

〈研究発表〉

雨天時簡易処理放流発生時の塩素消毒効果に対する実験的研究

張 浩然¹⁾, 西田光希¹⁾, 張 浩¹⁾, 竹内 悠¹⁾
井原 賢¹⁾, 田中宏明¹⁾

¹⁾ 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
(〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2 E-mail: a1940863421@hotmail.com,
m.nishida.0608ku@gmail.com, zhanghao970119@outlook.com,
takeuchi.haruka.6m@kyoto-u.ac.jp, ihara@biwa.eqc.kyoto-u.ac.jp,
htanaka@biwa.eqc.kyoto-u.ac.jp)

概要

雨天時の下水処理場の消毒の知見は集積されていない。本論文では、雨天時の下水処理場での放流水の塩素注入量と接触時間の変化が及ぼす大腸菌、大腸菌群、大腸菌ファージへの消毒効果を把握するため、ラボスケールで一次処理水と二次処理水を混合して実験した。修正 Collins-Selleck 式の大腸菌の不活化速度定数と遅滞係数は簡易処理水の比率が大きくなるにつれ、影響を受け、消毒効果が低下した。放流水を簡易処理発生時でも、晴天時の大腸菌濃度とするのに必要な塩素濃度は、現状よりも増やす必要があり、環境影響低減には脱塩素などの対策も検討する必要がある。

キーワード：修正 Collins-Selleck モデル、簡易処理放流、残留塩素濃度、大腸菌、大腸菌ファージ

原稿受付 2020.6.26

EICA: 25(2・3) 137-140

1. はじめに

汚水と雨水を同じ下水管に集め、排除する方式を合流式下水道（以下：合流式）と呼ぶ。これまで、降雨時において合流式下水処理場では、流入下水量のうち計画時間最大汚水量 1 Q までは、高級処理（生物処理）されるが、1 Q を超えるものに関しては最初沈殿池で一次処理が行われた後、塩素消毒のみが実施され、公共用の水域へ放流される、簡易処理放流が発生していた¹⁾。国土交通省は、下水道法施行令を平成 15 年度に改正し、合流吐口の構造基準、雨天時の放流水質基準、合流吐口からの放流水の BOD 平均水質 40 mg/L（暫定基準 70 mg/L）以下の設定²⁾、合流式の改善目標として汚濁負荷量（BOD, SS）を分流式下水道並みまで削減を目標とし、合流吐口からの放流回数の半減と夾雑物の削減を指示した。現在、合流式下水道緊急改善事業が進められ、中小都市では平成 25 年度に事業が終了し、大都市でも平成 35 年度（令和 4 年度）に事業が終了する見込みである³⁾。しかし生物処理を経ずに、直接塩素消毒を行う簡易処理放流での消毒効果の評価が不十分である。また合流式下水道緊急改善事業後も、雨天時流入量が多く、やむを得ず簡易処理放流が発生する場合、水質の低下から塩素消費量の増加や塩素消毒槽の滞留時間が短くなるなどの理由から、塩素消毒の効果の低下が懸念されるが⁴⁾、病原性微生物、特に大腸菌やウイルスなどへの消毒効果は、これまでほとんど報告されていない。

そこで本研究では、下水処理場での塩素消毒状況を調査し、雨天時に必要となる塩素注入量と接触時間を室内実験で確認した。

2. 方法

2.1 ラボスケールでの塩素消毒実験

調査した A 下水処理場は生物処理施設と、管内貯留される合流遮集管を経由して到達する合流式雨水時下水を処理するため高速凝集沈殿処理施設を有している。生物処理施設は、I 系列は凝集剤添加標準活性汚泥法が利用されており、II 系列は凝集剤添加担体利用循環式硝化脱窒法が用いられている。それぞれの系は生物処理系の処理能力を超えると、一部の流量が生物処理されずにバイパス水路を経由して生物処理水と合流し、塩素消毒槽に流入する。一次処理水の晴天時の大腸菌濃度は 10^4 CFU/mL から 10^5 CFU/mL までの範囲であり、二次処理水の晴天時の大腸菌濃度は 10^2 CFU/mL 前後の範囲である。

塩素消毒実験は、2019 年に実験を計 4 回実施した。生物処理への流入水（一次処理水）と放流水（二次処理水）を晴天時に採水して、TN, $\text{NH}_4\text{-N}$, TOC, SS, EC, pH, 濁度、大腸菌、大腸菌群、大腸菌ファージの濃度を測定した。

