

琵琶湖・淀川水系における  
河川水中の蛍光性溶存態有機物の動態に及ぼす  
雨天時下水の簡易指標化に関する研究

2021年

山口 武志

## 要 約

降雨時の下水道において、し尿を含む大量の雨天時下水が都市の水利用にどのような影響を与えるか十分な知見がないため、雨天時下水の放流先水域への影響を検討することは、水環境の保全にとって極めて重要である。特に、放流先水域が水利用に供される場合、水利用者に対し、雨天時下水由来と考えられる病原微生物による衛生学的な健康影響が懸念される。飲用・水浴等の用途で河川水を利用しているが、それらの中には水道水源・リクレーション水域が上流側で下水処理場からの放流水に影響されているものがある。国土交通省は、取排水システムが交錯する水道水源での非計画的な事実上の間接的飲用再利用 (*de facto potable reuse*) やリクレーション用途の観点から、このような雨天時の合流式下水道対策を特に優先的に行う必要がある水域を重要影響水域としている。本研究の対象水域は、重要影響水域の琵琶湖・淀川水系である。重要影響水域において、雨天時下水が水利用への衛生学的インパクトを与えている可能性が考えられるため、高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理放流水混入を迅速に検知し、放流先へ早期警報 (*early warning*) できる指標による監視が望まれる。これまで、多くの研究者により非降雨時の下水処理放流口の下流の河川水からの水系感染症のヒト腸管系ウイルス検出事例が国内外から報告され、また病原ウイルス汚染を想定した指標候補微生物の有効性が示されてきたが、指標候補微生物のうち大腸菌ファージについて、ヒト以外の動物糞便からも排出され、水環境中で増殖する可能性があるため、汚染指標としての有効性に限界がある。また限られた指標候補微生物では水中の病原微生物の網羅的な評価は困難である。下水処理放流水や放流先河川水に対し、降雨の有無で有機物や衛生微生物を調査した知見によると、水中の有機物を適切に監視することにより、衛生微生物汚染の状況を定性的に把握できる可能性がある。しかし、従来の採水分析が必要な水質汚濁指標では分析に時間を要し、かつ連続的に把握することに多くの労力が必要である。よって、河川水への雨天時下水の混入を迅速に検出できないため、重要影響水域で雨天時下水混入を迅速に検知するための知見が不足している。降雨時に簡易処理放流等が発生した時に放流先河川で簡易処理放流水混入を迅速に検知する指標として、濁度や電気伝導度 (*electrical conductivity*; EC) が使用できるかもしれないが、放流先河川において雨天時に濁度や EC が上昇する原因は簡易処理放流水だけではなく、上流からの土砂や、特に冬季に路面の凍結防止剤由来の塩化物イオンの流入も考えられる。この場合、濁度や EC は放流先河川における簡易処理放流水混入の検知指標として不適切である。これまで多くの研究者が検討してきた溶存態有機炭素 (*dissolved organic carbon*; DOC) は、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている。DOC は、溶存態有機物 (*dissolved organic matter*; DOM) を含む有機性分子の総濃度を推定するのに有用な指標であるが、DOM の化学組成に関する情報、例えば官能基の構造や存在量を提供することはできない。また、DOC は迅速な連続測定が困難である。高級処理水中 DOM の構成成分推定を目的とした、環境水中 DOM の構成成分に関する文献の考察結果から、DOC より連続的で、迅速に、複数の DOM 成分を検出できる蛍光分析により推定可能な蛍光性 DOM (*fluorescent DOM*; FDOM) 成分が、汚濁負荷源側の下水道と放流先水域側の両方で、雨天時下水混入を監視する簡易指標となる可能性を持つ。

本研究の第一の目的は、下水処理放流水及び河川水中の衛生微生物の動態に与える雨天時下水の影響を検討すること (目的 1) である。また、第二の目的は、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、雨天時下水中 DOM の存在を示す DOC に対し、FDOM の利用性を検討すること (目的 2) である。さらに、第三の目的は、下水処理放流水及び河川水に対し、雨天時下水

の FDOM の動態を検討し、FDOM を指標した場合に、雨天時下水が高級処理水あるいは河川水にどの程度混入しているかの検知性を検討すること（目的 3）である。本研究の新規性・有用性は次にある。①従来、雨天時下水による水域の衛生学的安全性を指標微生物の測定により病原微生物の存在実態の推定というアプローチに対し、本研究は、迅速かつ連続的な指標による雨天時下水混入の迅速かつ連続的な把握というアプローチであり、これまで例がなく新規性が高い。②雨天時下水に対し、生物処理の水質変換過程が推察される指標として FDOM を検討するものであるため、新規性が高い。③非定常の都市排水により、下流での水利用で病原微生物リスクが上昇する時間帯を監視により捉えることができる可能性があり、水利用の安全性を向上させる有用性が高いと考えられる。

第 2 章の文献調査では、まず、下水道における雨天時下水の問題や、国内外での対応を要約した。次に、下水道由来と考えられる衛生微生物の汚染状況に関する知見を、第 3 章で引用する琵琶湖・淀川水系での先行研究事例を含めて整理した。次に、重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性について論述した。最後に、下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入を迅速に検知する簡易指標候補としての FDOM について論述した。以上の文献調査の成果により、衛生学的安全性に悪影響を及ぼす雨天時下水に対し、3次元励起・蛍光マトリクス（Excitation-Emission Matrix; EEM）測定と多変量解析の一つの平行因子解析（parallel factor analysis; PARAFAC）からなる EEM-PARAFAC 法を適用し特異的な FDOM であるタンパク質様成分の存在量を推定することで、下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入の簡易指標化を行うことの意義と重要性を示し、本研究の位置づけを明らかにした。

第 3 章の実態調査では、桂川水系において、下流域にある都市の排水を受け入れる合流式下水道のうち処理能力が最も大きい下水処理場を対象とした。下水処理放流水及び放流先上下流の河川水に含まれる衛生微生物の非降雨時での存在実態を検出濃度で示した先行研究（第 2 章 2.3.2.2）を引用し、下水処理放流水及び河川水に含まれる衛生微生物の降雨時での存在実態を、検出濃度と流量を考慮した負荷量により示すとともに、非降雨時と比較して降雨による微生物負荷量の上昇の程度を検討した。以上の実態調査の成果により、桂川下流域に位置する合流式の下水処理場において、雨天時下水（簡易処理水）が高級処理水に混入することで、下水処理放流水中の病原ウイルス負荷量の増大を引き起こすことを示した。また、このような簡易処理放流水による放流先の桂川河川水への衛生学的影響が、指標微生物や指標候補ウイルスの負荷量増大で説明できることを示した。これらにより、簡易処理放流水及び放流先河川水に含まれる衛生微生物の存在実態の変化を、検出濃度、下水処理放流量及び河川流量を考慮して明らかにした。特に GI, GII の各遺伝子群のノロウイルス（NoV）、F 特異 RNA 大腸菌ファージ（F-specific RNA coliphage; FPH）、GII 遺伝子群の FPH、トウガラシ微斑ウイルス、大腸菌及び大腸菌群のように、下水処理場からの排出負荷量が河川の下流での上昇に大きく寄与しているが、いずれも下水処理場からの排出負荷量だけでは十分説明できなかった。これにより、河川の上下流地点の区間で下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があり、鴨川などに沿って位置する雨水吐からの雨天時越流水である可能性を示した。特に GII-NoV については、河川の上流からの負荷源が元々大きいことも示した。

第 4 章の基礎実験では、模擬的な雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM の水質変化特性を、生物処理実験・凝集処理実験により検討した。また、高級処理水への模擬的な簡易処理水混入や、河川水への模擬的な簡易処理放流水混入による FDOM の水質変化特性を、下水混入実験により検討した。以上の各種基礎実験の成果により、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている DOC に対し、

EEM 測定で得られた励起・蛍光スペクトルのピークピッキングによる下水中 FDOM の蛍光強度データを活用することにより、FDOM のうち特にタンパク質様成分、陸域由来フミン様成分の利用性を明らかにした。すなわち、雨天時下水の生物処理・凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうち、それぞれタンパク質様成分・陸域由来フミン様成分が有力であることを示した。また、高級処理水への雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることも示した。

第 5 章の検証調査では、3 箇所の下水処理場を対象に、雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を現地調査により検討した。また、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を現地調査により検討し、FDOM の高級処理水への簡易処理水混入指標性を調べた。以上の検証調査の結果により、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによる FDOM 成分の雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、実際の雨天時下水処理や高級処理水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを、タンパク質様成分をトリプトファン様成分とチロシン様成分に分離して明らかにした。また、FDOM 指標の濃度と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論することで、FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲も明らかにした。特に実際の雨天時下水処理では、生物処理系の場合においてトリプトファン様成分で生物処理実験の結果を適用することができ生物処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示し、凝集処理系の場合において陸域由来フミン様成分で凝集処理実験の結果を適用することができ凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示した。高級処理水への簡易処理水混入では、分流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができ高級処理水への簡易処理水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があること、全蛍光成分の時間変化の相対値は簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることを示した。また、合流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかつたが、その時間変化の相対値は簡易処理発生を確実に判定する条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることを示した。また、分流式・合流式の場合も、トリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかつた。さらに、簡易的な衛生指標としての適用範囲については、分流式では生物処理・混入のいずれもトリプトファン様成分が適用可能であり、分流式・合流式では生物処理に対しトリプトファン様成分・チロシン様成分ともに適用可能で、凝集処理に対し陸域由来フミン様成分が適用可能であることを示した。

第 6 章の検証調査では、下水処理放流水混入率が高い桂川河川水で、降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を桂川河川・合流式下水処理場調査により示し、FDOM の桂川河川水への簡易処理水混入の検知指標としての有効性を調べた。また、下水処理放流水混入率が低い南湖から流出する瀬田川河川水で、降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を瀬田川河川・分流式下水処理場調査により示し、FDOM の河川水への簡易処理水混入の検知指標としての有効性を調べた。以上の検証調査の成果により、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される指標としての利用性が、実際の河川水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを明らかにした。特に、下水処理放流水混入率が高い桂川の場合にタンパク質様成分で下水混入実験の結果を適用することができ、河川水への簡易処理放流水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があ

ること、簡易処理放流の発生を見逃さず、確実に判定する条件下ではその時間変化は簡易処理放流リスク評価へ適用可能であった。しかし、下水処理放流水混入率が低い瀬田川の場合に下水混入実験の結果を適用することができず、かつ簡易処理放流リスク評価へ適用不可能であった。一方で、タンパク質様成分のような FDOM 指標の濃度と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論しなかったため、タンパク質様成分 FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲を明らかにすることができなかった。今後は、桂川・瀬田川の両方で DOM, FDOM 及び衛生微生物の雨天時データの蓄積が必要である。

以上、本研究の成果により、特に第 3 章の実態調査では下水処理放流水及び河川水中の衛生微生物の動態に与える雨天時下水の影響を明らかにした（目的 1）。また第 4 章の基礎実験では高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、DOC に対し FDOM 成分の利用性を明らかにした（目的 2）。さらに、第 5, 6 章の検証調査では下水処理放流水及び河川水に対し、雨天時下水による FDOM の動態を検討し、FDOM の高級処理水及び河川水への雨天時下水混入を正しく検知できるかを明らかにした（目的 3）。平成 17 年に国土交通省河川環境課から発表された「今後の河川水質管理の指標について（案）」は、河川を BOD だけでなく、人と河川のふれあいや生態系への関心など多様な視点で河川を捉えて評価できるようにしたものである。設定以来 10 年が過ぎ、「人と河川の豊かなふれあいの確保」や「利用しやすい水質の確保」の視点からの見直しが必要で、*de facto* potable reuse やリクレーション用途の観点から、タンパク質様成分 FDOM に着目した本研究成果の、水域への雨天時下水混入の early warning への活用が期待される。しかし、タンパク質様成分 FDOM に対し雨天時下水混入指標としての限界性も以下の通り明らかにした。

まず、本研究で対象とした合流式の下水処理場においては、タンパク質様成分のうちトリプトファン様成分 FDOM は高級処理水への簡易処理水混入指標として不適であることが分かった。このような場合、本研究では全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値を簡易処理水混入指標とすることにより、この下水処理場での簡易処理放流リスクを適切に判定できることが示されたが、この比に影響を与える非蛍光性 DOM について、さらなる解明が必要である。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下では、トリプトファン様成分の時間変化量の相対値を簡易処理水混入指標とすることにより、この下水処理場での簡易処理放流リスクを、より適切に判定できることが示されたが、今後はさらなるデータの蓄積が必要である。

次に、本研究で対象とした南湖から流出する瀬田川河川水においては、下水処理放流水の混入率が低いいため、タンパク質様成分 FDOM は河川水への雨天時下水混入指標として不適であり、本研究における他の 4 つの雨天時下水混入指標候補でも、下水処理放流水の混入率が高い桂川河川水と比べ簡易処理放流リスクの評価精度が著しく劣ることが分かった。この水域において雨天時下水を的確に検知するために、森林あるいは農地由来の FDOM を分離できるよう EEM-PARAFAC のデータセットを改善し、より汎用性のある下水混入指標を精査することが必要である。

最後に、本研究で注目したタンパク質様成分について、下水処理場における高級処理水への簡易処理水混入指標の観点で、トリプトファン様成分とチロシン様成分のそれぞれで衛生指標としての適用範囲が示されたのに対し、放流先河川水への簡易処理水混入指標の観点では検討せず衛生指標としての適用範囲が明らかにすることができなかった。今後は、桂川・瀬田川のいずれの河川水への簡易処理水混入による衛生微生物の検出濃度の変化特性を詳細に調べ、衛生微生物濃度と EEM-PARAFAC 法による FDOM 存在量（蛍光強度）の相関性を検討することで、下水処理場と同様に衛生指標としての適用範囲を解明することが必要である。

# 琵琶湖・淀川水系における河川水中の蛍光性溶存態有機物の動態に及ぼす

## 雨天時下水の簡易指標化に関する研究

### 目 次

第1章 序論	1
1.1 緒言	1
1.2 本研究の目的と新規性・有用性	3
1.3 本研究の構成	3
参考文献	4
第2章 本研究の背景と位置づけに関する文献調査	8
2.1 概説	8
2.2 都市排水システムとしての下水道	8
2.2.1 合流式下水道と分流式下水道	8
2.2.2 合流式下水道越流水（CSO）と分流式下水道越流水（SSO）の問題	8
2.2.3 CSOに関する研究及び調査事例	9
2.2.4 SSOに関する研究及び調査事例	11
2.2.5 合流式下水道改善のための取り組み	12
2.2.5.1 国土交通省の取り組み	12
2.2.5.2 合流式下水道を抱える各自治体の取り組み	13
2.2.5.3 現行の合流改善対策にともなう問題点と課題	14
2.2.6 合流式下水道改善に関する技術開発の動向	15
2.2.6.1 国が取り組む SPIRIT21 プロジェクト	15
2.2.6.2 下水処理場・雨水吐などにおける CSO の処理技術	15
(1) 高速ろ過	15
(2) 高速凝集沈殿	17
(3) 雨天時下水活性汚泥	17

(4) 雨水吐における対策技術	18
(5) 消毒・計測に関する対策技術	18
(6) 合流改善に向けた技術開発の課題	18
2.2.6.3 雨天時処理技術に関する研究の取り組み	18
2.2.7 合流式下水道改善技術の水質面での問題点	19
2.2.8 諸外国における合流改善に関する取り組み状況	20
2.2.8.1 諸外国における合流式下水道の現況	20
2.2.8.2 諸外国における合流改善への取り組み例	20
2.2.8.3 諸外国の対応と日本における合流改善対策の課題	21
2.3 下水処理放流水や CSO・SSO（雨天時下水）の放流先水域への衛生学的影響	22
2.3.1 水系感染症に関わる衛生微生物の伝播経路	22
2.3.2 環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出	23
2.3.2.1 環境水試料からの水系感染症のウイルス検出	23
2.3.2.2 淀川水系桂川における衛生微生物検出の先行研究事例	24
(1) 概説	24
(2) 培養法による大腸菌 ( <i>E. coli</i> ), 大腸菌群 (TC) 及び F 特異 RNA 大腸菌ファージ (FPH) の検出傾向	25
(3) RT-qPCR による FPH の各遺伝子群 FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の検出傾向	25
(4) 陽性率からみた RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子の検出傾向	26
2.3.3 指標微生物を用いた水質管理	27
2.3.3.1 指標微生物としての条件	27
2.3.3.2 <i>E. coli</i> , TC を用いた水質管理	28
2.3.3.3 ウイルス汚染を想定した指標候補微生物を用いた水質管理	28
2.3.4 重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性	28
2.3.4.1 取排水システムからの事実上の間接的な飲用, リクリレーション用途の再利用	28
2.3.4.2 雨天時下水の実態調査事例	30
2.3.4.3 雨天時下水混入の迅速検知に関する考察	32
2.4 雨天時下水混入を迅速かつ連続的に検知する簡易指標候補の蛍光性溶存態有機物 (FDOM)	33
2.4.1 溶存態有機物 (DOM) の分析と FDOM	33
2.4.2 蛍光分析の原理	34
2.4.3 蛍光分析を活用した EEM-PARAFAC 法による FDOM 存在量の推定	35
2.4.3.1 EEM 分析の概要	35
2.4.3.2 PARAFAC 解析の概要	36
2.4.3.3 EEM 分析の適用	37
2.4.3.4 EEM-PARAFAC 法の適用	37
2.5 本研究の位置づけと本章のまとめ	39
2.5.1 本研究の新規性	39
2.5.2 本研究の有用性	40

2.5.3 本研究の応用性	40
2.6 第2章のまとめ	40
参考文献	43
<b>第3章 河川水の衛生学的安全性へ与える雨天時下水の影響に関する実態調査</b>	<b>54</b>
3.1 概説	54
3.2 調査対象の衛生微生物の概要	54
3.3 調査対象の淀川水系における桂川流域の概要	56
3.4 調査概要	56
3.4.1 採水地点	56
3.4.2 採水日	58
3.5 分析方法	60
3.5.1 培養法による衛生微生物の検出	60
3.5.1.1 <i>E. coli</i> , TC の検出	60
3.5.1.2 FPH の検出	60
3.5.2 RT-qPCR による衛生微生物の検出	60
3.5.2.1 ウイルス濃縮操作	60
3.5.2.2 FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH), RNA ウイルス遺伝子の検出	61
3.6 河川流量の推定及び下水処理放流水量の入手方法	61
3.6.1 非降雨時調査 (2014, 2015 年度の先行研究)	61
3.6.2 降雨時調査 (2017 年度)	62
3.7 衛生微生物負荷量の推定方法	64
3.8 調査結果及び考察	64
3.8.1 衛生微生物の検出濃度	64
3.8.1.1 培養法による <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の検出傾向	64
3.8.1.2 RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子の検出傾向	66
3.8.1.3 RT-qPCR による GI, GII, GIII-FPH の検出傾向	67
3.8.2 衛生微生物の負荷量	69
3.8.2.1 培養法による <i>E. coli</i> , TC 及び FPH 負荷量の推移傾向	69
3.8.2.2 RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子負荷量の推移傾向	70
3.8.2.3 RT-qPCR による FRNAPHs 負荷量の推移傾向	71
3.8.3 衛生微生物負荷量の降雨時, 非降雨時での比較	72
3.8.3.1 <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の負荷量	72
3.8.3.2 RNA ウイルス遺伝子の負荷量	73
3.8.4 降雨時における桂川流域での衛生微生物負荷源の考察	74

3.9 第3章のまとめ	75
参考文献	77
<b>第4章 雨天時下水及び河川水に含まれるFDOMの動態に関する基礎実験</b>	<b>81</b>
4.1 概説	81
4.2 実験方法	81
4.2.1 試料水	81
4.2.1.1 生物処理実験	81
4.2.1.2 凝集処理実験	82
4.2.1.3 下水混入実験	83
4.2.2 分析方法	85
4.3 実験結果及び考察	85
4.3.1 生物処理実験	85
4.3.2 凝集処理実験	89
4.3.3 下水混入実験	92
4.4 第4章のまとめ	95
参考文献	97
<b>第5章 下水処理場における雨天時下水中のFDOMの動態に関する検証調査</b>	<b>99</b>
5.1 概説	99
5.2 雨天時下水処理の検証調査	99
5.2.1 調査概要	99
5.2.2 調査方法	100
5.2.2.1 採水地点	100
(1) A 下水処理場 (合流式, 生物処理系)	100
(2) B 下水処理場 (分流式, 生物処理系)	100
(3) C 下水処理場 (分流式・合流式, 生物処理系・凝集処理系)	100
5.2.2.2 採水日と採水方法	104
5.2.2.3 分析方法	106
(1) DOM 及びFDOM	106
(2) 衛生微生物	106
5.2.2.4 解析方法	106

5.2.3	調査結果及び考察	108
5.2.3.1	対象水中の FDOM の主成分推定	108
5.2.3.2	A 下水処理場における流入水、初沈後水及び終沈後水に対する検討	108
	(1) 流入水中の FDOM の動態	108
	(2) 初沈後水・終沈後水中の FDOM の動態	110
5.2.3.3	B 下水処理場における初沈後水及び終沈後水に対する検討	115
	(1) 初沈後水・終沈後水中の FDOM の動態	115
	(2) 初沈後水・終沈後水中の衛生微生物の動態	120
5.2.3.4	C 下水処理場の生物処理系における流入水、初沈後水及び終沈後水に対する検討	123
	(1) 流入水中の FDOM の動態	123
	(2) 初沈後水・終沈後水中の FDOM の動態	125
	(3) 初沈後水・終沈後水中の衛生微生物の動態	128
5.2.3.5	C 下水処理場の凝集処理系における流入水及び処理水に対する検討	131
	(1) 流入水・処理水中の FDOM の動態	131
	(2) 流入水・処理水中の衛生微生物の動態	134
5.3	終沈後水（高級処理水）への雨天時下水（簡易処理水）混入の検証調査	137
5.3.1	調査概要	137
5.3.2	調査方法	138
5.3.2.1	採水地点	138
	(1) A 下水処理場（合流式、生物処理系）	138
	(2) B 下水処理場（分流式、生物処理系）	138
	(3) C 下水処理場（分流式・合流式、生物処理系・凝集処理系）	138
5.3.2.2	採水日と採水方法	140
5.3.2.3	分析方法	143
	(1) DOM 及び FDOM	143
	(2) 衛生微生物	143
5.3.2.4	解析方法	143
5.3.2.5	終沈後水（高級処理水）への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価精度の検証	143
	(1) 簡易処理水混入指標	143
	(2) 評価精度の検証方法	144
5.3.3	調査結果及び考察	145
5.3.3.1	対象水中の FDOM の主成分推定	145
5.3.3.2	A 下水処理場における放流水（消毒後水）に対する検討	145
	(1) 下水処理放流水、放流先河川水中の FDOM の動態	145
	(2) 終沈後水（高級処理水）への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価精度の検証結果	149
	(3) 下水処理放流水、放流先河川水中の衛生微生物の動態	153
	(4) 雨天時の下水処理放流水質の動態比較	154
5.3.3.3	B 下水処理場における放流水（消毒後水）に対する検討	155

(1) 下水処理放流水中の FDOM の動態	155
(2) 高級処理水への雨天時下水混入の評価精度の検証結果	158
(3) 下水処理放流水中の衛生微生物の動態	162
(4) 雨天時の下水処理放流水質の動態比較	162
5.3.3.4 C 下水処理場の生物処理系における消毒前水に対する検討	164
(1) 終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の FDOM の動態	164
(2) 終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の衛生微生物の動態	166
5.4 第 5 章のまとめ	167

参考文献	171
------	-----

## 第 6 章 河川水中の FDOM の動態に及ぼす雨天時下水の影響に関する検証調査 174

6.1 概説	174
6.2 下水処理放流水混入率が高い河川（桂川）での調査	174
6.2.1 調査概要	174
6.2.2 調査方法	174
6.2.2.1 採水地点	174
6.2.2.2 採水日と採水方法	176
6.2.2.3 分析方法	177
(1) DOM 及び FDOM	177
(2) 衛生微生物	178
6.2.2.4 解析方法	178
6.2.2.5 桂川河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価	178
(1) 簡易処理水混入指標	178
(2) 評価精度の検証方法	178
6.2.3 調査結果及び考察	179
6.2.3.1 B 下水処理場の下水，下水処理水及び桂川河川水中の FDOM の主成分推定	179
6.2.3.2 降雨時における B 下水処理場での FDOM の動態	180
6.2.3.3 B 下水処理場での降雨時における下水処理放流水，河川水中 FDOM の存在実態	183
6.2.3.4 河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価判定	185
6.2.3.5 降雨時における下水処理放流水，河川水中の衛生微生物の存在実態	189
6.3 下水処理放流水混入率が低い河川（瀬田川）での調査	191
6.3.1 調査概要	191
6.3.2 調査対象の琵琶湖・淀川水系における南湖・瀬田川流域の概要	192
6.3.3 調査方法	193
6.3.3.1 採水地点	193

6.3.3.2	採水日と採水方法	194
6.3.3.3	分析方法	194
	(1) DOM 及び FDOM	194
	(2) 衛生微生物	194
6.3.3.4	解析方法	195
6.3.3.5	瀬田川河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価	195
	(1) 簡易処理水混入指標	195
	(2) 評価精度の検証方法	195
6.3.4	調査結果及び考察	195
6.3.4.1	C 下水処理場の下水，下水処理水及び瀬田川河川水中の FDOM の主成分推定	195
6.3.4.2	調査期間における瀬田川・C 下水処理場の雨天時実態	197
6.3.4.3	台風時における河川水中 FDOM の存在実態	199
6.3.4.4	台風時における河川水中の衛生微生物の存在実態	201
6.3.4.5	晴天時における下水処理放流水・河川水中 FDOM の存在実態	202
6.3.4.6	雨天時における下水処理放流水・河川水中 FDOM の存在実態	203
6.3.4.7	河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価精度の検証結果	204
6.4	第 6 章のまとめ	208
	<b>参考文献</b>	<b>210</b>
	<b>第 7 章 結論</b>	<b>213</b>
7.1	本研究で得られた成果	213
7.1.1	第 2 章の成果	213
7.1.2	第 3 章の成果	214
7.1.3	第 4 章の成果	215
7.1.4	第 5 章の成果	216
7.1.5	第 6 章の成果	219
7.2	本研究成果の活用と今後の課題	221
	<b>参考文献</b>	<b>222</b>
	<b>謝辞</b>	<b>223</b>

