

# 下水処理水の紫外線消毒装置 に関する調査研究

## 1. 目的

下水処理水の衛生学的安全基準として、水質汚濁防止法による放流基準が大腸菌群数3,000個/ml以下と定められている。この基準を達成するため下水道施設設計指針には塩素消毒法が記載されており、国内のほとんどの下水処理場が本法により対応している。しかしながら、処理水再利用、あるいは修景用水等の放流先での利用が進められる中で、塩素消毒に特有の現象が問題とされ、各種の代替消毒方法が検討されている。

本研究は愛知県矢作川流域下水道・矢作川浄化センターにおいて、このような塩素消毒法の問題点を回避するため紫外線消毒法を用いることを前提として、消毒施設整備方針を決定することを最終目的とする。この為、消毒方法及び処理水の安全性について調査し、水処理施設内におけるデータを採取・解析する。

平成5年度は、下水処理水の消毒方法、安全性指標、副生成物等に関する既存文献を収集・調査する事により、調査の指標、調査内容を検討し次年度以降の実規模の試験装置による調査計画を立案する。

## 2. 下水処理水の消毒方法

### 2.1 概論<sup>8) 10) 11) 16) 23) 24)</sup>

下水処理水の消毒法として、塩素消毒法が多用されているが、次の様な問題点が指摘されており、紫

外線、オゾン、二酸化塩素、クロラミン等の代替消毒法が検討されている。

- (1) 遊離残留塩素及びクロラミン等の結合残留塩素による水生生物に対する影響  
トリハロメタン等の有機塩素化合物の生成
- (3) 塩素耐性が大腸菌より強いウィルス・寄生虫等による衛生学的危険性

代替消毒法の内、クロラミンは米国の浄水分野で多用されているが、水生生物への影響があり本調査の目的に反するので除外し、その他の消毒方法についての概要の比較を表1に示す。

### 2.2 消毒法各論<sup>2) 5) 6) 8) 9) 10) 11) 16) 17) 19) 24)</sup>

#### 2.2.1 塩素消毒法

塩素消毒法は、残留効果があり比較的安価で、次亜塩素酸塩を用いる場合には安全で取扱いが容易であるといった長所があり、ほとんどの下水処理場で消毒に用いられている。このうち、約70%が塩素平均注入率2 mg/l以下で運転しており、また60%以上が、次亜塩素酸ナトリウムを用いている。

水中に注入された塩素は、次亜塩素酸または次亜塩素酸イオンを生成し、さらに水中にアンモニアが存在すると次亜塩素酸がアンモニアと結合してクロラミンを生成する。次亜塩素酸と次亜塩素酸イオンは遊離残留塩素と呼ばれ、クロラミン等は結合残留塩素と呼ばれる。また、残留塩素がフミン酸等の有機物と結合しトリハロメタン等の有機塩素化合物を生成する。

これら残留塩素及び有機塩素化合物生成の問題を回避するため、塩素消毒後の脱塩素処理が検討されている。ただし、この方法は亜硫酸ナトリウム等の脱塩素剤がCODの原因物質ともなるので、注入率を残留塩素濃度に追従して正確に調節する必要があり、維持管理性に問題がある。

塩素消毒に関しては次の問題点が指摘されている。

(1) 残留塩素の水生生物に対する毒性

残留塩素の水生生物に対する毒性は、遊離型と結合型ではほぼ同じであるといわれており、EPAは水生生物を守るための残留塩素濃度として、0.03mg/ℓ以下にする必要があるとしている。また、日本水産資源保護協会は、残留塩素の水生生物に対する影響を表2のように示している。

(2) クロラミンの影響

水生生物の生育に対する下水処理水の影響について種々の調査がされており、塩分、隣窒素等の栄養塩濃度、残留塩素濃度によっても正負両方の影響を受ける。中でも水産養殖生物の中で国内生産量が最も多い海苔に対し、クロラミンは0.002

mg/ℓ (Cl<sub>2</sub>として) 程度の微量でも生育阻害を起すことがあると報告されている。クロラミンはアンモニアと遊離塩素が反応し生成するので、アンモニア性窒素濃度を低減すればクロラミンの生成を少なくできるが、アンモニア性窒素濃度を0.1mg/ℓ以下に減少させないとクロラミンによる海苔の生育阻害が起ると報告されている。

