

(2) 下水2次処理水の塩素消毒に及ぼす CO₂吹込みの効果

EFFECT OF CARBON DIOXIDE INJECTION ON SECONDARY EFFLUENT CHLORINATION

山下勝紀*, 大村達夫*

Katsunori Yamashita*, Tatsuo Omura*

海田輝之*, 相沢治郎*, 大沼正郎*

Teruyuki Umita*, Jiro Aizawa*, Masao Onuma*

ABSTRACT; Effects of carbon dioxide injection before the chlorination on inactivation efficiencies of E.coli B, S.faecalis and coliphages in the secondary effluent were investigated.

The carbon dioxide injection into the secondary effluent could decrease the pH value of the secondary effluent from 6.1 to 4.8.

The carbon dioxide injection brought about more effective inactivation for E.coli B when the chlorine doses were 1.5mgCl/l and 3.7mgCl/l, respectively.

However, the carbon dioxide injection before the chlorination did not make better efficiency for the inactivation of S.faecalis.

The coliphages were also inactivated more effectively by the carbon dioxide injection before the chlorination when the chlorine doses were 5.0mgCl/l and 12.0mgCl/l, respectively.

KEYWORDS; Chlorination, Carbon dioxide, Secondary effluent, E.coli B, S.faecalis, Coliphages

1. はじめに

下水道の高規格化に関する小委員会が土木学会衛生工学委員会の中に設置されている。この小委員会のレポートの中で¹⁾大垣は下水道の高規格化を目指すためには処理水の高品質化が重要であり、特に衛生学的な観点からの品質の向上は避けて通れない問題であると述べている。確かに下水道の高規格化を計り、下水処理水の有効利用や放流水域の健全さを確保するためには下水処理水の衛生学的な品質の向上が不可欠なものになるだろう。

本研究は上記観点から、下水処理水の塩素消毒効果を促進させる方法として、処理水にCO₂を吹込み処理水のpHを低下させ、その後塩素消毒を行う方法を提案し、その効果を実験によって確かめたものである。従来、低pHにおいて、塩素形態の違いにより塩素消毒はより効果的になることが知られているが^{2)~4)}、この場合pHはH₂SO₄を用いて低pHに調整されているのが普通である。

しかし、本研究においてはH₂SO₄の代わりに取扱いやすいCO₂を用いており、さらに、地球の温暖化の原因であるCO₂を処理水に吹込むことにより、下水処理水中に含まれる重金属を炭酸塩として回収することも今後の課題として検討できるものと考えられる。また、当然のことながら、消毒による放流水中の塩素化合物の軽減にもつながるものと期待される。塩素消毒実験の指標微生物としては、大腸菌E.coli B、腸球菌S.faecalisおよびコリファージを用いた。

*岩手大学工学部土木工学科 〒020 盛岡市上田4-3-5

Dept. of Civil Engineering, Iwate University, Ueda 4-3-5, Morioka 020

2. 実験材料

2. 1 大腸菌(*E.coli* B)

本実験に用いた大腸菌(*E.coli* B)は、岩手大学農学部応用微生物研究室から提供されたものであり、実験にはTable 1に示したTSB培地⁵⁾で37℃、24時間培養したものを遠心分離によって集菌し、細菌希釈水で1回洗浄したものを使用した。また、*E.coli* Bはコリファージの測定の際のHost Cellとしても使用した。

2. 2 腸球菌(*S.faecalis*)

腸球菌(*S.faecalis*)は、下水処理場の最終沈殿池の越流水からEF寒天培地(ニッスイ)を用いて分離したものを実験に使用した。ただし、分離された腸球菌は、糖分解能試験(アラビノース、メリビオース、ソルビトール、マニトール)、TTC還元能試験、ゼラチン液化能試験によって*S.faecalis*と同定されたものである⁶⁾。また実験にはAC培地(ニッスイ)で37℃、48時間培養した*S.faecalis*を*E.coli* Bの場合と同様に遠心分離、洗浄の後、使用した。

2. 3 コリファージ

コリファージは、次の方法で分離、培養した。まず、下水処理場の最終沈殿池の越流水からTable 2に示したMTSA培地⁵⁾に形成したプラークのうち1~3mmくらいのものを、白金耳でAgarなしのMTSA培地に植種し、37℃で20時間培養する。それを13,000回転で10分間遠心分離を行い、その上澄み液を白金耳でHost Cellに植種し、37℃の恒温槽内で20時間再び培養したものを遠心分離し、その上澄み液を実験に使用した。この時に分離され、実験に使用したコリファージの電顕写真をFig. 1に示す。コリファージの同定は実際には行っていないが、T系ファージとは異なった小さいサイズファージと考えられる。

2. 4 2次処理水

実験には2次処理水として、標準活性汚泥処理を行っている処理場の最終沈殿池の越流水を用いた。その2次処理水の水質をTable 3に示す。しかし、実験の都合上、全ての実験を同一の2次処理水を用いて行うのは不可能であった。実験条件を示すTable 4中に4つの*で示した実験に用いた2次処理水は他のものより若干pHが高く、また、アルカリ度および酸度も高かった。この時の2次処理水の水質はTable 3中の*で示す範囲にあった。