# 目 次

<b>第 1 章 序論</b>	<b>1</b>
図 1-1 本論文で取り扱う下水処理場における雨天時下水の流れ.	1
図 1-2 本論文の構成.	5
<b>参考文献</b>	<b>4</b>
<b>第 2 章 本研究の背景と位置づけに関する文献調査</b>	<b>8</b>
図 2-1 不明水の分類と影響の例 (日本下水道新技術機構, 2009).	12
図 2-2 合流式下水道の改善対策施設の一覧 (国土交通省, 2002).	16
図 2-3 高速ろ過施設の一例 (武, 2005).	16
図 2-4 高速凝集沈殿処理施設の一例 (武, 2005).	17
図 2-5 雨天時下水活性汚泥処理施設の一例 (橋本ら, 2005).	17
図 2-6 腸管系病原微生物の伝播経路の概略 (金子, 2006; 李, 2015).	22
図 2-7 非降雨時調査の期間における京都気象台の降雨強度 (気象庁, 2018) と桂川 (羽東師) の水位 (国土交通省, 2018) の変化 (田中宏明ら, 2016).	24
図 2-8 地点 A・B・C における <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の濃度推移 (Hata <i>et al.</i> , 2016; 田中宏明ら, 2016).	25
図 2-9 地点 A・B・C における FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の遺伝子濃度推移 (Hata <i>et al.</i> , 2016; 田中宏明ら, 2016).	26
図 2-10 GII-NoV と他のウイルス・FRNAPH との検出濃度比較 (Hata <i>et al.</i> , 2016; 田中宏明ら, 2016).	27
図 2-11 水の再利用計画の概要 (Asano <i>et al.</i> , 2007).	29
図 2-12 日本における取排水システムからの事実上の間接的な飲用, リクレーション用途の再利用 (京都市, 2018; 大阪市, 2018).	29
図 2-13 処理水別の放流負荷量割合 (国土交通省, 2002).	30
図 2-14 放流先の水利用状況 (国土交通省, 2002).	30
図 2-15 蛍光分析の原理 (日本分光, 2013).	34
図 2-16 分光蛍光光度計の構成例 (堀込, 2018).	35
図 2-17 ピークピッキングによる高級処理水の EEM スペクトルの帰属 (清水ら, 2015).	35
図 2-18 PARAFAC 解析における Trilinear モデルの概念 (清水ら, 2015).	36
<b>参考文献</b>	<b>43</b>

### 第3章 河川水の衛生学的安全性へ与える雨天時下水の影響に関する実態調査 54

図 3-1 採水地点位置.	57
図 3-2 B 下水処理場の採水地点.	57
図 3-3 降雨時調査の 2018 年 3 月 8 日～9 日 (1 回目調査) の期間における降雨強度及び桂川水位.	59
図 3-4 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日 (2 回目調査) の期間における降雨強度及び桂川水位.	60
図 3-5 2014 年の羽束師観測所と納所観測所における同日での日平均流量 (国土交通省, 2018) の関係式 (井原ら, 2018).	62
図 3-6 降雨時調査の 2018 年 3 月 8 日～9 日 (1 回目調査) における河川の時間流量の推定値及び降雨強度 (気象庁, 2018).	63
図 3-7 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日 (2 回目調査) における河川の時間流量の推定値及び降雨強度 (気象庁, 2018).	63
図 3-8 降雨時調査の 2018 年 3 月 8 日～9 日 (1 回目調査) における B 下水処理場の下水処理放流水量の経時変化.	63
図 3-9 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日 (2 回目調査) における B 下水処理場の下水処理放流水量の経時変化.	63
図 3-10 桂川の採水地点 A, C, D 及び B 下水処理場の位置関係.	64
図 3-11 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水 (下水処理場の上流側地点 A, 下流側地点 B) における 1 時間あたりの <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の濃度変化 ( $\log(\text{CFU/L})$ , $\log(\text{PFU/L})$ ).	65
図 3-12 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水 (下水処理場の上流側地点 A, 下流側地点 B) における 1 時間あたりの RNA ウイルス遺伝子 (GI, GII-NoV 及び PMMoV) の濃度変化 ( $\log(\text{copies/L})$ ).	67
図 3-13 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水 (下水処理場の上流側地点 A, 下流側地点 B) における 1 時間あたりの FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の濃度変化 ( $\log(\text{copies/L})$ ).	68
図 3-14 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の負荷量 ( $\log(\text{CFU/h})$ , $\log(\text{PFU/h})$ ).	69
図 3-15 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の負荷量 ( $\log(\text{Copies/h})$ ).	71
図 3-16 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH の負荷量 ( $\log(\text{Copies/h})$ ).	72
図 3-17 桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの <i>E. coli</i> , TC 及び FPH の負荷量 ( $\log(\text{CFU/h})$ , $\log(\text{PFU/h})$ ) の晴天時・雨天時の比較.	73
図 3-18 桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場における 1 時間あたりの GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の負荷量 ( $\log(\text{Copies/h})$ ) の晴天時・雨天時の比較.	74
図 3-19 雨天時における桂川上下流の GII-NoV 及び <i>E. coli</i> の負荷量収支.	75

## 第4章 雨天時下水及び河川水に含まれるFDOMの動態に関する基礎実験 81

- 図 4-1 生物処理実験のフローと処理条件. 82
- 図 4-2 凝集処理実験のフローと処理条件. 83
- 図 4-3 下水混入実験のフローと混合条件. 84
- 図 4-4 本章で帰属させた4つの代表ピーク peak.1 (タンパク質様成分), peak.2 (陸域由来フミン様成分①), peak.3 (陸域由来フミン様成分②) 及び peak.4 (生物由来フミン様成分). 85
- 図 4-5 生物処理実験における初沈後水に対する生物処理による EEM の経時変化. 86
- 図 4-6 生物処理実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の経時変化. 87
- 図 4-7 生物処理実験の結果. 87
- 図 4-8 生物処理実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の初発蛍光強度 peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub> に対する比と DOC 濃度の初発濃度 DOC<sub>0</sub> に対する比の経時変化. 88
- 図 4-9 初沈後水に対する生物処理による, peak.1/ peak.1<sub>0</sub>, DOC/ DOC<sub>0</sub> と経過時間の関係. 88
- 図 4-10 凝集処理実験における流入下水に対する PACl の添加による EEM の変化. 89
- 図 4-11 凝集処理実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の変化. 89
- 図 4-12 凝集処理実験の結果. 図は, ゼータ電位及び pH の結果. 90
- 図 4-13 凝集処理実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の PACl 無添加蛍光強度 peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub> に対する比と DOC 濃度の PACl 無添加濃度 DOC<sub>0</sub> に対する比の変化. 91
- 図 4-14 流入下水に対する凝集処理による, peak.2/ peak.2<sub>0</sub>, DOC/ DOC<sub>0</sub> と PACl 添加濃度の関係. 92
- 図 4-15 下水混入実験における終沈後水 (高級処理水) と初沈後水 (模擬簡易処理水) と南湖水 (河川水) の混合による EEM の変化. 93
- 図 4-16 下水混入実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の変化. 93
- 図 4-17 下水混入実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の河川水中蛍光強度 peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub> に対する比と DOC 濃度の河川水中濃度 DOC<sub>0</sub> に対する比の変化. 95
- 図 4-18 高級処理水への簡易処理水の混入による, peak.1/ peak.1<sub>0</sub> 及び DOC/ DOC<sub>0</sub> と簡易処理水の混入割合 (下水混入率) の関係. 96

## 第5章 下水処理場における雨天時下水中のFDOMの動態に関する検証調査 99

- 図 5-1 A 下水処理場 (合流式, 生物処理系) の処理フローからみた採水地点. 101
- 図 5-2 B 下水処理場 (分流式, 生物処理系) の処理フローからみた採水地点. 102

図 5-3 C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点（松葉，2019）.	103
図 5-4 C 下水処理場（分流式・合流式，凝集処理系）の処理フローからみた採水地点（松葉，2019）.	103
図 5-5 高速凝集沈殿処理フローの詳細（松葉，2019）.	104
図 5-6 A 下水処理場における雨天時採水日 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の E-I 系列流入量と京都気象台の降雨強度（気象庁，2020）の経時変化.	105
図 5-7 B 下水処理場における雨天時採水日の 3 系列 1 号池の流入量と処理区内の降雨強度の経時変化. 左が 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm），右が 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）.	105
図 5-8 C 下水処理場における雨天時及び晴天時の採水日の I 系列の流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁，2017）の経時変化. 左から 2017 年 6 月 20~21 日（総降雨量 78.0 mm），2017 年 12 月 20~21 日.	105
図 5-9 C 下水処理場における台風時採水日の生物処理系 I 系列・凝集処理系の流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁，2018）の経時変化. 左から 2017 年 10 月 21~23 日（生物処理系 I 系列，総降雨量 200 mm），2018 年 9 月 4~5 日（凝集処理系，総降雨量 42.5 mm）.	105
図 5-10 A, B, C 下水処理場の調査で得られた総数 1,277 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル.	107
図 5-11 A, B, C 下水処理場の調査で得られた総数 1,277 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量（loading）の分布.	108
図 5-12 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の 2 系列流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 並びに DOC 濃度，FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比及び E-I 系列流入量の経時変化.	108
図 5-13 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の流入水中の BOD, COD 及び SS 濃度，窒素（N）及びりん（P）濃度の経時変化.	109
図 5-14 A 下水処理場における雨天時 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の E 系列反応槽の MLSS 濃度と E 系列最初沈殿池及び反応槽 HRT の経時変化.	111
図 5-15 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度の経時変化.	111
図 5-16 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水中の Comp.f/DOC 比（f =1, 2, 3）及び E-I 系列流入量，終沈後水中の Comp.f/DOC 比の経時変化.	112
図 5-17 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度，N 及び P 濃度の経時変化.	112
図 5-18 A 下水処理場における流入水質指標（Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度）に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT，初沈後水質に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化.	113

図 5-19 A 下水処理場における流入水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する初沈後水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と初沈 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比の比率と生物反応槽 HRT の経時変化.	114
図 5-20 A 下水処理場における流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT の比較.	115
図 5-21 A 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較.	116
図 5-22 B 下水処理場における雨天時の 3 系列 1 号池反応槽の MLSS 濃度と HRT の経時変化.	116
図 5-23 B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm) の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比及び 3 系列 1 号池流入量の経時変化.	117
図 5-24 B 下水処理場における 2019 年 10 月 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm) の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比及び 3 系列 1 号池流入量の経時変化.	118
図 5-25 B 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化.	119
図 5-26 B 下水処理場における初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と生物反応槽 HRT の経時変化.	119
図 5-27 B 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較.	120
図 5-28 B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日, 24~25 日の初沈後水・終沈後水中 TC, <i>E. coli</i> 及び FPH の検出濃度の経時変化.	121
図 5-29 B 下水処理場における初沈後水質に対する終沈後水質との差.	121
図 5-30 B 下水処理場の初沈後水・終沈後水に対する Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較.	122
図 5-31 C 下水処理場の生物処理系における I 系流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 及び DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比及び I 系流入水量の経時変化.	124
図 5-32 C 下水処理場の生物処理系における台風時の 2017 年 10 月 21~23 日 (総降雨量 200 mm) の I 系列 2 号池反応槽の MLSS 濃度と I 系列 4 池平均の HRT の経時変化.	125
図 5-33 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比及び I 系流入量の経時変化.	125
図 5-34 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度)	

に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と生物反応槽 HRT の経時変化.	126
図 5-35 C 下水処理場の生物処理系の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較.	127
図 5-36 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日 (総降雨量 200 mm) の初沈後水・終沈後水中 TC, <i>E. coli</i> 及び FPH の検出濃度の経時変化.	129
図 5-37 B 下水処理場の生物処理系における初沈後水質に対する終沈後水質との差.	129
図 5-38 C 下水処理場の生物処理系の初沈後水・終沈後水に対する Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較.	130
図 5-39 C 下水処理場の凝集処理系における台風時の 2018 年 9 月 4~5 日 (総降雨量 42.5 mm) の流入水濁度と, PACl 添加濃度の経時変化.	132
図 5-40 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日 (総降雨量 42.5 mm) の流入水・処理水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比及び流入量の経時変化.	132
図 5-41 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日の流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する処理水質指標の比率と PACl 添加濃度, 流入水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する処理水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と PACl 添加濃度の経時変化.	133
図 5-42 C 下水処理場の凝集処理系の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率.	134
図 5-43 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日 (総降雨量 42.5 mm) の流入水・処理水中 TC, <i>E. coli</i> 及び FPH の検出濃度の経時変化.	135
図 5-44 C 下水処理場の凝集処理系における流入水質に対する処理水質との差.	135
図 5-45 C 下水処理場の凝集処理系の流入水・処理水に対する Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較.	136
図 5-46 A 下水処理場 (合流式, 生物処理系) の処理フローからみた採水地点.	138
図 5-47 B 下水処理場 (分流式, 生物処理系) の処理フローからみた採水地点.	139
図 5-48 C 下水処理場 (分流式・合流式, 生物処理系) の処理フローからみた採水地点.	139
図 5-49 A 下水処理場 (合流式, 生物処理系) における簡易処理放流水の採水.	140
図 5-50 A 下水処理場における雨天時採水日の E~I 系列放流量と京都気象台の降雨強度 (気象庁, 2018; 気象庁, 2020) の経時変化.	141
図 5-51 A 下水処理場における雨天時採水日の河川の時間流量の推定値及び降雨強度 (気象庁, 2018).	141
図 5-52 B 下水処理場 (分流式, 生物処理系) における簡易処理放流水の採水.	142
図 5-53 B 下水処理場における雨天時採水日の連続採水時間帯を通じた全 1~5 系列放流量と処理区内の降雨強度 (気象庁, 2020) の経時変化.	142
図 5-54 C 下水処理場 (分流式・合流式, 生物処理系) でのバイパス水, 高級処理水, 消毒前水の採水.	142
図 5-55 C 下水処理場における雨天時採水日 2017.年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) の I 系列放流量	

と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2017）の経時変化.	143
図 5-56 評価精度検証で簡易処理放流リスクの判定結果の空振りにより適合率が低い場合の例.	145
図 5-57 評価精度検証で簡易処理放流リスクの判定結果の見逃しにより再現率が低くなる場合の例.	145
図 5-58 A 下水処理場における下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	146
図 5-59 2018 年 3 月 8~9 日 (総降雨量 40.0 mm) の A 下水処理場放流口の上流における河川水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	147
図 5-60 A 下水処理場における 2020 年 1 月 8 日 (総降雨量 17.5 mm) の終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	148
図 5-61 A 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と下水混入率の経時変化.	148
図 5-62 A 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較.	149
図 5-63 A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=112).	149
図 5-64 A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=39).	152
図 5-65 A 下水処理場における下水処理放流水中, 放流先河川水中の衛生微生物濃度の経時変化.	153
図 5-66 A 下水処理場における下水処理放流水に対する Comp.2 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較.	154
図 5-67 B 下水処理場の 2019 年 10 月 12~13 日 (総降雨量 89.0 mm) における下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	155
図 5-68 B 下水処理場の 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm) における終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	156
図 5-69 B 下水処理場の 2019 年 10 月 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm) における終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の経時変化.	156
図 5-70 B 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比 (f =1, 2, 3) の比率と下水混入率の経時変化.	157
図 5-71 B 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較.	158
図 5-72 B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=92).	159
図 5-73 B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の	

相対値と簡易処理発生管理基準である下水混入率の関係 (n=58).	161
図 5-74 B 下水処理場の下水処理放流水中の衛生微生物濃度の経時変化.	162
図 5-75 B 下水処理場における下水処理放流水に対する Comp.2 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較.	163
図 5-76 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) における終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の主成分スコア値 Comp.f (f = 1, 2) 及び DOC 濃度の経時変化.	164
図 5-77 C 下水処理場での終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2, Comp.3, DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度, Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比の比率と下水混入率の経時変化.	165
図 5-78 C 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較.	165
図 5-79 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) における終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の TC, <i>E. coli</i> 及び FPH 並びに主成分スコア値 Comp.2 の経時変化.	166
<b>参考文献</b>	<b>171</b>
<b>第 6 章 河川水中の FDOM の動態に及ぼす雨天時下水の影響に関する検証調査</b>	<b>174</b>
図 6-1 採水地点位置.	175
図 6-2 B 下水処理場の採水地点.	175
図 6-3 B 下水処理場放流量と降雨強度の経時変化.	176
図 6-4 河川の時間流量の推定値.	177
図 6-5 B 下水処理場 (合流式) 及び桂川河川水における総数 335 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル.	179
図 6-6 B 下水処理場 (合流式) 及び桂川河川水における総数 335 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布.	179
図 6-7 B 下水処理場での 1 回目調査 (総降雨量 19.5 mm) における主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f と DOC 濃度の経時変化.	180
図 6-8 B 処理場での 1 回目調査における DOC 濃度に対する主成分スコア値 Comp.f (f = 1,2,3) の比率の経時変化.	181
図 6-9 1 回目調査における各ピーク主成分の相対的な存在割合 %Comp.f (f = 1,2,3) の経時変化.	182
図 6-10 2, 3 回目調査 (総降雨量 15.5 mm, 18.0 mm) における DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率の経時変化.	183
図 6-11 2 回目調査における DOC 濃度に対する主成分スコア値 Comp.f (f = 1,2,3) の比率, 各ピー	

ク主成分の相対的な存在割合%Comp.f (f = 1,2,3) の経時変化.	184
図 6-12 2, 3 回目調査における B 下水処理場放流量及び河川流量の経時変化.	185
図 6-13 桂川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の判断基準である下水混入率の関係 (n=61).	186
図 6-14 2, 3 回目調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=18).	188
図 6-15 2018 年 2, 3 月の B 下水処理場と桂川での雨天時調査 (2 回目調査) における下水処理放流水, 河川水の GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の検出濃度, ならびに Comp.2 スコア値の経時変化.	190
図 6-16 2018 年 2, 3 月の B 下水処理場と桂川での雨天時調査 (2 回目調査) における下水処理放流水, 河川水の GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH の検出濃度, ならびに Comp.2 スコア値の経時変化.	191
図 6-17 本調査における下水処理場放流口の位置と採水地点等.	192
図 6-18 本調査で注目した分流式の C 下水処理場における採水地点.	193
図 6-19 C 下水処理場 (分流式) 及び瀬田川河川水における総数 416 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル.	196
図 6-20 C 下水処理場 (分流式) 及び瀬田川河川水における総数 416 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布.	196
図 6-21 台風時調査における C 処理区降雨強度 (気象庁, 2018) 及び C 下水処理場放流水量の経時変化, 並びに河川地点 E の洗堰流量及び放流量/洗堰流量比の経時変化.	197
図 6-22 晴天時調査・雨天時調査における C 処理区降雨強度 (気象庁, 2019) 及び C 下水処理場放流水量の経時変化, 並びに河川地点 E の洗堰流量及び C 下水処理場放流量/瀬田川洗堰流量比の経時変化.	198
図 6-23 台風時調査における地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す%Comp.f の経時変化.	200
図 6-24 台風時調査における地点 D 河川水の GI, GII, GIII-FPH 及び PMMoV の検出濃度, 並びに濁度の経時変化.	201
図 6-25 晴天時調査 (総降雨量 0.0 mm の非降雨時, C 下水処理場の簡易処理放流が発生せず) における C 下水処理場放流水・地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す%Comp.f の経時変化.	202
図 6-26 雨天時調査 (総降雨量 28 mm の中降雨時, C 下水処理場の簡易処理放流が 6 時間発生) における C 下水処理場放流水・地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す%Comp.f の経時変化.	203
図 6-27 瀬田川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=212).	205

図 6-28 台風時調査（2 回目調査）、雨天時調査、雨天時予備調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n=125). 207

参考文献 210

## 第 7 章 結論 213

図 7-1 本研究の意義からみた研究成果活用のイメージ (千葉県, 2019). 222

参考文献 222

## 目 次

<b>第 2 章 本研究の背景と位置づけに関する文献調査</b>	<b>8</b>
表 2-1 CSO の水質 (国土交通省, 2002).	10
表 2-2 CSO 対策技術の評価例 (国土交通省, 2002).	10
表 2-3 合流式下水道緊急改善事業の目的と概要 (岡本, 2002).	13
表 2-4 各都市の合流改善事業の例 (木村, 2002; 古川, 2002; 古賀, 2004; 鈴木ら, 2004; 荒木, 2005; 笠原, 2005; 丹野ら, 2005; 大津市, 2006; 大楽, 2006; 内田, 2008; 京都市, 2011; 福岡市, 2011; 北九州市, 2011).	14
表 2-5 調査日・採水時刻及び採水前の降雨量 (田中宏明ら, 2016).	24
表 2-6 各地点での各 RNA ウイルスの検出試料数及び陽性率 (Hata <i>et al.</i> , 2016; 田中宏明ら, 2016).	26
表 2-7 降雨の有無で下水道からの放流水や放流先河川水に対し有機物や衛生微生物を調査した知見 (松田, 2002; 山本・中村, 2005; 内田, 2008; 上門, 2009; 安藤ら, 2010; 樋上, 2012; 諏訪ら, 2016).	32
<b>参考文献</b>	<b>43</b>
<b>第 3 章 河川水の衛生学的安全性へ与える雨天時下水の影響に関する実態調査</b>	<b>54</b>
表 3-1 河川地点の概要 (花本, 2010).	58
表 3-2 下水処理場の概要 (京都市, 2017).	58
表 3-3 調査日・採水時刻及び採水前の降雨量.	59
表 3-4 調査日ごとの各採水地点における対象微生物測定の有無 (井原ら, 2018).	59
表 3-5 非降雨時調査 (2014・2015 年度) における各採水地点での日平均流量 (井原ら, 2018).	62
表 3-6 降雨時調査の採水地点における連続採水時間帯 (24 時間) での平均流量 (国土交通省, 2018).	64
表 3-7 2014, 2015, 2017 年度の各調査の降雨情報とデータ数 (井原ら, 2018).	64
<b>参考文献</b>	<b>77</b>
<b>第 4 章 雨天時下水及び河川水に含まれる FDOM の動態に関する基礎実験</b>	<b>81</b>
表 4-1 生物処理実験の条件.	82

表 4-2	凝集処理実験の条件.	83
表 4-3	下水混入実験の条件.	84
参考文献		97
<b>第 5 章 下水処理場における雨天時下水中の FDOM の動態に関する検証調査</b>		<b>99</b>
表 5-1	C 下水処理場（分流式・合流式，凝集処理系）における PACl 注入率の基準（松葉，2019）.	103
表 5-2	簡易処理水量/高級処理水量比の実測値と算出された簡易処理水混入指標の分類.	144
表 5-3	A 下水処理場の生物処理系放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果.	151
表 5-4	A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果（n=39）.	153
表 5-5	B 下水処理場の生物処理系放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果.	160
表 5-6	B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果（n=58）.	161
参考文献		171
<b>第 6 章 河川水中の FDOM の動態に及ぼす雨天時下水の影響に関する検証調査</b>		<b>174</b>
表 6-1	桂川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果.	187
表 6-2	2, 3 回目調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果（n=18）.	189
表 6-3	本調査における下水処理場の概要.	193
表 6-4	本調査における日程と調査対象項目.	194
表 6-5	瀬田川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果.	206
表 6-6	台風時調査（2 回目調査），雨天時調査，雨天時予備調査等における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)～(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果（n=125）.	208
参考文献		210

# 第1章 序論

## 1.1 緒言

降雨時の下水道において、し尿を含む大量の下水が、処理不十分なまま水域に放流されることがある。本論文では、狭義の雨天時下水を、降雨時の下水道において発生する下水とする。特に下水処理場では、都市の浸水対策として市民生活を守るため、図 1-1 のとおり下水処理場に流入する大量の雨天時下水に対し、生物処理不十分な雨天時下水（高級処理水）や、最初沈殿池を経て生物処理をバイパスした生物未処理の雨天時下水（簡易処理水）を、消毒後やむを得ず水域へ放流（簡易処理放流）することがある（山口ら, 2020）。本論文では、広義の雨天時下水を、狭義の雨天時下水だけではなく、生物処理不十分な最終沈殿池越流水（終沈後水）である高級処理水や、最初沈殿池越流水（初沈後水）が生物処理をバイパスした簡易処理水や、高級処理水に簡易処理水が混入した消毒後の下水処理放流水である簡易処理放流水も含めるものとする。雨天時下水のうち雨水吐からの未処理の雨天時越流水については、平成 14 年度からの国土交通省主導の合流式下水道緊急改善事業により越流回数が減っている一方で、この事業により雨天時の下水処理場への流入下水水量が増えているとの報告もある（安井ら, 2018）。下水道は、都市での水利用において重要な排水の担い手である。下水道の普及は、人の健康の保護及び生活環境の保全といった、公共用水域の水質改善に大きな役割を果たした（田中, 2016）。しかし、雨天時下水が都市の水利用にどのような影響を与えるか十分な知見がない。このため、雨天時下水の放流先水域への影響を検討することは、水環境の保全にとって極めて重要である。特に、放流先水域が水利用に供される場合、水利用者に対し、雨天時下水由来と考えられる病原微生物による衛生学的な健康影響が懸念される。具体的には、ヒト糞便が水道原水に混入すると、浄水処理後の水道水も病原微生物に汚染される可能性がある。例えば、晴天時の水道原水には、水系感染性ウイルスが地域・時期を問わず広く存在しているとの報告がある（岸田ら, 2013）。また、水源は井戸水で塩素処理のみでの給水ではあるが、飲用水を介したノロウイルスの水系感染事例が国内で発生しており、2003 年に新潟県のカラオケ店で発生した事例では 151 人の患者が発生している（田村ら, 2005）。このように水系感染症は、先進国である日本においても依然として深刻な衛生問題の一つとなっている。また、病原微生物が感染したヒトの腸管内で増殖し、その感染者の糞便から高濃度で排出され下水道へ流入する。

飲用・水浴等の用途で河川水を利用しているが、それらの中には水道水源・リクレーション水域が上流側で下水処理場からの放流水に影響されているものがある。放流水の希釈と自浄作用は河川内で生じる（Gurrand Reinhard, 2006）が、そのような下水処理放流水が混入する水道水源での水利用を、非計画的な事実上の間接的飲用再利用（*de facto potable reuse*）と称している（Asano *et al.*, 2007）。国土交通省は、水道水源としての利用やリクレーション等で用いられる水域のうち、このような雨天時合流式下水道対策