(3) 有機塩素化合物

フミン酸等の有機物と塩素が結合しトリハロメタン等の有機塩素化合物を生成する。これと共に下水流入水に起因する有機塩素化合物も含めて検討する必要がある。

(4) ウィルス等の病原性微生物の塩素消毒耐性

細菌、ウィルス、寄生虫等の病原性微生物の塩素消毒に対する抵抗力には大きな差がある。

消化器系病原性細菌は大腸菌に比べ塩素消毒に対する抵抗力が小さいため、大腸菌群を安全指標として用いてきた。しかし、腸球菌、ポリオウィルス、コクサッキーウィルス、寄生虫等は大腸菌より塩素消毒に対する抵抗力が大きく、大腸菌群

表1 消毒方法の比較

比較項目	塩素	二酸化塩素	オゾン	紫外線
規模	全規模	中・小	全規模	中・小
信頼性	良	不明	ほぼ良	ほぼ良
運転制御技術	開発済	未開発	ほぼ開発済	一部開発中
技術的複雑さ	やや容易	普通	複雑	やや容易
取扱いの安全化	要注意	要注意	やや要注意	安全
ウィルス不活性化	やや劣る	良	良	良
有害物質副生成	有り	有り	やや要注意	無し
残留性	長い	中	無し	無し
接触時間	長い	長い	中	短い
アンモニアとの反応	有り	無し	有り(アルカリ)	無し
色度除去	少し有り	有り	有り	無し
溶解物質の増加	有り	有り	無し	無し

表2 残留塩素の生物への影響<sup>28)</sup>

供試生物	実験結果	mg/ℓ
鯉	12~16日間25%斃死	遊離 0.15 ~ 0.2
ヤマメ 9~12cm	致死極量	遊離 0.2
	嫌忌極量	遊離 0.02
コアユ 7.8cm	24時間100%致死	遊離 0.28 ~ 0.3
海産稚鮎 1.3g	16時間致死濃度	遊離 2.3
	50時間致死濃度	遊離 0.56
ミジンコ	72時間致死濃度	遊離 0.5
藻類	繁殖規制に用いる濃度	遊離 0.25 ~ 0.3

が基準以下であっても、衛生的危険性が全く無いとは言えない場合がある。

## 2. 2. 2 紫外線消毒法<sup>1) 4) 11) 16) 18) 24) 26)</sup>

下水処理水の紫外線消毒法は前述の塩素消毒法の問題点を解決すべく、1970年代から研究開発が行われてきた。

紫外線照射による消毒は、細胞内の核酸に紫外線が吸収された時に生ずる光化学反応により核酸が損傷され、その複製能を失うことによる。核酸を構成するアミノ酸の紫外線の最大吸収波長は250～265 nmにあり、この範囲の波長の紫外線を効率的に発生するランプが使用されている。

紫外線消毒は、残留物質が存在せず、副生成物が生成しにくく、過剰注入ということが起こり得ない等の長所があるが、次のような問題点もある。

### (1) 光回復

紫外線照射により損傷を受けた核酸が、近紫外線または可視光線の存在のもとで光回復酵素により損傷を回復する現象を光回復と称している。糞便性大腸菌等多くの微生物がこの能力を持つが、ウィルス、バクテリオファージには、この能力がないものと報告されている。米国EPAの報告では、光回復により細菌数は消毒直後より1桁増加することを見込むべきであり、システム性能が、3logの消毒を必要とする場合には、光回復の最高値を見込んで4.5logの低減として安全側に容量設定するように指示している。

### (2) 紫外線ランプ

紫外線消毒に使用されるランプは内部の水銀ガスの圧力により、低圧水銀ランプと中圧水銀ランプに分けられる。低圧水銀ランプは大部分が253.7 nmの波長の紫外線であるので投入動力当たりの消毒効率が良いが、高出力ランプが無いと多数のランプを使用しなければならない。中圧水銀ランプはより広範囲の波長の紫外線を発生するので投入動力当たりの消毒効率は低い、高出力のランプが有るため、大容量の場合でも使用本数が少なく済む。従って、処理の条件に応じた適切なランプの選定が必要である。