Table 1 Tryptic(ase) soy broth (TSB)

Trypton	17.0 g
Soyton	3.0 g
Dextrose	2.5 g
NaCl	5.0 g
K ₂ HPO ₄	2.5 g
Glycerine	100 g
Distilled water	1.0 L
pH=7.3 at 25°C adjust with 0.1 or 1.0N NaCl or HCl	

Table 2 Modified triptic soy agar (MTSA)

TSB (Table 1)	
NH ₄ NO ₃	1.60 g
Sr(NO ₃) ₂	0.21 g
Agar	15.0 g
Distilled water	1.0 L
pH=7.3 at 25°C adjust with 0.1 or 1.0N NaOH or HCl	

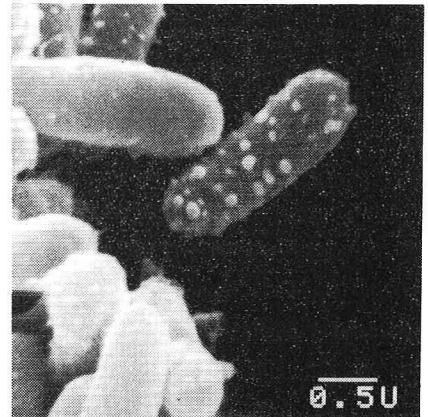


Fig. SEM of Coliphage employed in the experiment.

Table 3 Water quality of secondary effluent.

Water quality	Range	Average	Standard deviation
pH	5.8 - 6.3 *6.5 - 6.7	6.1 6.6	0.18 0.12
DO (mg/l)	3.1 - 5.5	3.9	0.56
TOC (mg/l)	1.2 - 2.4	1.9.6	6.99
T-N (mg/l)	1.5 - 3.4	2.4.6	7.51
Alkalinity (mg/l)	1.9 - 5.0 *1.2 - 1.38	3.0.3 1.32.3	10.02 7.59
Acidity (mg/l)	3.1 - 7.0 *7.4 - 11.0	4.2.9 9.3.5	10.37 19.21

3. 実験方法

3. 1 2次処理水へのCO₂吹込みによるpH変化の実験

CO₂吹込みによるpH変化の実験は、2次処理水および蒸留水（1ℓ）に、ディフューザーを通して毎分1ℓの割合でCO₂を吹込むことにより行い、その時のpH変化を測定した。実験に使用した2次処理水のpHは7.0、アルカリ度は約100mg/l、水温は約20℃であった。

3. 2 E.coli B, S.faecalisおよびコリファージの不活化実験**

実験条件をTable 4に示す。指標微生物として、E.coli B(RUN 1), S.faecalis(RUN 2)およびコリファージ (RUN 3)を用いた。

消毒に用いた塩素は、次亜塩素酸ナトリウム溶液を用いた。注入量はE.coli B, S.faecalisに対しては、実際の処理水の消毒に用いられるレベルの2~4mgCl/l¹⁷⁾を参考に1.5, 3.7mgCl/lとしたが、大腸菌や腸球菌にくらべて塩素に耐性があるコリファージに対しては、5.0, 12.0mgCl/lとした。また、実験終了時における残留塩素濃度の平均値をTable 4に示している。

Table 4 Experimental condition.

RUN	Microorganisms	Dose of chlorine (mgCl/l)	pH			Means of residual chlorine (mgCl/l)	contact time (min)
			control	CO ₂	H ₂ SO ₄		
1	<u>E.coli B</u>	0	6.0	4.8	4.8	-	1, 2, 3, 5 10, 15, 30 60, 120
		1.5	6.3	4.8*	4.8	0.3	
		3.7	6.2	4.8*	4.8	1.5	
2	<u>S.faecalis</u>	0	5.8	4.7	4.8	-	1, 2, 3, 5 10, 15, 30 60, 120
		1.5	5.9	4.8	4.8	0.2	
		3.7	6.2	4.8	4.8	0.8	
3	Coliphage	0	5.9	4.7	4.8	-	1, 2, 3, 5 10, 15, 30 60, 120
		5.0	6.2	4.7*	4.8	2.4	
		12.0	6.3	4.8*	4.8	7.2	

Secondary effluents indicated by symbol of * had slight higher pH values and larger alkalinity and acidity than other secondary effluents. These water quality are shown in Table 3.

CO₂の吹込みが塩素消毒に及ぼす影響を調べるために各RUN毎に3つの実験を行い比較した。ひとつはコントロールでpHは2次処理水を採取したままのpHであり、次に2次処理水にCO₂を吹込んで、pHが4.7~4.8の定常値となった処理水、最後はH₂SO₄（1N）でpHを4.8に調整した処理水のそれぞれについて指標微生物の不活化を調べた。

ただし、CO₂を吹込んだ処理水、H₂SO₄を添加した処理水とも、実験終了時にはpHが0.1~0.2上昇した。なお、不活化実験は次の様な手順で行った。

- 1) CO₂の吹込みまたはH₂SO₄（1N）で所定のpHに調整した2次処理水1ℓを滅菌した三角フラスコにいれる。三角フラスコは恒温槽内で15±1℃に保った。
- 2) 実験毎に初期濃度が10⁵のオーダーになるように、E.coli B, S.faecalisまたはコリファージを接種する。