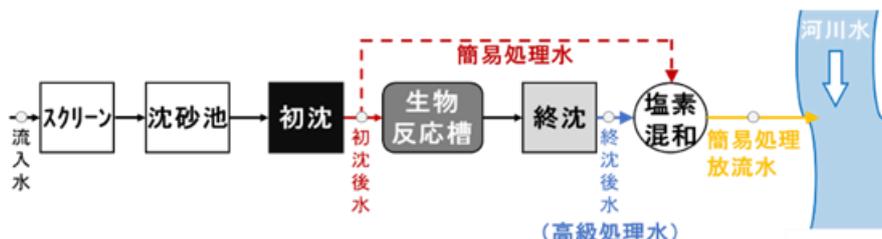


図 1-1 本論文で取り扱う下水処理場における雨天時下水の流れ。

を特に優先的に行う必要がある水域を重要影響水域としている（国土交通省, 2002）。重要影響水域の例として、琵琶湖・淀川流域が挙げられる。約 1,700 万人の生活用水を支える琵琶湖・淀川水系は、上流・中流で利用され放流された水が下流で再び水利用され大量の取排水が繰り返されている（琵琶湖淀川水質保全機構, 2015）。例えば住友らは、最下流では 5 回反復利用された水を飲用利用しているとしている（住友ら, 1998）。一方、最上流の琵琶湖南湖では開設されていた 3 箇所の水浴場が平成 12 年を最後に全て休止状態である（大津市, 2010）。理由として道路や鉄道の整備によってより自然の残る湖北部に訪れることが容易になった（広谷, 2012）ことは無視できないが、生活環境の保全に関する環境基準のうち水浴や水道水の浄水操作（沈殿ろ過等）を想定している用途の湖沼 A 類型では化学的酸素要求量（chemical oxygen demand; COD）が基準未達成と判定されている（環境省, 2019; 滋賀県, 2020）ことも考えられる。

重要影響水域において、雨天時下水が水利用への衛生学的インパクトを与えている可能性が考えられるため、高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理放流水混入を迅速に検知し、放流先へ早期警報（early warning）できる指標による監視が望まれる。2013 年の台風 18 号豪雨による下水処理場の対応に関する報道（滋賀報知新聞, 2013a; 滋賀報知新聞, 2013b）によると、琵琶湖南湖に放流している下水処理場は、豪雨のため、十分な下水処理を行わないまま、琵琶湖南湖に簡易処理放流せざるを得なくなった。この事実は、雨天時下水による重要影響水域へのインパクトが顕在化していること、放流先水域側からの雨天時下水混入の監視が優先的に取り組むべき喫緊の課題であることを示している。合流式下水道に対しては前述の合流式下水道緊急改善事業が進められているが、分流式下水道に対しても雨天時浸入水（不明水）問題の解決に向け国土交通省主導で雨天時浸入水対策ガイドラインの策定について議論されている（国土交通省, 2020a; 国土交通省, 2020b）。

これまで、多くの研究者により非降雨時の下水処理放流口の下流の河川水からの水系感染症のヒト腸管系ウイルス検出事例が国内外から報告され（Hot *et al.*, 2003; Hamza *et al.*, 2011; 岸田ら, 2013）、また、病原ウイルス汚染を想定した指標候補微生物の有効性が示されてきた（Haramoto *et al.*, 2005）。一方、指標候補微生物のなかでも大腸菌ファージについて、ヒト以外の動物糞便からも排出され、水環境中で増殖する可能性があるため、汚染指標としての有効性に限界がある（Muniesa *et al.*, 2004）。また、限られた指標候補微生物では水中の病原微生物の網羅的な評価は困難である（白坂, 2017）。

下水処理放流水や放流先河川水に対し、降雨の有無で有機物や衛生微生物を調査した知見（内田, 2008; 安藤ら, 2010; 樋上, 2012; 諏訪ら, 2016）によると、水中の有機物である生物化学的酸素要求量（biochemical oxygen demand; BOD）や COD を適切に監視することにより、衛生微生物汚染の状況を定性的に把握できる可能性がある。しかし従来の採水分析が必要な水質汚濁指標では分析に時間を要し、かつ連続的に把握することに多くの労力が必要である。このため、河川水への雨天時下水の混入を迅速に検出できないため、重要影響水域で雨天時下水混入を迅速に検知するための知見が不足している。

降雨時に簡易処理放流等が発生した時に放流先河川で簡易処理放流水混入を迅速に検知する指標として、濁度・電気伝導度（electrical conductivity; EC）が使用できるかもしれない。雨天時下水のうち雨水吐での雨天時越流水を濁度で監視した事例（豊岡ら, 2010）や、分流汚水への不明水の影響を EC で監視した事例（日水コン, 2018）がある。しかし、放流先河川で雨天時に濁度や EC が上昇する原因は簡易処理放流水だけではなく、上流からの土砂や、特に冬季に路面の凍結防止剤由来の塩化物イオンの流入も考えられるため、濁度や EC は放流先河川における簡易処理放流水混入の検知指標として不適切である。

これまで多くの研究者が検討してきた溶存態有機炭素（dissolved organic carbon; DOC）は、水の再利用

の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている (Rock *et al.*, 2015; Rock and Jang, 2018). DOC は、溶存態有機物 (dissolved organic matter; DOM) を含む有機性分子の総濃度を推定するのに有用な指標であるが、DOM の化学組成に関する情報、例えば官能基の構造や存在量を提供することはできない (Gentry-Shields *et al.*, 2013). また、DOC は迅速な連続測定が困難である (長岡, 2016).

高級処理水中 DOM の構成成分推定を目的とした、環境水中 DOM の構成成分に関する文献 (Chen *et al.*, 2003) の考察結果 (清水ら, 2015) から、DOC より連続的で、迅速に、複数の DOM 成分を検出できる蛍光分析により推定可能な蛍光性 DOM (fluorescent DOM; FDOM) 成分が、汚濁負荷源側の下水道と放流先水域側の両方で、雨天時下水混入を監視する簡易指標となる可能性を持つ. Cohen *et al.*によると、下水中の FDOM のうちタンパク質様成分は生物処理により大きく減少した (Cohen *et al.*, 2014). よって、FDOM のタンパク質様成分は生物処理の有無により大きく変化するため、高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理放流水混入を迅速に検知できる指標となる可能性がある.

## 1.2 本研究の目的と新規性・有用性

第一の研究目的は、下水処理放流水及び河川水中の衛生微生物の動態に与える雨天時下水の影響を検討すること (目的 1) である. また、第二の研究目的は、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、雨天時下水中 DOM の存在を示す DOC に対し、FDOM の利用性を検討すること (目的 2) である. さらに、第三の研究目的は、下水処理放流水及び河川水に対し、雨天時下水の FDOM の動態を検討し、FDOM を指標した場合に、雨天時下水が高級処理水あるいは河川水にどの程度混入しているかの検知性を検討すること (目的 3) である.

本研究の新規性・有用性は次にある.

- ① 現地調査に基づき、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水が、高級処理水と河川水への混入の程度を迅速に検知する指標として、FDOM を検討する. 従来、雨天時下水による水域の衛生学的安全性を指標微生物の測定により病原微生物の存在実態の推定というアプローチに対し、本研究は、迅速かつ連続的な指標による雨天時下水混入の迅速かつ連続的な把握というアプローチであり、これまで例がなく新規性が高い.
- ② 雨天時下水に対し、生物処理の水質変換過程が推察される指標として FDOM を検討するものであるため、新規性が高い.
- ③ 非定常の都市排水により、下流での水利用で病原微生物リスクが上昇する時間帯を監視により捉えることができる可能性があり、水利用の安全性を向上させる有用性が高いと考えられる.

## 1.3 本論文の構成

以上に示した本研究の背景・目的及び意義を踏まえ、本論文の構成を図 1-2 に示す.

第 2 章の文献調査では、これまでの先行研究等に基づき、本研究の位置づけをまとめる. まず、都市排水システムとしての下水道における降雨時の衛生学的な問題としての雨天時下水や、国内外での雨天時下水問題への産・官・学としての対応を要約する. また、下水道由来と考えられる衛生微生物の汚染状況に関する知見を整理し、特に、淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の先行研究を紹介する. また取排水システムが交錯する水道水源での *de facto* potable reuse やリクレーション用途の観点から、重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性について論述する. ま

た雨天時下水の河川水への混入を迅速に検知する簡易指標候補としての FDOM について論述する。また 3 次元励起・蛍光マトリクス (Excitation-Emission Matrix; EEM) 測定と多変量解析の一つの平行因子解析 (parallel factor analysis; PARAFAC) からなる EEM-PARAFAC 法による FDOM 存在量の推定について論述する。これらにより本研究目的を達成するための研究課題を整理し、本研究の位置づけを明らかにする。

第 3 章の実態調査では、第 2 章 2.3.2.2 で紹介した桂川下流域における下水処理放流水・河川水に含まれる衛生微生物の非降雨時での存在実態の先行研究事例を参考にして、下水処理放流水・河川水に含まれる衛生微生物の降雨時での存在実態を、河川・下水処理場調査により検出濃度で示す (目的 1-1)。また、下水処理放流水量及び河川流量を考慮して、非降雨時と比較した降雨による衛生微生物負荷量上昇の程度を示す (目的 1-2)。これらにより、下水処理放流水・河川水中の衛生微生物の動態に与える雨天時下水の影響を、検出濃度・下水処理放水量及び河川流量を考慮して明らかにする (目的 1)。

第 4 章の基礎実験では、雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM の水質変化特性を、処理実験 (生物処理実験・凝集処理実験) により示す (目的 2-1)。また、高級処理水への簡易処理水混入や、河川水への簡易処理放流水混入による FDOM の水質変化特性を、混合実験 (下水混入実験) により示す (目的 2-2)。これらにより、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、DOC に対する EEM 測定による FDOM の利用性を明らかにする (目的 2)。

第 5 章の検証調査では、下水道において、雨天時下水による FDOM の動態を調べ、高級処理水への簡易処理水混入を FDOM によりの確に検知できるかを、下水処理場調査により示す (目的 3-1)。具体的には、雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を示す (目的 3-1-a)。また、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を示し、FDOM の高級処理水への簡易処理水混入指標性を示す (目的 3-1-b)。第 6 章の検証調査では、水環境において、雨天時下水による FDOM の動態を調べ、河川水への簡易処理放流水混入を的確に検知できるかを、河川・下水処理場調査により示す (目的 3-2)。具体的には、下水処理放流水混入率が約 41% (花本, 2010) と高い桂川で、降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を示し、FDOM の河川水への簡易処理水混入指標性を検討する (目的 3-2-a)。また、下水処理放流水混入率が 1~7% 程度 (片山ら, 2017; 白坂, 2017) と低い琵琶湖南湖から流出する瀬田川で、降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を示し、FDOM の河川水への簡易処理水混入指標性を検討する (目的 3-2-b)。第 5 章・第 6 章により、下水処理場・水環境において EEM-PARAFAC 法で雨天時下水による FDOM の動態を検討し、FDOM で高級処理水への簡易処理水混入、河川水への簡易処理放流水混入を正しく検知できるかを明らかにする (目的 3)。

最後に第 7 章では、本論文の結論として、本研究で得られた成果をまとめ、今後の課題を述べる。

## 参考文献

- Asano, T., Burton, F. L., Leverenz, H. L., Tsuchihashi, R. and George, T.: Water Reuse: Issues, Technologies, and Applications, 2007.
- Chen, W., Westerhoff, P., Leenheer, J. A. and Booksh, K.: Fluorescence Excitation-Emission Matrix Regional Integration to Quantify Spectra for Dissolved Organic Matter, *Environmental Science and Technology*, Vol. 37, No. 24, pp 5701-5710, 2003.

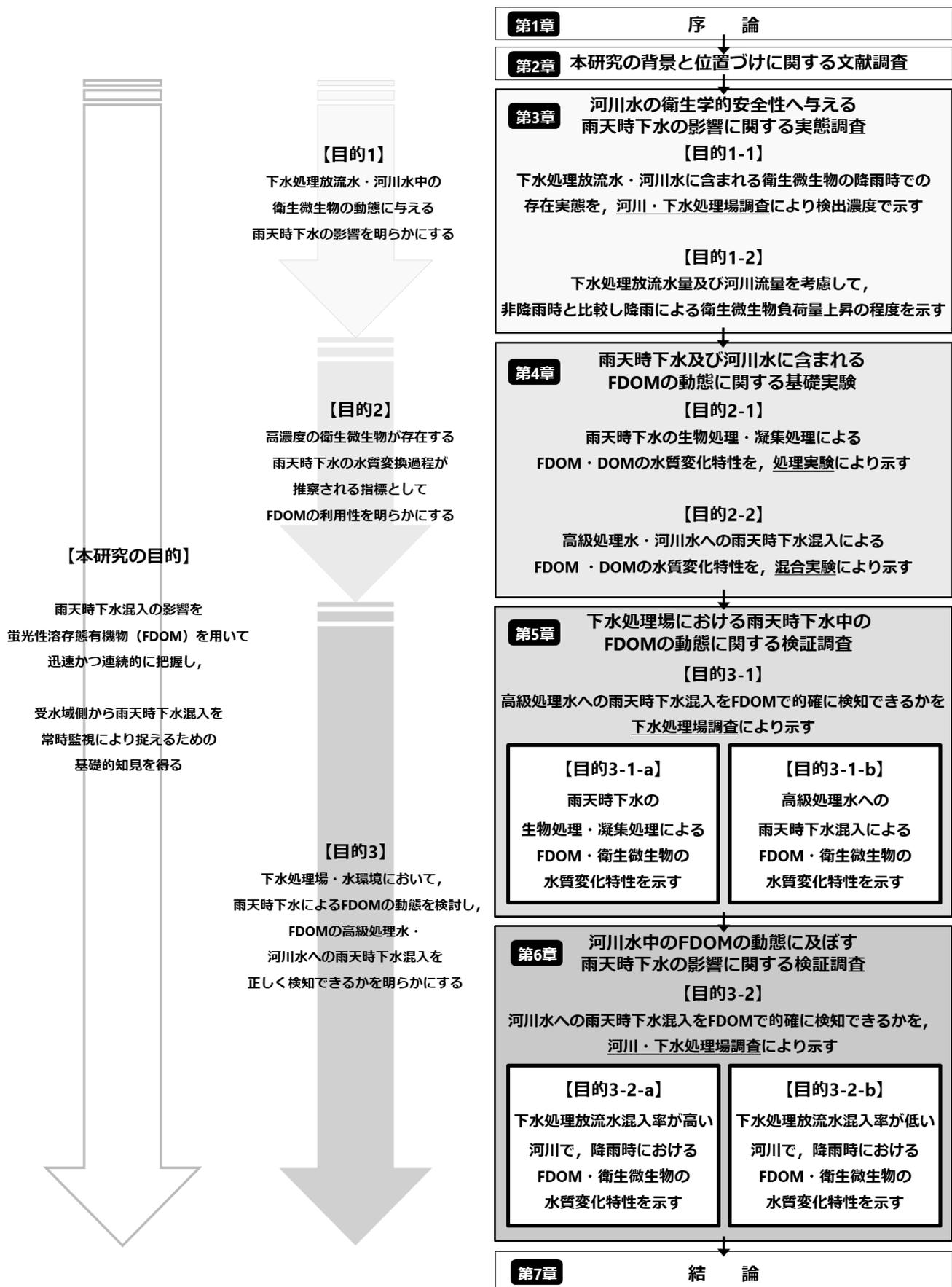


図 1-2 本論文の構成.

- **Cohen, E., Levy G. J. and Borisover, M.:** Fluorescent Components of Organic Matter in Wastewater: Efficacy and Selectivity of the Water Treatment, *Water Research*, Vol. 55, pp 323-334, 2014.
- **Gentry-Shields, J., Wang, A., Cory, R. M. and Stewart, J. R.:** Determination of Specific Types and Relative Levels of QPCR Inhibitors in Environmental Water Samples Using Excitation-Emission Matrix Spectroscopy and PARAFAC, *Water Reserch*, Vol. 47, No. 10, pp 3467-3476, 2013.
- **Gurr, C. J. and Reinhard, M.:** Harnessing Natural Attenuation of Pharmaceuticals and Hormones in Rivers, *Environmental Science and Technology*, Vol. 40, No. 9, pp 2872-2876, 2006.
- **Hamza, I. A., Jurzik, L. K. Überla and Wilhelm, M.:** Evaluation of Pepper Mild Mottle Virus, Human Picobirnavirus and Torque Teno Virus as Indicators of Fecal Contamination in River Water, *Water Research*. Vol. 45, No. 3, pp 1358-1368, 2011.
- **Haramoto, E., Katayama, H., Oguma, K. and Ohgaki, S.:** Application of Cation-Coated Filter Method to Detection of Noroviruses, Enteroviruses, Adenoviruses, and Torque Teno Viruses in the Tamagawa River in Japan, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 71, No. 5, pp 2403-2411, 2005.
- **Hot, D., Legeay, O., Jacques, J., Gantzer, C., Caudrelier, Y., Guyard, K., Lange, M. and Andréoletti. L.:** Detection of Somatic Phages, Infectious Enteroviruses and Enterovirus Genomes as Indicators of Human Enteric Viral Pollution in Surface Water, *Water Research*, Vol. 37, No. 19, pp 4703-4710, 2003.
- **Muniesa, M. and Jofre, J.:** Factors Influencing the Replication of Somatic Coliphages in the Water Environment, *Antonie van Leeuwenhoek*, Vol. 86, No. 1, pp 65-76, 2004.
- **Rock, K., Da Silva, A., Hooper, J., Mosher, J., Bell, K. and Snyder, S. A.:** What Monitoring Tools Do We Need for Direct Potable Reuse?, The Water Research Foundation, No. 4508, 2015.
- **Rock, K. and Jang, H.:** Assessment of Techniques for Evaluating and Demonstrating Safety of Water from Direct Potable Reuse Treatment Facilities, The Water Research Foundation, No. 4508, 2018.
- **安藤晴夫, 和波一夫, 石井真理奈, 竹内健:** 雨天時水質調査結果について (2) -雨天時における運河部の水質変化-, 東京都環境科学研究所年報 2010, pp 126-131, 2010.
- **内田翔:** 合流式下水処理場における雨天時水質モニタリングに関する研究, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2008.
- **大津市産業観光部観光振興課:** 事業概要シート (水泳場開設事業), 2010.
- **片山浩之, 栗栖太, 小熊久美子, 井上健太郎, 田中宏明, 山下尚之, 井原賢, 花本征也, 端昭彦, 李善太, 佐野大輔, 原本英司:** 平成 28 年度環境研究総合推進費委託業務報告書「水系感染微生物による水環境汚染の把握と微生物起源解析の活用に関する研究」, 環境省, 5-1603, 2017.
- **環境省:** 平成 30 年度公共用水域水質測定結果 (付表), <https://www.env.go.jp/water/suiiki/h30/h30-3.pdf>, 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020.
- **岸田直裕, 今野祥顕, 原本英司, 浅見真理, 秋葉道宏:** 我が国における水道原水中の水系感染性ウイルスおよび原虫の存在実態と指標微生物の有効性, 水道協会雑誌, Vol. 82, No. 10, pp 2-10, 2013.
- **国土交通省:** 雨天時浸入水対策について議論します, 報道発表, [http://www.mlit.go.jp/report/press/mizukokudo13\\_hh\\_000413.html](http://www.mlit.go.jp/report/press/mizukokudo13_hh_000413.html), 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020a.
- **国土交通省都市・地方整備局下水道部:** 雨天時浸入水対策ガイドライン (案), 公式 HP, <https://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/content/001327259.pdf>, 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020b.

- 国土交通省都市・地方整備局下水道部, (公財)日本下水道新技術機構: 合流式下水道の改善対策に関する調査報告書, 2002.
- 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター: 環境調査情報データベース, <https://www.lberi.jp/investigate/date>, 最終閲覧日: 2020年3月11日, 2020.
- 滋賀報知新聞: 超高度処理できずに琵琶湖に放水, 2013年9月20日, 2013a.
- 滋賀報知新聞: 高度処理できずに汚水11万トン放水, 2013年9月27日, 2013b.
- 白坂勇也: 琵琶湖南湖におけるウイルス汚染の実態把握およびウイルス汚染指標の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2017.
- 住友恒, 伊藤禎彦, 坂敏彦: GISを用いた琵琶湖・淀川流域における水利用形態の評価, 環境衛生工学研究, Vol. 12, No. 3, pp 85-90, 1998.
- 諏訪守, 安井宣仁, 南山瑞彦: 合流式下水道の改善によるノロウイルス負荷の削減効果, 第53回下水道研究発表会講演集, pp 431-433, 2016.
- 田中宏明: 水利用は「使い捨て」から「繰り返し型」へ, JSTニュース2016年10月号, 2016.
- 清水芳久 (第3章執筆担当), 田中宏明, 田中祐之, 加藤康弘, 高島英二郎, 鈴木穰, 水野忠雄, 田中周平: 水環境中NOMの抽出および分析方法の確立 (第3章), JST CREST「21世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」に関する報告書, 戦略的創造研究推進事業 CREST, 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」, 2015.
- 田村務, 西川眞, 飯田和久, 新井田良平, 紫竹美和子, 角田由紀子, 西尾治: 飲料水が原因のノロウイルスによる食中毒事例—新潟県, 病原微生物検出情報, Vol. 26, No. 12, pp 330-331, 2005.
- 豊岡和宏, 斎藤慎哉, 大橋秀郎: CSO汚濁負荷計測システムの開発, 学会誌EICA, Vol. 15, No. 2,3, pp 81-84, 2010.
- 長岡宏幸: 蛍光ライダーを用いた有機物濃度測定法の検討, 首都大学東京大学院システムデザイン研究科修士論文, 2016.
- 西村文武, 和田桂子, 野口智史, 日高平, 水野忠雄, 楠田育成: 木津川上流域における河川水中有機物特性に関する研究, 環境衛生工学研究, Vol. 33, No. 3, pp 47-49, 2019.
- 日水コン: 電気伝導度を用いた不明水調査技術, 公式HP, <http://www.nissuicon.co.jp/jigyou/gesuidou/denki-dendou/>, 最終閲覧日: 2021年2月3日, 2011.
- 花本征也: 淀川水系における医薬品類の存在実態と水環境中での挙動, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2010.
- 樋上正晃: セラミック膜を用いた雨天時下水処理方法の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2012.
- 広谷博史: 水浴場の糞便汚染の変動とバクテリオファージを用いた汚染源の推定, 平成23年度財団法人琵琶湖・淀川水質保全機構「水質保全研究助成」成果報告書, 2012.
- 琵琶湖淀川水質保全機構: BYQ水環境レポート平成26年度版, pp 2-1, 2015.
- 安井一成, 安藤貢, 吉田一子: 帯広市における合流式下水道の改善効果について, 第55回下水道研究発表会講演集, pp 422-424, 2018.
- 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

## 第2章 本研究の背景と位置づけに関する文献調査

### 2.1 概説

本章では、まず、都市排水システムとしての下水道における、降雨時の衛生学的な問題としての雨天時下水や、国内外での雨天時下水問題への産・官・学としての対応を要約する。次に、下水道由来と考えられる衛生微生物の汚染状況に関する知見を整理し、特に、淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の事例について紹介する。次に、取排水システムからみた事実上の間接的な飲用、リクレーション用途の再利用の観点から、重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速かつ連続的に検知する必要性について論述する。最後に、下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入を迅速かつ連続的に検知する簡易指標候補としての蛍光性溶存態有機物 (FDOM) について論述する。これらの文献調査により、残されている課題について整理することで、本研究の位置づけを明らかにする。

### 2.2 都市排水システムとしての下水道

#### 2.2.1 合流式下水道と分流式下水道

日本での近代下水道は明治時代より供用開始し、公衆衛生対策と降雨時の浸水対策を目的とした合流式下水道と呼ばれる下水道が都市部を中心に普及した(津野・西田,1995)。合流式下水道とは、汚水と雨水を同じ管路系で排除する下水道である。合流式下水道には、雨水管と汚水管が別々の管路系である分流式下水道に比べて、短期間に低コストで、かつ狭い道路スペースに整備することができるといった特徴がある(松本・西堀,1994)。合流式下水道は、古くから下水道整備に着手した大都市を中心に191都市で導入されており、処理区域面積では全下水道処理区域面積(約137万ha)の約20%、全下水処理人口普及率の約30%をカバーしている(国土交通省,2010)。なお、昭和45年以降は下水道導入の目的に公共用水域の水質保全が加えられ、下水道整備には終末処理場(下水処理場)の設置が必須となった。そのため、下水道を新設する地方公共団体では、下水道を新設する場合、原則として分流式下水道を採用し下水道整備が実施されている(篠田,2000)。これにより、下水道は、生活環境項目の生物化学的酸素要求量(biochemical oxygen demand; BOD)、浮遊物質(suspended solids; SS)及び大腸菌群(total coliforms; TC)数の点で、公共用水域の水質保全に大きく貢献している(田中宏明,2016)。

#### 2.2.2 合流式下水道越流水(CSO)と分流式下水道越流水(SSO)の問題

本項では、第1章1.1の図1-1に示した、本論文で注目した下水処理場における雨天時下水の流れについて、以下に詳述する。合流式下水道では、降雨の発生により汚水と雨水が混合して雨天時下水となり合流管に流入するため、下水水量が増加するという特徴がある。そのため、合流式下水道の欠点の一つとして、ある程度以上の降雨の発生時には、雨水吐室やポンプ場から汚水と雨水の混ざった雨天時下水が未処理で越流する、いわゆる雨天時越流水の問題があることがよく知られている。少降雨の場合は、この雨天時越流が発生しないように、ある程度の下水量を遮集管によって下水処理場まで流下させる。この水量を遮集量といい、晴天時時間最大汚水量(Q)のn倍とし、最低でも3倍の量、すなわち3Qを遮集量としている場合が多い。また、遮集によりある程度の下水量を下水処理場まで流下させても、下水処理場の生物処理能力は晴天時日最大量1Qであるので、超過分の最大2Qについては、通常、簡易処理(沈殿処理及び消毒)して放流される。すなわち、1Qを超える初沈後水は、生物反応槽、最終沈殿池をバイパスし、1Qまでの