### (3) 処理水水質

紫外線は水中に存在する紫外線吸収物質及び懸濁物質により照射強度が減衰する。また、懸濁物質に付着または包み込まれている微生物に対する消毒効果も問題となる。この為、紫外線透過率の低い水は消毒効率が低下するので、砂ろ過などの十分な前処理工程が必要である。

### (4) 紫外線ランプの汚れ

紫外線ランプを保護している石英管の汚水接触面に形成される汚れにより効率が低下するため、清掃方法が問題となる。汚れにはカルシウム・マグネシウム等の炭酸塩を主体とする無機物と、油脂等の有機物とがあり、それぞれに対する洗浄方法の確立が必要である。

### (5) モニタリング

塩素消毒方法の場合は残留塩素濃度が消毒効果判定の指標となるが、紫外線の場合には残留物質がないため、ランプの劣化・故障・汚れ等の点検、紫外線照射量の測定等を行うモニタリング装置による消毒効果の監視が必要である。

### (6) 紫外線感受性

各種病原性微生物の紫外線に対する感受性、耐性は大きく異なり、ポリオウィルスの場合、糞便性大腸菌の3～4倍の照射量が必要であるとの報告がある。従って、1つの指標だけで安全性を評価することは問題があり、糞便性大腸菌の他、ウィルスまたはその代替指標等を評価指標として加える必要がある。

### (7) 損失水頭の増加

既設設備に紫外線消毒設備を付加する場合には、紫外線ランプ等により損失水頭が増加するため放流先との関係を見直さなければならないことがある。

## 2. 2. 3 オゾン消毒法<sup>3) 7) 11) 12) 13) 14) 15) 16) 19) 20) 21)</sup>

オゾンはその強力な酸化力から、消毒だけでなく脱色・脱臭・有機物酸化等にも適用が進められている。オゾンによる消毒は、細胞膜の破損による生物機能の阻害や核酸の損傷等によるものであり、単に有機物の酸化による効果だけではないとされている。オゾンは、消毒効果だけでなくTHM前駆物質の減少等の長所もあるが、次のような問題点もある。

### (1) 副生成物

有機物酸化の結果ホルムアルデヒド等の有機物が生成される場合がある。また、難分解性有機物が分解された結果CODが増加することがある。

### (2) 発泡性

通常は有機物の酸化により発泡性が減少するが、界面活性剤に捕捉されていた有機物が分解され、かえって界面活性剤が活性化され、発泡性が増す場合がある。

### (3) 処理水水質

オゾンの消毒効果は水中に存在する懸濁物質、有機物、pH等により影響を受ける。特にCOD・アンモニア性窒素の存在はオゾンを消費してしまうため、必要注入量が増加する。この為、処理水

水質に応じた適切なオゾン注入量の管理が重要である。

#### (4) 排ガス処理

オゾンは塩素ガスと同様人体に有害であり、注入オゾンは完全には溶解せず排ガス中に排出されるので、排ガス処理設備が必要である。また、注入設備からのオゾンガスの漏れなどがないよう維持管理に注意が必要である。

#### (5) 密閉処理

オゾン接触槽は排ガス処理の関係から密閉槽にしなければならない。既存塩素混和池をオゾン接触槽に改造する場合、改造方法が問題になる場合がある。

#### (6) オゾン耐性

各種病原性微生物のオゾンに対する耐性は異なり、細菌は種類による差があまりなく、バクテリオファージはオゾン注入率の増大に対する生存率の低下が小さくオゾン耐性が高いが、ポリオウィルスは耐性が非常に低いとの報告がある。

## 3. 下水処理水の安全性に係る指標

### 3.1 概論

下水処理水の安全性を確保するため、有機物、浮遊物質、富栄養物質（窒素・磷）、有害物質（重金属・有機塩素化合物等）、その他の指標が用いられ、衛生学的安全性に関わる指標としては大腸菌群数が用いられている。