**E.coli BおよびS.faecalisに対し不活化という言葉を使用したが、本来は死滅という言葉を使用すべきかもしれない。しかし、ここではコリファージとの関連において死滅という表現の代わりに不活化を採用した。

- 3) 初期濃度測定後、すみやかに所定の塩素を注入し、スターラーで攪拌する。これを接触時間”0”とし、以後、各接触時間における指標微生物数を測定する。ただし、各接触時間毎にとり出したサンプルは、残留塩素の影響を除くためにN/100チオ硫酸ナトリウム溶液を加える。
- 4) 接触時間120分の菌数を測定後、よう素滴定法により、残留塩素を測定する⁸⁾。

3.3 *E.coli* B, *S.faecalis*およびコリファージの測定法

E.coli B, *S.faecalis*およびコリファージの測定は、Standard Method⁵⁾に準拠して行い、*E.coli* Bはデスオキシコレート培地(ニッスイ)、*S.faecalis*はE F培地(ニッスイ)、コリファージはMTSA培地を用いた平板法で行った。コリファージの宿主株としては*E.coli* Bを用いた。

3.4 塩素について⁹⁾

塩素は水に溶けると加水分解、イオン化して次亜塩素酸および次亜塩素酸イオンとなり、その形態は、温度、pHの影響を受ける。蒸留水中の塩素はこの2つの形態しかないため、実験や考察も比較的簡単である。しかし、2次処理水に塩素を注入すると、アンモニアなどと反応し、クロラミンなどを生成する。また、2次処理水への塩素消毒に用いられる塩素注入量は、ブレイクポイント(不連続点)以下であるため接触時間3分以降における残留塩素は、ほとんどジクロラミンとして存在している⁹⁾。このクロラミンは、モノクロラミン、ジクロラミン、トリクロラミンがあるが、その存在比はpHの値によって変化する。Fig. 2に、この存在比の一例として、1molの塩素とアンモニアを反応させたときのモノクロラミン(NH₂Cl)とジクロラミン(NHCl₂)の存在比が示されている¹⁰⁾。

この図からわかるように、pHが5.5付近でモノクロラミンとジクロラミンは等量存在し、pHがそれより高いとモノクロラミンが増加し、pHがそれより低いとジクロラミンが増加する。また、モノクロラミンとジクロラミンの消毒効果はジクロラミンの方が高いため、2次処理水のpHを下げて塩素消毒を行うとより効率的となることがわかる^{2)~4)}。

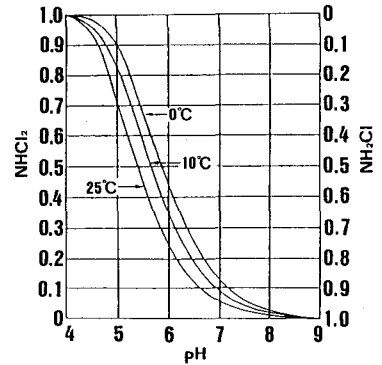
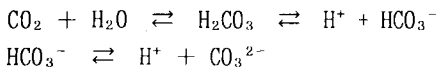


Fig.2 Existing ratio of NHCl₂ and NH₂Cl in the reaction of Cl₂(1mol) and NH₃(1mol) ¹⁰⁾.

4. CO₂の吹込みによる2次処理水のpH変化

CO₂は他の気体に比べて水に溶けやすいので、CO₂をディフューザーを通して蒸留水に吹込むと、室温、1atmで約0.04mol/lの濃度になり¹¹⁾、pH約4の酸性を示す。これは水溶液中に弱い炭酸を生じているからである。水に溶けているCO₂の99%は、分子状態のままであるといわれている。すなわち、



のように、溶けたCO₂の1%が炭酸H₂CO₃となり、その一部が水素イオンと炭酸水素イオンに解離し、さらに炭酸水素イオンがごくわずかに水素イオンと炭酸イオンに解離している。

本実験において2次処理水および蒸留水(1ℓ)に、ディフューザーを通して、毎分1ℓの割合でCO₂を吹込んだ場合のpHの変化をFig. 3に示す。ただし、実験に用いた2次処理水のアルカリ度は約100mg/lである。pHは徐々に下がり、やがて定常となる。Fig. 3からもわかるように、2次処理水は蒸留水に較べて明らかに緩衝能をもっており、最終的なpHは2次処理水で4.9、蒸留水で4.0となった。また、pHの値が定常になるCO₂の吹込み量および吹込み時間とともにさほど要しないことがわかる。