水量が生物処理された後の終沈後水（高級処理水）と混合され消毒後、放流される場合がある。これが、いわゆる簡易処理放流であり、当然のことながら、簡易処理放流水は通常の下水处理放流水より汚濁物質の除去率が低下する。また、下水処理場によっては、流入下水が沈砂池を経た後、最初沈殿池、生物反応槽及び最終沈殿池をすべてバイパスし、予備処理水として、消毒されないまま消毒後の下水処理放流水と合流して、放流される場合がある。これが、いわゆる予備処理放流であり、当然のことながら、簡易処理放流より汚濁物質の除去率は低下する。さらに、雨天時下水の流入量が下水処理場の晴天時最大処理能力 1Q を超えて生物処理される場合もあるが、生物反応槽の水理的滞留時間（hydraulic retention time; HRT）が減少すること等により、生物処理が不十分になり終沈後水（高級処理水）の水質は悪化する。したがって、合流式下水道の雨天時の水質問題には、雨水吐室等からの雨天時越流と、下水処理場からの雨天時の簡易処理放流等が挙げられる。雨天時に雨水吐室等から未処理下水を越流する吐口（雨水吐）は、平成 14 年度では雨水吐室 2,420 箇所、ポンプ場 544 箇所の合計 2,964 箇所存在する（国土交通省, 2002）。また、簡易処理放流水等を放流する吐口（下水処理場放流口）は 237 箇所であり、雨水吐と合わせて全部で 3,201 箇所の吐口が存在する（国土交通省, 2002）。雨天時下水のうち雨水吐からの雨天時越流水については、平成 14 年度からの国土交通省主導の合流式下水道緊急改善事業(2.2.5.1 にて詳述)により越流回数が減っている一方で、帯広市の合流式下水道の改善事業においては雨天時の下水処理場への雨天時下水の流入量が増えているとの報告もある(安井ら, 2018)。

このように、合流式下水道からの雨天時越流と雨天時簡易処理放流による未処理あるいは処理不十分な雨天時下水は、合流式下水道越流水（Combined Sewer Overflow; CSO）と総称され、水環境汚染の原因として注目されている。近年では分流式下水道においても、汚水管の老朽化や汚水管と雨水管の誤接（ミス・コネクション）等にもなる雨天時浸入水が大雨の発生頻度の高まりにより管路施設に流入し、結果として不明水が増大する。管路施設の汚ますやマンホールから汚水と雨水の混ざった雨天時下水が溢水し、またポンプ場・下水処理場が冠水し、さらに下水処理場での雨天時簡易処理放流が発生する（日本下水道新技術機構, 2009）。この場合の下水道からの流出した雨天時下水は、分流式下水道越流水（Sanitary Sewer Overflow; SSO）と総称されている。都市の浸水対策として市民生活を守るため、やむを得ず水域へ放流する CSO・SSO（山口ら, 2020）に関する研究及び調査事例については、次項で詳述する。

### 2.2.3 CSO に関する研究及び調査事例

雨水吐室からの雨天時越流水については、平成 15 年度の下水道法施行令改正（2.2.5.1 にて詳述）により合流改善について下水道施設の“構造上の基準”及び“放流水の水質基準”について必要な基準が定められる前より、多くの調査で降雨初期の水質の悪化とその後の回復が観測されている（国土交通省, 2002）。降雨初期における高濃度排水は、市街地の不浸透面上や下水管きよ内の堆積物が雨水により掃流される、いわゆるファーストフラッシュの影響と考えられており、SS、BOD 及び COD をはじめとするほぼ全ての水質項目で観測された。この堆積物の影響による寄与は、SS 濃度の 70%以上、BOD 濃度の 50%以上を占めると推定されている（丹野ら, 2005）。ファーストフラッシュ時の高濃度状態は多くの場合では短時間で終了し、その後、雨水の希釈効果による低濃度状態が観測されている。ファーストフラッシュ時における濃度や汚濁負荷流出量は調査の日程や地域により異なり、最大濃度が晴天時濃度の 5~6 倍となるケースも見られる（飯田ら, 2005）。ファーストフラッシュ時における濃度の挙動の違いは、総降雨量、降雨強度、降雨継続時間などの降雨条件や、先行晴天日数などの影響によるものと考えられている。一方、

表 2-1 CSO の水質 (国土交通省, 2002). 出典は USEPA, 1995a, 資料作成は Metcalf & Eddy, Inc., 1991.

地 点	BOD (mg/L)		TSS (mg/L)		E. coli (個/100 mL)
	範囲	平均	範囲	平均	
<b>Auburn</b>					
CSO 002	41 ~ 139	43	40 ~ 200	111	$9.0 \times 10^4 \sim 2.1 \times 10^6$
CSO 005	13 ~ 110	43	38 ~ 276	108	$1.1 \times 10^5 \sim 2.7 \times 10^6$
<b>Lewiston</b>					
CSO 004	5 ~ 151	59	4 ~ 230	101	$5.0 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^6$
CSO 007	12 ~ 139	52	28 ~ 310	123	$0 \sim 1.3 \times 10^5$
CSO 012	5 ~ 50	25	55 ~ 144	98	$2.0 \times 10^4 \sim 8.8 \times 10^5$
CSO 015	4 ~ 6	5	21 ~ 28	25	$6.0 \times 10^4$
<b>X-2</b>	2 ~ 21	12	12 ~ 48	34	$1.2 \times 10^5 \sim 1.1 \times 10^6$
<b>LAWPCF</b>					
Structure B	31 ~ 195	25	72 ~ 200	129	$3.7 \times 10^3 \sim 1.2 \times 10^6$
代表的なCSO特性	60 ~ 220	—	270 ~	550	$2.0 \times 10^5 \sim 1.1 \times 10^6$

表 2-2 CSO 対策技術の評価例 (国土交通省, 2002). 出典は USEPA, 1995a, 資料作成は CH2M HILL, 1993.

合流改善対策技術		性能要因				実施及び運用要因						環境への影響				
		水量・頻度	CSOの発生	パケテリ	浮遊物	懸濁物質	複雑さ	信頼性	リタイア	フレキシビ	土地要求	住民による受入れ	開発時間	建設期間	運用	場所設定
発生源の管理	街路の清掃				◎	◎	◎	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	建設サイトの侵食対策				◎	◎	◎	△	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	集水溝の清掃			○	◎	◎	◎	▲	◎	◎	◎	◎	▲	◎	◎	◎
	工業的前処理					◎	◎	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	ゴミ捨て禁止			×	◎	◎	◎	▲	△	◎	×	◎	◎	◎	◎	◎
	家庭汚水のオンサイト貯留		△	△	△	▲	△	△	△	◎	△	◎	◎	◎	◎	△
管渠のフラッシング		△		▲	▲	◎	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	
下流の最適化	固定流量制御	◎	◎	◎	◎	◎	◎	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	可変流量制御	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	リアルタイム流量制御	▲	◎	◎	◎	◎	▲	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
流入量の削減	上流での雨水の貯留	◎	◎	◎	◎	▲	◎	△	△	▲	◎	△	◎	◎	△	
	雨水の貯留池	◎	◎	◎	◎	▲	▲	△	◎	▲	◎	▲	◎	◎	▲	
	分流化	△	▲	◎	◎	△	◎	△	◎	×	△	×	◎	◎	×	
	バイパス管の設置					▲	◎	△	◎	▲	◎	△	◎	◎	△	
貯留	土で築いた貯留池	◎	◎	◎	◎	◎	◎	▲	△	△	▲	▲	▲	△	×	
	オープン貯留地 (コクリト)	△	▲	▲	▲	◎	◎	△	△	△	▲	▲	▲	△	×	
	地下貯留地 (コクリト)	△	▲	▲	▲	◎	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	
	管渠内貯留	△	▲	▲	▲	◎	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	
	貯留管	△	▲	▲	▲	◎	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	
物理的・化学的・生物学的処理 (予備処理を含む)	スワール	▲	◎	◎	▲	◎	◎	△	▲	▲	◎	◎	▲	▲	▲	
	ボルテックスバルブ	▲	◎	◎	◎	◎	◎	△	▲	▲	◎	▲	▲	▲	▲	
	粗目スクリーニング	▲	◎	◎	◎	△	△	△	▲	▲	◎	▲	▲	▲	▲	
	一次沈殿	▲	◎	◎	◎	◎	◎	△	△	▲	▲	▲	▲	▲	△	
	凝集沈殿	▲	◎	◎	◎	▲	▲	△	△	▲	▲	▲	▲	▲	△	
	加圧浮上 (DAF)	▲	◎	◎	▲	×	△	△	▲	▲	▲	▲	▲	▲	△	
	凝集 (DAF)	▲	◎	◎	▲	×	△	△	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	
	高効率ろ過 (HRF)	▲	◎	◎	▲	△	△	△	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲	
凝集ろ過	▲	◎	◎	◎	△	▲	△	▲	▲	▲	▲	▲	▲	▲		
処 理 生 物	コロピア-ハード下水処理場					◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	
	湿地の処理					◎	◎	△	▲	◎	◎	◎	◎	◎	◎	

特に優れている：◎ 非常によい：○ よい：▲ あまりよくない：△ 不利：×

降雪期間の CSO では降雨時と異なり、放流水質基準以下の概ね一定の濃度で推移し、大きな濃度変動は観測されていない (草場ら, 2005)。また降雨初期では、トイレトペーパーやオイルボールなどの汚水由来の夾雑物や、落ち葉やビニール袋・ポリ袋などのプラスチックゴミ等といった汚水由来ではない雨水由来の夾雑物が多く観察されている (国土交通省, 2002)。夾雑物量についても、SS・BOD と同様の変動傾向を示すことが報告されている (飯田ら, 2005)。海外では、CSO が湖沼における有機性の汚濁や汚染に影響しているという研究がある (Phillips *et al.*, 2009)。欧米では、アメリカ合衆国環境保護庁 (United

States Environmental Protection Agency; USEPA)をはじめとして、調査研究やガイドラインが出されている (USEPA, 2018). 例えば米国における CSO の監視調査では、BOD、総浮遊物質量 (total suspended solids; TSS) 及び大腸菌 (*Escherichia coli*; *E. coli*) の水質分析を行っており、降雨初期でのファーストフラッシュによる水質悪化が観測された (表 2-1). また、米国における長期的な CSO 対策の検討にかかる合流改善対策技術の評価のガイドラインとして、Oregon 州 Portland 市での USEPA によるケーススタディー (国土交通省, 2002) が挙げられる (表 2-2). ケーススタディーでは、発生源の管理、下水システム最適化、流入量削減、貯留、物理的・化学的処理、生物学的処理の 6 つに大きく分類された 30 種類の合流改善対策技術に対し、性能要因、実施及び運用要因、環境への影響の 3 つに大きく分類された評価項目毎に、5 段階で評価した (表 2-2).

以上のように、CSO に関する調査事例は数多く存在する。近年では、中小規模の都市において合流式下水道改善事業 (2.2.5.2 にて詳述) の推進により、CSO の発生回数や越流量、さらに夾雑物の流出が抑制されている。一方で大都市では 2025 年までに合流改善の完了が義務付けられているが、対応が遅れている (国土交通省, 2002). 詳しくは 2.2.5.3 で述べる。対応の遅れのため、大都市を流域に持つ受水域での実態調査の事例と CSO 対策改善後の受水域側での効果確認が確認された事例が、国内外とも少ない。

#### 2.2.4 SSO に関する研究及び調査事例

国内では、合流式下水道の改善に関する法令は存在する。一方、分流式下水道には「下水道施設計画・設計指針と解説」(日本下水道協会)では基本計画として雨天時浸入水を認めているが、それを反映するのは主に污水管の余裕とポンプ場の予備能力であり、下水処理場における処理性能上の規定は存在しない。SSO に関する国内の調査事例は CSO に比べて極めて少ないが、近年では SSO の問題について喫緊の課題として対策が求められている。例えば、滋賀県・大津市において、2013 年の台風 18 号豪雨による下水処理場の対応として、琵琶湖南湖に放流する各下水処理場は CSO・SSO を下流府県に連絡しなかった、という事態が報道で取り上げられた (滋賀報知新聞, 2013a; 滋賀報知新聞, 2013b). また、仙台市において、雨水が污水管に浸入することによる大量の雨天時下水が溢水するのを防ぐため、雨水吐室を設置している、という実態が報道で取り上げられた (朝日新聞, 2017).

2.2.2 で述べた雨天時浸入水による不明水には、雨天時の直接浸入水によるものと地下水の浸透浸入水 (常時浸入水) によるものがある (図 2-1). 国内における SSO の調査事例が少ないことを受けて、日本下水道新技術機構は、特に雨天時浸入水に対して、浸入による様々な影響や原因把握手順、さらには地下水浸入と比較した不明水全体としての削減対策手法をマニュアル化した (日本下水道新技術機構, 2009). 国の取り組みとしては、2015 年の新下水道ビジョンには SSO への対策も踏まえ、雨水管理のスマート化と題し、下水処理場の運転管理を ICT で管理するなどの技術提案が出されている (国土交通省, 2014). 下水道管理者側の取り組みの一例として、滋賀県琵琶湖環境部では、平成 26 年に県と市町で構成される「滋賀県下水道不明水対策検討会」を設置し、ハードとソフトの両面から、雨天時浸入水による溢水被害の防止と不明水量の削減に向けて、発生源対策及び被害軽減対策を進めている (吉村・山田, 2018).

以上の背景から、国土交通省は分流式下水道における雨天時浸入水に起因する事象に対し、効果的かつ効率的な対策を立案するための基本的な考え方を示すために、「雨天時浸入水対策ガイドライン (案)」を策定した (国土交通省, 2020a). 本ガイドラインは、分流式下水道の処理区において雨天時浸入水に起因して発生する以下の 3 つの事象を対象としている (国土交通省, 2020b).

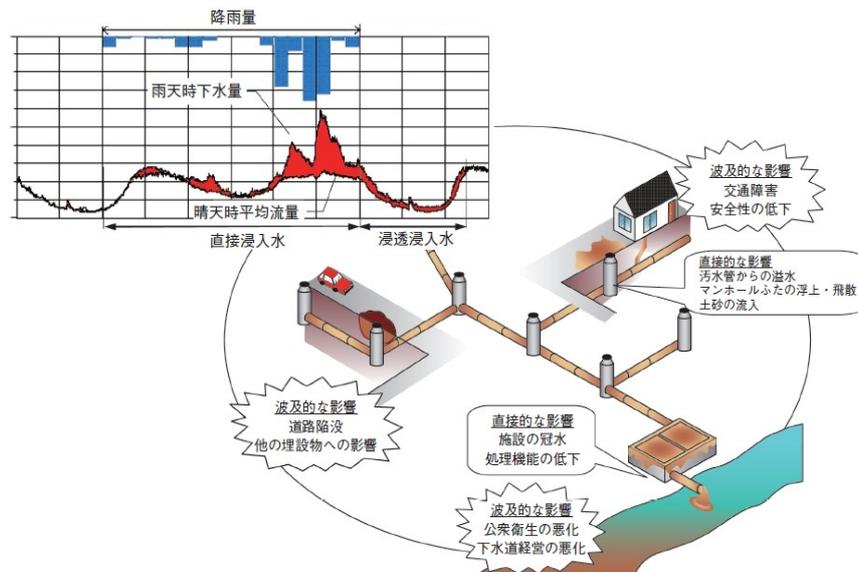


図 2-1 不明水の分類と影響の例 (日本下水道新技術機構, 2009).

- ① 下水処理場外にある污水管のマンホール等からの溢水や宅内への逆流
- ② 下水処理場外にある污水管等から雨天時に増水した下水が公共用水域に流出
- ③ 下水処理場に流入する下水の一部を生物処理せず放流または流出

本論文では、特に③の事象に対し受水域への環境影響を把握することにより、雨天時浸入水対策の立案に貢献できる可能性を持っている。

一方、国外では 1990 年代より問題視されはじめ、改善に向けた研究などの取り組みが進んでいる。SSO の主な要因として、地下に埋設されている污水管の老朽化によりひび割れ箇所や継手から地下水が浸入する場合や、施工時の污水管と雨水管の誤接(ミス・コネクション)などが挙げられている (Golden, 1995)。また、SSO の下水処理や制御に関する研究事例も存在する (Lai *et al.*, 2000; Field *et al.*, 2002; Bendick *et al.*, 2005; Tao *et al.*, 2010; USEPA, 2018)。特に米国では、年間 75,000 件の SSO が発生すると推定されている (USEPA, 2016a)。下水処理場における対策として、受け入れる流入下水量の能力を最大化する処理施設規模の拡大や、水量・水質の常時の監視と制御などを重要視している (USEPA, 2004)。

## 2.2.5 合流式下水道改善のための取り組み

### 2.2.5.1 国土交通省の取り組み (田中宏明ら, 2010)

平成 12 年に東京都お台場でオイルボールが漂着したことが報道された。これをきっかけに、CSO 問題が社会問題化したことを受け、国土交通省は、平成 13 年 6 月に「合流式下水道改善対策検討委員会 (以下、検討委員会)」を設置し、合流改善対策の促進を図った。検討委員会では、全国の実態調査を実施し、調査結果を踏まえ、5 回にわたる審議を経て「合流式下水道改善対策検討委員会報告書」が取りまとめられた。報告書では、10 年で達成可能な当面の改善目標として、合流式下水道改善に関する目標や対策のあり方に関する“基本的な考え方”が以下のように示された (堀江, 2005a; 伊藤, 2006)。

- ① 合流式下水道からの汚濁負荷量を分流式下水道と同程度以下にする
- ② 公衆衛生上、全ての吐き口において未処理放流水などの放流回数を半減する
- ③ 全ての吐き口で夾雑物の流出を極力防止する

表 2-3 合流式下水道緊急改善事業の目的と概要（岡本, 2002）.

目的	合流式下水道では、雨天時において未処理の汚水が雨水とともに公共用水域に排出され、水質汚濁等の問題を引き起こしているため、 <b>合流式下水道緊急改善事業</b> を創設することにより、改善対策を計画的かつ緊急的・集中的に推進する。
概要	① 合流式下水道を採用している全国192都市において、合流式下水道改善に係る対象地区の概要・整備目標・事業内容と年度計画等を定めた「 <b>合流式下水道緊急改善対策</b> 」を策定する。 ② 「 <b>合流式下水道緊急改善対策</b> 」に位置付けられた下記の事業を補助対象とする。 ・雨天時越流水の夾雑物対策・水質改善（ <b>雨水吐での処理施設の設置</b> ） ・越流水量の抑制（ <b>雨水滞水池・雨水貯留管の設置，下水処理場への遮集量の増大</b> ） なお、当該事業の実施にあたっては、平成14年度より3年以内に「 <b>合流式下水道緊急改善計画</b> 」を作成するものとし、その計画期間を5年間以内とする。

この“基本的な考え方”は、「合流式下水道改善対策指針と解説」（日本下水道協会）がこの考え方を踏まえて作成されたように、改善対策を進める上で制度面、技術面の基本方針となった。

また、この検討委員会の報告書を受けて、国土交通省では各種の改善対策を重点的に支援するための事業制度として「合流式下水道緊急改善事業」を平成14年度より新たに実施し、合流改善対策の計画的・緊急的な推進を図った。事業の目的と概要を表2-3（岡本, 2002）に示す。これらの考え方に基づき、国土交通省は平成15年に下水道施行令を改正し、合流改善について基準の面からの対応が講じられた。この改正では、検討委員会における検討結果を踏まえ、合流改善対策を確実に進めていくために、下水道施設の“構造上の基準”及び“放流水の水質基準”について必要な基準が定められた。これらの基準は、経過措置として本令施行後10年または20年経過した日から適用されると定められた。すなわち、平成16年4月より中小都市では10年以内（平成25年度まで）に、大都市では20年以内（令和5年度まで）に、合流式下水道の改善を求めた。

下水道施行令の改正点としては、“構造上の基準”では、まず「雨水吐」という用語が、「雨水の影響が大きいときに下水の一部を河川その他の公共の水域または海域に放流するもの」と明確に定義された。雨水吐については、その構造として適切な高さの堰を設置することなどにより、雨天時にCSOの量を最小限にすることを定めた。また、オイルボールなどの夾雑物の流出を最小限にするために、スクリーンの設置などの措置を講ずべきことも定めた。また、“放流水の水質基準”では、「合流式下水道から放流されるBOD汚濁負荷量を分流式下水道以下に」という検討委員会の提言を踏まえ、雨水による影響の大きい積算雨量10～30mm、最低先行無降雨4時間以上、雨天時越流が期待できる程度の独立降雨（国土交通省, 2001）の場合に、雨水吐室や下水処理場などの各吐口からのCSOに含まれるBOD汚濁負荷量の総量を、各吐口からのCSOの総流量で除した数値が、40mg/L以下であることとしている。また、この基準に対応して、合流式下水道の吐口で毎年少なくとも年1回以上の水質検査を実施するよう義務付けられた。なお、合流改善の重要性を鑑み、水質基準については猶予期間においても暫定基準（70mg/L以下）が定められた。

#### 2.2.5.2 合流式下水道を抱える各自治体の取り組み（田中宏明ら, 2010）

国の取り組みを受けて、合流式下水道を抱える各都市において「合流式下水道緊急改善計画」が策定され、合流改善対策が実施されている。東京都では、平成9年頃からオイルボール漂着問題が顕在化し、平成13年3月に合流改善クイックプランが策定された。これは、雨天時にも水辺の美観を守ることを目的に、オイルボールや夾雑物の流出防止対策など、緊急で実施する対策を取りまとめたものである。これにより積極的に問題を公表し、都民への協力要請も行われた。また、平成14年に検討委員会により合流改善の基本方針が示されたのを受け、東京都でも合流改善計画の見直しが行われた。ここでは、新たな合流

表 2-4 各都市の合流改善事業の例（木村, 2002; 古川, 2002; 古賀, 2004; 鈴木ら, 2004; 荒木, 2005; 笠原, 2005; 丹野ら, 2005; 大津市, 2006; 大楽, 2006; 内田, 2008; 京都市, 2011; 福岡市, 2011; 北九州市, 2011).

札幌市	遮集幹線の増強, 創成川処理区において内径5mの雨水貯留管 (貯留能力46,400 m <sup>3</sup> ) の設置
仙台市	雨水吐での夾雑物対策 (ろ過スクリーン等), 雨水貯留管の設置
高岡市	遮集幹線の増強, 雨天時下水活性汚泥処理法 (2.2.6.2 (3) で詳述), ろ過スクリーン等 (2.2.6.2 (4) で詳述)
東京都	[合流改善クイックプラン] 遮集幹線の増強, 雨水貯留池の設置, 宅地内浸透施設の設置促進, リアルタイム・コントロール (RTC) 等を利用した運転方法の工夫, ろ過スクリーン等 (2.2.6.2 (4) で詳述)
川崎市	雨水滞水池 (貯留能力89,280 m <sup>3</sup> ) の設置
藤沢市	ろ過スクリーン等 (2.2.6.2 (4) で詳述), 雨水貯留管の設置, ポンプ場のドライ化, 雨水滞水池の設置
京都市	ろ過スクリーン等 (2.2.6.2 (4) で詳述), 雨水貯留管 (貯留能力67,000, 31,000, 20,000, 13,000 m <sup>3</sup> ) の設置
大阪市	雨水滞水池 (貯留能力320,000 m <sup>3</sup> ) の設置, 傾斜板沈殿池による簡易処理の高度化, 下水管のインバート化, 雨天時下水活性汚泥処理法 (2.2.6.2 (3) で詳述)
東大阪市	ろ過スクリーン等 (2.2.6.2 (4) で詳述), 貯留施設の設置, ポンプ場での堆積防止
大津市	雨水貯留管 (貯留能力14,100 m <sup>3</sup> ) の設置, 高速凝集沈殿処理法 (2.2.6.2 (2) で詳述)
福岡市	部分分流化, 雨水滞水池 (貯留能力35,000, 2,000 m <sup>3</sup> ) の設置
大牟田市	管きよの清掃, 遮集幹線の増強, 雨天時下水活性汚泥処理法 (2.2.6.2 (3) で詳述)
北九州市	雨水滞水池 (貯留能力4,600, 4,400, 3,800, 2,800 m <sup>3</sup> ) の設置, 雨水貯留管 (貯留能力13,500 m <sup>3</sup> ) の設置

改善基本計画として, ①年間汚濁放流負荷量を分流式並み, ②越流回数の削減, ③お台場へのオイルボール漂着ゼロ, ④夾雑物の流出防止, といった改善目標を設定した. 従来から行っていた遮集幹線の整備と雨水貯留池の建設に加え, 雨水浸透施設及び雨水吐におけるスクリーン設置, 運転管理の工夫による高級処理水量の増加といったソフト・ハード両面からの新たな対策を実施した. 大阪市では, 雨水滞水池や吐口でのスクリーンの設置, 下水管のインバート化といった一般的な対策の他, 大阪市で独自に開発された雨天時処理方法として雨天時下水活性汚泥処理法 (Wet Weather Wastewater Treatment Process; 3W 法) が行われている. 本法の詳細は 2.2.6.2 (3) で述べるが, 既存の処理施設を利用する処理方法であり低コストで高い効果を上げている (山本・中村, 2005).

合流式下水道を抱える各都市で計画または実施されている合流改善事業の例を表 2-4 (木村, 2002; 古川, 2002; 古賀, 2004; 鈴木ら, 2004; 荒木, 2005; 笠原, 2005; 丹野ら, 2005; 大津市, 2006; 大楽, 2006; 内田, 2008; 京都市, 2011; 福岡市, 2011; 北九州市, 2011) に示す. 対策事例で最も多いのは, 貯留管や雨水滞水池など雨水貯留施設の設置であり, 平成 14 年に行われた国土交通省のアンケート調査では改善計画全体の約 4 割を占めていた (国土交通省, 2002). 続いて 2.2.6.2 で詳述する, 雨水吐におけるろ過スクリーンやスワール分水槽の設置, 遮集幹線の増強等が多くなっている (国土交通省, 2002). また, 管渠の清掃やインバート化などの負荷源対策, ホームページを通じた広報活動や住民への協力要請などソフト面での対策を行っている都市も多い (国土交通省, 2002). さらに, 2.2.6.2 で詳述する高速ろ過や高速凝集沈殿など, 近年新たに開発された雨天時処理技術の導入を行っているところもある (国土交通省, 2002).

