

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）
「地表水を対象とした浄水処理の濁度管理技術を補完する紫外線処理の適用に関する研究」
平成 26 年度分担研究報告書

模擬高濁度原水に対する二段凝集処理によるクリプトスポリジウム除去性
ならびに紫外線処理導入による感染リスク低減効果の推定

研究分担者 国立保健医療科学院 島崎 大
研究協力者 国立保健医療科学院 伊藤 雅喜
千葉県水道局 田中 美奈子
沖縄県企業局 石新 一憲
沖縄県企業局 知念 光
大阪市水道局 鐘井 豊
神戸市水道局 白坂 威出矢
長野市上下水道局 飯島 卓

研究要旨

クリプトレーサーを添加した模擬高濁度原水に対する二段凝集処理の処理効果および水質特性について小型浄水処理実験プラントを用いた実験的検討を行った。また、当該のろ過水に紫外線処理を適用した場合の感染リスク低減効果を推定した。二段凝集処理により、沈でん不良時、凝集不良時とも砂ろ過水の濁度は低減し、その効果は前者のほうが顕著であった。超高塩基度 PAC は従来型 PAC と同等以上の濁度除去能力を有していたが、クリプトスポリジウム模擬粒子の除去性は従来型よりも低い傾向が見られた。凝集沈殿および砂ろ過処理が不十分となる条件下では、各ろ過水の年間クリプトスポリジウム感染リスクは 10^{-4} を超過する場合が大半になると試算された。紫外線処理の追加によりほとんどの場合において感染リスクは 10^{-4} 未満となることから、紫外線処理導入の有用性が示された。

A．研究目的

現行の「水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針」では、レベル4施設に対しても「浄水処理の安全性を一層高めるために、ろ過池等の出口の濁度を 0.1 度以下に維持することが可能なろ過設備と紫外線処理設備を併用することとしてもよい」とされており、適切な濁度管理の下に地表水の紫外線処理を行うことが可能である。むしろ多段階バリアの観点からすれば、耐塩素性病原微生物などによる汚染の恐れが高い原水に対しては、積極的にろ過処理と紫外線処理を併用することが望ましいものである。しかしながら、現在までに国内で地表水に紫外線処理を導入した事例は見受けられない。

また、これまでの調査研究により、濁度の急激な上昇時において遅延無く凝集剤注入率を増加することで安定した凝集沈殿処理が継続できること、また、高濁度原水の取水により凝集不良または沈殿不良となった場合、二段凝集処理により砂ろ過水濁度の低減が可能

であることが示されている。

本研究は、地表水を対象とした紫外線処理の導入を推進する上での一助とするべく、小型浄水処理実験プラントを用いた模擬高濁度原水に対する二段凝集処理の処理効果と水質特性評価を行うと共に、クリプトスポリジウム模擬粒子の除去性に基づいた紫外線処理の導入による感染リスクの低減効果を明らかにする。

B. 実験方法

1) 模擬高濁度原水の調整

模擬原水の濁質として粘土鉱物であるカオリンおよびベントナイトを 1:1 の割合で混合し、有機物としてフミン酸ナトリウム試薬 (Aldrich 社製) を添加した。国立保健医療科学院水道水を活性炭フィルターに通水して残留塩素除去を行ったのち、原水調製に用いた。濁度設定については、集中豪雨時の河川での急激な濁度変化を想定し、通常時の濁度 (5 度) から急激な変化を持たせピーク時の高濁度状況 (1000 度) を経て、濁度が徐々に漸減していく推移とした。各濁度の設定は 2008 ~ 2010 年度の水道統計に基づいた。有機物についても水道統計を基に TOC 換算濃度として 2 ~ 8mg/L の範囲で設定した。クリプトスポリジウム模擬粒子として、水道技術研究センタークリプトレーサー 1 号を使用し、原水中に $10^5 \sim 10^6$ オースト/L の最終濃度になるよう調整した。

2) 凝集剤の種類および注入箇所

凝集剤には多くの浄水場で使用されている従来型 PAC (塩基度 50%) を基本とし、近年、高濁度時の凝集沈殿処理に適するとされる超高塩基度 PAC (塩基度 70%) も選定した。注入箇所として、砂ろ過筒に流入する直前の沈でん水に対して後 PAC を注入する二段凝集処理を検討した。

3) 浄水処理実験装置の概要および測定項目

凝集沈殿実験には国立保健医療科学院が所有する小型浄水処理実験装置(図 1)を用いた。当装置は、薬品混和、凝集沈でん (傾斜板脱着可)、砂ろ過、膜ろ過を備えており、最大濁度 1,000 度程度までの処理を可能としており、最大処理能力は $4\text{m}^3/\text{日}$ である。図 2 に示す原水、沈澱水、ろ過水の 3 箇所から採水を行い、濁度、微粒子数、pH、アルカリ度、アルミニウム (溶存態、懸濁態)、TOC、E260 およびクリプトレーサー粒子数を測定した。



