/Lの値となるということである。

一方、ニッケルはすべてのサンプルのコンディショニング無し、有り、すべての条件で分析値が測定下限値以上の値となった。値のばらつきは極めて大きく、数 µg/L のレベルから最大で

2000 µg/L まで分布している。接触面積、接触容積を考慮した補正值でも最大値は262 µg/L でありかなり高い値となっている(図7参照)。

ニッケルは水質管理目標設定項目であり、目標値は10 µg/L である。通常は資機材からの溶出基準は水質基準の1/10 とされる場合が多いので、それを適用すると1 µg/L となる。コンディショニング有りの条件で目標値を上回っているのは6製品、1 µg/L を上回るものは10製品であり、基準化を仮定すると多くの製品が不適合製品となる可能性が高い。ニッケルはめっきに用いられる金属であり、内部に回り込んだめっき部分から浸出しているものと考えられる。

#### (4) セシウムの濁質による吸着および凝集沈澱による挙動の検討

##### 1) Cs の粘土系濁質への吸着

はくとう土またはベントナイトを10 mg/L の懸濁液に Cs 初期濃度が10 µg/L となるように添加した時の Cs 濃度の経時変化を図8に示す。はくとう土の系は Cs 濃度がほとんど変化せず、溶存態 Cs はほとんど吸着されなかった。ベントナイトの系では濃度低下が見られ Cs が吸着することが示された。浄水場流入濁質を乾燥し

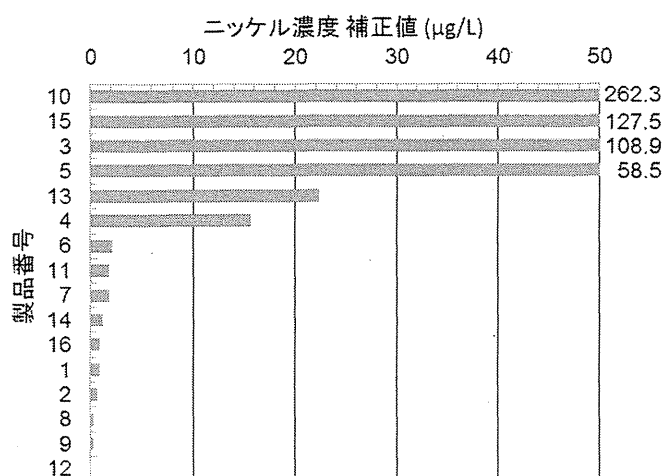


図7 ニッケル浸出濃度の補正值(コンディショニングあり)

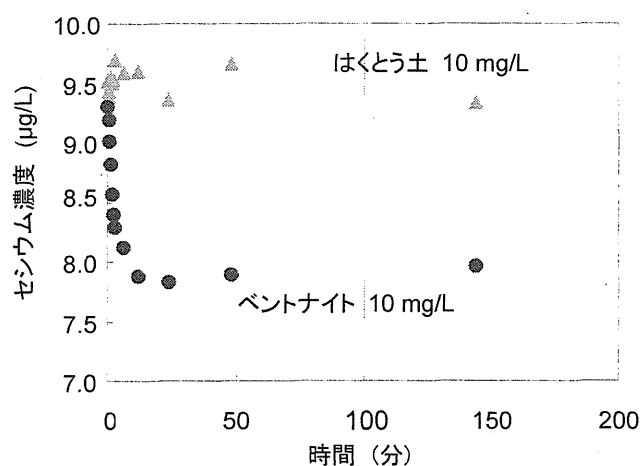


図8 濁質への吸着実験

たものを懸濁成分として同様の実験を行ったところベントナイト同様に吸着による濃度低下が見られた。これらのことより、濁質成分の違いにより Cs の吸着性に差があることが認められた。

Cs 初期濃度を1.5 µg/L としてベントナイト濃度を変化させた吸着実験では Cs の吸着量を Freundlich 型の吸着等温式で表すことができた。

##### 2) ジャーテストによる溶存態 Cs の除去性の検討

溶存態 Cs 濃度が1.5 µg/L 程度となるように調整したベントナイト20 mg/L を含む原水でジャーテストを行った結果を図9に示す。凝集剤の添加により濁度は1度以下まで低下しているが、Cs 濃度はほとんど変化せず、溶存態

Cs は凝集によって除去できないことが示された。浄水場流入濁質を用いた同様の実験でも Cs 濃度はほぼ一定であり凝集による Cs の除去は認められなかった。凝集時に同時に懸濁質(浄水場流入濁質)を添加した実験では、濁質量に応じて Cs 濃度が減少したことから、濁質への吸着によるものと考えられる。