### 2.2.5.3 現行の合流改善対策にともなう問題点と課題

2.2.5.2 で述べたように, 合流式下水道を抱える各自治体において様々な合流改善対策が計画され, また実施されつつある. しかしながら, 雨水貯留施設をはじめとする対策施設の新規設置は, 大規模な財政支出を伴う, 設置に伴う用地取得が困難, 工期が長く対策の効果が現れるまでに時間がかかる等の問題がある (内田, 2008). また, 貯留された下水は降雨後に下水処理場に流下させて処理する必要があるため, 下水処理場においても対策が必要である. さらに, 下水道整備率の低い都市では, 未整備地区の下水道整備が優先され改善対策が十分に行われていない場合が多い (内田, 2008).

これらの問題に十分に対応するためには, 吐口において CSO を防止する対策が重要である. しかし,

2.2.5.1 表 2-3 (岡本, 2002) に示す通り, 雨水吐での対策により下水処理場へ導く遮集量や貯留量が増加するため, 雨天時の下水処理場への流入下水水量が増えていると報告されている (安井ら, 2018). このため, 2.2.4 の米国の事例で述べたような, 省スペースで大量の下水を処理可能であり, かつ経済的に有利な処理技術の開発も求められる.

## 2.2.6 合流式下水道改善に関する技術開発の動向

合流式下水道の改善対策は多岐にわたる. その一覧を図 2-2 (国土交通省, 2002) に示す. 合流式下水道の改善対策は, 管路施設に関するもの, 貯留・浸透に関するもの, 処理に関するもの, ポンプ施設に関するもの, 発生源に関するもの, 融雪時のものの 6 つに大きく分けられる. 本項では, 主に処理に関するものを取り上げる. まずは国が取り組む SPIRIT21 プロジェクト (国土交通省, 2003) について述べ, 次の 2.2.6.2 で下水処理場における CSO の処理技術として高速ろ過処理, 高速凝集沈殿処理及び雨天時下水活性汚泥処理などについて詳述し, 最後に, CSO の処理技術にかかる研究の取り組みについて要約する.

### 2.2.6.1 国が取り組む SPIRIT21 プロジェクト

国土交通省は, 平成 14 年度より産学官と連携し, 合流式下水道改善対策に係る技術開発・実用化を推進するためのプロジェクトとして, SPIRIT21 (Sewage Project, Integrated and Revolutionary Technology for 21st Century) を創設した (田中宏明ら, 2010). 国土交通省は, SPIRIT21 の最初のテーマとして「合流式下水道の改善に関する技術」を選定し, 合流改善技術に係る開発研究者を募集した. その結果, 「夾雑物除去」「高速ろ過」「凝集分離」「消毒及び計測・制御」の 4 分野において 24 技術が選定され, 研究開発プロジェクトが進められた (国土交通省, 2003). これらのプロジェクトは, 平成 14~16 年度にかけて実施された. 成果として, 雨天時に雨水吐室やポンプ場から排出される夾雑物を除去するためのスクリーン, 主にポンプ場からの CSO の汚濁負荷削減技術及び下水処理場の簡易処理に適用する技術としての高速ろ過装置や凝集分離設備, 酸化剤・オゾン及び紫外線を用いた消毒技術, ならびに COD・SS 及び TC を自動測定する装置の, 合計 24 技術が開発された (堀江, 2005a; 伊藤, 2006).

### 2.2.6.2 下水処理場・雨水吐などにおける CSO の処理技術

(1) 高速ろ過 (加畑ら, 2005; 竹村ら, 2005; 千種ら, 2005; 平川, 2005; 武, 2005; 堀江, 2005b; 宮脇ら, 2005)

高速ろ過は, ろ材の充填されたろ層に雨天時下水を通水させ夾雑物や SS を捕捉する方法であり, SPIRIT21 において 5 技術が選定されている. 図 2-3 に高速ろ過施設の一例 (武, 2005) を示す. 高速ろ過はろ材に大きな特徴があり, 主として空隙率の大きいろ材が用いられている. そのため通水抵抗を低減し大量の下水をろ過することが可能であるとともに, ろ層の洗浄までの間隔が長くろ過水回収比が高い. また, ろ層全体で汚濁物を捕捉することが可能であり汚濁負荷の大きい降雨初期の流入水にも対応できる. ろ材の形状は風車型, 球形, 円柱形, 立方体型など様々である. ろ層の洗浄方法についても洗浄水に処理水や流入水を用いるなど, 低コスト化が図られている.

除去率は, ろ過速度 1,000~3,000 m/日で SS 除去率 60~70 %以上, BOD 除去率 50~60 %以上で, 雨水沈殿池など従来技術の汚濁物質除去性能 (SS 除去率 30 %, BOD 除去率 30 %) を大きく上回る. この施設は, 新設のほか最初沈殿池など既存施設の一部を改造することにより導入も可能なため経済的で, 晴天時の高級処理にも応用できる等, 晴天時を含めた全体の放流負荷量を削減することが可能である.

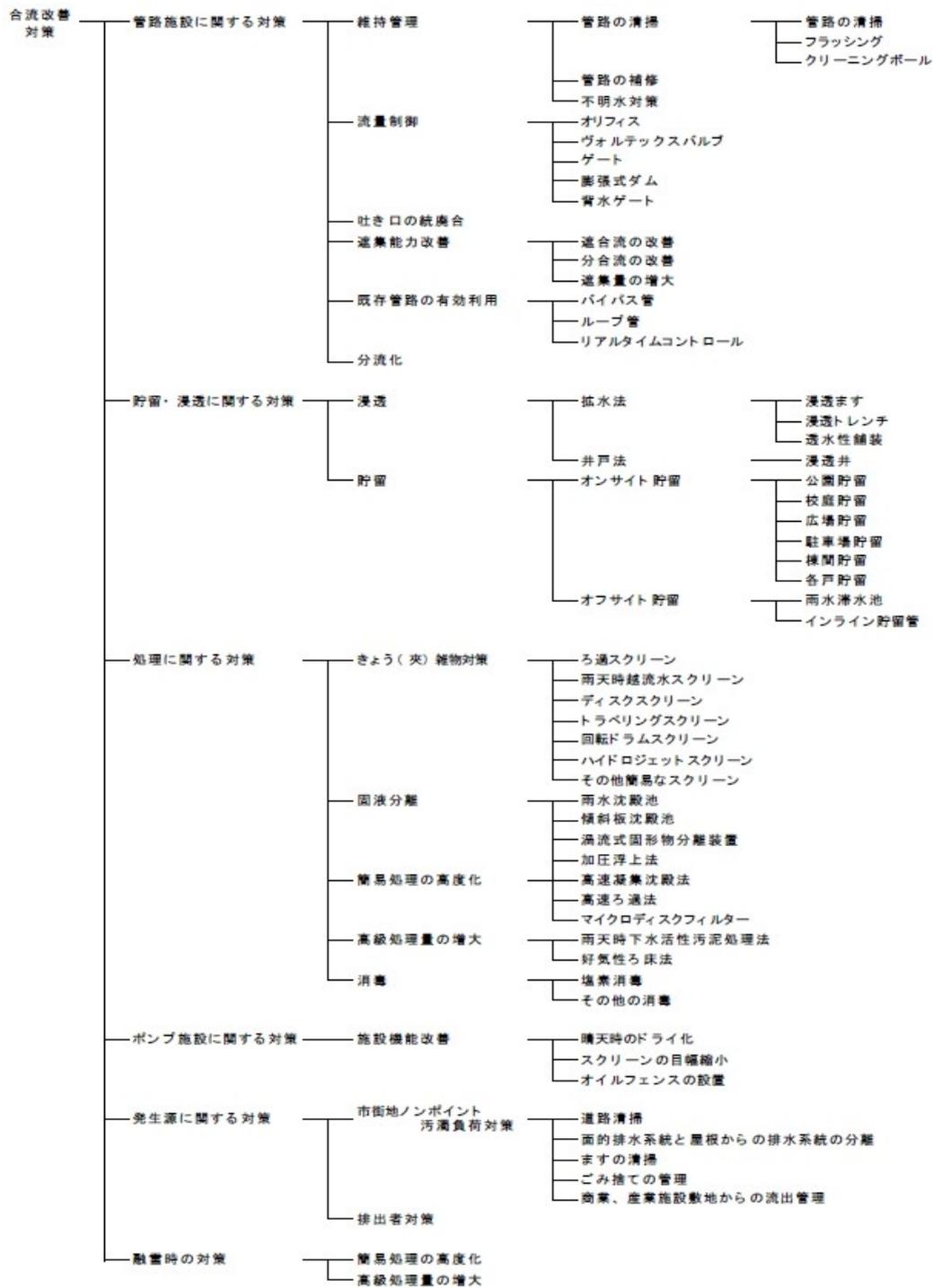


図 2-2 合流式下水道の改善対策施設の一覧 (国土交通省, 2002).

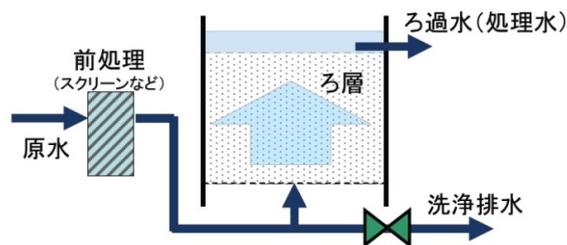


図 2-3 高速ろ過施設の一例 (武, 2005).

(2) 高速凝集沈殿（永松, 2004; 越智ら, 2005; 武, 2005; 堀江, 2005b）

高速凝集沈殿は、流入する雨天時下水に凝集剤を添加して下水中の汚濁物質を凝集させ、固液分離により処理水を得る方法である。SPIRIT21 で選定された高速凝集沈殿処理施設では、無機凝集剤や高分子凝集剤の注入の他、沈降促進剤（マイクロサンド）の添加やスワールの設置など固液分離の高速化のための工夫が見られる。高速凝集沈殿施設の一例を、図 2-4（武, 2005）に示す。

本処理法では SS 除去率 80 %以上、化学的酸素要求量（chemical oxygen demand; COD）除去率 55 %以上、BOD 除去率 75 %以上、全リン（T-P）除去率 80 %以上で、BOD、SS だけでなく T-P も高い除去率が期待できる。また、基本的に自動制御で行われるため運転・維持管理が容易で、連続的に汚泥を引き抜くことで長時間の連続運転が可能である。さらに系内 HRT が短いため省スペース・低コストで設置できる。

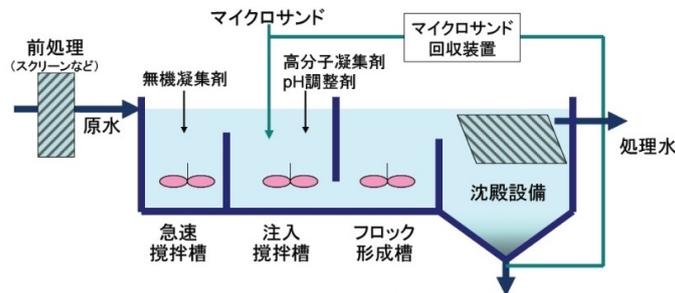


図 2-4 高速凝集沈殿処理施設の一例（武, 2005）。

(3) 雨天時下水活性汚泥（古川, 2002; 大牟田市, 2004; 中田逸夫ら, 2005; 橋本ら, 2005; 大阪市, 2006）

3W 法は既存の水処理施設を活用するため、安価で効果の大きい合流改善対策として、大阪市で独自に研究・開発されてきた手法である。降雨時に簡易処理のみで放流している 1Q 超過量の雨天時下水を、ステップ水路を利用して生物反応槽後段へ流入させ活性汚泥処理を行う。処理フローを図 2-5（橋本ら, 2005）に示す。雨天時下水が生物反応槽に流入すると下水中の汚濁物は最初の 30 分程度で活性汚泥に吸着（初期吸着）され、その後に分解される。3W 法では生物反応槽後段に 1Q 超過量の雨天時下水を流入させ、反応槽から流出するまでの短い HRT の間に汚濁物を活性汚泥により吸着除去している。吸着された汚濁物は返送汚泥系及び反応層前・中段に滞留している間に分解され、活性汚泥の吸着能が回復する。

大阪市による 3W 運転試験では、簡易処理放流を行う従来の処理と比較して放流汚濁負荷量が SS で 70 %程度、BOD で 60 %程度削減された。また運転中の放流水質も BOD で 12 mg/L 程度となり、晴天時の高級処理水と同程度であった。3W 法はステップ水路の設置など既存の処理施設の小規模な改造により実施することができるため、合流改善技術の中でも経済的な技術である。一方、高度処理との併用の問題や、長時間の 3W 運転により活性汚泥の処理能力低下が懸念されるなどの検討課題も残っている。

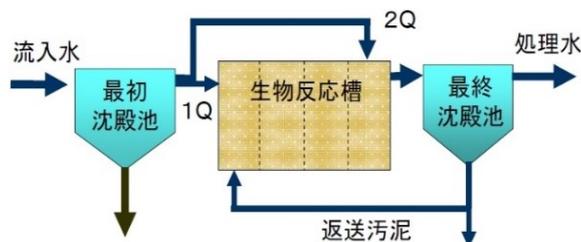


図 2-5 雨天時下水活性汚泥処理施設の一例（橋本ら, 2005）。

#### (4) 雨水吐における対策技術

雨水吐での一般的な夾雑物対策として、ろ過スクリーンの設置がある。SPIRIT21 においても 8 技術が選定されている(武, 2005)。スクリーンプレートパネル式(林田ら, 2005)や横掻き式(西澤ら, 2005)など様々なタイプのものがあるが、それぞれ高い夾雑物除去率を得られるよう工夫されている。ろ過スクリーン施設は維持管理が容易であり早期に確実な効果が得られることから、当面の合流改善対策として有力な手法である。また、より簡易な手法として分水部に制御板やガイドウォールを設置し水流を利用してオイルボール等の夾雑物を遮集管に取り込む方法がある(阿部ら, 2005)。流れ方向に対し垂直に制御板を置くことで渦巻き運動を発生させ、渦流を利用して浮遊物を巻き込み遮集管へ導く方法である。

東京都ではこの手法により夾雑物除去率 70 %以上を達成している(大橋ら, 2006)。構造が非常に簡素であり、維持管理が容易であることがこの手法の特徴である。スワール分水槽の設置も、有力な夾雑物対策である。スワール分水槽は、水流を利用した渦流式の固液分離装置であり、松山市の調査によると、CSO 発生時に 75 %近い SS 除去率が得られている(小池, 2002)。

#### (5) 消毒・計測に関する対策技術

合流式下水道では、降雨により放流される下水水量が増加し、簡易処理などにより処理水質が悪化するため、雨天時下水の消毒技術も課題の一つであり、SPIRIT21 において 7 技術が選定されている。選定された技術では、消毒剤として二酸化塩素、オゾン、紫外線などが用いられており、雨天時において TC 数 3,000 個/mL 以下を達成しコスト性の優位な消毒技術が開発されている(日本下水道新技術機構, 2008)。また、雨天時放流水質の監視方法も課題の一つであるが、吐口において水質を連続的に監視するための計測技術の開発が行われている(2.3.4.2 にて詳述)。SPIRIT21 では吸光光度法を用いて SS、COD を計測する技術、酵素反応による生物発光・化学発光を用いた TC 数測定技術が選定されている(日本下水道新技術機構, 2008)。

最近では、雨天時下水の増大に対応し、放流汚濁負荷を低減するため、汚泥流出抑制と二次処理水量最大化を実現する雨天時下水処理運転管理に向けた汚泥流出リスク予測手法を検証する研究事例がある。西田らは、汚泥流出リスクの評価に用いる指標選定を目的に、実下水処理場における雨天時処理データに基づき、二次処理水量、汚泥沈降モデルによる界面高さ計算値等の指標による汚泥流出リスク評価精度を検証した。その結果、評価精度を F 値に基づき比較した結果、二次処理水量のみの 0.33 に比べ、界面高さ計算値では 0.43 となり、汚泥沈降モデルにより評価精度を向上できた(西田ら, 2019)。

#### (6) 合流改善に向けた技術開発の課題

現在の合流改善技術は BOD、SS が主な除去対象となっている(日本下水道新技術機構, 2008)。(1)～(5)で述べた処理技術に関しては、高速凝集沈殿では T-P の除去が可能であるが、窒素・リンまたは病原微生物を対象とした検討例は少ない。そのため、放流先水域において窒素・リンなどの栄養塩類、病原性微生物への対応が迫られる場合、新たな処理技術の開発が必要と考えられる。そのための研究の一例について、詳しくは次の 2.2.6.3 で述べる。

##### 2.2.6.3 雨天時処理技術に関する研究の取り組み

宮崎は、3槽から構成される活性汚泥実験装置を用いて生物反応槽後段へのステップ流入による処理水

質の影響を研究した。MLSS濃度をおよそ2,500 mg/Lに維持した状態から、初沈後水を計画日最大汚水量（1Q）の3倍、5倍で生物反応槽へ流入させた場合、最終沈殿池からの汚泥流出が確認された。一方、ステップ流入として、生物反応槽前段から初沈後水を1Q流入させ、後段から2Q、4Q流入させる場合には、5時間の運転では汚泥の流出は見られなかったという結果が報告された（宮崎, 2006）。

上門は、雨天時処理として、6槽から構成される活性汚泥装置を用いて3～5時間にわたって4～5Qの条件で処理実験を行った。この場合、循環式硝化脱窒法に比べ標準活性汚泥法の方が生物反応槽内の汚泥混合液の浮遊物質（mixed liquor suspended solids; MLSS）濃度は一定に保たれ、BOD、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nについても生物反応槽での除去効率が高かった。このため、雨天時処理としては標準活性汚泥法が適していると結論付けた。また、同装置で指標微生物としてのTCの除去効率についての研究を行った。これは雨天時の生物反応槽への初沈後水流量を3Qと想定した実験で、最初の1時間は晴天時運転を継続して循環式硝化脱窒法で運転を行い、その後、雨天時処理として標準活性汚泥法での運転を行った。標準活性汚泥法での運転では、HRT不足のために硝化が進まず、流出水中のアンモニア性窒素（NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N）濃度が増加し、BOD濃度も上昇した。その後、降雨終了を想定して初沈後水流量を1Qに戻して晴天時の運転方法である循環式硝化脱窒法に戻したが、処理水質の改善は見られなかった。TCについても、3Qの流量で標準活性汚泥法の運転をした場合には、除去率が1.97 logまで下がり流出水中のTC濃度は97 CFU/mLであった。これは、3Q運転によってHRTが減少したため、最終沈殿池での汚泥の沈殿分離が不十分となったためであると考察した。また、降雨終了を想定して初沈後水流量を1Qにして循環式硝化脱窒法に戻したが、TC数の除去率は2 log程度で推移し、流出水中のTC濃度は大きく下がらなかった。しかし、この場合でも2 log程度のTCの除去が可能であり、簡易処理放流の場合に比べて消毒に必要な塩素量は大幅に削減可能であることが計算によって求められた。このため、TC排出の抑制からも、簡易処理放流ではなく標準活性汚泥法での処理が有用であると結論付けた（上門, 2009）。したがって、実際の下水処理場における衛生微生物の雨天時処理状況を調べる必要があると考えられる。

### 2.2.7 合流式下水道改善技術の水質面での問題点

下水処理場における通常の処理では、流入下水は最初沈殿池・生物反応槽・最終沈殿池及び塩素混和池を経て、公共用水域へ放流される。雨天時の下水道では、降雨により汚水に雨水が混入することで流入下水水量が増加し、最初沈殿池では固液分離（生汚泥の沈殿処理）が不十分になる。また、仮に雨天時に流入する下水（雨天時下水）の全量を生物処理するものとした場合、生物反応槽では初沈後水のHRTが低下し、有機物が十分に分解されず、流量の増加により活性汚泥（MLSS）が最終沈殿池から流出するとともに、最終沈殿池の堆積汚泥と返送汚泥の濃度低下などから反応槽のMLSS濃度の低下とともに処理能力が低下する。すなわち、降雨時の下水処理場においては、簡易処理水（初沈後水）の問題だけではなく、生物処理水量の増加が起こると処理不十分な高級処理水（終沈後水）の問題も発生する（田中景介, 2018）。

このため、下水処理場への流入水量が増加し、晴天時の日最大汚水量（1Q）を超えた場合には、超過した流量分の下水は最初沈殿池で固液分離処理された後、生物反応槽や最終沈殿池を経由せず、バイパス水路を経由して塩素混和池に直接流下し、公共用水域に放流されてきた。これが、雨天時下水のなかでも2.2.2で述べた雨天時の簡易処理放流である。簡易処理放流は、流入下水中の水質が雨水により十分に希釈されるため、放流負荷としては大きな問題ではないとされている。しかしながら、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nのように水環境中において低濃度で影響するものや、病原性を持つ*E. coli*・腸管系ウイルスなどの衛生微生物は、

希釈では不十分なほど高濃度で存在するため、放流先水域の環境影響が危惧される（田中景介, 2018）。

現在の合流式下水道改善対策事業は、SS や BOD の処理といった有機物除去や、吐口からの汚濁物質の流出を防ぐことを目的としている。しかし、放流先である公共用水域の生活環境保全を考えた場合、リクレーションや水道水源といった水利用に供される重要影響水域（国土交通省, 2018）においては、衛生環境保全のための病原微生物の除去や、水道水源のための  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の除去などが必要となる（田中宏明ら, 2010）。なお、合流式・分流式とも病原微生物に対する排出基準は、指標微生物である TC のみで 3,000 個/cm<sup>3</sup> 未満となっているが、*E. coli* の病原微生物での代表性や糞便汚染の指標性に限界があり、また諸外国と比較しても排出基準値が高いことから、環境基準の指標の見直しとともに、指標と数値の見直しの必要性が検討されている。一方の  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  については、国土交通省河川局の「今後の河川水質管理の指標項目（案）」及び国土交通省河川局の「今後の湖沼水質管理の指標について（案）」において、「豊かな生態系の確保」を視点として、アンモニアの水生生物への毒性が評価されている（国土交通省, 2009; 国土交通省, 2010）。また、「利用しやすい水質の確保」の視点からも浄水処理の維持管理性、すなわち浄水過程で塩素消毒時にジクロロアミンが生成することで生じるカルキ臭の抑制と塩素要求量の管理を行うために、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  に対する評価レベル（案）が設定されている（国土交通省, 2009; 国土交通省, 2010）。近年、環境省では、生活環境項目の環境基準である TC に対し、*E. coli* への変更が検討され、水生生物の保全の環境基準として、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の追加作業が進められている（松葉, 2019）。これらに伴い、下水処理場における放流基準の改正も今後考えられる（松葉, 2019）。このため、今後、重要影響水域では病原微生物と  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  の除去を行う処理が求められる可能性がある。さらに、合流式下水道改善の対象ではない分流式下水道でも、豪雨時に管路施設の汚水ますやマンホールから汚水と雨水の混ざった雨天時下水が溢水し、またポンプ場・下水処理場のポンプ施設が冠水し、下水道の機能を失う事態も発生している。さらに、日常的に分流式污水管に雨水が浸入し下水処理場での生物処理能力を上回る結果、雨天時簡易処理放流、いわゆる SSO の発生が発生することが問題視されており（2.2.2 参照）、この対応も今後求められる。

## 2.2.8 諸外国における合流改善に関する取り組み状況

### 2.2.8.1 諸外国における合流式下水道の現況（国土交通省, 2002）

合流式下水道の雨天時下水の問題は、日本だけでなく各が抱える共通の問題である。古くから下水道が普及していた欧州では、19 世紀から 20 世紀初頭にかけて建設された、下水（汚水・雨水）の収集・排除の管渠システムを利用しており、またその後の都市開発により合流式の下水収集システムを拡張させてきた地域が多い。そのため、スペインで 90% 程度、英国・オランダ及びドイツで 70% 程度と、下水道整備区域における合流式下水道の占める割合が大きく、雨水吐の数も一国あたり約 5,000~25,000 箇所と日本よりも多い。また、欧州では年間総降雨量が約 600~900 mm と日本よりも少なく、極めて高濃度の SS を含んだ CSO が環境中へ流出している。そのため、CSO の吐口設置を許可制としている国もあるなど、CSO 問題に対する関心が高い。

### 2.2.8.2 諸外国における合流改善への取り組み例（国土交通省, 2002）

アメリカでは、国内のおよそ 1,100 の自治体が合流式下水道を採用しており、処理人口は約 4,300 万人である。その内の約 85% が北東部、中西部海岸などの 11 の州に集中しており、15,000 箇所以上の合流式下水道の雨水吐が存在する。また、1,000 以上の自治体で分流式下水道からの雨天時越流水（SSO）が発

生している。そのため水浄化法（The Clean Water Act）に基づいて米国汚濁物質排水削減（National Pollutant Discharge Elimination System; NPDES）プログラムによる排出水の許可制度をとっており、雨水吐からの CSO についても排出許可の規制が実施されている。CSO に関する NPDES の許可基準は 1994 年に USEPA より発表された CSO コントロール・ポリシーに基づいており、下水道管理者はこれに基づいて CSO 対策と対策施設の監視及び住民への情報提供が義務付けられている。USEPA は、下水道管理者に対して短期的政策（ナイン・ミニマム・コントロール）と中長期的政策（ロング・ターム・コントロール）の立案及び事業の実施を課しており、実施後の監視結果から必要に応じて改善要求を行うことができる。なお、ナイン・ミニマム・コントロールでは、既存下水道システムの最大利用、CSO の流出抑制、スクリーン等による夾雑物対策等大規模施設の建設を必要とせず短期間、例えば約 2 年未満に実施できる以下の 9 つの対策が実施される（USEPA, 1995b）。

- ① 適切な運転と維持管理手法（流量制御装置の維持と補修、堆積物の除去、管渠の調査）
- ② 既存下水道システムの最大限の利用（能力不足・流量制御装置の改善、ポンプ運転の更新・調整）
- ③ CSO の影響の最小化に必要な前処理の再検討と改良（流出抑制、流下量の制限、維持管理の改善）
- ④ 処理場受け入れ水量の最大化（流量・処理能力の解析、余剰施設の利用）
- ⑤ 晴天時越流の禁止（定期調査の実施、ミス・コネクションの改善、流量制御装置の維持・補修）
- ⑥ 雨天時越流水の夾雑物の制御（スクリーン、バップル、ネット）
- ⑦ 越流水の汚染物質を減少させるための汚濁防止プログラム（道路清掃、住民教育、肥料使用制御等）
- ⑧ CSO の発生と影響に関する十分な住民告知（公共の場での看板、新聞等の広告、ダイレクトメール）
- ⑨ CSO の影響と対策効果を効果的に把握する監視（越流実態、放流先の水利用・水質の把握）

