

## 7. 処理水・再生水の衛生学的リスク制御技術の評価に関する調査

下水処理研究室 室長 山下 洋正  
主任研究官 重村 浩之  
研究官 小越 眞佐司  
研究官 板倉 舞  
交流研究員 前田 光太郎

### 1. はじめに

現在、下水処理場からの放流水の衛生学的指標として大腸菌群数が用いられているが、糞便性汚染を示す指標として妥当性が低いことが指摘されている。環境基準（生活環境）では、新たな衛生学的指標として糞便性汚染との関連性が高い大腸菌数への変更検討が行われている。一方で、下水処理場の既存消毒施設では、大腸菌群数の制御を念頭に運転管理されており、大腸菌の除去効果については改めて把握する必要がある。

また、新たな指標の基準値を検討する際には、これら実態調査に加えて、新たに大腸菌数の基準値を設定した場合に、基準値に応じて衛生学的リスクがどの程度に制御されるのかといったリスク評価の観点を踏まえた基準値設定の考え方について整理を行う必要がある。再生水利用に関する国際企画の開発が ISO/TC282 において 2014 年より進められていることを踏まえ、再生水利用のリスク及び処理技術の性能評価についての検討が急務である。

本報では、2 章に塩素消毒施設の運転条件による大腸菌と大腸菌群の除去効果の調査結果、3 章に再生水利用における衛生学的リスク評価および処理技術のコスト・エネルギー消費に関する検討結果について報告する。

### 2. 塩素消毒施設の運転条件による大腸菌と大腸菌群の除去効果の調査

#### (1) 現地調査

平成 27 年 11 月より平成 28 年 1 月にかけて、4 つの下水処理場 A～D（水処理：標準活性汚泥法）で 5 回の塩素消毒施設調査（A 処理場 2 回）を行った。下水処理場の処理水（消毒前）と放流水（消毒後）を採水した。分析項目として水温、pH、浮遊物質（SS）、COD<sub>Mn</sub>、TN、溶解性 TN、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、大腸菌群数（デソキシコール酸塩培地平板培養法）と大腸菌数（コリラート QT トレー最確数法とクロモアガー-ECC 培地平板培養法）を測定した。放流水は残留塩素も測定した。大腸菌群中の大腸菌その他の菌の存在割合の確認のため、大腸菌群数のコロニーより 20 個ランダムに抽出し IMViC 試験を行った。

現地塩素消毒実験の運転条件を確認するため、調査時に各処理場で用いている次亜塩素酸ナトリウム溶液の有効塩素濃度と塩素消毒施設の滞留時間の確認を行った。塩素消毒施設の滞留時間は有効容積を流量で除することで算出した。有効容積は竣工図書等の諸元値と調査時の実水深より算出した。流量は実塩素混和池断面積に実流速を乗ずることで算出した。流速は電磁流速計（AEM-1D、JFE アドバンテック製）を用いて計測した。流速は水深方向、水路横断方向に対して 50cm 間隔で測定し、平均値を測定地点の流速とした。複数の測定地点で流速を測定した場合、測定地点全体の平均を塩素混和池の流速とした。

#### (2) 大腸菌・大腸菌群の塩素消毒実験

塩素消毒実験は処理水を用いて、現地の処理状況を模擬した現地実験及び塩素注入率を変化させた現地外実験を実施し、残留塩素、大腸菌数および大腸菌群数の測定を行った。

現地実験は、1L ポリ瓶に処理水 0.5L を入れ、現地運転条件に合わせて、現地の次亜塩素酸ナトリウム溶液を添加し、手動にて穏やかに攪拌した。攪拌時間は各処理場の滞留時間となるように調整した。

現地外試験は、0.5L ポリ瓶に処理水を 0.4L 入れ、A1、B、C 処理場は塩素濃度が 1.0、2.0、3.3、5.3mg/L、A2、D 処理場は塩素濃度が 0.2、0.5、0.8、2.0mg/L となるように次亜塩素酸ナトリウムを添加した（A1 処理場と A2 処理場は同一の A 処理場）。攪拌は手動にて穏やかに 15 分間行った。