図 1 小型浄水処理実験装置の概観

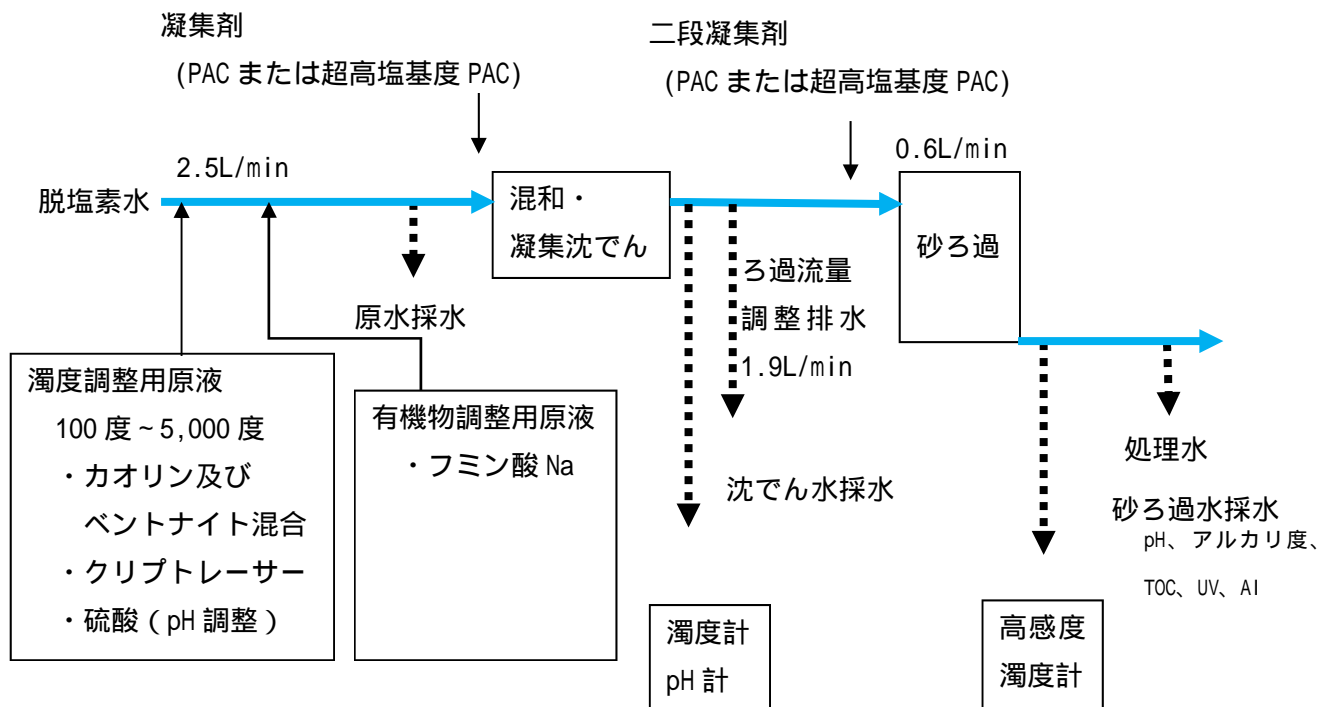


図2 浄水処理実験フロー及び採水箇所

4) 運転条件

原水濁度および凝集沈殿処理の条件として、以下に示す7シナリオを設定した。

- ・ RUN1：原水濁度(濁質のみ)を 5～1000 度に変動させ、各濁度に対応する凝集剤適正注入率にて処理
- ・ RUN2：RUN1 の原水に有機物(フミン酸)を添加し、上記の凝集剤適正注入率にて処理。
- ・ RUN3：沈殿不良を再現するため、実験装置の沈殿槽の傾斜板を全て撤去し、後 PAC (通常 PAC) を注入
- ・ RUN4：凝集不良を再現する目的で PAC の注入量を不足させたうえで後 PAC (通常 PAC) を注入
- ・ RUN5：RUN4 の条件で、凝集剤及び二段凝集処理に用いる凝集剤として超高塩基度 PAC を使用
- ・ RUN6：後 PAC の処理効率を明確にするため、前処理を実施せず後 PAC 注入 (原水は濁質のみ)
- ・ RUN7：後 PAC の処理効率を明確にするため、前処理を実施せず後 PAC 注入 (原水は濁質及び有機物)

表 1 各浄水処理実験における原水水質および運転条件

	原水濁度	有機物	凝集剤	二段凝集	備 考
RUN 1	5 ~ 1000 度	なし	適正注入率	なし	5 度 (~ 01:30) 1000 度 (~ 02:30) 500 度 (~ 04:00) 200 度 (~ 05:30) 50 度 (~ 08:00)
RUN 2	5 ~ 1000 度	2 ~ 8mg/L	適正注入率	なし	同上
RUN 3	50 度 (目標沈でん水濁度 5 度)	2.5mg/L	適正注入率 (70mg/L)	0 ~ 4 mg/L	沈でん不良 (傾斜板除去により)
RUN 4	50 度 (目標沈でん水濁度 5 度)	2.5mg/L	注入不足 (27mg/L)	0 ~ 4 mg/L	凝集不良 (凝集剤注入不足)
RUN 5	50 度 (目標沈でん水濁度 5 度)	2.5mg/L	注入不足 (27mg/L)	0 ~ 4 mg/L	凝集剤、後凝集剤を超高塩基度 PAC に変更
RUN 6	5 度 (目標沈でん水濁度 5 度)	なし	なし	0 ~ 6 mg/L	後 PAC のみ
RUN 7	5 度 (目標沈でん水濁度 5 度)	2 mg/L	なし	0 ~ 25 mg/L	凝集沈でんせず後 PAC のみ