有機物を含む原水でのジャーテストにおいても Cs 濃度は変化せず、有機物への吸着等の相互作用もないことが明らかとなった(図 10 参照)。

## E. 結論

### (1) 残留アルミニウム対策に関する実態調査

残留アルミニウム対策としては pH 調整(酸剤の注入)、高塩基度 PAC の使用、PSI 使用などがあり、複数の浄水場で検討実績がある。PSI の使用はアルミニウム濃度低減には効果があるが、操作が複雑になる、コストが高くなるなどのデメリットもあった。高塩基度 PAC は広い pH 範囲で使用が可能であるが、従来 PAC に比べ注入率を下げるができるケースもあったが、従来 PAC とほとんど効果に差が見られない場合もあり、原水水質と処理効果の関係についてはさらに検討が必要である。高塩基度 PAC で効果の見られなかった浄水場では酸注入を検討していた。

### (2) 実浄水場における高塩基度 PAC の評価

福岡県南広域水道企業団の荒木浄水場において高塩基度 PAC を用いた実験をおこなった。凝集時 pH を 7.0 として従来 PAC と比較した実験では、降雨による濁度上昇時、ピコプランクトン増殖時においても濁度の処理性、残留アルミニウムともに高塩基度 PAC の方が良好な結果であった。ピコプランクトン増殖時は従来 PAC の系では沈澱処理水に後 PAC を注入していたが、高塩基度 PAC の系では後 PAC なしで同等以上の水質が得られた。凝集 pH を変化させる実験では pH 7.3 まででは処理

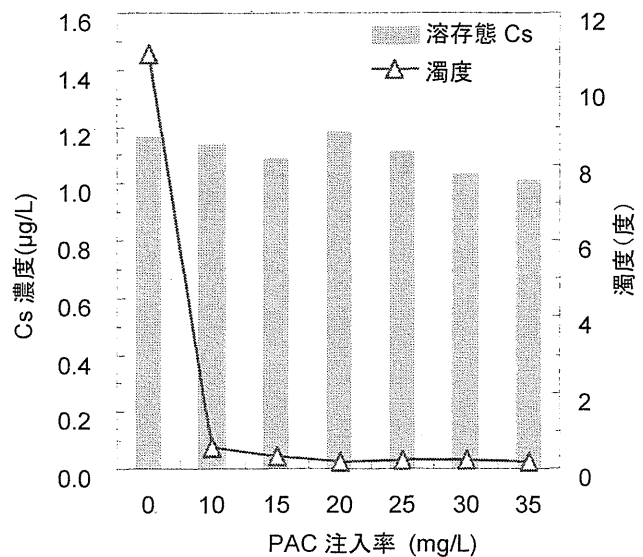


図 9 溶存態 Cs のジャーテストによる除去 (濁度共存系)

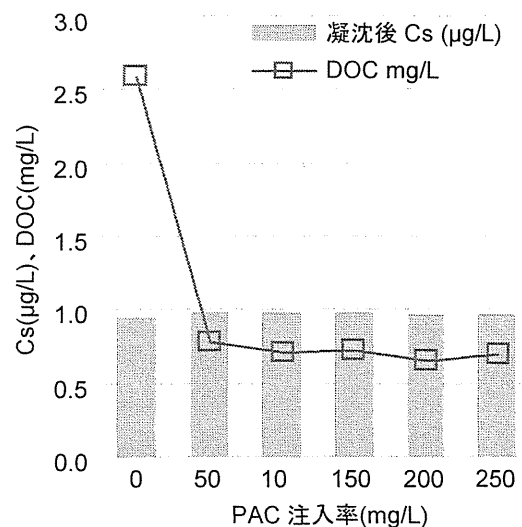


図 10 溶存態 Cs のジャーテストによる除去 (有機物共存系)

水水質の低下は見られず、酸剤、アルカリ剤の注入率を低減することもできた。

### (3) 給水装置からのレアメタル類の溶出に関する研究

湯水混合水栓 16 製品を試験した結果、コバルト、ゲルマニウム、ストロンチウム、テルルはすべてのサンプルについて不検出であった。リチウムは 2 製品から検出されたが、補正值で 1 μg/L のレベルであった。ニッケルはすべてのサンプルから検出され数 μg/L ~ 2000 μg/L のレベルであった。補正值にすると最大で 262

μg/L であった。ニッケルはめっきの内部の回り込みからの浸出と考えられる。

#### (4) セシウムの濁質による収着および凝集沈澱による挙動の検討

はくとう土、ベントナイト、浄水場流入濁質を用いた収着実験において Cs は、はくとう土にほとんど収着せず土壌の種類によって収着量に差があることが明らかになった。自然由来の NOM への収着は見られなかった。

懸濁質または有機物と溶存態 Cs が共存する系でのジャーテストでは、溶存態 Cs 濃度の低下は見られず、溶存態 Cs は通常の凝集処理では除去できなかった。

### F. 研究発表

#### 1. 論文発表

Kosaka K, Hayashida T, Terasaki M, Asami M, Yamada T, Itoh M, Akiba M. Elution of bisphenol A and its chlorination by-products from lined pipes in water supply process. *Water Science & Technology: Water Supply*, 12(6), 791-798, 2012

Kimura, M., Matsui, Y., Kondo, K., Ishikawa, T.B., Matsushita, T. and Shirasaki, N., Minimizing residual aluminum concentration in treated water by tailoring properties of polyaluminum coagulants, *Water Research*, 47(6), 2075-2084, 2013.