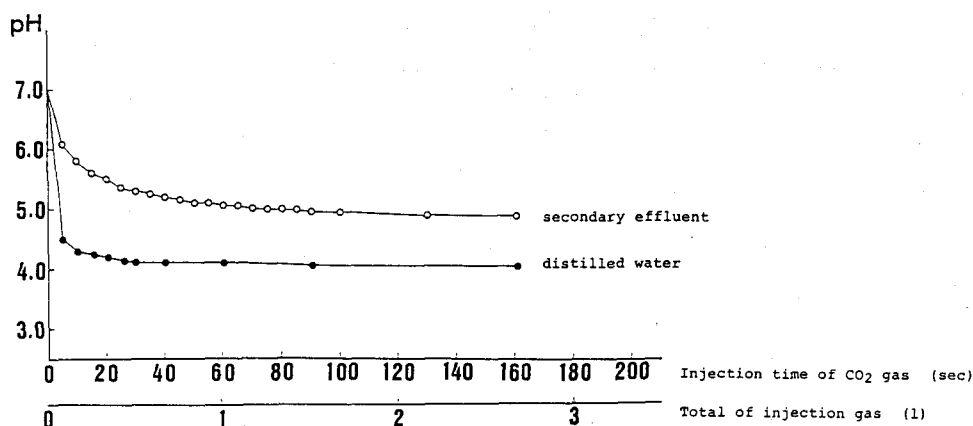


Fig.3 Variations of pH value in distilled water and secondary effluent aerated by CO₂ gas.

ここで、全溶存無機炭素 (C_T) とアルカリ度 (Alk), および水素イオン濃度との関係は、次の式で表されている^{12), 13)}。

$$C_T = [\text{CO}_2(\text{aq})] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}] \quad (1)$$

$$\text{Alk} = C_T(\alpha_1 + 2\alpha_2) + [\text{OH}^-] - [\text{H}^+] \quad (2)$$

上の式で用いられているパラメーターの値はTable 5に示されている。

C_T を水中に吹込んで溶解したCO₂の量とし、式(2)を水素イオン濃度 $[\text{H}^+]$ についての4次方程式に変形すると、

$$[\text{H}^+]^4 + A[\text{H}^+]^3 + B[\text{H}^+]^2 + C[\text{H}^+] + D = 0 \quad (3)$$

となる。ここで、

$$A = \text{Alk} + K_1$$

$$B = -C_T \times K_1 + \text{Alk} \times K_1 - 10^{-14} + K_1 K_2$$

$$C = -2C_T \times K_1 K_2 + \text{Alk} \times K_1 K_2 - 10^{-14} \times K_1$$

$$D = -10^{-14} \times K_1 K_2$$

式(3)を用いることにより、所定のアルカリ度を有する試料水にCO₂を吹込んだ時のpHの値の変化を求めることができる。式(3)をNewton-Raphson法で計算した結果をFig. 4に示す。

アルカリ度を測定した時の温度は約20℃であったので、CO₂の水への溶解度は0.88gas·l/aq·lであり¹¹⁾, $C_T = 3.93 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ ($1.73 \times 10^3 \text{ mg CO}_2/\text{l}$)となる。

したがって、20℃でアルカリ度が0, 50, 100, 150mg/lの時のpHの定常値は次のようになる。

Table 5 Parameters in equations (1) and (2).

$$K_1 = \frac{[\text{H}^+][\text{HCO}_3^-]}{[\text{CO}_2(\text{aq})]} = 10^{-6.3} \text{ (at } 25^\circ\text{C, ionic strength 0)}$$

$$K_2 = \frac{[\text{H}^+][\text{CO}_3^{2-}]}{[\text{HCO}_3^-]} = 10^{-10.25} \text{ (at } 25^\circ\text{C, ionic strength 0)}$$

$$\alpha_0 = \left(1 + \frac{K_1}{[\text{H}^+]} + \frac{K_1 K_2}{[\text{H}^+]^2}\right)^{-1}$$

$$\alpha_1 = \left(\frac{[\text{H}^+]}{K_1} + 1 + \frac{K_2}{[\text{H}^+]}\right)^{-1}$$

$$\alpha_2 = \left(\frac{[\text{H}^+]^2}{K_1 K_2} + \frac{[\text{H}^+]}{K_2} + 1\right)^{-1}$$

Alk = 0 の時 pH = 3.85

Alk = 50 pH = 4.44

Alk = 100 pH = 4.73

Alk = 150 pH = 4.90

実際に2次処理水（アルカリ度100mg/l）にCO₂を吹込んだ場合、Fig. 3で示されるようにpHの定常値は4.8となった。この結果は上記の計算結果の4.73とほぼ一致し、理論的にもCO₂の吹込みによるpHの低下の程度が立証された。ただし、前述の式は2次処理水中の炭酸以外の酸や、NH₃の影響を無視しての計算のため、今後、これらの酸や塩基の濃度を考慮したモデルについての検討も必要であると思われる。

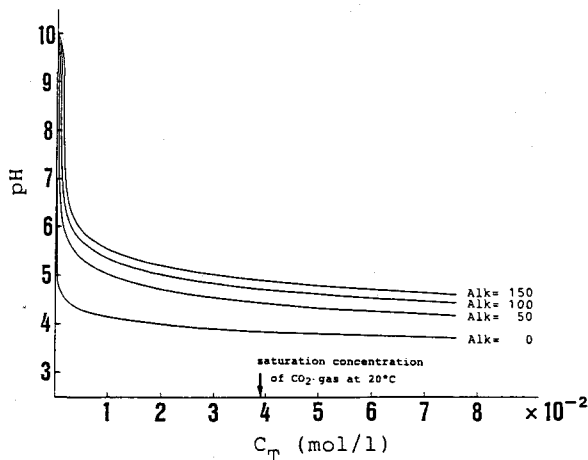


Fig.4 Relationship between pH and C_T.