5) クリプトスポリジウム感染リスク評価

砂ろ過水を直接飲用する場合、ならびに、紫外線消毒後に飲用する場合を対象としたクリプトスポリジウム感染リスク評価を行った。後者については実測したクリプトレーサー除去率と砂ろ過水の紫外線吸光度の値により、ろ過水に対して紫外線消毒を行う場合の条件を仮定した。

・紫外線消毒によるクリプト不活化率の推定

表 2 および図 3 より、ろ過水の紫外線吸光度におけるクリプトスポリジウム不活化率を表 3 と仮定しリスク評価に用いた。

紫外線吸光度 abs./10mm	紫外線透過率 %
0.022	95
0.071	85
0.125	75

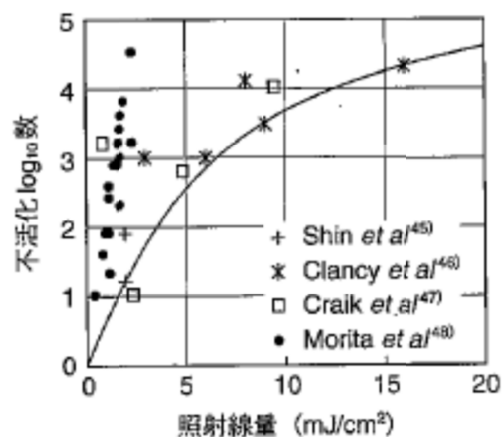


表 2 紫外線吸光度と透過率の関係¹⁾

図 3 紫外線照射によるクリプト不活化率¹⁾

表3 各紫外線吸光度に対する不活化率

紫外線吸光度 abs. /10mm	紫外線不活化率 log
~ 0.022	3.6
0.023 ~ 0.071	3.4
0.070 ~ 0.125	3.2
0.126 ~	3.0

・クリプトスポリジウム感染確率

以下の Hass 式²⁾より一年間の感染確率を推定した。

$$P(N) = 1 - e^{-N/k} \quad \text{式(1)}$$

ここで、P(N)：摂取数 N の時の感染確率

N : 摂取数

k : 定数(クリプトスポリジウム: 238.601)

・原水中のクリプトスポリジウム

高濁度の水道原水に含まれるクリプトスポリジウムのオーシスト数として「100 個/L」と設定した。

・非加熱飲用水量

わが国における非加熱飲用水量について最近のアンケートや推定では0.321L/日³⁾および0.327 L/日⁴⁾との報告がある。ここではさらに安全側として「1.0L/日」と設定した。