またロング・ターム・コントロールでは、合流式下水道システムのモデル化、重要影響水域の考慮、代替対策案の評価など放流先水域の水質基準に適合させるための、水浄化法の要求に応じた最終成果的対策が実施される。さらに、SSO による汚濁流出にも着目し、改善対策が進みつつある（USEPA, 1995a）。

イギリスでは、河川水生生物の保護や水浴水域など親水利用水域保全の観点から環境基準が設定されており、夾雑物、BOD、DO、NH<sub>3</sub>、糞便性 TC 等において、雨天時環境基準が設けられている。また、放流先水域の河川生態系、親水利用分類ごとに環境基準が設定されており、基準に適合しない場合は合流式下水道の改善対策が実施される。フランスでは、雨水吐が放流許可の手続きが必要な施設に指定されており、SS、BOD について放流水質基準が設けられている。放流先水域に環境基準が設けられている場合はそれが優先される。人口 1 万人以上の処理区の吐口において、越流量、SS 及び BOD の監視、人口 1 万人未満の処理区の吐口においても、越流量の監視が義務付けられており、またリアルタイム・コントロールによる既存管を有効活用した CSO 流出抑制が行われている。ドイツでは、雨水吐における雨天時越流水と下水処理場からの簡易処理放流水を対象に COD<sub>Cr</sub> について規制を設けており、雨水に起因する合流式下水道からの年間汚濁負荷量が分流雨水以下となるよう、貯留施設の整備を行っている。越流回数、DO 及び NH<sub>3</sub> に関しても、規制の導入が検討されている。しかしながら、放流先水域の特性については考慮されていない。

### 2.2.8.3 諸外国の対応と日本における合流改善対策の課題

合流式下水道の問題は、先進国を中心とした各国共通の問題である。欧米の中には、日本では雨天時水質基準の設けられていない窒素・リンなどの栄養塩類や、TC 以外の衛生微生物への対応も行われている。

またアメリカなどでは SSO 対策も検討され始めており、下水道からの雨天時汚濁負荷削減は世界中で強い関心を持たれている。日本における雨天時汚濁負荷削減対策は始まったばかりであるが、2.2.7 で述べたとおり、今後このような対策が求められると考えられる。

## 2.3 下水処理放流水や CSO・SSO（雨天時下水）の放流先水域への衛生学的影響

### 2.3.1 水系感染症に関わる衛生微生物の伝播経路

下痢、胃腸炎等の水系感染症に関わる衛生微生物として、主に腸管系の細菌、原虫及びウイルスを含む病原微生物が挙げられる。これらの病原微生物は、水中で存在することが可能であり（李, 2015）、例えば水環境中へ排出された腸管系ウイルスは水中で 30~150 日間生残し（Espinosa *et al.*, 2008; Ogorzaly *et al.*, 2010）、水環境中に存在する 140 種類以上のウイルスのほとんどを占める（Ye *et al.*, 2012）。糞便により汚染された水との接触や飲用よりヒトに感染する可能性がある（李, 2015）。また、浄水処理を経た水道水からも腸管系ウイルスが検出された事例（Albinana-Gimenez *et al.*, 2009）が存在するため、ヒトや動物の糞便が水道原水に混入すると、水道水を介してヒトに感染する可能性も考えられる（白坂, 2017）。水源は井戸水で塩素処理のみでの給水ではあるが、飲用水を介したノロウイルス（NoV）の水系感染事例が国内で発生しており、2003 年に新潟県のカラオケ店で発生した事例では患者が 151 人であった（田村ら, 2005）。したがって、水系感染症は先進国である日本においても依然として深刻な衛生問題の一つとなっている（李, 2015）。さらに、病原微生物が感染したヒトの腸管内で増殖し、その感染者の糞便から高濃度で排出され下水道へ流入する（白坂, 2017）。

このように、下水処理場に流入する生下水や、降雨時における CSO 及び SSO には、高濃度の腸管系病原微生物が存在している可能性がある。腸管系病原微生物の伝播経路を、図 2-6（金子, 2006; 李, 2015）に示す。これらの病原微生物は、下水処理によってすべて完全に処理することはできないと考えられている（白坂, 2017）。例えば、水中の腸管系ウイルスを下水処理により完全に除去・不活化することは困難であり（da Silva *et al.*, 2007; Flannery *et al.*, 2012）、活性汚泥処理で 1~4 log 程度は除去されると報告されている（Katayama *et al.*, 2008; Kitajima *et al.*, 2014）。したがって、病原微生物の一部は下水処理放流水とともに水環境中に排出される。定常的に下水処理放流水の影響を受けている河川水（Hot *et al.*, 2003; Haramoto *et al.*, 2005; Rutjes *et al.*, 2005; Verheyen *et al.*, 2009; Hamza *et al.*, 2011; 岸田ら, 2013）や湖水（Long *et al.*, 2004; Wong *et al.*, 2009; Lee *et al.*, 2014）、海水（Jiang *et al.*, 2001; Katayama *et al.*, 2002; Hansman *et al.*, 2007; 端ら, 2008; Gentry *et al.*, 2009; 端ら, 2012）、地下水（Borchardt *et al.*, 2003; Ogorzaly *et al.*, 2010）等の環境水において、これらの病原微生物が存在していることが、数多くの調査により報告されている。

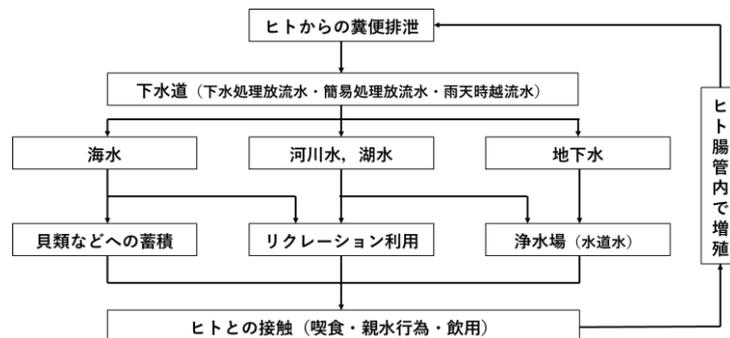


図 2-6 腸管系病原微生物の伝播経路の概略（金子, 2006; 李, 2015）。

## 2.3.2 環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出

### 2.3.2.1 環境水試料からの水系感染症のウイルス検出

Haramoto *et al.*は、NoVをはじめとする病原ウイルスを対象に、下水処理放流水の影響を受ける国内河川にて1年間の継続的な調査を行った。その結果、NoV 及びアデノウイルスが高頻度で検出された。NoV は冬季に最も高濃度で検出され、一般的に知られている冬季流行性が確認された。また、同時に測定している F 特異 RNA 大腸菌ファージ (F-specific RNA coliphage; FPH) が他のウイルスの存在と高い相関を示し、ウイルス汚染の指標としての有効性が期待された (Haramoto *et al.*, 2005)。岸田らは、全国 30 カ所の浄水場の水道原水 (主に河川水) を対象とした、2010 年度の年 4 回にわたる水系感染性ウイルスの存在実態調査を実施した。その結果、1) 腸管系アデノウイルス、GI, GII の各遺伝子群の NoV (GI, GII-NoV) の検出率はそれぞれ 18 %, 16 %, 0 % であり、その検出濃度はそれぞれ 110~2,500, 88~970, 310~2,900 copies/L であった。2) また、全てのウイルスが非検出であった地域・時期は存在しなかった。このことから、晴天時の水道原水には、水系感染性ウイルスが地域・時期を問わず広く存在していることが示唆された (岸田ら, 2013)。端らは、国内の沿岸域の複数地点で、複数種のウイルスを同時に定量することで、複雑なウイルス汚染実態をより詳細に把握することを試みた。その結果、下水処理場の放流地点付近ではサポウイルスをはじめ 7 種類のウイルスが検出され、いずれも下水処理場から遠方へ行くほど低濃度となることが示された。次に、水深別に水試料の採水を行い、水平方向だけでなく鉛直方向にもウイルスが沈降・拡散することが示唆された。最後に、アイチウイルス及び FPH は下水処理場から遠方でも検出された点、他のウイルスに比べ高頻度かつ高濃度で検出された点から、水環境中のウイルス汚染指標としての有効性が示唆された (端ら, 2012)。

また、端らは、CSO の水質が通常の高級処理を経た下水処理放流水よりも劣り、腸管系ウイルスなどの水系感染リスク因子も高い頻度・濃度で存在すると考え、CSO 影響下にある東京湾沿岸域におけるウイルス・指標微生物の消長に関する知見を得るために、経時的に採水調査を行った。その結果、TC と FPH で濃度低下の傾向に違いが見られ、腸管系アデノウイルス濃度は CSO 発生 2 日後にピーク値に達し、その後 CSO 発生 18 日後までに 2.1 log 程度減少した。このことから、CSO が有力な微生物負荷源であることが示された (端ら, 2008)。その他、NoV を指標として、合流式下水道のポンプ場施設からの雨天時越流水が放流先河川の水質に及ぼす影響と、2.2.6.2 (3) で述べた雨天時下水活性汚泥法の適用による下水処理場から排出される NoV 負荷量の削減効果の事例が報告されている (諏訪ら, 2016)。さらに、CSO 等を介して腸管系ウイルスが未処理のまま水環境中へ排出されることも報告されている (Hata *et al.*, 2014)。

一方、海外では Hamza *et al.* がウイルス汚染指標候補とされるトウガラシ微斑ウイルス (Pepper Mild Mottle Virus; PMMoV)、ヒトピコビルナウイルス及びトルクテノウイルスの 3 種のウイルスを対象に、ドイツの人口密集地域を流れる河川で調査を行い、ウイルス汚染指標としての有効性を評価した。特に PMMoV が河川水試料から高頻度かつ高濃度で検出された。さらに、PMMoV の宿主特異性を確認するためにヒト糞便及び動物糞便についても検出を試みた。その結果、動物糞便からはほぼ検出されなかったのに対し、ヒト糞便からは高濃度で検出された。このことから、PMMoV は環境中のヒト糞便汚染の指標となりうることが示された (Hamza *et al.*, 2011)。その他、Fong *et al.* が急流 (rapids) で知られる Michigan 州の Grand 川下流域の下水処理放流水や放流水の影響を受けた河川水を調査し、CSO 等を介して腸管系ウイルスが未処理のまま環境中へ排出されることや、CSO や河川水には高濃度の腸管系ウイルスが含まれ、全身のレクリエーション用途には適さない可能性があることが報告されている (Fong *et al.*, 2010)。

2.3.2.2 淀川水系桂川における衛生微生物検出の先行研究事例 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016)

(1) 概説

Hata *et al.*, 田中宏明らは、淀川水系桂川において、桂川下流域の合流式下水道のうち処理能力が最も大きい下水処理場の下水処理放流水や放流先河川水に含まれる衛生微生物の非降雨時での存在実態を、非降雨時の河川調査により検討した (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016) . この非降雨時調査では、2014年6月から2015年6月までの期間、表 2-5 に示す計 14 回の採水を行った。採水方法は、全ての地点でスポット採水とした。特に、対象の下水処理場の放流水に対しては、場外の放流口付近 (地点 B) で手採水を行った。また、下水処理場放流口の約 1.7 km 上流側地点の久世橋 (地点 A)、約 5.6 km 下流側地点の羽束師橋 (地点 C) における河川水の採水は、流心の表層水に対し手採水を行った。

測定対象の衛生微生物について、まず、指標微生物としては、TC, *E. coli* に注目した。次に病原微生物として、GI, GII-NoV に注目した。最後に指標候補微生物として、FPH 及び PMMoV に注目した。調査期間の 2014 年 4 月～2016 年 3 月の京都気象台の降雨強度 (気象庁, 2018) と桂川の B 下水処理場放流口の下流側 (羽束師観測所) での水文水質データベース (国土交通省, 2018) から得た水位情報を、図 2-7 に示す。

表 2-5 調査日・採水時刻及び採水前の降雨量 (田中宏明ら, 2016). 降雨量は、京都気象台 (35.015N, 135.732E) で 24 時間観測された時間雨量 (気象庁, 2018) の総和。時間雨量の総和の算出については、調査前日の午前 12 時から調査日の午前 12 時までの降雨量の総和とした。宮前橋 (地点 D) では採水せず。

調査日	採水時刻				降雨量 (mm)
	(A)久世橋	(B)下水処理場放流口	(C)羽束師橋	(D)宮前橋	
2014. 6.10	11:30	10:50	12:00	-	0.0
2014. 6.18				-	0.0
2014. 7.16				-	0.0
2014. 7.31				-	0.0
2014. 8.27				-	10.0
2014.10.23				-	0.5
2014.12. 3				-	0.0
2014.12.18				-	1.5
2015. 2. 4				-	0.0
2015. 2.18				-	5.5
2015. 3.26				-	0.0
2015. 4.27				-	0.0
2015. 5.26				-	0.0
2015. 6.24				-	0.0

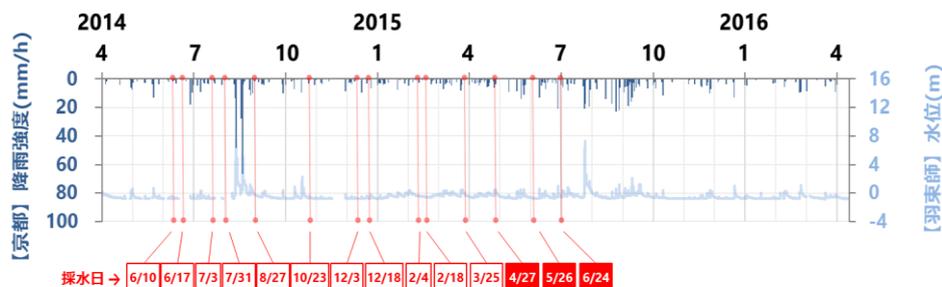


図 2-7 非降雨時調査の期間における京都気象台の降雨強度 (気象庁, 2018) と桂川 (羽束師) の水位 (国土交通省, 2018) の変化 (田中宏明ら, 2016). 赤字が 2014 年度、白抜き文字が 2015 年度の採水日を示す。

(2) 培養法による大腸菌 (*E. coli*), 大腸菌群 (TC) 及び F 特異 RNA 大腸菌ファージ (FPH) の検出傾向

図 2-8 に、培養法により測定した *E. coli*, TC 及び FPH の、各地点での濃度推移を示す。 *E. coli*, TC については、下水処理場下流の地点 C で最も高濃度となる傾向が見られた。下水処理場放流口である地点 B と上流部の地点 A とでは、地点 A の方が高濃度となる傾向にあり、下水処理放流水由来の *E. coli*, TC が調査水域に与える影響は軽微であったと判断できる。2014 年 8 月採水試料については、TC 濃度は地点 B・C 共に  $7.0 \times 10^2$  CFU/mL 程度となり、地点 A ( $2.3 \times 10^0$  CFU/mL) よりも高濃度であった。当採水日については、下水処理放流水に由来する *E. coli* が河川中の *E. coli* 濃度増加に寄与していたと考えられる。地点 B の *E. coli* 濃度は、他の調査日 (*E. coli*: 0.01 CFU/mL 未満~ $2.3 \times 10^1$  CFU/mL) よりも高濃度であった。したがって、下水処理場放流口から特に高濃度で *E. coli* が放出される場合、下水処理放流水由来の *E. coli* が河川中の *E. coli* 濃度増加に寄与すると考えられる。当採水日は TC も同様に高濃度であったが、地点 C での TC 濃度に影響は見られなかった。FPH については、地点 B・C が同程度の濃度、地点 A が比較的低濃度で検出される傾向にあった。このことより、河川中の FPH については、下水処理放流水の寄与が大きいことが推察される。FPH については夏季に地点 A で検出されにくくなった。これは夏季の高水温条件が特に FPH の不活化に寄与したためと考えられる。

以上により、地点 C における微生物濃度について、*E. coli*, TC は上流からの微生物汚染が、FPH は処理場放流口からの影響が強いと推察された。このような差異の要因として、水中での *E. coli*, TC と FPH の生残性の違いが挙げられる。地点 A におけるこれら微生物は、さらに上流の下水処理場等に由来しており、長距離を流下してきたものと考えられる。流下の過程で、FPH が *E. coli*, TC よりも速い速度で不活化したと考えられる。

(3) RT-qPCR による FPH の各遺伝子群 FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の検出傾向

図 2-9 に、定量 real-time-PCR (以下 RT-qPCR) により測定した FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の遺伝子定量結果を地点別に示す。いずれの地点においても GII-FPH が高濃度で検出され、GI-FPH がこれに続く傾向となった。また、GIII-FPH は地点 A・C で特に低陽性率であり、いずれの地点、いずれの FRNAPHs についても季節性は認められなかった。陰性結果を除くと、いずれの FRNAPHs も概ね  $10^1 \sim 10^2$  copies/50 mL の範囲で検出された。GI, GII-FPH については、地点間で検出傾向に大きな差異は見られなかったが、GIII-FPH については地点 A で極端に陽性率が低く (13 試料中 2 試料陽性)、地点 B で高陽性率 (13 試料中 9 試料陽性)、地点 C では中間程度の陽性率 (13 試料中 6 試料陽性) であった。これらより、GI, GII-

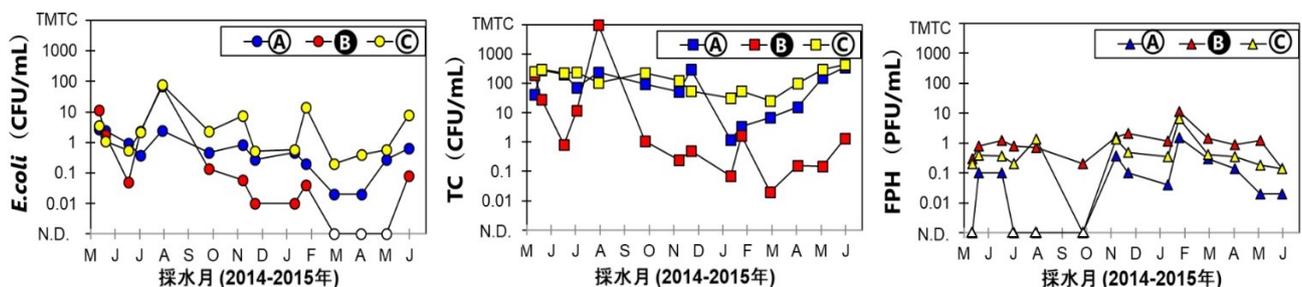


図 2-8 地点 A・B・C における *E. coli*, TC 及び FPH の濃度推移 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016)。地点 B は下水処理場放流口の近傍地点 (場外)。地点 A は下水処理場上流の河川地点 (流心) で、地点 C は下流の河川地点 (流心)。過検出 (TMTC) 試料を上端、不検出 (N.D.) 試料を白抜きで下端に示す。

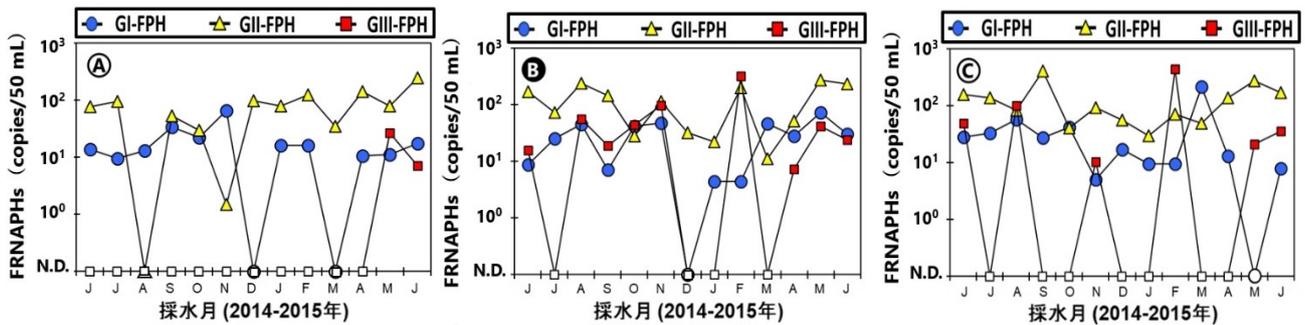


図 2-9 地点 A・B・C における FRNAPhs (GI, GII, GIII-FPH) の遺伝子濃度推移 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016). 地点 B は, 下水処理場放流口の近傍地点 (場外). 地点 A は下水処理場上流の河川地点 (流心) で, 地点 C は下流の河川地点 (流心). 不検出 (N.D.) 試料を白抜き表示で下端に示す.

FPH は地点 C における汚染要因として, 地点 A・B 両者に由来するファージが寄与していたのに対し, GIII-FPH については地点 B の下水処理放流水に由来するファージの影響が強かったと判断できる.

#### (4) 陽性率からみた RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子の検出傾向

表 2-6 に, RT-qPCR により測定した各ウイルスの遺伝子検出結果を示す. GI, GII-NoV は, ウイルス性胃腸炎の主要因 (リスク因子) となるウイルスである. これらの中では, GII-NoV が全 42 試料中の 24 試料 (57%) で陽性となり, 最も高頻度で検出された. これに続き, GI-NoV が 29% の陽性率で検出された. 一方で, PMMoV はウイルス汚染指標として位置づけられるウイルスであるが, 全試料から検出され, 特に高い陽性率 (100%) を示した. 対象の病原ウイルスである GI, GII-NoV は, 上流部の地点 A で低陽性率, 下水処理場放流口である地点 B で高陽性率, 下流部の地点 C で中間程度の陽性率となる傾向にあり, 下水処理場からの放流水が汚染に寄与していることが示唆された.

リスク因子となるウイルス中で, 特に陽性率の高かった GII-NoV について, 他のウイルス・FRNAPH の検出濃度との関係を図 2-10 に示す. 図中において, 両者陽性となった試料のデータを基に回帰分析を試みた. ここで, 回帰直線の傾きが 1 に近く, 決定係数が高い場合, GII-NoV と比較対象ウイルスとの試料間の濃度変動傾向が同様であると判断できる. 対象とした中では, GI-NoV と GIII-FPH は回帰直線の傾きが 0.64 及び 0.87 と比較的 1 に近く, 決定係数もそれぞれ 0.48 及び 0.57 と高かった (それぞれ N=9, N=14). 従って, これらのウイルスは GII-NoV と同様の濃度変動傾向を示すと判断できる. 特に GIII-FPH は指標微生物と位置づけられるものであり, 水中での腸管系ウイルスの動態を推測するための指標として有望であると言える (Hata *et al.*, 2016). 比較的簡易に感染力ベースの定量が行えるのも指標微生物としての GIII-FPH のメリットである (Hata *et al.*, 2016). 今後はさらなる試料収集・分析により, GIII-FPH

表 2-6 各地点での各 RNA ウイルスの検出試料数及び陽性率 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016). n=42.

Place	GI-NoV	GI-NoV	PMMoV
Ⓐ (n = 14)	2 14%	4 29%	14 100%
Ⓑ (n = 14)	7 50%	11 79%	14 100%
Ⓒ (n = 14)	3 21%	9 64%	14 100%
<b>Total (n = 42)</b>	<b>12 29%</b>	<b>24 57%</b>	<b>42 100%</b>

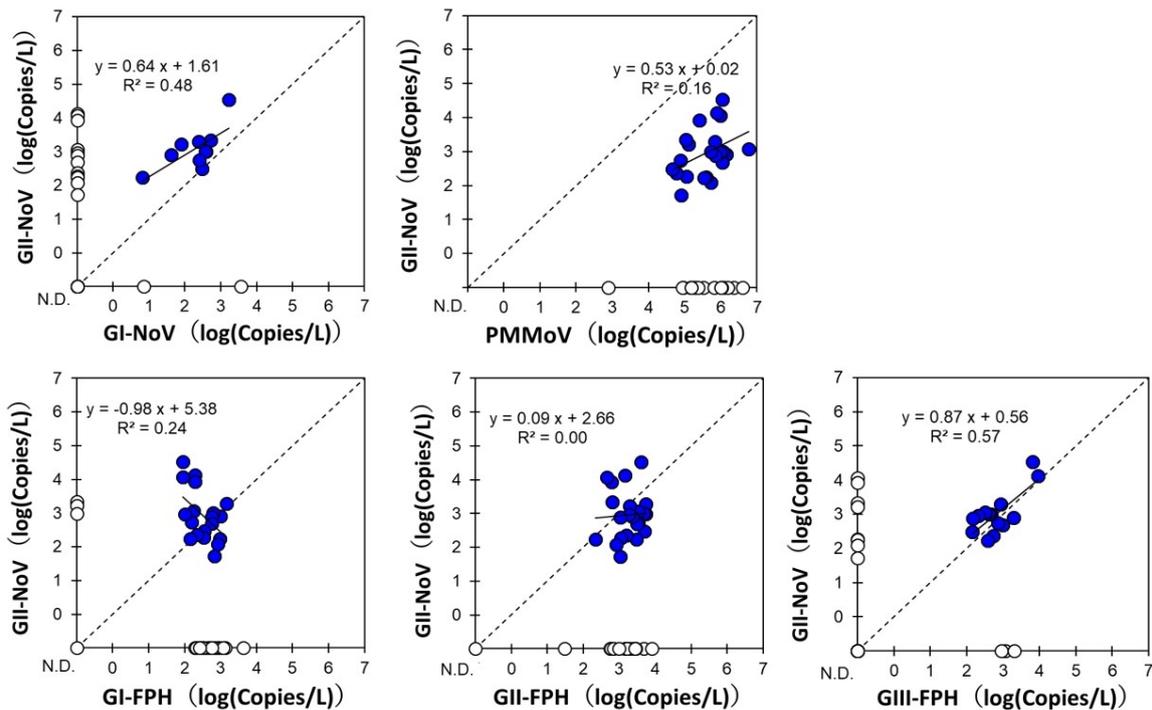


図 2-10 GII-NoV と他のウイルス・FRNAPH との検出濃度比較 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016). 上段は左より GI-NoV・PMMoV, 中段は左より GI, GII-FPH, 下段は GIII-FPH との比較. 不検出 (N.D.) 試料を白抜き表示で左端・下端に示す.