塩素消毒実験の方法は、一次処理水と二次処理水を異なる割合で混合した試料を調整した。次亜塩素酸ナトリウムを調整した希釈液の遊離塩素濃度を、

Table 1 Experimental conditions and measurement items

| | RUN1 | RUN2 | RUN3 | RUN4 |
|-----------------|--|------|------|------|
| 一次処理水： 二次処理水 | 10:0 | 7:3 | 5:5 | 3:7 |
| 塩素注入率 | 1.0 mgCl/L, 2.0 mgCl/L, 4.0 mgCl/L | | | |
| 採水間隔 | 5分, 10分, 15分 | | | |
| 測定項目 | 大腸菌, 大腸菌群, F-phage, 残留塩素, 遊離塩素, EC, 濁度, SS, TOC, NH ₄ -N, T-N | | | |

HACH 社製の残留塩素計 (ClorimeterTM2) を用いて測定し、設定した遊離塩素濃度になっているかを確認した。次亜塩素酸ナトリウム希釈液を混合した試料に適宜添加した。添加後、振とう器で攪拌 (120 rpm) しながら 5 分, 10 分, および 15 分後に試料を約 15 mL 採水し、直ちに採水容器にはチオ硫酸ナトリウム溶液を添加し、脱塩素を行ったあと微生物濃度を測定した。また、5 分毎に、遊離塩素濃度と残留塩素濃度を測定した。実験条件と測定項目を **Table 1** に示すように、一次処理水と二次処理水を異なる割合で混合させた試料を用いた (RUN1~4)。各 RUN では、1.0 mgCl/L, 2.0 mgCl/L, 4.0 mgCl/L の 3 つの塩素注入率で消毒実験した。塩素との接触時間は、5 分, 10 分, 15 分とした。大腸菌, 大腸菌群は X-MG 寒天培地 (日水製薬) を用いて測定した。試料をリン酸緩衝液を用いて適宜希釈した後、シャーレ 2 枚に 1 mL ずつ入れ、寒天培地と混合した。37 °C に設定したインキュベーターで、18~24 時間倒置培養後に形成されたコロニーを計数し、青色のコロニー数を大腸菌数とした。大腸菌ファージ (F-phage) は、*Salmonella typhimurium* WG49 (以下: WG49) を宿主細菌として用いた。WG49 培養液を添加したものを寒天培地として用い、試料を適宜希釈した後、シャーレ 2 枚に 1 mL ずつ入れ、寒天培地と混合した。37 °C に設定したインキュベーターで、18~24 時間倒置培養後、形成されたプラークを計数した。

2.2 データ分析

(1) 修正 Collins-Selleck モデル

一次処理水中の大腸菌群を対象とした消毒実験 Collins-Selleck モデル⁵⁾で遅滞期を考慮した修正モデルを用いた。まず、 $0.5 \leq \log(CT) \leq 1.5$ の範囲のデータを対象として、不活化速度定数 k を算出した。ここで CT は $[\text{mg} \cdot \text{min}/\text{L}]$ の値である。 $\log(CT) < 0.5$ の範囲が消毒の効果が表れにくい遅滞期 b の範囲とし、 0.5 未満の $\log(CT)$ については対象プロットから除外した。同様に $\log(CT)$ が 1.5 より大きい範囲では、微生物の除去率が限界に達した範囲 (検出下限値未満ではない) であったため、 $\log(CT) > 1.5$ の範囲についても対象プロットから除外した。

(2) 雨天時調査を対象としたシミュレーション

A 下水処理場の塩素消毒槽での滞留時間、塩素注

入率、大腸菌不活化率について整理した結果から、現状の消毒レベルでは、簡易処理放流発生時には、塩素消毒効果が見られないことが判明したため、晴天時放流水レベルまで大腸菌濃度を下げるためには、どれくらいの結合残留塩素が必要であるかを検討した。

塩素注入率は、A 処理場から提供して頂いた NaClO 消費量 $[\text{kg}/\text{day}]$ データと、有効塩素濃度 12% を用いて、単位時間あたりに添加される NaClO 溶液量が一日で一定であると仮定して添加される Cl 注入量 $[\text{mgCl}/\text{h}]$ を算出し、二次処理水量 $[\text{L}/\text{h}]$ で割ることで、塩素注入率 $[\text{mgCl}/\text{L}]$ を算出した。

次に、雨天時に要求される対数不活化率を、簡易処理放流発生時の消毒前の大腸菌濃度 (N) と晴天時の消毒後の大腸菌日平均濃度 (Nf) から算出した。滞留時間は、簡易処理放流発生時における 1 時間毎の塩素混和池の滞留時間は押し出し流れを想定して推定した。必要な塩素量は、対数不活化率と滞留時間から、修正 Collins-Selleck モデル⁶⁾で算出した。