C . 実験結果

1) 各運転条件におけるクリプトレーサー除去特性

各 RUN における濁度除去率とクリプトレーサー除去率の算出結果を表 4、図 4、5 に示す。

表 4 各 RUN における濁度除去率及びクリプトレーサー除去率

	原水 濁度 [度]	沈でん 水濁度 [度]	砂ろ過水 濁度[度]	凝沈 濁度 Log 除去率	砂ろ過 濁度 Log 除去率	凝沈 クリプト Log 除去 率	砂ろ過 クリプト Log 除去 率	Total クリプト Log 除去 率
RUN1 有機物なし、高濁	3	0.53	0.0017	0.7	2.5	0.7	2.2	2.9
	752	1.70	0.0027	2.6	2.8	2.3	3.0	5.2
	412	1.78	0.0022	2.4	2.9	2.4	>4.1	>6.5
	154	1.50	0.0023	2.0	2.8	2.2	2.5	4.8
	49	1.94	0.0018	1.4	3.0	1.7	3.4	5.1
RUN2 有機物あり、高濁	4	0.40	0.0013	1.0	2.5	1.0	3.9	4.9
	774	1.23	0.0023	2.8	2.7	2.6	5.8	8.4
	455	1.16	0.0021	2.6	2.7	2.4	4.9	7.3
	210	1.02	0.0012	2.3	2.9	2.4	5.5	7.8
	49	1.06	0.0006	1.7	3.2	2.2	5.3	7.5
RUN3 有機物あり、沈で ん不良、後 PAC	63	4.25	0.0015	1.2	3.5	1.0	3.6	4.6
	66	4.71	0.0005	1.1	4.0	0.9	>4.6	>5.5
	45	7.19	0.0003	0.8	4.4	2.0	>4.5	>6.5
	47	6.56	0.0004	0.9	4.2	1.1	3.9	5.1
	51	7.94	0.0006	0.8	4.1	0.9	>4.6	>5.5
RUN4 有機物あり、凝集 不良、後 PAC	42	5.70	0.0598	0.9	2.0	1.2	2.8	4.0
	42	5.40	0.0275	0.9	2.3	1.0	4.1	5.0
	47	7.01	0.0291	0.8	2.4	1.1	3.7	4.8
	48	6.76	0.0177	0.9	2.6	1.0	3.8	4.9
	39	6.65	0.0145	0.8	2.7	1.0	4.7	5.7
RUN5 有機物あり、凝集 不良、超高塩基度 PAC、後 PAC	37	7.49	0.0472	0.7	2.2	0.7	1.7	2.4
	38	6.42	0.0259	0.8	2.4	1.2	3.4	4.6
	52	7.02	0.0165	0.9	2.6	1.1	3.5	4.6
	44	6.19	0.0054	0.9	3.1	1.6	3.2	4.8
	42	6.98	0.0042	0.8	3.2	0.7	4.0	4.7
RUN6 有機物なし、凝沈 なし、後 PAC	-	5.33	4.60	-	0.1	-	0.1	0.1
	-	5.59	0.16	-	1.5	-	2.9	2.9
	-	5.40	0.12	-	1.6	-	3.4	3.4
	-	5.29	0.08	-	1.8	-	3.9	3.9
	-	5.18	0.16	-	1.5	-	2.7	2.7
RUN7 有機物あり、凝沈 なし、後 PAC	-	5.53	5.50	-	0.0	-	0.1	0.1
	-	5.55	5.50	-	0.0	-	0.1	0.1
	-	5.48	5.48	-	0.0	-	0.1	0.1
	-	5.43	0.58	-	1.0	-	2.1	2.1
	-	6.52	0.03	-	2.3	-	4.9	4.9
	-	5.28	4.38	-	0.1	-	0.3	0.3