### (3) 現地調査の結果

現地調査時の各処理場の水質分析結果と運転条件を表 1 に示す。大腸菌群数および大腸菌数の測定結果ならびに大腸菌群中の大腸菌その他の菌の存在割合を図 1 に示す。図 1 (a)より、処理水中の大腸菌群数は 75～1,700CFU/ml であり、放流水基準の 3,000 個/cm<sup>3</sup> 以下を満たしていた。大腸菌数はクロモアガー-ECC42～90CFU/ml、コリラートで 23～93MPN/ml であった。処理水中の大腸菌群数と大腸菌数の測定結果は既存報告<sup>1)2)</sup>と同等の存在量であった。放流水中の大腸菌群数は定量下限値～490CFU/ml であった。大腸菌数はクロモアガー-ECC で定量下限値～41CFU/ml 程度、コリラートで 6～57MPN/ml であった。

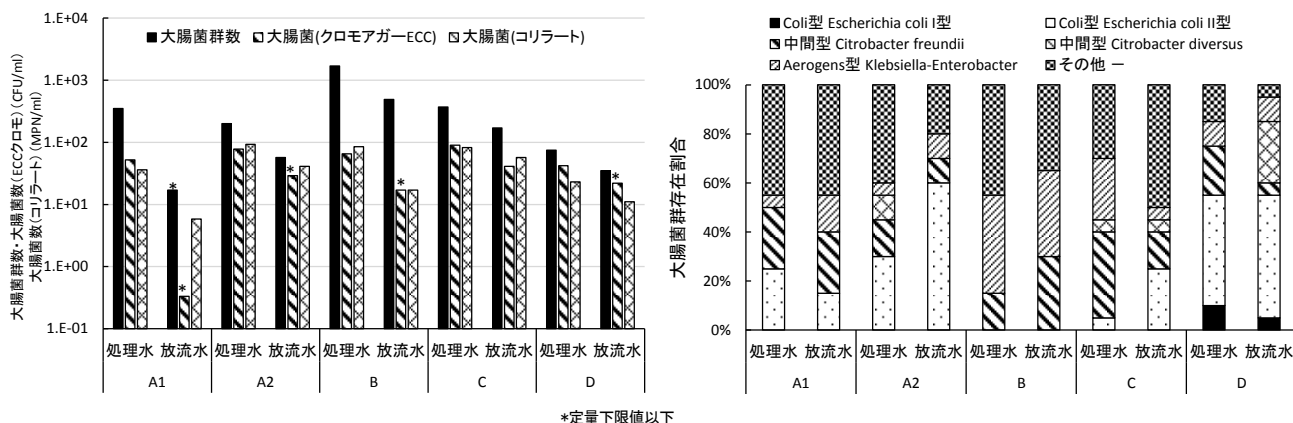
除去率については、大腸菌群数は 53～95%、大腸菌はクロモアガー-ECC で 48～99%、コリラートで 30～84% であった。各塩素消毒施設の運転条件（滞留時間と塩素注入率の積 CT 値）と大腸菌・大腸菌群の除去率との間で単純な関係性は見出せなかった。また、A 処理場は測定日でも除去率が異なっており、塩素注入率が高く滞留時間が長い 2 回目の調査で、大腸菌・大腸菌群の除去率が低下していた。原因としては、処理水の水温が低いことや SS 濃度が高い<sup>3)</sup>こと等が考えられ、運転条件だけでなく処理水水質も除去効果に影響することが示唆された。

大腸菌群に対する大腸菌の割合については、処理水は 4～56%（既存報告<sup>1)</sup>：10～25%）、放流水は 2～65%（既存報告<sup>1)</sup>：3～10%）となっており、既存報告<sup>1)</sup>と異なる結果となった。また、IMViC 試験を用いて塩素消毒施設の菌叢の変化を確認した結果、処理場や調査日によって処理水および放流水の菌叢は異なっており、塩素消毒による菌叢の変化の傾向も処理場や調査日で異なっていた。Ward ら<sup>4)</sup>は大腸菌の菌株によって塩素消毒の効果が異なることを報告していることから、大腸菌と大腸菌群のその他の代表的な細菌（*Citrobacter freundii* 等）とにおいては塩素消毒の効果の大小関係は一定ではないと考えられた。