5. 実験結果および考察

5. 1 E.coli Bの不活化について

E.coli Bの不活化を調べたRUN 1のうち、塩素を注入しない場合の結果をFig. 5に、塩素を1.5mgCl/l注入した場合の結果をFig. 6に、塩素を3.7mgCl/l注入した場合の結果をFig. 7に示す。ここで、●は2次処理水のpHにおける（以下コントロールと呼ぶ）不活化について、▲はCO₂の吹込みによってpHを下げた場合の不活化について、■はH₂SO₄の添加によってpHを下げた場合の不活化実験結果を表している。

Fig. 5から、塩素を注入しない場合はたとえCO₂の吹込みやH₂SO₄の添加によってpHを低下させてもE.coli Bはほとんど不活化されなかった。

塩素を1.5mgCl/l注入した場合のE.coli Bの不活化曲線を示したFig. 6を見ると、コントロールに比べてCO₂の吹込みおよびH₂SO₄の添加によってpHを下げるとより不活化されるのがわかる。

塩素を3.7mgCl/l注入した場合のE.coli Bの不活化曲線を示したFig. 7からも塩素注入量1.5mgCl/lの時と同様にCO₂の吹込みおよびH₂SO₄の添加により、pHを下げることによって不活化がより効率的になっていることがわかる。

ここで不活化の割合を見るためにFig. 5, 6, 7より求めた、E.coli Bが90%不活化した時の時間（T₉₀）、99%不活化した時の時間（T₉₉）、CO₂およびH₂SO₄でpHを下げた場合のそれらの比のT_{90CO2}/T_{90H2SO4},

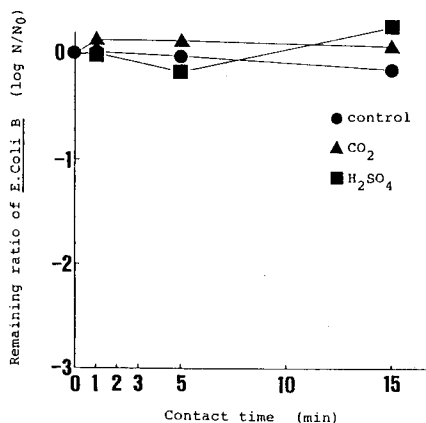


Fig.5 Experimental results for E.coli B without dose of chlorine.

$T_{99CO_2}/T_{99H_2SO_4}$ と初期比不活化速度を比較した結果がTable 6にまとめられている。ただし、接触時間内に90%または99%不活化しなかった場合は"—"で示し、比不活化速度は初期微生物濃度と接触1分後における微生物濃度より求めた。

この表より T_{90} 、 T_{99} は、control> CO_2 > H_2SO_4 の順となった。すなわち、90%不活化されるのに必要な時間は H_2SO_4 でpHを下げた場合がもっとも少なくすみ、つぎに CO_2 の順となる。またコントロールと CO_2 とを較べるとかなりの差があり、明らかに CO_2 の吹込みによりpHを下げることはE.coli Bの不活化に有効であると考えられる。しかし、E.coli Bは塩素注入量が1.5mgCl/lの場合、15分以内には99%以上不活化されなかった。

比不活化速度を較べると、 CO_2 の吹込み、 H_2SO_4 の添加によってpHを下げた場合の比不活化速度がコントロールに較べて大きいことからpHを下げる事が初期のE.coli Bの不活化を促進し、塩素による消毒効果を高める事を示している。また、 $T_{90CO_2}/T_{90H_2SO_4}$ および $T_{99CO_2}/T_{99H_2SO_4}$ のそれぞれの比をみると、すべて1以上となっていることから、 H_2SO_4 の添加によるpHの低下の方が、 CO_2 の吹込みによるpHの低下よりも不活化が効率的になっていることがわかるが、その値は1.5以下でそれほど差はなく、 CO_2 の吹込みはE.coli Bの不活化に役立つものと考えられる。

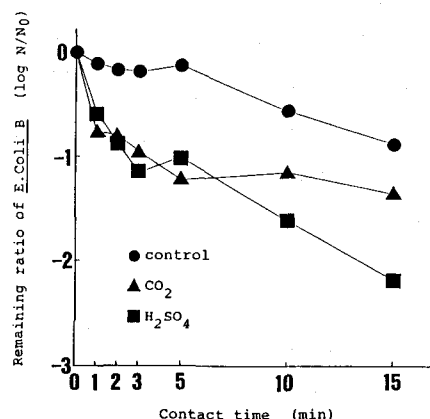


Fig.6 Experimental results for E.coli B with dose of chlorine (1.5mgCl/l).