しかし、下水の高度処理と処理水再利用が進められる中で、例えばBOD<sub>5</sub>は、高度処理水の低有機物濃度を示す指標として不十分である等、従来の指標だけでは十分ではなくなっている。

本調査の目的である消毒方法の検討と評価においても、消毒方法により安全性に対する作用と消毒の影響のあらわれ方が異なるので、消毒方法によって適切な指標を選ばなければならない。このため、衛生学的安全性に係る指標以外に、水生生物に係る指標、変異原性に係る指標、消毒副生成物に係る指標等についても検討する必要がある。

### 3.2 各種指標<sup>1) 2) 3) 18) 24)</sup>

#### 3.2.1 衛生学的安全性に係る指標

大腸菌群数は元来、コレラ菌、赤痢菌、腸チフス菌等の腸管系病原体の伝染を防止するため、糞便性病原菌によって汚染されている恐れを示す指標として用いられてきた。しかし、特に人為汚染の少ない清澄な水系では糞便性大腸菌群数との関連が低いこ

とが認められており、水質環境基準値に大腸菌群数を用いることの不合理性を指摘している報告もある。

尚、北米では糞便性大腸菌群を指標として用いており、その基準値も日本の大腸菌群数とは異なる。

コレラ菌、赤痢菌、腸チフス菌等は、塩素消毒に対する耐性が大腸菌群より低いいため、塩素消毒の効果を示す指標としては大腸菌群数は有用であるが、紫外線消毒、オゾン消毒に対する耐性が異なる病原性微生物があり、大腸菌群数だけでこれらの消毒の効果を評価することは不十分である。

下水試験法では、細菌学的試験として、一般細菌、大腸菌群、糞便性大腸菌群、腸球菌群の項目を挙げている。この内一般細菌は、下水処理水の衛生学的安全性に係る消毒効果の指標としては不適切と考え除外する。この他にウィルスの消長について測定する必要があるが、ウィルスは出現率が低く宿主特異性が高く、直接測定することが困難であるので、代替指標としてバクテリオファージを取り上げ、その中でも取扱の容易な大腸菌ファージを指標として用いた報告が多い。これらのことから本調査において衛生学的安全性に係る指標として次のものを用いる。

- (1) 大腸菌群
- (2) 糞便性大腸菌群
- (3) 腸球菌群
- (4) 大腸菌ファージ

#### 3.2.2 水生生物に係る指標<sup>5) 8) 9) 10)</sup>

水生生物に係る指標として、各種の生物によるバイオアッセイが調査されているが、各々の特異性があり普遍的に用いられているものはない。魚や甲殻類等の微小動物を指標として用いるものは、定常的に調査する場合は問題は少ないが、本調査のように間欠的に調査する場合には、その採取と培養及び再現性に問題が生じる。藻類等の植物を指標として用いるものは、動物よりも保存が容易であるが、特異な藻類を用いるものは一般化しにくいという問題がある。

本調査は、海域への放流を前提としているので、特に海域の水産養殖生物に対する影響を調査対象とする必要がある。そこで、国内の栽培養殖水産物の中で最も生産量の多い海苔（スサビノリ）を指標として用いる方法を採用する。本調査の場合、放流海域に海苔の養殖場があることから海苔を指標とすることは妥当であるとする。但し、海苔を指標とする方法は、調査件数が少ないことから、現段階では参考値とし、後日の研究調査の一助とする。

#### 3.2.3 変異原性に係る指標<sup>11) 24) 25)</sup>

下水処理水の再利用が進められる中で、有機塩素

化合物等の微量物質の発癌性や変異原性が問題とされ、多くの調査研究が進められている。しかし、濃縮倍率と変異原性の発現を中心とした調査が多く、変異原性物質による汚染があるか、または進んでいるという評価であり、その評価の基準は確立しているとはいえない。現在よく知られ、調査が進められているin vitroの試験系としてはAmes試験、Rec-Assay, umuテストの3つをあげることができる。