と他の腸管系ウイルスとの動態比較を試みる必要がある. PMMoV は植物ウイルスであるが, ヒト糞便及び水環境中に非常に高濃度で存在することから, 水のウイルス汚染指標として期待されるウイルスである. 本研究においても PMMoV は他のウイルスと比較し, 高い陽性率・検出濃度を示した. しかしながら, その検出傾向と GII-NoV の検出傾向との間に関連性は見られず, 少なくとも本試料群においては, PMMoV は腸管系ウイルスの動態や汚染度推定のための指標として不適であることが示唆された.

### 2.3.3 指標微生物を用いた水質管理

#### 2.3.3.1 指標微生物としての条件

水中には多種多様な病原微生物が存在し, 感染を引き起こしていると考えられている (白坂, 2017). 例えば, WHO は飲料水に関連する重要な水系感染性病原微生物として, 細菌 12 種, ウイルス 8 種, 原虫 7 種を挙げている (WHO, 2011). また, USEPA の Contaminant Candidate List 4 (CCL4) では同様に, 細菌 7 種, ウイルス 4 種, 原虫 1 種を挙げている (USEPA, 2016b). これらの病原微生物をすべて個別に監視するのは現実的でないため, 多くの病原微生物に代表性を持つ指標微生物を監視することで水質管理を行っている. 指標微生物には, 以下に示す条件が求められる (Engelbrecht *et al.*, 1978).

- ① 病原微生物が存在する汚水や環境水中に普遍的に存在する
- ② 存在量が病原微生物と同程度もしくはそれ以上である
- ③ 構造や形態などの生物学的特性が類似している
- ④ 汚水や環境水中で増殖しない
- ⑤ 環境水中での生残性や水処理に対する耐性が高い

- ⑥ 起源が明らかであり，ヒト糞便汚染を示している
- ⑦ 非感染性もしくは病原性が低い
- ⑧ 簡便，迅速かつ低コストでの測定が可能である

条件をすべて満たす指標微生物が存在した場合でも単一指標で病原微生物を網羅的に評価することは困難なため，病原性の細菌，ウイルス，原虫のそれぞれで適切な指標を用いることが理想である（白坂, 2017）。

### 2.3.3.2 *E. coli*, TC を用いた水質管理

前述の条件を踏まえ，WHO は飲料水について，「*E. coli* もしくは糞便性 TC が 100 mL 中から検出されないこと」を基準とすることを推奨しており，各国でこれに準じた基準が定められている。我が国では，水道水質基準として「*E. coli* が 100 mL 中から検出されないこと」，生活環境の保全に関する環境基準として AA 類型で「TC が 50 MPN/100 mL 以下であること」を基準としている。また，水浴場水質判定基準としては，「糞便性 TC が 100 mL 中から 1,000 個を超えるものを不適」としている。

*E. coli*, TC は簡便な検出が可能のため，基準として古くから用いられている（白坂, 2017）。しかし水中での生残性や消毒処理耐性がウイルスや原虫より劣るため，*E. coli* 指標はウイルスや原虫に対しては必ずしも有効ではないことが指摘されている（IAWPRC, 1991）。浅見らは，CSO 影響下にある東京湾沿岸域でのリクレーション利用による水系感染リスク評価に向けて，ウイルスと指標微生物の経時的な傾向の比較に関する知見を得るために，湾内 4 地点で降雨観測後 1, 2, 3, 5, 8, 13 日に採水調査を行った。結果，*E. coli* と PMMoV で濃度低下の傾向に違いが見られ，PMMoV の残留期間が *E. coli* よりも長くなったことから，降雨後のウイルス汚染が細菌汚染よりも長く持続することが示唆された（浅見ら, 2014）。

### 2.3.3.3 ウイルス汚染を想定した指標候補微生物を用いた水質管理

ウイルス汚染に対して有効な指標微生物は未だ見出されていないが，古くからバクテリオファージが代替指標として注目されており（IAWPRC, 1991），環境試料中の体表面吸着ファージや FPH と腸管系ウイルスとの関連性について広く研究されている（Hot *et al.*, 2003; Ogorzaly *et al.*, 2009）。しかし，バクテリオファージはヒト以外の動物糞便からも排出される点や，水環境中で増殖する可能性がある点から，ウイルス汚染指標としての有効性に疑義が持たれている（Muniesa *et al.*, 2004）。実際にオランダ及びアメリカでは，ウイルス汚染指標として腸管系ウイルスを用いた水質管理を行っている。オランダでは腸管系ウイルス，クリプトスポリジウム及びジアルジアによる年間感染リスクを  $10^{-4}$ /person 未満に抑えることが求められており，浄水原水中のエンテロウイルスが測定されている（Smeets *et al.*, 2009）。アメリカでは表層水の浄水処理において，消毒によって 4 log の除去・不活化を達成することを処理基準としており，エンテロウイルス，ロタウイルス及びアデノウイルスが対象となっている（Wong *et al.*, 2012）。このように，近年ではヒトに感染するウイルスそのものを汚染指標として用いることが受け入れられており，様々なウイルスについて指標性が議論されている（Ogorzaly *et al.*, 2009; Rosario *et al.*, 2009; Kitajima *et al.*, 2015）。

## 2.3.4 重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性

### 2.3.4.1 取排水システムからの事実上の間接的な飲用，リクレーション用途の再利用（Asano *et al.*, 2007）

近年，多くの水道管理者は，水道水源として様々な水質の河川水を利用しているが，それらの中には，水源が上流側でかなりの数の下水処理放流に影響されている場合がある（Asano *et al.*, 2007）。例えば，米

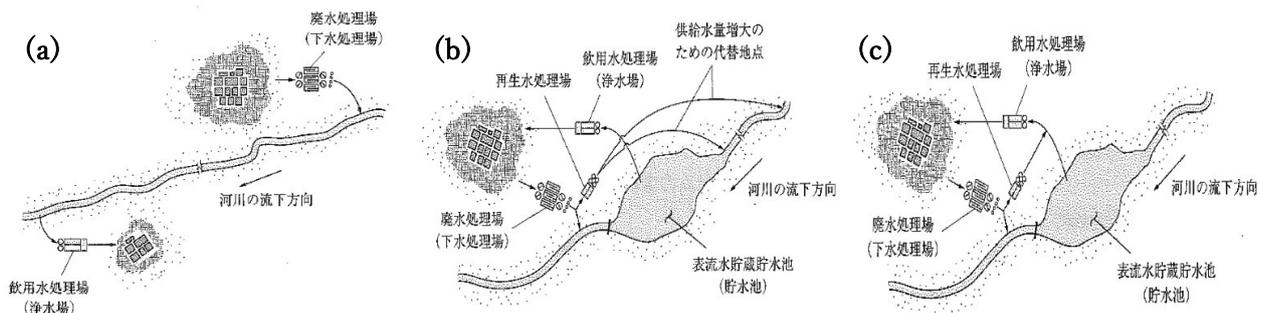


図 2-11 水の再利用計画の概要 (Asano *et al.*, 2007). (a)は事実上の間接的飲用再利用, (b)は計画的な間接的飲用再利用, (c)は直接的飲用再利用を示す.

国では、24 箇所以上の主要な浄水場が、低水量時に下水処理放流量が 50%以上となる河川から水道原水を取水している (Swayne *et al.*, 1980). この場合の下水処理放流水には、CSO 及び SSO が含まれている (Swayne *et al.*, 1980). 汚染物質の希釈と自然低減は河川内で生じる (Gurrand Reinhard, 2006) が、下水処理放流水が混入する水源での飲用水利用を、非計画的あるいは事実上の間接的飲用水再利用 (*de facto potable reuse*) と称している (Asano *et al.*, 2007). 図 2-11 に、事実上の間接的飲用再利用を含め 3 種類ある、下水処理放流水の飲用再利用の概要 (Asano *et al.*, 2007) を示す. California 州南部の場合、Colorado 川水系は San Diego 市、Sacramento 川水系は Los Angeles 市の水道水源であるが、これらの水道水源はたくさんの下水処理放流の影響を受けている (Asano *et al.*, 2007).

現在の日本の流域においても、米国と似たような状況となっている。例えば、琵琶湖・淀川流域においては、流域の水は、まず上流域の琵琶湖などで利用され、次に瀬田川・宇治川や琵琶湖疏水を通して京都を中心とする中流域で利用され、さらに下流部の大阪平野で利用されるなど、何度も繰り返して利用されている。住友らによると、琵琶湖・淀川流域全体の約半数の人が、5 回繰り返し利用された水を含む水

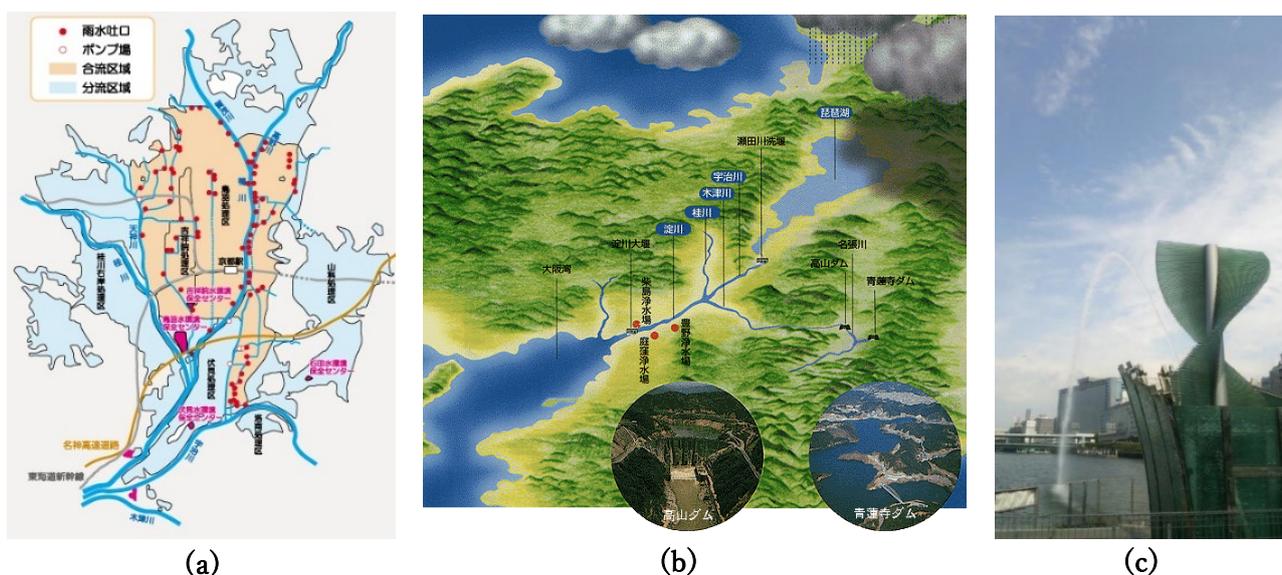


図 2-12 日本における取排水システムからの事実上の間接的な飲用, リクレーション用途の再利用 (京都市, 2018; 大阪市, 2018). (a) は、京都市の合流式下水道における雨水吐分布. (b) は、大阪市の水道における浄水施設の位置で、淀川が水道水源である. (c) は淀川支流の大川における表流水を用いた噴水.

道水を供給されていると推計された（住友ら,1998）. 一例として、琵琶湖・淀川中流域の京都市には、図 2-12 (a) のように合流式下水道における雨水吐室からの吐口（雨水吐）が 88 箇所、ポンプ場の吐口が 5 箇所、さらに下水処理場の吐口（放流口）が 4 箇所存在しており、そのうち雨水吐については、その大部分が鴨川に CSO を放流している（京都市,2018）. 一方で、図 2-12 (b) のように放流先の下流に位置する淀川は、大阪市をはじめ近畿圏 1,700 万人の水道水源として、人々の生活や都市活動を支えており（大阪市,2018）、さらにリクレーションの場としても機能している. 例えば、平成 21 年に官民協働のプロジェクトにより開催された水都大阪 2009 が挙げられる. その象徴として、淀川から分岐する大川の中之島東端部において、30 分間隔で河川水を噴出する剣先噴水が、安藤忠雄氏の構想により設置され現在も稼働している（図 2-12 (c)）. 噴水の周辺では大量の水飛沫が舞い、にぎわいを創出しているが、あらかじめ処理された河川水が噴出されているのかは不明であるため、場合によっては糞便汚染された水と接触する可能性が考えられる. 一方、最上流の琵琶湖南湖では、開設されていた 3 箇所の水浴場が平成 12 年を最後に、全て休止状態である（大津市,2010）. 理由として、道路や鉄道の整備によってより自然の残る湖北部に訪れることが容易になった（広谷,2012）ことは無視できないが、生活環境の保全に関する環境基準のうち水浴や水道水の浄水操作（沈殿ろ過等）を想定している用途の湖沼 A 類型では、糞便性 TC 数が基準を達成しているものの COD が基準未達成と判定されている（環境省,2019; 滋賀県,2020）ことも考えられる.

### 2.3.4.2 雨天時下水の実態調査事例

国土交通省の試算によると、1 年間に合流式下水道へ流入する BOD 流入負荷量は全国で約 80.9 万トン、下水道施設から公共用水域に排出される BOD 流出負荷量は約 9.5 万トンで、年間を通した除去率は約 88%と推計されている（国土交通省,2002）. しかし雨天時に限ると BOD 流入負荷量は約 14.5 万トン、BOD 流出負荷量は約 7.0 万トンであり、除去率は約 55%まで低下する（国土交通省,2002）. そのため雨天時の BOD 流入負荷量は約 14.5 万トンで晴天時（約 66.4 万トン）の 4 分の 1 程度であるのに対し、雨天時 BOD 流出負荷量（約 7.0 万トン）は晴天時（約 2.5 万トン）の約 3 倍と、極めて大きくなっている.

晴天時・雨天時の処理水別の BOD 放流負荷量の割合を図 2-13 に、放流先の水利用状況を図 2-14 に示す. 図 2-13 の年間流出負荷量では、雨天時放流水に由来するものが全体の約 4 分の 3 を占めており、その 57%が雨水吐からの未処理放流水によるものである. また、下水処理場からの簡易処理放流水の流出

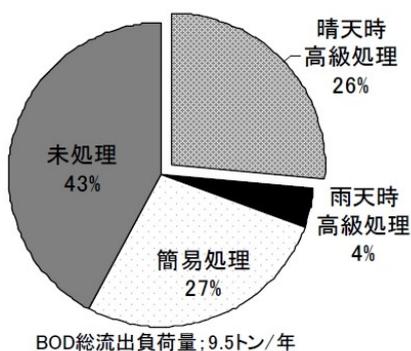


図 2-13 処理水別の放流負荷量割合 (国土交通省, 2002).

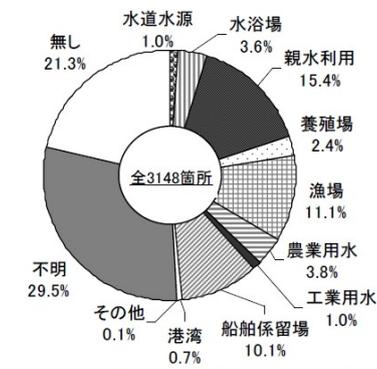


図 2-14 放流先の水利用状況 (国土交通省, 2002).

出負荷量の割合も 37%と高く、雨天時の処理場内対策も合流改善の大きな課題の一つである。2.2.2 で述べたように、雨天時下水の流出する吐口は平成 14 年度では全国に約 3,200 箇所存在する(国土交通省,2002)が、図 2-14 の国土交通省の行ったアンケート調査によると、その放流先が水道水源としての水利用や、親水利用されている水域も多い(国土交通省,2002)。また、約 30%の吐口では放流先の状況が把握されていない(国土交通省,2002)。吐口からの未処理放流は、約 7 割のポンプ場で年間 30 日以上発生しており、下水処理場からの簡易処理放流も 9 割以上で年間 30 日以上発生している(国土交通省,2002)。

合流改善対策検討委員会の設立に先立ち、平成 13 年度に、国土交通省を中心に全国 13 都市において雨天時下水の監視調査が行われた(国土交通省,2002)。この調査では、調査対象水域として水利用の観点から重要度の高い水域が選定され、雨天時下水の吐口及び吐口の放流先について、夏期から秋期にかけて晴天時、雨天時の各 2 回ずつ実施された。この調査結果は、合流改善計画を策定するにあたり貴重な知見となった一方で、流量観測が行われず定量評価ができない、ピンポイントで採水されているため日特性や採水時間帯等の影響が分からない等の課題が残された(岡本,2002)。一方、丹野らは、長岡市の雨水吐において 2004 年の 6 月から 2005 年 1 月にかけて CSO の長期監視を行った。吐口付近に雨量計・流量計を設置し雨量・流量を常時連続観測することに加え、期間内の全ての越流水を観測するため越流開始と同時に採水を開始する採水システムを適用し、SS 及び BOD について、様々な降雨パターンにおける水質挙動を観測した。また、調査結果から汚濁負荷の定量評価を行い、CSO 発生時の汚濁負荷量のうち SS の 70%以上、BOD の 50%以上が堆積物由来であると推定した(丹野ら,2005)。

調査の評価項目については、SS・BOD 及び COD を対象とした調査事例が多いが、海域等においては糞便性 TC 数の評価も行われている(大津市,2006; 牛木ら,2005)。牛木らは合流式下水道のポンプ場をもつ横浜市の海水浴場において、CSO 発生時の COD 及び糞便性 TC 数の水質評価を行い、水浴場の判定基準を満足していることを確認した(牛木ら,2005)。また、野沢らは重金属に着目し、実測とシミュレーションによる定量評価を行った(野沢ら,2007)。さらに、夾雑物についても、吐口において目視や写真等で確認した事例(高畑,2002; 中田武志,2005; 沖ら,2006)、夾雑物除去スクリーンで捕捉回収し定量評価を試みた事例(飯田ら,2005)などが報告されている。生態影響については、田中修司らは、雨水吐のある河川で吐口前後の水質及び生物相を調査することにより、水生生物に対する CSO 影響を調べた(田中修司ら,2003)。

また、降雨の有無で、下水処理場及び雨水吐からの放流水や放流先の河川水に対し、BOD 等の有機物、TC 及び NoV の衛生微生物を調査した知見(松田,2002; 山本・中村,2005; 内田,2008; 上門,2009; 安藤ら,2010; 樋上,2012; 諏訪ら,2016)を、表 2-7 にまとめる。非降雨時及び降雨時において、下水処理放流水中の BOD と TC の両方を調べた下水処理場①における実態調査(内田,2008; 上門,2009; 樋上,2012)から、下水処理水への雨天時下水混入により BOD 濃度と TC 濃度がともに増加していることが明らかとなった。また、非降雨時及び降雨時において、雨水吐からの放流先河川水中の BOD と TC の両方を調べた雨水吐②の受水域における実態調査から、河川水への雨天時下水混入により BOD 濃度と TC 濃度がともに増加していることが示唆された。衛生微生物と有機物に直接的な関係は不明であるが、下水に由来する衛生微生物と有機物の処理レベルの差は、それぞれ、特性を持っているかもしれない。仮に特性を持つ場合、これらの実態調査は、下水処理場及び雨水吐から放流される雨天時下水や放流先の河川水に対し、水中の有機物を適切に監視することにより、微生物汚染の状況も、ある程度までは把握できる可能性があることを示している。

表 2-7 降雨の有無で下水道からの放流水や放流先河川水に対し有機物や衛生微生物を調査した知見（松田, 2002; 山本・中村, 2005; 内田, 2008; 上門, 2009; 安藤ら, 2010; 樋上, 2012; 諏訪ら, 2016）.

採水地点	水質項目	下水処理場①		下水処理場②		下水処理場③			下水処理場④	雨水吐①		雨水吐②	
		非降雨	降雨	非降雨	降雨	非降雨	降雨	処理対策 (3W法)	処理対策 (3W法)	非降雨	降雨	非降雨	降雨
放流口	BOD (mg/L)	2	5~35 (推定値)	10~16 (COD)	-	3	23~51 (推定値)	4~12	-		-		20~200
	TC (個/mL)	10 <sup>0</sup> ~10 <sup>1</sup> ※1 10 <sup>0</sup> ~10 <sup>1</sup> ※2	10 <sup>1</sup> ~10 <sup>2</sup> ※2	-	-	-	-	-	-		-		10 <sup>4</sup> ~10 <sup>5</sup>
	NoV (Copies/L)	-	-	-	-	-	-	-	10 <sup>7</sup>		10 <sup>7</sup> ~10 <sup>9</sup>		-
放流先	BOD (mg/L)	-	-	10~11 (COD)	15~35 (COD)	-	-	-	-	-	-	4	7~15
	TC (個/mL)	N.D ※2	10 <sup>0</sup> ~10 <sup>1</sup> ※2	-	10 <sup>1</sup> ~10 <sup>3</sup>	-	-	-	-	-	-	10 <sup>2</sup>	10 <sup>4</sup> ~10 <sup>5</sup>
	NoV (Copies/L)	-	-	-	-	-	-	-	<LOD~10 <sup>4</sup>	10 <sup>5</sup> ~10 <sup>6</sup>	10 <sup>6</sup> ~10 <sup>7</sup>	-	-
参考文献		内田, 2008 ※1 上門, 2009 ※2 樋上, 2012		安藤ら, 2010		山本・中村, 2005			諏訪ら, 2016			松田, 2002	

以上まとめた調査の問題点として、これまで述べた水質項目は、採水・分析が必要であるため、いずれも迅速に雨天時下水混入を評価できない。その一方で、降雨時に簡易処理放流等が発生した時に放流先河川で簡易処理放流水混入を迅速に検知する指標として、濁度が使用できるかもしれない。岡山市における合流式下水道の流入下水に対しては、手分析の BOD と濁度センサによる濁度の測定値は相関があるという事例が報告されている（大月ら, 2016）。また、雨水吐での越流水に対して濁度を連続測定し、BOD に換算して BOD 濃度 0~400 mg/L（目標値）の適用範囲で雨天時下水混入を迅速に監視した事例（豊岡ら, 2010）もある。しかし、受水域側では下水道以外の汚濁負荷源が存在し得るため、多様な水が混合した河川水に対し、雨天時下水の混入を濁度だけで監視ができるとは考えづらい。また、水中の塩化物イオンの存在量を示す電気伝導度（Electrical Conductivity; EC）は、汚水で 500~800  $\mu$  S/cm 程度、雨水で 100  $\mu$  S/cm 程度以下、地下水で 200  $\mu$  S/cm 程度以下であるため、分流汚水への雨天時浸入水・常時浸入水の影響を監視することに適している（日水コン, 2018）。しかし、EC は河川水で 20~300  $\mu$  S/cm 程度（日本応用地質学会, 2019）と幅広く、さらに受水域側では特に冬季に路面の凍結防止剤由来の塩化物イオンが存在し得る（木村ら, 2007）ため、雨天時下水の混入を EC だけで監視ができるとは考えづらい。

#### 2.3.4.3 雨天時下水混入の迅速検知に関する考察

CSO・SSO が通常の生物処理を経た下水処理放流水より大きな微生物負荷源であり、かつ放流先が重要影響水域の場合、公衆衛生上の懸念があることが示された。すなわち、降雨による水域の微生物汚染が、事実上の間接的飲用再利用やリクレーション利用により、利用者の水系感染のリスクが高まる。このため、微生物汚染の代替指標が検討されているが、指標微生物は水中の病原微生物を網羅的に評価することは困難である。下水処理放流水や放流先河川水に対し、有機物や衛生微生物を降雨の有無で調査した知見をまとめることにより、下水処理場及び雨水吐から放流される雨天時下水や放流先の河川水に対し、水中の有機物を監視することにより、微生物汚染の状況も、ある程度までは把握できる可能性があることを前目 2.3.4.2 で示した。これらの調査の、SS, BOD 及び COD では、いずれも迅速に雨天時下水混入を評価できない。以上により、重要影響水域において人との接触が懸念される雨天時下水の混入を迅速に検出するための知見が不足している。雨水吐での越流水に対して濁度を連続測定し、BOD に換算し

て雨天時下水混入を迅速に監視できるが、受水域側においては下水道以外の汚濁負荷源が存在し得るため、多様な水の混合による環境水に対し、雨天時下水混入を濁度により監視ができないと考えられる。

そこで、溶存態有機物 (dissolved organic matter; DOM) が、衛生微生物の簡易指標となり得るという仮説を立てる。これまで多くの研究者が検討してきた溶存態有機炭素 (dissolved organic carbon; DOC) は、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている (Rock *et al.*, 2015; Rock and Jang, 2018)。次の 2.4.1 において、蛍光分析により検出できる蛍光特性を有する溶存態有機物 (fluorescent DOM; FDOM) が、汚濁負荷源側の下水道はもちろん、受水域側においても雨天時下水混入を監視するための簡易指標候補となり得ることを示す。

## 2.4 雨天時下水混入を迅速かつ連続的に検知する簡易指標候補の蛍光性溶存態有機物 (FDOM)

### 2.4.1 溶存態有機物 (DOM) の分析と FDOM (清水ら, 2015)

DOM は地球上の水系に広く遍在し、自然環境において多機能な役割を果たしている (Frimmel F. H., 1996)。例えば河川・沿岸河川の生態系においては、光の透過性を調節し (Frenette *et al.*, 2003; Hayakawa and Sugiyama, 2008)、有機酸緩衝能を介して pH を維持し (Ceppi *et al.*, 1999)、微量金属錯体の基質として作用し (Yamashita and Jaffé, 2008)、微生物ループを促進する (Hood *et al.*, 2009) など、重要な役割を果たす。環境水及び下水処理放流水に含まれる DOM の分子量は広い範囲に分布しており、元の物質の多種多様性とその分解過程の違いにより、結果として得られる物質は複雑で不均質な混合物であり、その物理化学的特性や生態学的及び地球化学的な役割は未だ十分に理解されていない (Perdue and Gjessing, 1990)。DOM の約 25 % は特徴付けられており、これはアミノ酸、核酸、炭水化物、炭化水素、脂肪酸及びフェノール化合物を含む (Thomas, 1997)。その一方で、残りの DOM は特徴付けられていないままである。例えば、水系の DOM に占める、十分に特徴付けられていない腐植質の割合の推定値は、50~70 % の範囲にあり (Thurman, 1985)、特に海洋における DOM の 60~80 % を占める主要形態は分子量 1,000 以下の低分子である (Ogawa and Ogura, 1992; Ogawa and Tanoue, 2003) ことが明らかとなっている。DOM は、質量で平均 50 % の炭素を含むといわれており (Gentry-Shields *et al.*, 2013)、海中の DOM は、大気中の二酸化炭素に含まれる炭素とほぼ同じ量の炭素を保持している (Hedges, 1992)。DOM の濃度は一般に DOC を用いて推定される。DOC は、DOM を含む有機性分子の総濃度を推定するのに有用なパラメータであるが、DOM の化学組成に関する情報 (官能基の構造や存在量等) を提供できない (Gentry-Shields *et al.*, 2013; 長岡, 2016)。また、DOC は迅速かつ連続的な測定が困難である (長岡, 2016)。