#### 2. 学会発表

Kimura, M., Matsui, Y., Takahashi, T., Oshiba, A., Machida, K., Shirasaki, N. and Matsushita, T., Precoagulation by basicity-optimized polyaluminum chloride effectively reduces membrane fouling. IWA Particle Separation Conference, Berlin, Germany, 18-20 June 2012.

Kimura, M., Matsui, Y., Oshiba, A., Ishikawa, T. B., Machida, K., kondo, K., Shirasaki, N. and Matsushita, T., Basicity-optimized polyaluminum chloride to minimize dissolved residual aluminum concentration. IWA Particle Separation Conference, Berlin, Germany, 18-20 June 2012.

高橋知也, 木村正興, 中川翠, 松井佳彦, 白崎伸隆, 松下拓, ポリ塩化アルミニウムの塩基度が膜ろ過性能に及ぼす影響. 第47回日本水環境学会年会, 大阪, 2013/3/11-13.

中川翠, 木村正興, 高橋知也, 松井佳彦, 松下拓, 白崎伸隆, ポリ塩化アルミニウムの塩基度が膜ろ過水質に及ぼす影響. 第47回日本水環境学会年会, 大阪, 2013/3/11-13.

近藤健太, 大芝淳, 木村正興, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦, ポリ塩化アルミニウムの塩基度と高分子組成が残留アルミニウム濃度に与える影響. 第63回全国水道研究発表会, 松江, 2012/5/16-18.

平成 24 年度厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）  
水道における水質リスク評価および管理に関する総合研究  
分担研究報告書

— 一般有機物分科会 —

研究代表者	松井 佳彦	北海道大学大学院工学研究院
研究分担者	秋葉 道宏	国立保健医療科学院
	西村 哲治	帝京平成大学
研究協力者	阿部 進	東京都水道局
	阿部 晃文	川崎市上下水道局
	今村 康夫	大阪市水道局
	川元 達彦	兵庫県立健康生活科学研究所
	工藤 幸生	日本水道協会
	久保田 領志	国立医薬品食品衛生研究所
	小杉 有希	東京都健康安全研究センター
	鈴木 俊也	東京都健康安全研究センター
	當山 裕一	大阪市水道局
	中町 眞美	阪神水道企業団
	灘 重樹	神戸市水道局
	服部 晋也	大阪市水道局
	原 郁夫	大阪市水道局
	深瀬 勝己	大阪市水道局
	丸岡 強	仙台市水道局
	松井 克肇	大阪市水道局
	矢野 美穂	兵庫県立健康生活科学研究所

研究要旨

アニリンはサロゲート（アニリン-d<sub>5</sub>）を用いて固相抽出ーガスクロマトグラフ/質量分析（GC/MS）法もしくはヘッドスペース（HS）ーGC/MS法により、1,2,3-トリクロロベンゼンはトリハロメタン類やVOCsとの一斉分析が可能なHS-GC/MS法もしくはページ・トラップーGC/MS法により、ニトリロ三酢酸は固相抽出ー誘導体化ーGC/MS法により、定量下限値は目標値の1/400~1/100が求められる分析法を設定することができた。

大阪市庭窪浄水場の浄水、原水、淀川流域河川水及び事業所放流水のアニリンの実態調査を実施した結果では、事業所排水1か所において、定量下限値の0.2μg/Lで検出されたのみであった。また、東京都多摩地域の井戸水中のアニリンの検出率は1%未満（1ヶ所/116ヶ所）と低く、検出濃度は0.02μg/Lと水道水の目標値20μg/Lと比べ非常に低かった。

1,2,3-トリクロロベンゼンの実態調査の結果では、関西地区の水道水質監視地点の原水からの検出頻度は34検体中2検体（検出率：5.9%）であり、最高検出濃度は0.07μg/L検出値は目標値0.02mg/Lと比較して十分に低濃度レベルにあり、浄水では不検出であった。また、大阪市庭窪浄水場の浄水、原水、淀川流域河川水及び事業所放流水では、冬季に実態調査を行ったすべての箇所目標値の1/200である0.1μg/L未満であった。

大阪市庭窪浄水場の浄水、原水の実態調査を実施した結果では、ニトリロ三酢酸は原水で0.7~1.2μg/L検出されたものの、目標値の1/100以下の低濃度であった。また、浄水では未検出であった。

20種類の医薬品類を対象に、液体クロマトグラフータンデム質量分析法を用いて、関西地域都市部の河川由来の原水の存在実態及び浄水処理過程における除去挙動についても調査した結果、原水から医薬品類が数ng/L~数百ng/Lの濃度レベルで検出された。対象とした医薬品類は、凝集沈殿処理、オゾン処理、活性炭処理工程で分解・除去され、浄水