表 1 塩素消毒施設の水質分析結果と運転条件

処理場	処理水 放流水	水温 (°C)	SS (mg/l)	COD <sub>Mn</sub> (mg/l)	残留塩素濃度(mg/l)			NH <sub>4</sub> -N (mg/l)	実測値		現地確認		推定値		除去率			
					全塩素	遊離塩素	結合塩素		流速 (m/s)	有効塩素 濃度(%)	塩素注入 率(l/h)	有効容積 (m <sup>3</sup> )	流量 (m <sup>3</sup> /h)	滞留時間 (min)	mg-Cl/L	CT値	大腸菌群	大腸菌 (ECCクロモ)
A1	処理水	20	2	8	—	—	—	0.6	0.028	5.5	27	220	670	19.7	2.2	43	95%	99%
	放流水	20	<1	8	0.22	0.05	0.17	1.2										
A2	処理水	16	4	11	—	—	—	1.7	0.024	6.4	30	220	570	23.2	3.4	79	72%	63%
	放流水	16	2	10	0.23	0.12	0.11	3.4										
B	処理水	24	12	12	—	—	—	0.4	0.115	5.8	12	740	2570	17.3	0.27	4.7	71%	74%
	放流水	23	3	9	0.19	0.13	0.06	< 0.1										
C	処理水	19	3	8	—	—	—	0.4	0.174	12	22	1800	5760	18.8	0.46	8.6	54%	54%
	放流水	19	3	8	0.1	0.07	0.03	0.4										
D	処理水	18	2	8	—	—	—	< 0.1	0.123	15	12	1200	3220	22.4	0.56	13	53%	48%
	放流水	18	2	8	0.1	0.05	0.05	< 0.1										

\*結合塩素濃度=全塩素濃度-遊離塩素濃度



(a) 大腸菌群数および大腸菌数測定結果

(b) 大腸菌群中の大腸菌等の存在割合

図 1 測定結果

本調査より、処理場や調査日によって処理水水質や大腸菌群の菌叢が異なっており、塩素消毒施設の運転条件（塩素注入率と滞留時間）と大腸菌群除去効果のみから大腸菌の除去効果を単純に推定することは難しいと考えられた。

#### (4) 大腸菌・大腸菌群の塩素消毒実験の結果

塩素消毒実験における大腸菌と大腸菌群の対数生残率を図2に示す。なお、本実験では実処理水を用いて行ったため、大腸菌・大腸菌群の生残率曲線には定量下限値以下のデータも含まれている。また、C 処理場の塩素消毒実験では大腸菌が不検出であったため対数生残率曲線の傾きを算出しなかった。CT 値に対する生残率曲線の傾きは、大腸菌（クロモアガー-ECC）が $-0.028 \sim -0.074$ 、大腸菌群は $-0.018 \sim -0.108$ となった。大腸菌と大腸菌群の傾きの差は0.35~1.6倍程度とばらつきが見られた。従って、大腸菌と大腸菌群の塩素消毒効果は現地調査と同様に処理水質や大腸菌の菌叢等によっても異なり単純な関係性を見出し難いと考えられた。

B 処理場は他の処理場と比較して大腸菌と大腸菌群数とも生残率曲線の傾きは緩やかであった。原因としては、処理水のSSが高かったこと等が考えられ、既存報告<sup>3)</sup>においてもSSが塩素消毒に影響を及ぼすことが報告されている。

### 3. 再生水利用における衛生学的リスク評価および処理技術のコスト・エネルギー消費に関する検討

#### (1) 下水処理水再利用におけるノロウイルスの衛生学的リスク評価と必要除去率の算出

再生水利用 3 ケース（水洗トイレ用水利用、修景用水利用、親水用水利用）を対象に、許容される年間感染確率として $10^{-3}$ 、 $10^{-4}$ 、 $10^{-5}$  人 $\cdot$ 年 $^{-1}$ の3段階設定し、それぞれの達成にあたり必要となるノロウイルス除去率を求めた。

流入水・二次処理水中の病原微生物濃度の推定には、「下水道におけるウイルス対策に関する調査委員会報告書」<sup>5)</sup>で調査された国内 18 ヶ所の下水処理場流入水中のノロウイルス GII の濃度データを用いた。流行期（11月~3月）、非流行期（4月~10月）の濃度の推定を行った。処理場流入水濃度は、流行期、非流行期のそれぞれで濃度が対数正規分布に従うと仮定し、母数の推定を行った。濃度の対数を横軸に、非超過確率を縦軸にして正規確率紙上にプロットすると直線関係が示され、直線近似の相関係数が95%以上であったことから、対数正規分布に従