この内Ames試験とumuテストは変異原性物質のスクリーニングに適しているといわれている。一方Rec-AssayはDNA損傷性試験であり、感受性差試験であるため、試料中に強い細胞毒性物質が共存する場合でもその影響（キリング効果）を受けにくく、下水処理水のような複合系の試料の評価に適している。

本調査の目的から、消毒による変異原性の消長を調査し、消毒方法を評価するためには、Rec-Assayが適していると考え、これを用いる。

### 3.2.4 消毒副生成物に係る指標<sup>5) 8) 11) 12) 13) 14)</sup>

塩素消毒におけるクロラミン、オゾン処理におけるホルムアルデヒド等の副生成物が考えられるが、クロラミンを直接定量する事は困難であり、また個々の生成物を定量する事は莫大な費用がかかり、得られる所は少ない。本調査では消毒により生じる影響を評価することが重要であるので、水生生物に対する影響と変異原性の消長により、副生成物の影響を評価するべきであると考え、個々の消毒副生成物を定量・評価する方法は用いないものとする。

## 4. 各種指標の測定方法

各種指標はその測定方法により再現性と信頼性が左右され、又、費用と効果にも差異が生じる。そこで次のように公定法又はそれに準じる方法を用い、公定法が無いものについては、調査の目的から適切であると考えられる方法を選択する。

### (1) 一般水質項目

温度、pH、電気伝導度、SS、濁度、COD<sub>Mn</sub>、BOD<sub>5</sub>、窒素、磷、塩素濃度等の測定は下水試験法、又はJISによるものとする。

紫外線透過率は、254nmの波長の紫外線吸光度より算出する。

### (2) 衛生学的安全性に係る項目<sup>11) 27)</sup>

大腸菌群、糞便性大腸菌群、腸球菌群は、下水試験法による。

大腸菌フェージはE.coli直接プラーク法による。

### (3) 水生生物に係る項目<sup>5) 8) 9) 10)</sup>

海苔（スサビノリ）を指標として用いる。海苔の生育には温度、pH、食塩濃度、窒素濃度、磷濃度等が大きく影響する。これらの海苔に対する影響についても調査されているが、本調査ではこれらから一定条件を選定し、試料の条件を調整し試験することにより、副生成物の影響等、従来の指標では評価できない点についての指標となるようにする。

### (4) 変異原性に係る指標<sup>11) 24) 25)</sup>

枯草菌（*Bacillus subtilis*）Rec-Assayを用いる。

## 5. 指標の選定

本調査に用いる指標は、上記で選択した次のものを用いる。但し、総ての調査において全項目を測定するのではなく、調査の主旨に従い適宜選択するものとする。

### (1) 一般水質項目

温度、pH、電気伝導度、SS、濁度、COD<sub>Mn</sub>、BOD<sub>5</sub>、窒素、磷、残留塩素濃度、UV透過率  
衛生学的安全性に係る項目