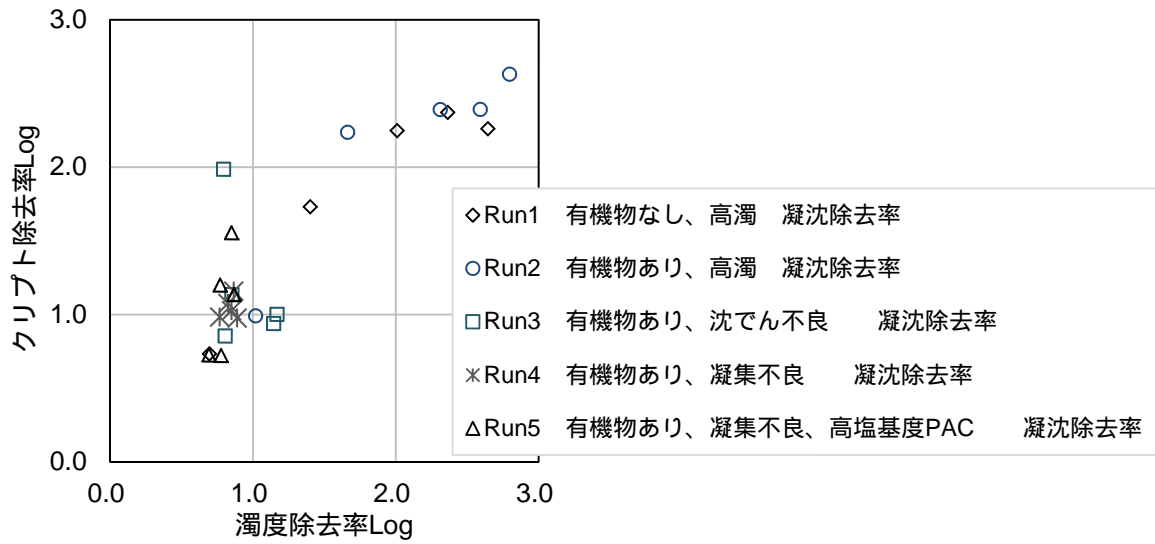


図4 各 RUN における濁度除去率とクリプトレーサー除去率（凝集沈殿）

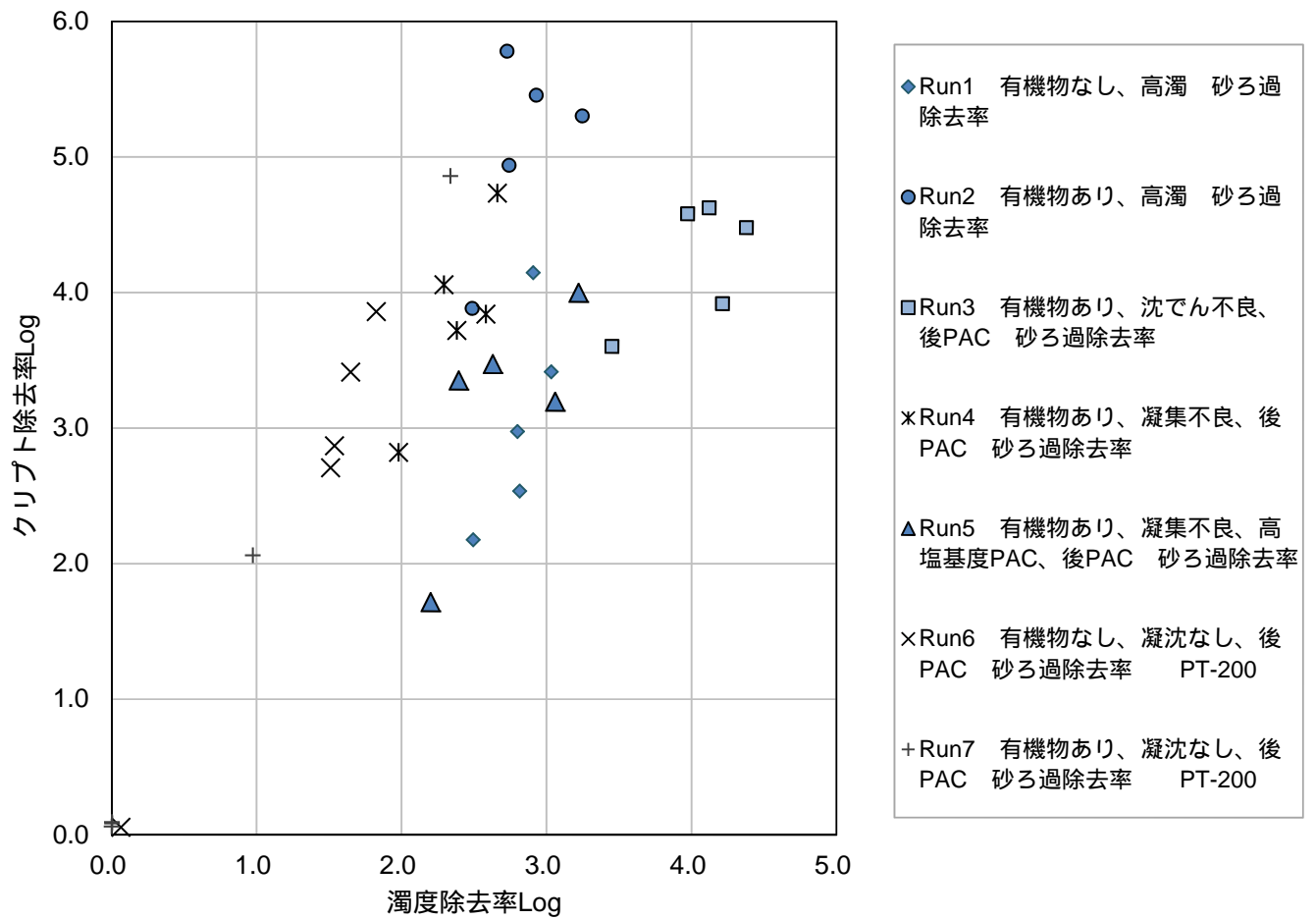


図5 各 RUN における濁度除去率とクリプトレーサー除去率（砂ろ過）

(2) 超高塩基度 PAC によるクリプトレーサー除去性の評価

RUN4 及び RUN5 について、濁度除去率とクリプトレーサー除去率を比較した結果を図 6 に示す。砂ろ過除去率については、超高塩基度 PAC の方が従来 PAC より低かった。特に、凝集不良の条件下で後 PAC なしで砂ろ過を行った場合の除去率が、超高塩基度 PAC では、従来 PAC より低かった。粒度分布でも同様の傾向を示しており、超高塩基度 PAC は従来 PAC に比べて、3~7 μm および 7 μm 以上での流出が多かった。特に、後 PAC の注入率が低いときにこの傾向が強かった。超高塩基度 PAC を後 PAC に用いた場合は、添加量が不十分だと、見かけは濁度除去できていても、従来 PAC より砂ろ過での除去率が低くなる可能性がある。