3. 実験結果

3.1 消毒実験の結果

異なる晴天日に採水し、調整した RUN1~4 の水質の測定結果を **Table 2** に示す。塩素注入率が 1.0 mgCl/L では、RUN1 および RUN2 では、接触時間 15 分でも大腸菌はほとんど不活化されなかった。RUN3 および RUN4 では、塩素注入率が 1.0 mgCl/L の 15 分後で、0.7 Log 程度の不活化率を示した。塩素注入率が 2.0 mgCl/L では RUN1~3 では、ほぼ対数軸で線形的に大腸菌濃度が低下していったが、RUN4 では 5~10 分の間に急激に濃度が低下した。塩素注入率が 4.0 mg/L では、どの RUN においても 0~5 分の間で、最も不活化率が高い結果となった。その後 5~10 分の間で除去率がゆるやかになり、RUN2~4 では接触時間 10 分で不活化率が最大に達していた。

RUN1~4 で塩素注入率が 2.0 mg/L, 接触時間 10 分の結果に注目すると、不活化率は RUN1~4 でそれぞれ 1.2 Log, 1.2 Log, 2.1 Log, 2.7 Log であった。

Table 2 Initial water quality of experimental samples (RUNs 1 to 4)

| | RUN1 | RUN2 | RUN3 | RUN4 |
|---------------------------|------|------|------|------|
| 濁度 (NTU) | 47 | 39 | 32 | 26 |
| EC (mS/cm) | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 |
| pH | 6.8 | 6.7 | 6.8 | 6.6 |
| SS (mg/L) | 34 | 79 | 76 | 16 |
| TOC (mg/L) | 41 | 34 | 26 | 23 |
| NH ₄ -N (mg/L) | 11 | 10 | 7 | 5 |
| TN (mg/L) | 14 | 13 | 14 | 10 |
| log 大腸菌 (logCFU/mL) | 4.3 | 4.4 | 4.3 | 4.6 |
| log 大腸菌群 (logCFU/mL) | 5.5 | 5.6 | 5.4 | 5.5 |

同じ接触時間で同じ塩素注入率であっても、不活化率に違いが見られた。一次処理水の割合が高くなるほど、共存成分による消毒の阻害や、塩素消費量が増加したことが原因で、不活化率が低下したと考えられる。一方塩素注入率が2.0 mg/L、接触時間5分の結果に注目すると、不活化率はRUN1~4でそれぞれ0.8 Log, 0.6 Log, 1.1 Log, 0.9 Logで、不活化率に違いはみられなかった。これらの結果から、同じ塩素注入率であっても、接触時間が長いほど、大腸菌不活化率が向上することが確認された。

塩素接触時間の増加に伴うF-phage濃度の変化は、大腸菌や大腸菌群と異なり、F-phageは塩素による消毒効果が全く見られなかった。4.0 mgCl/Lの塩素を添加しても、濃度に変化が見られなかったことから、簡易処理発生時には塩素消毒だけではF-phageの濃度を下げることが困難であると考えられる。現地調査で放流水中からF-phageが検出されたが、ノロウイルスのような病原性のウイルスが含まれていると塩素消毒後も環境中に放流されている可能性が示唆される。今後は塩素消毒に加えて、ウイルスに効果的な処理プロセスを追加する必要があると思われる。

3.2 修正 Collins-Selleck モデルの適用結果

上記のデータ分析方法に従って修正 Collins-Selleck モデルの不活化速度係数 k と遅滞期 b を計算すると、一次処理水の割合が高いほど k が小さくなる傾向が見られ、同じ Log (CT) 値であっても、一次処理水の割合が多いほど、大腸菌の不活化率が低くなる（消毒効果が低くなる）ことを示している。これらの結果から、雨天時で簡易処理放流が発生している下水処理場では、消毒効果が低くなることを示唆している。 b は一次処理水の割合が多いほど増加したが、消毒効果が効き始めるために必要な CT 値が大きいことを意味する。大腸菌群に関しても、大腸菌と同じような傾向である。

Fig. 1 からわかるように、簡易処理放流発生時に晴天時レベルまで大腸菌濃度を下げるには CT 値で 10.5~13.6 [mgCl・min/L] 必要である。