大腸菌群、糞便性大腸菌群、腸球菌群、大腸菌フェージ

### (3) 水生生物に係る項目

海苔（スサビノリ）

### (4) 変異原性に係る項目

枯草菌（*Bacillus subtilis*）Rec-Assay

### (5) 紫外線消毒装置の維持管理性に関する項目

日常点検、定期点検等において次の運転状況を記録する。

電圧、電流、使用電力量、紫外線モニター、ランプ保護管清掃、紫外線消毒、ランプ部品等の交換、清掃点検作業に要した人員と時間

## 6. 総括

種々の参考資料より、消毒方法の現状と問題点を整理し、消毒方法の評価のための指標を決定した。

これに基づき、平成6年度以降の実規模の試験装置を用いる調査の計画案を立案した。

尚、調査計画案は本報告では割愛する。

## ＜参考文献＞

- 1) 矢内・藪内・田口 (1985) 下水中のウィルスの消長とその不活性化に関する研究第2報紫外線によるポリオウィルスの不活化  
用水と排水 Vol.27 No.6 P46~50
- 2) 矢内・藪内・田口 (1985) 下水中のウィルスの消長とその不活性化に関する研究第3報塩素によるポリオウィルスの不活化  
用水と排水 Vol.27 No.7 P44~49
- 3) 矢内・藪内・田口 (1985) 下水中のウィルスの消長とその不活性化に関する研究第4報オゾンによるポリオウィルスの不活化  
用水と排水 Vol.27 No.12 P44~49
- 4) 大垣 (1985) 紫外線照射による消毒技術の基礎概念  
造水技術 Vol.15 No.1 P14~19
- 5) 丸山・三浦・吉田 (1985) 静置培養における養殖ノリの生育に及ぼす都市下水処理水の影響  
日本水産学会誌 Vol.51 No.2 P315~320
- 6) 丸山 (1985) 沿岸海域におけるエコシステムの保全  
水質汚濁研究 Vol.8 No.10 P14~23
- 7) 宗宮・山田 (1987) 水中有機物との反応  
工業用水 No.344 P71~82
- 8) 丸山・三浦・吉田 (1987) 養殖ノリの生育に及ぼす塩素殺菌都市下水処理水の影響  
日本水産学会誌 Vol.53 No.3 P465~472
- 9) 丸山・三浦・吉田 (1987) 養殖ノリの生育に及ぼす都市下水処理水の影響評価のための培養法について  
日本水産学会誌 Vol.53 No.12 P2227~2234
- 10) Maruyama, et al (1988) Effects of chloramine on the Growth of *Porphyra yezoensis* (Rhodophyta)  
日本水産学会誌 Vol.54 No.10 P1829~1834
- 11) 佐藤・小越・諏訪 (1990) 下水処理水の滅菌及び消毒に関する研究報告  
土木研究所資料 No.2859 P55
- 12) 永瀬 (1990) 水中有機物のオゾン処理生成物とその変異原性  
水質汚濁研究 Vol.13 No.12 P13~16
- 13) 大垣・関谷 (1990) オゾンの消毒効果  
水質汚濁研究 Vol.13 No.12 P17~21
- 14) 海賀 (1990) オゾンによる水処理の特性  
水質汚濁研究 Vol.13 No.12 P8~12
- 15) 安武 (1990) 水処理プロセスへのオゾン処理適用例  
水質汚濁研究 Vol.13 No.12 P22~26
- 16) 大垣 (1991) 消毒技術に関する最近の動向  
日本水道新聞セミナー講演集 P13
- 17) 中村 (1992) 下水処理施設における有機塩素化合物の影響に関する調査 土木研究所平成4年度下水道関係調査年次報告集 P213~251
- 18) 住友・伊藤・田中 (1992) 大腸菌ファージを用いたウィルスの不活性化による消毒剤の特性比較 水道協会誌 Vol.61 No.12 P24~37
- 19) 保坂・南 (1992) オゾン及び塩素によるウィルスの不活性化 工業用水 No.404 P13~22
- 20) 平田 (1992) オゾンの消毒効果  
用水と排水 Vol.34 No.4 P47~52
- 21) 二木 (1992) オゾンの特性  
用水と排水 Vol.34 No.4 P9~13
- 22) 大垣 (1991) 消毒技術に関する最近の動向  
水道公論 Vol.34 No.3 P71~78
- 23) 日本下水道事業団 (1993) 民間開発技術審査証明報告書・紫外線殺菌装置 P106
- 24) 小野 (1993) 水環境化学物質の遺伝毒性評価に関する研究 京都大学工学部博士論文 P134
- 25) 佐谷戸・中室・上野 (1993) Ames試験による水質評価用水と排水 Vol.35 No.4 P13~34
- 26) 佐々木・大久保・他 (1993) 紫外線殺菌法の下水処理水への適用中圧ランプによる放流水処理  
荏原インフィルコ時報 No.109 P25~34
- 27) 高橋 (1994) 大腸菌ファージの試験方法に関する基礎的研究  
下水道協会誌 Vol.31 No.366 P48~55
- 28) 日本水産保護協会 (1972) 水産環境基準

---

● この研究に関する問い合わせは

	研究第一部長	佐藤 和明
	研究第一部主任研究員	伊藤 久明
	研究第二部研究員	宮田 篤