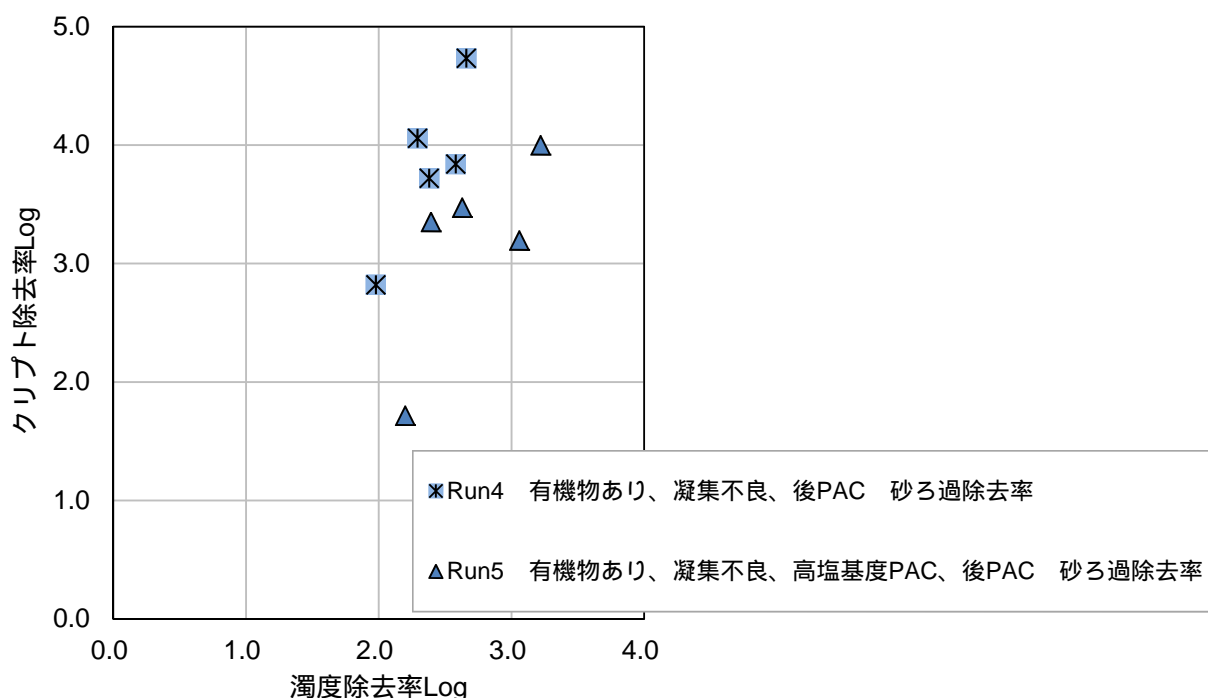


図 6 RUN4 および RUN5 の濁度除去率とクリプトレーサー除去率の比較 (砂ろ過)

(3) 後 PAC 注入によるクリプトレーサー除去性の評価

RUN3、RUN4、RUN6、RUN7 について、濁度除去率あたりのクリプトレーサー除去率を比較した結果を図 7 に示す。凝集沈澱を行わず後 PAC のみで処理を行った RUN6 と RUN7 は、有機物の有無にかかわらず、いずれも濁度除去率の上昇とともに砂ろ過除去率が上昇する傾向を示した。また、除去率は他の RUN より高かった。RUN4 (凝集不良、後 PAC) も同様の傾向を示した。RUN3 (沈でん不良、後 PAC) については、RUN4、RUN6、RUN7 とは異なる挙動を示した。ただし、RUN4 の一部の砂ろ過水中のクリプトレーサー粒子数が 0 個/L だったため、実際の除去率はより高いと考えられる。

これらのことから、凝集不良時の後 PAC による濁度除去は、クリプトスポリジウム除去にも高い効果を示すと判断できる。一方、沈でん不良時の後 PAC によるクリプトスポリジウム除去効果は限定的であると推測される。

ただし、粒径分布については、RUN4 及び RUN6（凝集不良もしくは直接ろ過後 PAC）の砂ろ過水は、RUN3（沈でん不良、後 PAC）の砂ろ過水に比べて 3~7 μ m の粒子の割合が高かった。これは、凝集不良もしくは直接ろ過では、沈でん不良に比べて、濁度漏れいที่เกิดขึ้นた際のクリプトスポリジウム漏れいのリスクが高いことを示唆している。