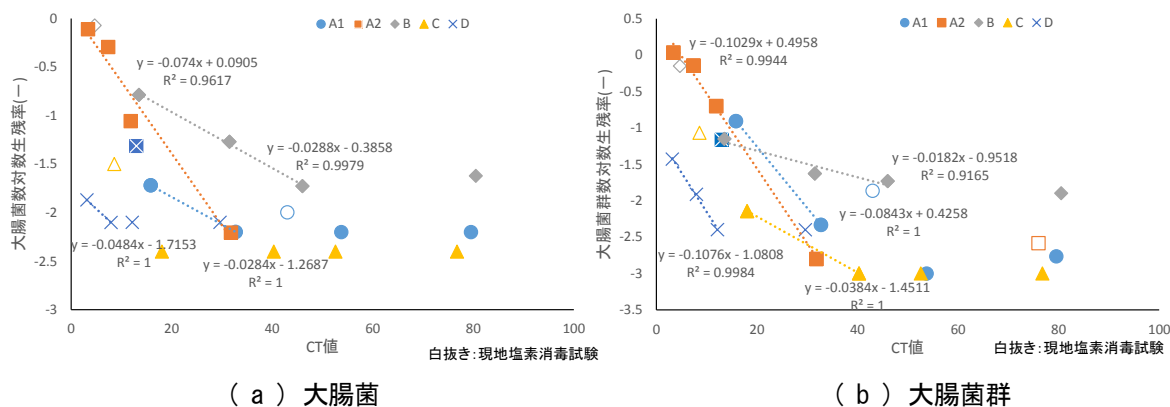


図2 塩素消毒実験における大腸菌と大腸菌群の対数生残率

表2 処理場流入水および二次処理水のノロウイルス濃度

		対数 ln (X)		幾何平均 $\mu$ (copies/L)
		平均	標準偏差	
処理場流入水	流行期 11月~3月	13.6	2.19	$7.83 \times 10^5$
ノロウイルス濃度	非流行期 4月~10月	9.45	2.56	$1.28 \times 10^4$
処理場二次処理水	流行期 11月~3月	7.61	2.19	$2.01 \times 10^3$
ノロウイルス濃度	非流行期 4月~10月	3.49	2.56	$3.28 \times 10^1$

うとして取り扱って良いと判断した。回帰式の累積確率 50%（ノロウイルス濃度データの 50 パーセンタイル値）に対応する濃度を幾何平均  $\mu$  とした。また、対数値の標準偏差は縦軸をノロウイルスの濃度データの対数値、横軸を濃度データの対数値の正規化値（濃度データの非超過確率について標準正規化分布の累積分布関数の逆関数）をプロットしたときの傾きより算出した。次に、下水二次処理水におけるノロウイルス濃度の幾何平均  $\mu$  を算出した。ここで、二次処理プロセスは標準活性汚泥法（消毒の効果は含まない）とし、除去率は  $2.59 \log(99.7\%)$ <sup>5)</sup> とした。以上より、ノロウイルス濃度の幾何平均  $\mu$  は、流行期において  $2.01 \times 10^3$  copies/L、非流行期において  $3.28 \times 10^1$  copies/L と算出された（表 2）。

下水処理水再利用における水利用用途は、水洗トイレ用水利用、修景用水利用、親水用水利用の 3 ケースとした。各利用用途における曝露頻度および摂取量は、表 3 の通り設定した。親水用水利用は、夏季に利用が集中するものとして流行期は設定せず全て非流行期に含めた。

衛生学的リスク値の試算は、モンテカルロ法と式(1)に示す用量反応モデルを用いた。

$$P = 1 - (1 + D/\beta)^{-\alpha} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、P は 1 回暴露したときの感染確率、D は用量（暴露するノロウイルス粒子数）であり、パラメーターは  $\alpha=0.631$ 、 $\beta=6.5 \times 10^5$  と設定<sup>6)</sup>した。