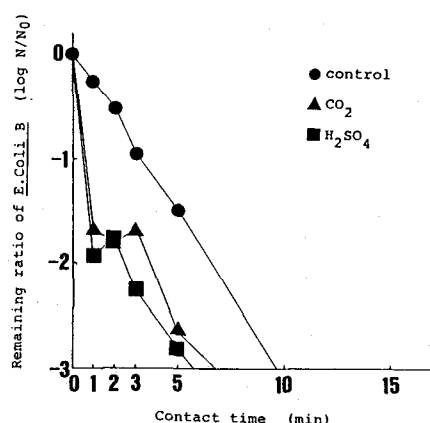


Fig.7 Experimental results for E.coli B with dose of chlorine (3.7mgCl/l).

Table 6 Summaries of experimental results on the inactivation of indicator microorganisms by chlorination.

	Dose of chlorine (mgCl/l)	T ₉₀ (min)				T ₉₉ (min)				Initial specific inactivation rate (1/min)		
		T _{90control}	T _{90CO₂}	T _{90H₂SO₄}	$\frac{T_{90CO_2}}{T_{90H_2SO_4}}$	T _{99control}	T _{99CO₂}	T _{99H₂SO₄}	$\frac{T_{99CO_2}}{T_{99H_2SO_4}}$	control	CO ₂	H ₂ SO ₄
<u>E. coli B</u>	1.5	15.0	3.3	2.4	1.4	—	—	13.4	—	0.23	0.83	0.74
	3.7	3.2	0.6	0.5	1.2	6.6	3.7	2.5	1.5	0.46	0.98	0.99
<u>S. faecalis</u>	1.5	7.0	—	4.2	—	—	—	10.0	—	0.30	0.38	0.44
	3.7	1.9	5.0	0.9	5.6	4.7	11.3	2.4	4.7	0.68	0.53	0.93
Coliphage	5	—	2.5	1.5	1.7	—	—	13.0	—	0.16	0.17	0.86
	12	11.1	0.7	0.6	1.2	—	2.1	2.6	0.8	0.54	0.96	0.98

5. 2 *S. faecalis*の不活化について

*S. faecalis*の不活化を調べたRUN 2のうち、塩素を注入しない場合の結果をFig. 8に、塩素を1.5mgCl/l注入した場合の結果をFig. 9に、塩素を3.7mgCl/l注入した場合の結果をFig. 10に示す。

Fig. 8から、塩素を注入しない場合にはpHの低下によって*S. faecalis*は不活化されないことがわかる。

塩素を1.5mgCl/l注入した時の*S. faecalis*の不活化曲線を示したFig. 9を見ると、 H_2SO_4 の添加によってpHを低下させると、*S. faecalis*はコントロールに較べて不活化されるが、 CO_2 の吹込みによってpHを下げた場合、コントロールに較べて不活化されないことがわかる。

塩素を3.7mgCl/l注入した場合の*S. faecalis*の不活化曲線を示したFig. 10を見ると、塩素注入量1.5 mgCl/lの場合と同様に、最も不活化されたケースは H_2SO_4 でpHを下げたケースで、次がコントロール、最も不活化されなかったのが CO_2 の吹込みによってpHを下げたケースであった。

ここで、*E. coli* Bの場合と同様に不活化の割合を見るためにFig. 8, 9, 10より求めた、 T_{90} と T_{99} および $T_{90CO_2}/T_{90H_2SO_4}$ 、 $T_{99CO_2}/T_{99H_2SO_4}$ 、比不活化速度を比較した結果がTable 6にまとめられている。この中で特に $T_{90CO_2}/T_{90H_2SO_4}$ と $T_{99CO_2}/T_{99H_2SO_4}$ の値が他の*E. coli* Bやコリファージにくらべて非常に大きくなっている。これは、 CO_2 の吹込みが*S. faecalis*の不活化をさまたげていることを表している。 CO_2 の吹込みによってpHを下げた場合の T_{90} 、 T_{99} ともに他の2つの場合に較べて大きく、 CO_2 の吹込みは*S. faecalis*に対しては効果がない事が明らかになった。

このように、 CO_2 の吹込みによりpHを下げた場合、 H_2SO_4 でpHを下げた場合の効率的な不活化は認められず、コントロールよりも不活化されなかった。また、前述したように*E. coli* Bの不活化も差は少ないけれども H_2SO_4 の方が CO_2 より大きい。このようにpHが同一にもかかわらず両細菌とも H_2SO_4 での不活化が大きい原因としては、充分明らかではないが、現時点では次のようなことが考えられる。 H_2SO_4 および CO_2 でpHを下げた場合、pHが同じであれば水素イオン濃度 $[H^+]$ は同じであり、これが不活化の差に影響を与えとは考えにくい。しかし、細菌は負に帯電しているので、同時に存在している陰イオン SO_4^{2-} および HCO_3^- は容易に細菌に近づきにくい、その程度は弱酸である HCO_3^- のほうが SO_4^{2-} より小さいと考えられる。この両酸の解離の強さの違いが塩素の殺菌効果に何らかの影響を及ぼしているのではないかと推察される。

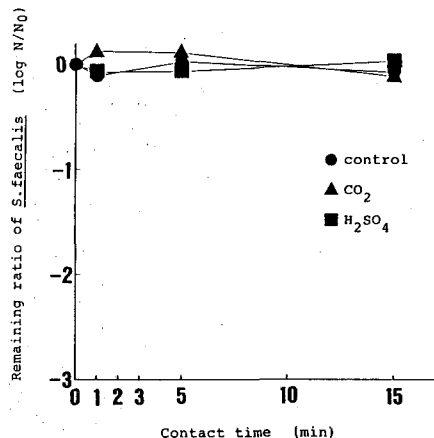


Fig. 8 Experimental results for *S. faecalis* without dose of chlorine.