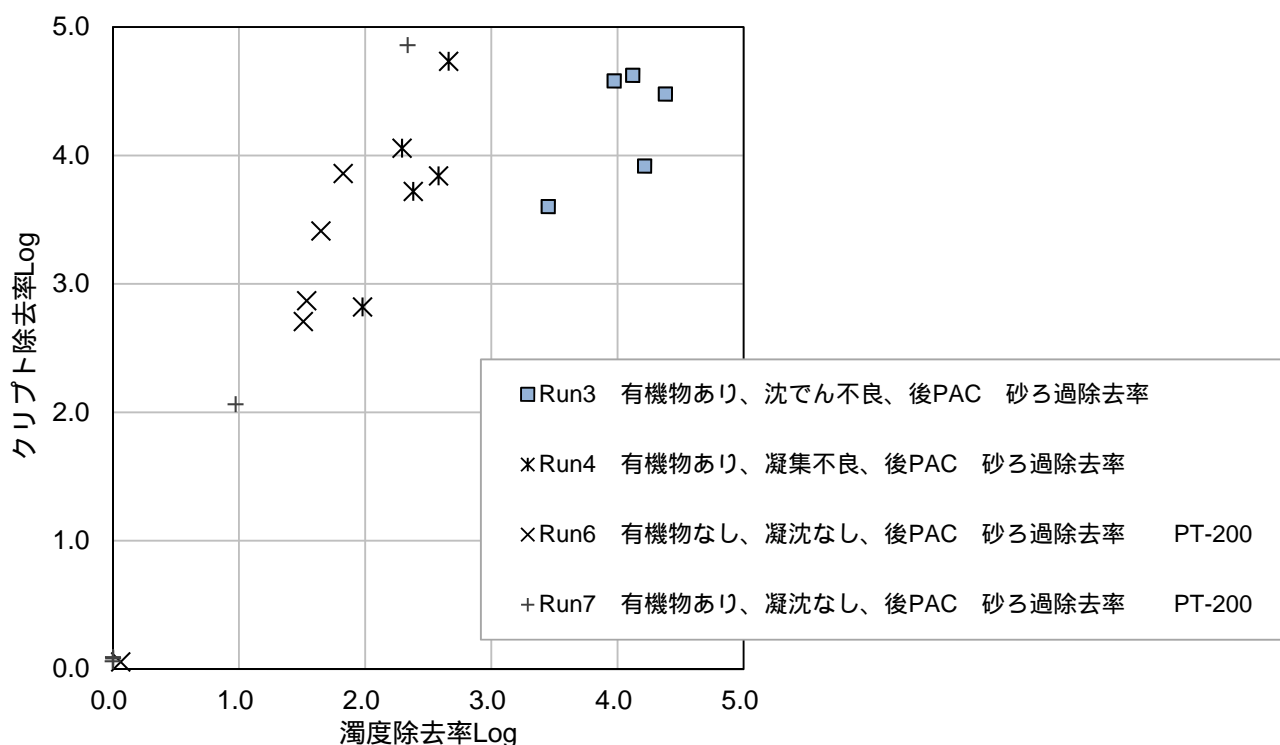


図7 RUN3、RUN4、RUN6、RUN7の濁度除去率とクリプトレーサー除去率の比較（砂ろ過）

(4) クリプトスポリジウム感染リスク評価

各 RUN における感染確率を試算したところ、PAC の適正注入を実施した RUN2 を除いて、凝集沈でん及び砂ろ過のみの場合では米国 EPA が提唱する許容感染確率 10^{-4} を超過したケースが大半であった（表 5）。また、砂ろ過水に対して紫外線処理を適用することで、感染確率 10^{-4} を超過するケースは大幅に減少した（表 6）。

表5 凝集沈でん・砂ろ過処理水のクリプトスポリジウム感染確率

	原水中の クリプト濃度 個/L	飲用水量 L/日	除去率 log	摂取量 個/日	感染確率 人/年
RUN1	100	1	2.9	0.126	0.193
			5.2	0.000631	0.000965
			6.5	0.0000316	0.0000483
			4.8	0.00158	0.00242
			5.1	0.000794	0.00121
RUN2	100	1	4.9	0.00126	0.00193
			8.4	0.000000398	0.000000609
			7.3	0.00000501	0.00000766
			7.8	0.00000158	0.00000242
			7.5	0.00000316	0.00000483
RUN3	100	1	4.6	0.00251	0.00384
			5.5	0.000316	0.000483
			6.5	0.0000316	0.0000483
			5.1	0.000794	0.00121
			5.5	0.000316	0.000483
RUN4	100	1	4.0	0.01	0.0153
			5.0	0.001	0.00153
			4.8	0.00158	0.00242
			4.9	0.00126	0.00193
			5.7	0.0002	0.000306
RUN5	100	1	2.4	0.398	0.608
			4.6	0.00251	0.00384
			4.6	0.00251	0.00384
			4.8	0.00158	0.00242
			4.7	0.002	0.00306
RUN6	100	1	0.1	79.4	103
			2.9	0.126	0.193
			3.4	0.0398	0.0609
			3.9	0.0126	0.0193
			2.7	0.2	0.306
RUN7	100	1	0.1	79.4	103
			0.1	79.4	103
			0.1	79.4	103
			2.1	0.794	1.21
			4.9	0.00126	0.00193
			0.3	50.1	69.1
米国EPA基準 (10 ⁻⁴) 超過				83%	30
				最大	103
				最小	0.000000609