表 4 には、年間感染確率  $10^{-3}$ 、 $10^{-4}$ 、 $10^{-5}$  を満たすために必要な二次処理後のノロウイルス除去率について、再生水利用用途別に算出した結果を示したものである。どの感染確率に対しても、1 回当たりの摂取水量が大きく曝露頻度も高い親水利用で最も高いノロウイルス除去率が必要となり、以下、水洗トイレ用水利用、修景用水利用となった。水洗トイレ用水利用、修景用水利用の場合には、感染確率  $10^{-3}$  において、下水処理水の再生処理は必要なく、親水利用においては、50%程度の除去率（ $0.3 \log$ ）が必要と算出された。

(2) 必要なノロウイルス除去率を達成しうる処理・消毒フローの選定

表 4 の年間感染確率  $10^{-4}$  に相当するノロウイルス除去率（どの用途においても達成できる  $1.3 \log$  以上）を満たす処理・消毒フローを表 5 に示す。なお、処理・消毒の運転条件の組合せは、(I) 消毒単体の処理フロー、(II) 急速ろ過法+消毒を含む処理フロー、(III) オゾン処理法を含む処理フロー、(IV) 膜ろ過法を含む処理フローの 4 種類をベースに、下水道統計（平成 24 年版）や自治体での実態を踏まえて抽出した。急速ろ過等の処理プロセスと組み合わせることで、低い消毒強度においても除去率を達成することが出来る。また、より高い除去率を得るためには、オゾン処理プロセスや膜処理プロセスを採用することが効果的であることが分かる。

(3) 再生水処理フロー毎のコスト・エネルギー消費量

コスト試算にあたっては、単位プロセスについて導入実績やメーカーヒアリングをもとに基本的な設計諸元を与え、これらを組み合わせた処理・消毒フロー毎に建設費・維持管理費を計算した。建設費の内訳は、土木工事費、建築工事費、機械工事費、電気工事費とし、維持管理費の内訳は、電力費、薬品費、補修費、主要部品交換費と

表 3 再生水利用用途別の曝露頻度・摂取水量

利用用途	被曝露者	曝露形態	曝露頻度		1回当たりの摂取水量 (mL/日)
			流行期 (日)	非流行期 (日)	
水洗トイレ用水利用	勤労者	飛沫による接触	108	152	0.1
修景用水利用	公園利用者	ミストを吸い込む	4	6	1.0
親水用水利用	公園利用者	水遊び	0	100	10.0

表 4 所定の年間感染確率を満たすために必要な二次処理後のノロウイルス除去率 (log)

用途	年間感染確率 (人 <sup>-1</sup> ・年 <sup>-1</sup> )		
	$10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-5}$
水洗トイレ用水	0.0	0.7	1.7
修景用水	0.0	0.5	1.5
親水用水	0.3	1.3	2.3

した。エネルギー消費量は、ポンプ等各設備の運転時の電力消費量とした。コスト・エネルギーの試算規模は処理水量 1,000、5,000、10,000、20,000 m<sup>3</sup>/日とし、流行期、非流行期の双方を含む通年利用（通年運転）とした。

試算結果の一例として、図3に処理水量が 5,000m<sup>3</sup>/日のときの建設費、維持管理費、電力量を示す。凝集沈殿プロセスとオゾン処理プロセスを組み合わせたフローや MF 膜プロセスと逆浸透膜プロセスを組み合わせたもので

表5 再生水処理フロー

処理フロー		対数除去率
I	a 塩素消毒②	2.3
	b 紫外線消毒	3.0
II	a 急速ろ過法 → 塩素消毒①	1.8
	b 急速ろ過法 → 紫外線消毒	3.9
	c 急速ろ過法 → オゾン消毒	2.9
	d 急速ろ過法 → オゾン処理法 → 塩素消毒①	3.8
III	a 凝集沈殿法 → 急速ろ過法 → オゾン処理法	4.9
	b 凝集沈殿法 → オゾン処理法 → 急速ろ過法 → 塩素消毒①	5.8
IV	a 急速ろ過法 → 膜ろ過法(MF) → 塩素消毒①	4.1
	b 凝集剤添加 → 膜ろ過法(MF) → 塩素消毒①	4.2
	c 急速ろ過法 → 膜ろ過法(MF) → 逆浸透膜法(RO)	9.2