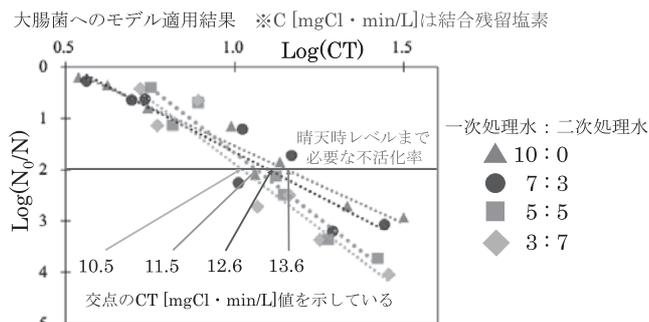


Fig. 1 Application of modified Collins-Selleck model to *E. coli* in test samples

3.3 修正 Collins-Selleck モデルを用いた消毒に必要な塩素濃度の推定

2019年10月21日に簡易処理放流が発生したA下水処理場の塩素消毒槽で簡易処理水量と二次処理水量を推定した。塩素消毒槽の流入水に占める簡易処理水の比率が0.1~0.4の場合はRUN4を、0.4~0.7の場合はRUN3を、0.7~0.9の場合はRUN2を、0.9~1.0の場合はRUN1の修正 Collins-Selleck モデルの結果を用いて、簡易処理放流発生時における必要な残留塩素濃度を推定した。

2019年10月21日の雨天時調査で簡易処理放流が発生した時の塩素消毒槽内の状況と、実験から求めた修正 Collins-Selleck モデルを用いて、簡易処理放流発生時に晴天時レベルまで大腸菌濃度を低下させるのに必要な残留塩素濃度を算出した。その結果、簡易処理放流が発生していた時間帯は、残留塩素濃度を0.10~0.23 mgCl/Lにする必要があることが推定された。ただし、この値は、水中の残留塩素濃度を示しているため、実際には塩素消費量を考慮した添加量が必要と考えられる。また押し出し流れのモデルに従って計算された滞留時間を用いた推定値であるため、現実の雨天時の消毒槽内の滞留時間を今後推定する必要がある⁷⁾。

4. 結 論

大腸菌、大腸菌群は、簡易処理水の混合比率においてもCT値の増加にともない、不活化率が増加するが、同じCT値であっても、簡易処理水の割合が高いほど、不活化率が低下する結果となった。しかし、大腸菌ファージについては、実験範囲では消毒効果が確認されず、塩素消毒では簡易処理放流に対しては効果を持たないと推定された。

修正 Collins-Selleck モデルの不活化速度定数 k と遅滞期 b は、簡易処理水の割合が高いほど k は小さく、 b は大きくなる傾向が見られた。簡易処理放流発生が観測された時に、晴天時放流水レベルまで大腸菌濃度を下げるのに必要な残留塩素濃度は、0.10~0.23 mgCl/L という結果が得られたが、実際は塩素消費量や滞留時間の不均一性を考慮した塩素注入率とする必要がある。

謝 辞

本研究はA下水処理場の関係者の方々の協力と(株)日立製作所の支援によって実施できたものであり、ここに深く感謝の意を表します。またJST未来社会創造事業、下水道振興基金、国土交通省B-DASH (FS調査)からの支援を受けて実施しました。

参考文献

- 1) 国土交通省 合流式下水道の改善対策に関する調査報告書
- 2) 国土交通省都市・地域整備局下水道部財団法人下水道新技術推進機構合流式下水道の改善対策に関する調査報告書 平成14年3月
- 3) 国土交通省都市・地域整備局下水道部中央環境審議会水環境部会総量削減専門委員会（第2回）ヒアリング資料, 2014年12月25日, <http://www.env.go.jp/council/09water/y0917-02/mat02.pdf> 2020年9月8日最終アクセス
- 4) 松葉祐亮, 田中景介, 西田佳記, 圓佛伊智朗, 山下尚之, 田中宏明, 雨天時の下水処理場における指標微生物の制御に関する基礎検討, 学会誌 EICA23(2/3) 47-51, 2018年
- 5) Robert E. Selleck: Kinetics of Bacterial Deactivation with Chlorine, Journal of the Environmental Engineering Division, 1978, Vol. 104, Issue 6, Pg. 1197-1212
- 6) Harvey F. Collins: Problems in Obtaining Adequate Sewage Disinfection, Journal of the Sanitary Engineering Division, 1971, Vol. 97, Issue 5, Pg. 549-562
- 7) 浅野 孝他 (監訳), 水再生利用学 —— 持続可能社会を支える水マネジメント —— 塩素接触槽の水理的性能の評価 11.3.10 p500, 技報堂出版, 2010年