表6 凝集沈でん・砂ろ過・紫外線照射水のクリプトスポリジウム感染確率

	原水中の クリプト濃度 個/L	飲用水量 L/日	除去率 log	砂ろ過水 吸光度 abs./10mm	紫外線 不活化率 log	摂取量 個/日	感染確率 人/年
RUN1	100	1	2.9	0.001	3.6	0.0000316	0.0000483
			5.2	0.008	3.6	0.00000158	0.00000242
			6.5	0.011	3.6	7.94E-09	1.21E-08
			4.8	0.009	3.6	0.00000398	0.00000609
			5.1	0.007	3.6	0.0000002	0.00000306
RUN2	100	1	4.9	0.012	3.6	0.00000316	0.00000483
			8.4	0.007	3.6	1E-10	1.53E-10
			7.3	0.011	3.6	1.26E-09	1.93E-09
			7.8	0.009	3.6	3.98E-10	6.09E-10
			7.5	0.012	3.6	7.94E-10	1.21E-09
RUN3	100	1	4.6	0.014	3.6	0.00000631	0.00000965
			5.5	0.011	3.6	7.94E-08	0.00000121
			6.5	0.013	3.6	7.94E-09	1.21E-08
			5.1	0.013	3.6	0.0000002	0.00000306
			5.5	0.012	3.6	7.94E-08	0.00000121
RUN4	100	1	4.0	0.028	3.4	0.00000398	0.00000609
			5.0	0.021	3.6	0.00000251	0.00000384
			4.8	0.017	3.6	0.00000398	0.00000609
			4.9	0.017	3.6	0.00000316	0.00000483
			5.7	0.017	3.6	5.01E-08	7.66E-08
RUN5	100	1	2.4	0.020	3.6	0.0001	0.000153
			4.6	0.018	3.6	0.00000631	0.00000965
			4.6	0.019	3.6	0.00000631	0.00000965
			4.8	0.017	3.6	0.00000398	0.00000609
			4.7	0.017	3.6	0.00000501	0.00000766
RUN6	100	1	0.1	0.012	3.6	0.02	0.0306
			2.9	0.011	3.6	0.0000316	0.0000483
			3.4	0.009	3.6	0.00001	0.0000153
			3.9	0.010	3.6	0.0000316	0.0000483
			2.7	0.015	3.6	0.0000501	0.0000766
RUN7	100	1	0.1	0.147	3.0	0.0794	0.121
			0.1	0.174	3.0	0.0794	0.121
			0.1	0.171	3.0	0.0794	0.121
			2.1	0.069	3.4	0.000316	0.000483
			4.9	0.019	3.6	0.00000316	0.00000483
			0.3	0.183	3.0	0.0501	0.0766
米国EPA基準 (10 ⁻⁴) 超過						19%	7
						最大	0.121
						最小	1.53E-10

D．考察

1) フロック形成状況が異なる場合の二段凝集処理による効果

沈でん不良時あるいは凝集不良時に後 PAC を注入することで、いずれの場合にも砂ろ過水の濁度低減に効果があり、その効果は沈でん不良時のほうが顕著であった。また、凝集不良時よりも沈でん不良時の方が砂ろ過水濁度は低く、清澄化に要する時間も速やかであった。また、濁度除去率に対するクリプトスポリジウム除去率は、凝集不良時の方が沈でん不良時よりも高かった。

2) 従来型 PAC と超高塩基度 PAC の濁度およびクリプトスポリジウム除去能力の比較

超高塩基度 PAC は、従来型 PAC と同等以上の濁度除去能力を示し、特に PAC 注入率が高い条件において、従来型 PAC よりも除去能力に優れた。また、砂ろ過における損失水頭の上昇速度は、従来型 PAC よりも緩やかなであった。一方、クリプトスポリジウムの除去性については、超高塩基度 PAC は従来型よりも低い傾向が見られた。このことは、砂ろ過水中の粒径分布測定において、超高塩基度 PAC を使用した場合は、従来型 PAC に比べて粒径 $3\mu\text{m}$ 以上の粒子が多く流出する傾向があることから確認できた。

3) 紫外線処理の導入によるクリプトスポリジウム感染リスク評価

凝集沈殿及び砂ろ過のみの場合では許容感染確率 10^{-4} を超過したケースが大半に上り、適切な浄水処理が行われない運転条件下での感染確率の上昇が確認された。一方で、PAC の適正注入により最適な凝集沈殿処理の実施することで、感染リスクを適切に低減できることが示された。さらに、砂ろ過水に対して紫外線処理を適用することで、感染確率 10^{-4} を超過するケースは大幅に減少した。このことから、高濁度原水に対して凝集沈殿・砂ろ過処理が不十分となるような事態に対して、感染リスク低減の面から紫外線処理の追加が有用であることが示された。

E．結論

高濁度原水の発生より凝集沈殿および砂ろ過処理が不十分となる場合に、二段凝集処理によって砂ろ過水の濁度を有効に低減できた。超高塩基度 PAC は従来型 PAC と同等以上の濁度除去能力を有していたが、クリプトスポリジウム模擬粒子の除去性は従来型よりも低い傾向が見られた。凝集沈殿および砂ろ過処理においてクリプトスポリジウムの除去が不十分となる場合でも、紫外線処理の追加によりほとんどの場合で感染リスクは 10^{-4} 未満となることから、紫外線処理導入の有用性が示された。

F．健康危険情報

なし

G．研究発表

1 論文発表

なし

2 学会発表

なし

H . 知的財産権の出願・登録状況

該当なし

参考文献

- 1) 厚生労働省健康局水道課：紫外線処理設備について（平成 19 年 3 月 30 日事務連絡）
- 2) Haas, C. N., Crockett, C. S., Rose, J. B., Gerba, C. P. and Fazil, A. M. (1996) Assessing the risk posed by oocysts in drinking water. Journal of American Water Works Association 88(9), 131-136)
- 3) 大瀧雅寛：非加熱水量アンケート調査結果報告 生活工学研究 第 4 巻 第 2 号 2002
- 4) 小松良光，近藤才寛，田川克弘：インターネットアンケートに基づく蛇口からの非加熱飲水量の調査およびデータ解析，水道協会雑誌，82 (3)，16-25，2013