塩素消毒①：注入率 3mg/L、塩素消毒②：注入率 4mg/L どちらも接触時間 15分を想定。  
紫外線照射量700mJ/cm<sup>2</sup>、オゾン注入率10mg/Lを想定。

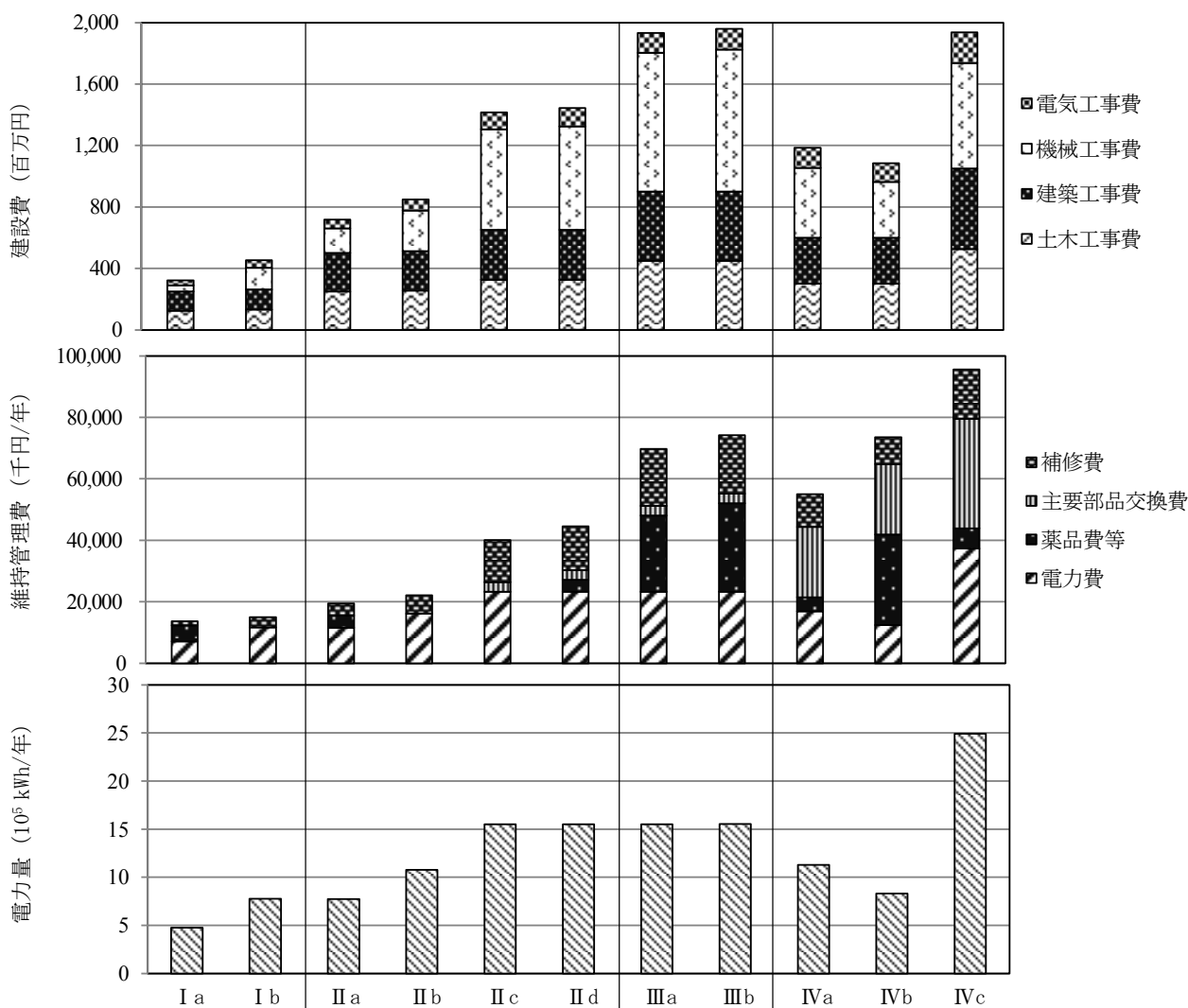


図3 再生水処理施設の建設費・維持管理費・電力量（日量 5,000 m<sup>3</sup>）

建設費が高くなる一方、電力消費量については、逆浸透膜（RO）を含むプロセスが最も大きく、次にオゾン処理を含むプロセスという試算結果となった。また、消毒方法の違い（急速ろ過+塩素消毒①（Ⅱa）、急速ろ過+紫外線消毒（Ⅱb）、急速ろ過+オゾン消毒（Ⅱc））によるコスト・エネルギー消費量を比較すると、建設費および電力消費量は、塩素消毒、紫外線消毒、オゾン消毒を含むフローの順で高くなる一方で、維持管理費は塩素消毒と紫外線消毒は同程度である。これは、紫外線消毒は電力費がかかる一方で、塩素消毒は薬剤費がかかるためであると考えられる。なお、本検討の試算では、維持管理の person 費、水質分析等のモニタリング費用などが含まれないことに注意する必要がある。

オゾン消毒には消毒効果の他に脱臭・脱色といった再生水利用にも適した複合的な効果がある。また修景用水においては残留塩素の生物への影響に留意が求められる場合もある等、技術ごとに特徴があることもふまえ、導入技術の選定にあたっては多様な効果と費用を総合的に評価する必要がある。

#### 4. まとめ

（1）塩素消毒施設の運転条件による大腸菌と大腸菌群の除去効果の調査について

- ・各下水処理場の塩素消毒施設の運転条件（滞留時間や塩素注入率等）と大腸菌・大腸菌群の除去効果について、単純な関係性は見出せなかった。
- ・下水処理場や調査日によって処理水水質や処理水中の大腸菌・大腸菌群のその他の菌の菌叢が異なっており、また、大腸菌と大腸菌群のその他の代表的な細菌とにおいては塩素消毒の効果の大小関係は一定でないことが考えられたことから、処理水水質および流入する大腸菌・大腸菌群のその他の菌種が塩素消毒施設の除去効果に影響を与えることが示唆された。

（2）再生水利用における衛生学的リスク評価および処理技術のコスト・エネルギー消費に関する検討について

- ・再生水利用において、1回あたりの摂取水量が大きく曝露頻度も高い親水用水利用で最も高いノロウイルス除去率が求められた。