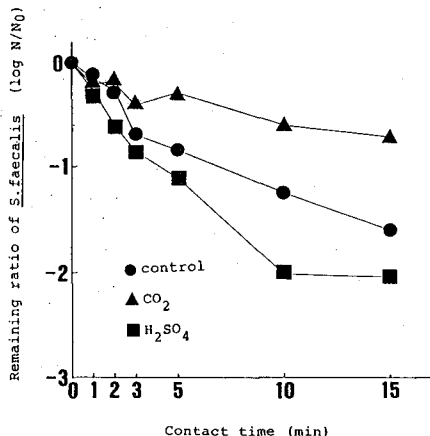


Fig. 9 Experimental results for *S. faecalis* with dose of chlorine (1.5mgCl/l).

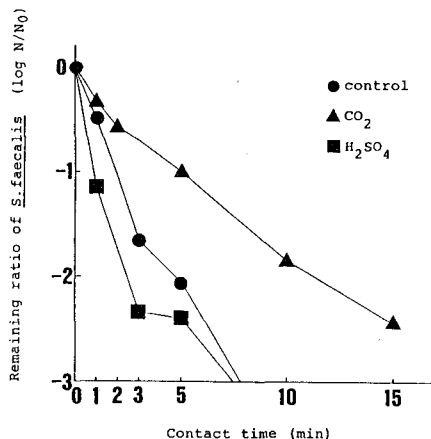


Fig. 10 Experimental results for *S. faecalis* with dose of chlorine (3.7mgCl/l).

5. 3 コリファージの不活化について

コリファージの不活化を調べたRUN 3の結果のうち、塩素を注入しない場合の結果をFig. 1 1に、塩素を5.0mgCl/l注入した場合の結果をFig. 1 2に、塩素を12.0 mgCl/l注入した場合の結果をFig. 1 3に示す。

Fig. 1 1から、塩素を注入しない場合、pHの低下だけでは*E.coli* Bや*S.faecalis*と同様にコリファージは不活化されないことがわかる。

塩素を5.0mgCl/l注入した場合のコリファージの不活化曲線を示したFig. 1 2を見ると、コントロールに比べてCO₂の吹込みおよびH₂SO₄の添加によってpHを下げた場合、コリファージはより不活化されているのがわかる。

塩素を12.0mgCl/l注入した場合のコリファージの不活化曲線を示したFig. 1 3を見ると、塩素注入量5.0mgCl/lの時と同様にCO₂の吹込みおよびH₂SO₄の添加によってpHを下げることによってより不活化されるが、その程度はより大きい。また、塩素注入量が12.0mgCl/lの時にはCO₂の吹込みによってH₂SO₄を添加した時と同程度の効果があることがわかる。

ここで不活化の割合を見るためにFig. 1 1, 1 2, 1 3より求めたT₉₀とT₉₉、T_{90CO2}/T_{90H2SO4}およびT_{99CO2}/T_{99H2SO4}、比不活化速度を比較した結果がTable 6にまとめられている。この表のT₉₀とT₉₉から*E.coli* Bと同様にコントロールに比べて、CO₂の吹込みによってpHを下げた場合およびH₂SO₄の添加によってpHを下げた場合にコリファージがより不活化されていることがわかる。

初期の比不活化速度をみると、塩素注入量が5.0mgCl/lの時コントロールとCO₂吹込みの場合に差は見られないが、T₉₀の値より、明らかにコリファージの不活化に対してCO₂吹込みによる効果が表れていると判断できる。

5. 4 まとめ

E.coli B, *S.faecalis*およびコリファージの塩素による不活化実験から、CO₂の吹込みは*E.coli* Bおよびコリファージの不活化に対して効果があることがわかった。

一方、*S.faecalis*の不活化に対してはほとんど効果がなかった。この原因については現在のところ明らかではないが、*S.faecalis*が*E.coli* Bと異ってグラム陽性であることも影響しているものと思われさらに検討が必要である。

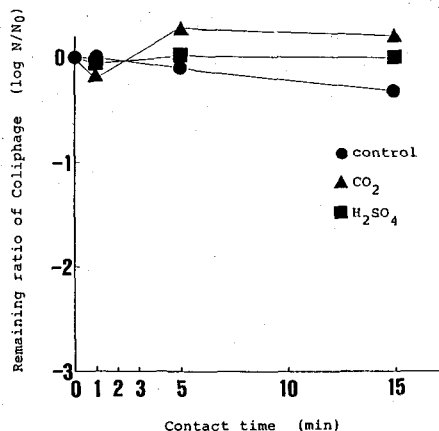


Fig.11 Experimental results for Coliphage without dose of chlorine.