- ・急速ろ過等の処理プロセスと組み合わせることで、低い消毒強度においても年間感染確率  $10^{-4}$  に相当する除去率を達成することが出来る。また、より高い除去率を得るためには、オゾン処理プロセスや膜処理プロセスを採用することが効果的であることが分かった。

#### 参考文献

- 1) 藤井都弥子, 小越眞佐司, 對馬育夫, 原田一郎: 下水処理水中における大腸菌数の変動調査, 第 50 回下水道研究発表会公演集, 352-354, 2013
- 2) 小川雅道, 伊藤恵一, 一戸直之: 大腸菌試験方法の検討, 第 52 回下水道研究発表会公演集, 1034-1036, 2015
- 3) 日本下水道事業団技術開発部, 最近の消毒技術の評価に関する報告, 1997
- 4) Ward NR, Wolfe RL, Olson BH: Effect of pH, Application technique, and chlorine-to-nitrogen ratio on disinfectant activity of inorganic chloramines with pure culture bacteria, Appl. Environ. Microbiol., 48, pp. 508-514, 1984
- 5) 国土交通省, 下水道におけるウイルス対策に関する調査委員会報告書, 2010
- 6) Teunis, P. F. M., Moe, C. L., Liu, P., Miller, S. E., Lindesmith, L., Baric, R. S., Pendu, Le J. and Calderon, R. L. : Norwalk Virus: How Infectious is it?, J. Med. Virol., 80, pp.1468-1476, 2008
- 7) 南山瑞彦, 吉澤正宏, 山縣弘樹, 山中大輔: 再生水利用の促進に関する調査, 平成 18 年度下水道関係調査研究年次報告書集 (国総研資料 第 404 号), pp.25-30, 2007
- 8) 森脇隆一, 中野善彰, 中島英一郎, 小塚俊秀: 各種消毒技術の経済比較に関する調査, 第 52 回下水道研究発表会講演集, pp.305-307, 2014.