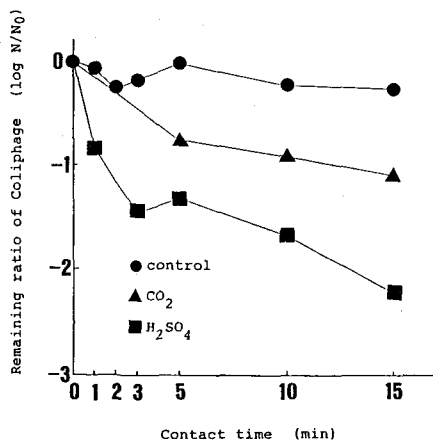


Fig.12 Experimental results for Coliphage with dose of chlorine (5.0mgCl/l).

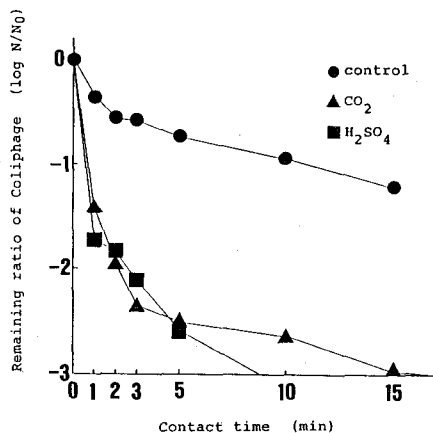


Fig.13 Experimental results for Coliphage with dose of chlorine (12.0mgCl/l).

6. 結論

- (1) 2次処理水にCO₂を吹込みpHを下げた時、アルカリ度の値によって若干差はあるが、pHは約4.8で定常となり、緩衝能を持つ2次処理水でも十分にpHを下げるができる。
- (2) 塩素消毒によるE.coli Bの不活化において、塩素注入量が1.5, 3.7mgCl/lの時、CO₂の吹込みとH₂SO₄の添加によるpHの低下によって、E.coli Bはより不活化される。また、H₂SO₄の添加とCO₂の吹込みによるE.coli Bの不活化の差はあまりないので、CO₂の吹込みはH₂SO₄の添加と同程度の効果が期待できる。
- (3) 塩素消毒によるS.faecalisの不活化において、H₂SO₄の添加によってpHを低下させた時、コントロールに較べてより不活化される。しかし、CO₂を吹込んでpHを低下させた時は、コントロールよりも不活化されず、CO₂吹込みによる効果はあまり期待できない。
- (4) 塩素消毒によるコリファージの不活化に対するCO₂吹込みの効果は、塩素注入量が5.0mgCl/lおよび12.0mgCl/lのどちらの場合においても効果が見られた。また、塩素注入量12.0mgCl/lでは、H₂SO₄の添加とCO₂の吹込みによる不活化の効果の差はあまりなかった。

おわりに

本研究を行うにあたり、実験研究の面で多大な御協力を得た、当時岩手大学学生加藤尋章氏（現在、中部ガス㈱）、菊地健司氏（現在、岩手県庁）および、岩手大学学生西沢隆宏君、芳賀伯文君に心より感謝いたします。

なお、本研究の一部は文部省科学研究費（一般研究C、課題番号02650377）の補助を受けて行ったものである。

<参考文献>

- 1) 土木学会：下水道の高規格化に関する調査（衛生学的観点からの下水処理水の高規格化），pp36～43，1990
- 2) 宗宮功：塩素消毒に関する基礎的研究(Ⅱ)－消毒効果について－，下水道協会誌，Vol.16，No.187，pp16～23，1979
- 3) 河村清史：塩素による消毒，用水と廃水，Vol.32，No.4，pp8～16，1990
- 4) 八木徹：下水処理過程における指標微生物の挙動に関する研究，岩手大学修士論文，1989
- 5) Standard Method: For the examination of water and wastewater, 16th edition, APHA-AWWA-WPCF, 1985
- 6) T.Omura et.al: Viability and Adaptability of E.Coli. and Enterococcus Group to Salt Water with High Concentration of Sodium Chloride, Wat.Sci.Tech., Vol.14, pp.115-126, 1982
- 7) 大垣眞一郎：下水処理水の消毒，水質汚濁研究，Vol.11，NO.5，pp12～16，1988
- 8) 日本下水道協会：下水試験方法，1976
- 9) 宗宮功，遠藤伸一，阪出裕昭：塩素消毒に関する基礎的研究(Ⅰ)－脱窒素について－，下水道協会誌，Vol.16，No185，pp21～31，1979
- 10) Safe Drinking Water Committee, Board on Toxicology and Environmental Hazards, Assembly of Life Science, National Research Council: Drinking Water and Health, Volume 2, pp170, National Academy Press, Washington, D.C., 1980.
- 11) 新化学序説（第2版）：化学同人教科書研究会編，1978
- 12) W. Stumm, J. Morgan: Aquatic Chemistry, Jone Wiley & Sons, Inc., 1970
- 13) A. Lerman, W. Stumm: CO₂ Storage and Alkalinity Trends in Lakes, Wat. Res., Vol. 23, NO. 2, pp139-146, 1989