このような DOM の中でも、タンパク質 (芳香族アミノ酸) や腐植質 (フミン酸・フルボ酸) などの一部の成分は、蛍光特性を有していることが知られており、紫外外部吸光度よりも一般に  $10^3$  倍以上高感度で、DOC と比べ複数の成分群を迅速に検出・同定できる。これは、単結合と二重結合が交互に並ぶ共役二重結合を担っている  $\pi$  電子が、電磁波からエネルギーを受け取ってエネルギー準位の高い不安定の反結合性軌道の方 (励起状態) に遷移した後、エネルギー準位の低い安定の結合性軌道の方 (基底状態) に戻る際に電磁波を放出するためであり、色素が紫外線を吸収して可視光線を放出する場合、この可視光線は蛍光と呼ばれる (村中, 2017)。このことから、DOM の特性解析手法として、蛍光分析が多用されるようになってきた (Coble, 1996; Ahmad and Reynolds, 1999; Baker and Spencer, 2004; Fellman *et al.*, 2010; 堀込, 2018)。例えば、鈴木らは、琵琶湖を水源とする淀川水系の、瀬田川から淀川河口にかけての 8 地点において、河川水中の DOC 中に蛍光特性を有した DOC が占める割合について検討した。その結果、冬季で

25～76 %であるのに対し、春季で11～38 %と非常に低い値であり、特に春季の上流域では13 %以下であった。これにより、春季試料中のDOCが、琵琶湖で発生した植物プランクトンの増殖などの生物活動に由来するものと仮定すると、生物由来の比較的新しく河川水に供給された有機物には、蛍光性を示さない成分が多い可能性があると考えられた(鈴木ら,1998)。また、清水らは、DOMの分類と膜ファウリング原因物質等を調べるために、下水二次処理水中のFDOMの構成成分に関する文献考察をおこなった(2.4.3.1 参照)。これにより、下水二次処理水(高級処理水)にはフミン酸様物質、フルボ酸様物質の腐植質様成分(フミン様成分)、トリプトファン様物質、チロシン様物質のタンパク質様成分、及びSMP(Soluble Microbial Products)様物質が含まれていると推定した(清水ら,2015)。さらに、海賀らは国内8箇所の浄水場における浄水処理工程水において、フルボ酸様物質を蛍光強度値として測定し、DOC濃度値と比較したところ、ほとんどの処理工程において原水からの蛍光強度の減少率がDOC濃度より大きくなり、配水中の残留塩素消費に係わる有機物変化においても蛍光強度はDOC濃度と比較して感度良く検出できることが示された(海賀ら,2019)。

以上により、DOCより連続的で、迅速に、複数のFDOM成分を検出できる蛍光分析が、雨天時下水混入の監視ツールとしての可能性を持つかもしれない。すなわち、蛍光分析により検出できるFDOMが、高濃度の衛生微生物が存在するCSO・SSOに対し、高級処理水及び河川水への混入を迅速かつ連続的に検知する簡便な指標となる可能性が考えられる。

#### 2.4.2 蛍光分析の原理(堀込,2018)

2.4.1で述べた通り、基底状態の分子は励起光を吸収して励起状態へ遷移する。吸収した励起エネルギーの一部は振動エネルギーなどにより失活し、振動準位の低い位置に無ふく射遷移した後、そこから基底状態に戻るときに発せられる光が、蛍光である。蛍光の寿命は $10^{-8} \sim 10^{-9}$  sのものが多い。物質が光を吸収して再び光を発するまでの過程(日本分光,2013)を模したものを図2-15に示す。物質に吸収された光の一部は、振動やその他のエネルギーとして失われるため、物質から発せられる蛍光の波長(Emission wavelength;  $E_m$ )は、励起光の波長(Excitation wavelength;  $E_x$ )よりも長くなる(Stokesの法則)。

図2-16に分光蛍光光度計の構成例(堀込,2018)を示す。光源を出た光は励起波長選択部で単色光となり、試料に照射される。試料から放射された蛍光は、蛍光波長選択部で目的の波長の光だけが検出器に入る。ここで電気信号に変換され、蛍光強度に応じた信号がコンピュータに表示される。光源としては、中圧水銀灯やキセノンランプなど、輝度の高いものが用いられる。スペクトル測定用には、連続光源であるキセノンランプが適しており、本研究においてもキセノンランプを採用している。 $E_x \cdot E_m$ の選択部には、

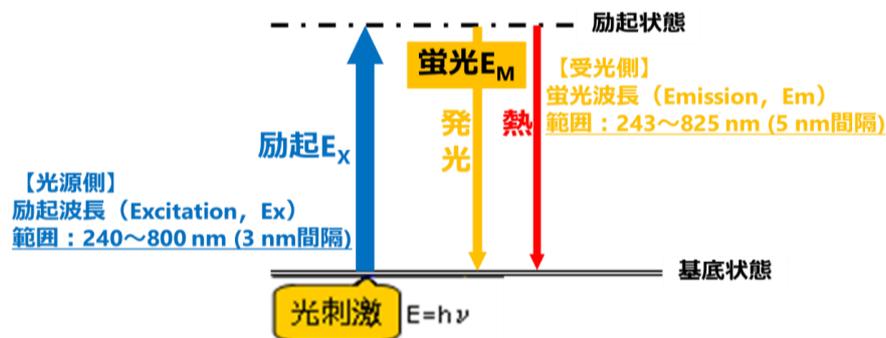


図2-15 蛍光分析の原理(日本分光,2013)。本研究での励起波長、蛍光波長の範囲を示す

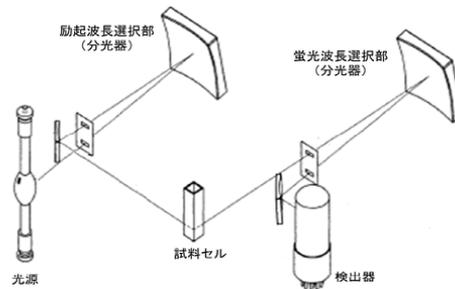


図 2-16 分光蛍光光度計の構成例 (堀込, 2018).

フィルタを用いるものとモノクロメーターを用いるものがあり、本研究ではいずれもモノクロメーターを用いている。試料を入れるセルは一般に石英セルを使用する。

### 2.4.3 蛍光分析を活用した EEM-PARAFAC 法による FDOM 存在量の推定

#### 2.4.3.1 EEM 分析の概要 (清水ら, 2015)

最近では, Ex と Em を一定の波長間隔で連続的にスキャンする 3次元励起・蛍光マトリクス (Excitation-Emission Matrix; EEM) 法の適用例が増加している。これは濃縮や精製などの煩雑な前処理を必要とせず、ろ過のみで DOM の構成成分や構造特性の違いを反映した EEM スペクトルが得られるためである。EEM 上には試料中の FDOM 成分により, Ex・Em の位置に蛍光強度のピークが現われる。通常, 蛍光ピーク位置の違いを利用して試料中の蛍光成分の同定・分類を行い, 相対蛍光強度で FDOM 存在量が推定される。蛍光強度は吸光度と違い, その絶対値に物理化学的な意味はなく, 異なる蛍光分析の条件や装置により得られる蛍光強度を比較する必要がある。よって, 蛍光強度を標準化するために蛍光量子収率の明らかな硫酸キニーネやローダミン B などの蛍光強度との相対値 (Quinine Sulfate Units; QSU) や, 水のラマン散乱光が水の物理的な特性を反映していることに基づく超純水のラマン散乱光の蛍光強度との相対値 (Raman units; RU) (Lawaetz and Stedmon, 2009; Stedmon *et al.*, 2003) で表わされることが多い。Chen *et al.* により環境水中 FDOM の EEM スペクトルで検出したピークをピークピッキングにより帰属させた事例 (Chen *et al.*, 2003) を参考に, 清水らが高級処理水の EEM スペクトルを帰属した結果 (清水ら, 2015) を図 2-17 に示す (2.4.1 で詳述)。

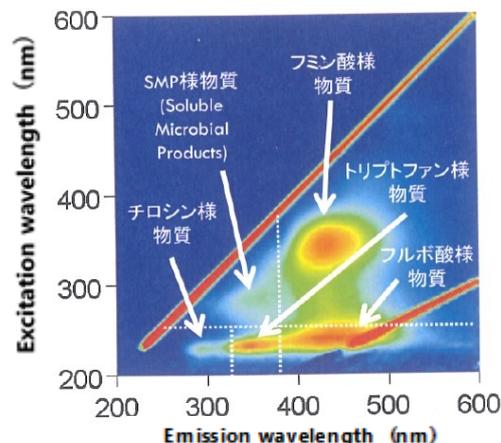


図 2-17 ピークピッキングによる高級処理水の EEM スペクトルの帰属 (清水ら, 2015)。EEM スペクトルとは, 励起スペクトルと蛍光スペクトルと蛍光強度の積。段彩法表示は, Ex・Em の位置での蛍光強度。

### 2.4.3.2 PARAFAC 解析の概要 (清水ら, 2015)

対象水の EEM スペクトルに現れる蛍光強度のピークは、多様な FDOM による蛍光強度ピークが重なっている。さらに、FDOM により発する蛍光強度も異なるため、EEM に現れる蛍光強度のピークをピークピッキングにより単純に比較するだけでは、ピーク間の定量的な評価ができないとされている。そこで、EEM スペクトルの詳細な解析が必要となる。

EEM スペクトルの解析手法には、多変量解析の一つである平行因子 (parallel factor analysis; PARAFAC) 解析 (Anderson and Bro, 2003), 主成分分析 (principal component analysis; PCA) (Wold *et al.*, 1987), Chen *et al.*の方法 (Chen *et al.*, 2003) 等がある。これらの中で、PCA はデータやモデルの数学的に計算される主成分でしか表現されない。そのため、情報に埋もれている現象や化学的な特性が少ししか表現できないとされている (Stedmon and Bro, 2008)。一方 Chen *et al.*の方法は、EEM スペクトルを 5 つの領域に分けて、その領域の蛍光強度を積分し体積を求めるというものである。この方法では、ピークの比をとる方法などが EEM のデータの一部しか用いておらず、定量的に EEM を解析する方法としては不十分であるが、検出される蛍光強度を積分することで情報を捨てずに解析できる。しかし、5 つの領域分割は膨大な文献調査に基づいているものの、科学的に十分な線引きかどうかは検討の余地があると言わざるを得ない。そこで、近年注目を集めているのが PARAFAC 解析である (Ishii and Boyer, 2012; Yang *et al.*, 2015)。PARAFAC 解析は、EEM スペクトルの有する情報を捨てずに人為的に成分を分離するのではなく数学的手法で成分を決め、それぞれの成分の蛍光スペクトルと存在量を表すことができるという特長を持つ。PARAFAC 解析において、図 2-18 (清水ら, 2015) に示すように、EEM スペクトルは  $I \times J \times K$  の 3 軸の中に配列される (Trilinear モデル)。  $I$  は試料、  $J$  は蛍光波長、  $K$  は励起波長を表している。 PARAFAC 解析における Trilinear モデルは、一般に次式で記述される。

$$X_{i,j,k} = \sum_f^F a_{i,f} b_{j,f} c_{k,f} + e_{i,j,k} \quad (i = 1, \dots, I; j = 1, \dots, J; k = 1, \dots, K) \quad (2-1)$$

式(2-1)において、  $X_{i,j,k}$  は  $j$  番目の蛍光波長、  $k$  番目の励起波長における  $i$  番目の試料の蛍光強度スコア値の和 (成分 1, 2, ...,  $F$ ) を表している。  $a_{i,f}$  の値は  $i$  番目のサンプルにおける成分  $f$  の負荷量 (loading) で、相対的な存在量と解釈できる。  $b_{j,f}$  の値は  $j$  番目の蛍光波長における成分  $f$  の負荷量 (loading)、  $c_{k,f}$  の値は  $k$  番目の励起波長における成分  $f$  の負荷量 (loading) である。残差 (residual) である  $e_{i,j,k}$  はモデルに含まれなかった部分を表している。Core consistency はモデルが適合しているかを表す指標であり、適

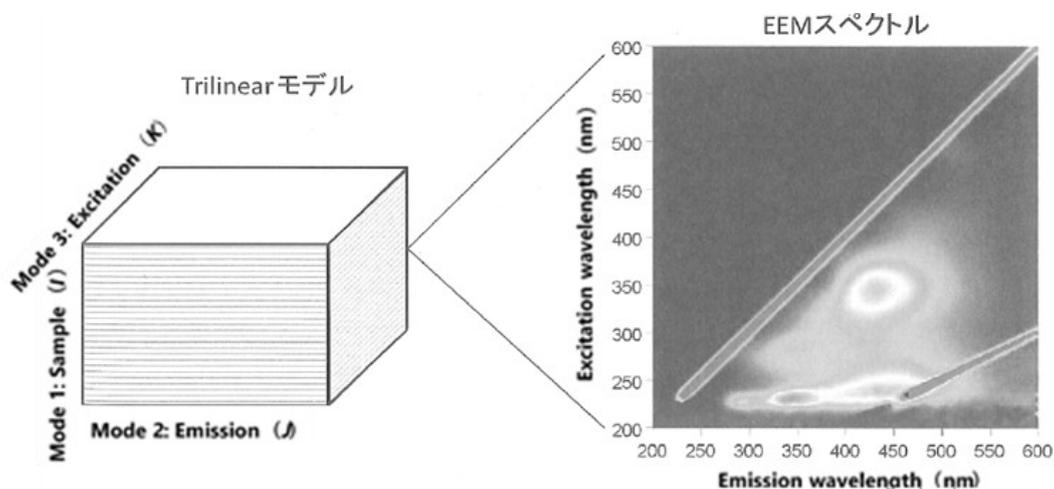


図 2-18 PARAFAC 解析における Trilinear モデルの概念 (清水ら, 2015).

切な成分数を表しているモデルでは高い値が得られる。core consistency の値が 100% に近くなければ、モデルがデータを適切に表現しているとは言えず、より少ない成分数を選択する必要があることが示唆される (Anderson and Bro, 2003)。I 軸×J 軸×K 軸の 3 次元データ配列は、励起スペクトルと蛍光スペクトルと蛍光強度の積、すなわち EEM スペクトルを総サンプル数で総和したものとして表される (白川, 2014)。しかし、一般に core consistency は成分数が増えると値が小さくなる (Sanchez *et al.*, 2013)。また 5 成分以上ではモデルが実際の化学的現象を表していても、低い値や負の値を示す (Murphy *et al.*, 2013)。

#### 2.4.3.3 EEM 分析の適用

Baker は、下水処理放流水が河川水の蛍光特性に及ぼす影響について検討するため、イングランド北東部の下水処理場の放流水と上流・下流地点における河川水を対象に、7-14 日間隔で 3 ヶ月間の継続的な調査を行い、FDOM に対し EEM 分析を適用した。その結果、下水処理放流水と下流地点河川水が統計的に同様の蛍光特性を示した。また、フルボ様成分及びトリプトファン様成分の蛍光強度は、t 検定により下流が上流よりも 99 % 有意に高い結果となった。これにより、EEM 分析は河川システムに対する下水処理場のオンライン監視の可能性を有することが示唆された (Baker, 2001)。Carstea *et al.* は、下水処理放流水が河川水の蛍光特性に及ぼす影響について検討するため、イングランド中部の河川水を対象に、3 分間隔で約 30 mL/分の流速で採水する連続 11 日間の継続的な調査を行い、2,597 の時系列試料を対象に EEM 分析を適用した。その結果、フミン様成分が、タンパク質様成分と比較して高い強度を有することを示した。また、昼間に測定されたサンプルにおいて、より変動性があり、下水処理放流量の変動によるものと考えられる経時的な汚染パルスが記録された。これにより、30 分未満の高い頻度での EEM 分析による連続監視が、FDOM の変動性評価及び CSO・SSO のような特定の汚染物質の迅速な検出に好ましいことが示唆された (Carstea *et al.*, 2010)。

日本では、小松らは、霞ヶ浦湖水、河川水、ならびに流入する下水処理放流水、し尿処理水及び生活雑排水を対象に、FDOM の特性評価を行うために EEM 分析を適用した。その結果、下水処理放流水、し尿処理水及び生活雑排水のそれぞれで、検出される蛍光ピークの種類に違いがみられた。また、湖水・河川水ではすべての試料にフミン様物質とされるピーク (Ex: 345-350 nm, Em: 430-435 nm) が確認されたが、樹脂分画によると 3~5 割程度が非フミン画分に含まれていた。このことから、フミン様物質の監視を行う上で、有用なツールになり得るとされている EEM 上の当該ピークについて、真にフミン様成分を反映しているのか疑義が持たれている (小松ら, 2008)。また、野口らは、下流域において水道水源等に利用されている、木津川上流域にある名張川を対象として、名張川に流入するコミュニティープラントの処理水の FDOM を推定するために、EEM 分析を適用した。その結果、名張川に流入する FDOM はフミン様成分であることが推定された。このことから、下流域を含めた全体の FDOM の動態を調査することが必要であると考察した (野口ら, 2018)。なお、以上に挙げた研究事例では、Excel マクロなどを用いた EEM 上のピークピッキングでの EEM スペクトルの帰属により、成分の推定を行っている。

#### 2.4.3.4 EEM-PARAFAC 法の適用

Fellman *et al.* は、アラスカ州における流域での DOC の年間排出にかかる予算算定の際に重要である、暴風雨中の FDOM の流出・輸送についての把握を試みた。アラスカ南東部における、陸域を流域に持つ河川と、湿地帯を流域に持つ河川の水試料に対して、暴風雨時の FDOM の規模と化学的性質の変化を調

べるため、EEM-PARAFAC 法を適用した。その結果、陸域を流域に持つ河川では、暴風雨中に DOC 濃度が増加するにつれてタンパク質様成分が減少し、フミン様成分が増加した。その一方、湿地帯を流域に持つ河川では、タンパク質様物質は増加し、フミン様成分はわずかに減少した。すなわち、陸域及び湿地帯の流域では FDOM の成分の構成比率が異なることが示唆された。これにより、EEM-PARAFAC 法は、暴風雨時における環境水中の FDOM の成分の構成を解明するための有効なツールであることを明らかにした (Fellman *et al.*, 2009)。Cohen *et al.* は、下水再利用を最適化するために重要な、様々な下水処理段階の処理水中に存在する FDOM の特徴付けのため、イスラエルの 4 つの下水処理場から 20 ヶ月間採取した水試料に対して、EEM-PARAFAC 法を適用した。その結果、生物学的処理はタンパク質様成分を強く減少させ、処理水中のタンパク質様成分よりもフミン様成分の全体割合を増加させた。また、3 種のフミン様成分のうち 1 つのピーク (Ex: <240, 305 nm, Em: 422 nm) のものも、生物学的処理により減少した。さらに、タンパク質様成分と全炭素濃度の間に強い正の相関がみられた。これにより、タンパク質様成分の蛍光は、生物学的処理能力の指標として使用できることが示唆された (Cohen *et al.*, 2014)。よって、FDOM のうちタンパク質様成分は高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理水混入を迅速に検知できる指標となる可能性を持つ。Gentry-Shields *et al.* は、2010 年 4 月から 2011 年 3 月の 1 年間の毎月 2 回、米国ノースカロライナ州にあるジョーダン湖の集水域に位置する三角州の支流 15 地点で採水された環境水に対して、水試料中の定量 PCR (qPCR) の阻害と FDOM のフミン様物質及びフルボ様物質との関係を、EEM-PARAFAC 法により調べた。その結果、qPCR 阻害は地上由来のフミン様物質や微生物由来のフルボ様物質に相関することが明らかとなった。また、qPCR 阻害は土地利用または水質パラメータと相関しておらず、先行する降雨及び季節性に関連することが示唆された (Gentry-Shields *et al.*, 2013)。

日本では、末永らは、日本海側の中規模海跡湖である河北潟の FDOM の起源を推定し、河北潟に流入する代表河川の FDOM の動態を明らかにするために、EEM-PARAFAC 法を適用した。その結果、河川上流部から FDOM の増加が認められ、上流部に点在するため池及び水田からの流出が起源と推定された (末永ら, 2017)。また、池田らは、環境基準点を含む埼玉県内の 11 河川で月 1 回採水を行い、負荷源として生下水・下水処理場放流水・生活雑排水も採取した試料をもとに、EEM-PARAFAC 法を適用した。その結果、まずタンパク質様成分のピーク領域からトリプトファン様物質 (FDOM 成分 T) とチロシン様物質 (FDOM 成分 B) が分離され (図 2-14 参照)、各負荷源中の B/T 強度比は生下水と生活雑排水で 1.13 だが、下水処理放流水では 0.99 と変化した。次に下水処理放流水に対する河川への負荷の最も良い指標としてトリプトファン様物質が示唆された。最後に、未処理の生活雑排水に対する河川への負荷の最も良い指標としてチロシン様物質が示唆された (池田ら, 2019)。また、小松らは下水処理放流水中の図 2-17 (清水ら, 2015) に示されていない特異的な FDOM 成分として、既報 (Komatsu *et al.*, 2019) より生活雑排水起源である可能性が示唆されている Ex: 491 nm, Em: 515 nm 付近にピークを持つ下水由来成分 (Cory and Kaplan, 2012) に着目し、河川水中の下水処理放流水を追跡した。その結果、下水処理場放流口から約 400 m 離れた河川地点でも下水処理放流水の影響があることが示唆された (小松ら, 2019)。また、三小田らは、中流域では約 60% が下水処理放流水によって構成されている東京都の仙川において、2016 年から 2017 年に採取した試料をもとに、EEM-PARAFAC 法を適用した。河川水中の FDOM を主にフミン酸やタンパク質系の 6 成分に分離した。また、いずれの成分も下水処理放流水の放流によって急激に増加した。このことから、下水処理放流水に含まれる FDOM が卓越していることが示唆された (三小田ら, 2018)。また、西村らは、木津川上流域において、どの FDOM が浄水処理におけるトリハロメタン (trihalomethanes;

THMs) やハロ酢酸 (halo acetic acids; HAAs) などの消毒副生成物 (disinfection by-products; DBPs) 形成にどの程度寄与するかを算出するために、EEM-PARAFAC 法を適用した。その結果、人為由来のフミン様成分が DBPs 生成能のうち HAAs 生成能 (HAAsFP) と高い相関関係 ( $R^2 = 0.70$ ) を示した。このことから、人為由来のフミン様成分が HAAsFP に起因する可能性が示唆された (西村ら, 2019)。さらに、鈴木は、EEM-PARAFAC 法を用いて釧路川流域における河川水中 FDOM の分離を試み、分離された FDOM 群の蛍光強度と特定のステロイド剤との間の共変動を分析した。結果、糞便汚染を示す FDOM を確認し、当該 FDOM は牧草地に施用される液肥に由来するトリプトファン様のインドール環構造と類似した蛍光特性を有するタンパク質様成分であり、古典的な糞便マーカーのコプロスタノール  $5\beta$  と良好な相関を示し、家畜の糞便汚染の指標となる可能性が示唆された (鈴木, 2017)。

## 2.5 本研究の位置づけと本章のまとめ

### 2.5.1 本研究の新規性

これまで、多くの研究者によって、下水処理放流水の影響下にある環境水試料からの水系感染症のヒト腸管系ウイルス検出事例が報告され (2.3.1 参照)、また、病原ウイルス汚染を想定した指標候補微生物の有効性が示されてきた (2.3.2, 2.3.3.3 参照)。その一方で、指標候補微生物のなかでも大腸菌ファージについて、ヒト以外の動物糞便からも排出される点や、水環境中で増殖する可能性があるため、ヒト腸管系ウイルス汚染指標としての有効性に疑義が持たれている (2.3.3.3 参照)。また、指標微生物の場合には水中の病原微生物を網羅的に評価することは困難である (2.3.3.1 参照)。

下水処理場及び雨水吐から放流される雨天時下水や放流先の河川水に対し、水中の有機物を適切に監視することにより、これらの衛生微生物汚染の状況も、ある程度までは把握できる可能性があることを示した (2.3.4.2 参照)。問題点としては、SS、BOD 及び COD では、いずれも迅速に雨天時下水混入を評価できない (2.3.4.2 参照)。したがって、重要影響水域において人との接触が懸念される雨天時下水の混入を迅速に検知するための知見が不足している (2.3.4.3 参照)。雨水吐での雨天時越流水に対して濁度を連続測定し BOD に換算して雨天時下水混入を迅速に監視でき、分流式下水道の汚水に対して EC を連続測定し不明水の浸入を迅速に監視することができる。しかし、受水域側においては下水道以外の汚濁負荷源が存在し得るため、多様な水の混合による環境水に対し、雨天時下水混入を濁度・EC により監視ができない (2.3.4.3 参照)。そこで、DOM が、雨天時下水混入の簡易指標となり得るという仮説を立て (2.3.4.3 参照)、下水二次処理水中の FDOM を推定した結果より、蛍光分析により検出できる FDOM が、汚濁負荷源側の下水道はもちろん、受水域側においても雨天時下水混入を監視するための簡易指標候補としての可能性を持つことが明らかとなった (2.4.1 参照)。

FDOM の分析法として、励起波長と蛍光波長を一定の波長間隔で連続的にスキャンする EEM 法の適用例が増加している (2.4.3.1 参照)。得られた EEM の解釈に際し、従来のピークピッキングによる成分推定には限界がある (2.4.3.2 参照)。EEM 解析を大幅に向上させた EEM-PARAFAC 法により、下水処理放流水及び、その影響下にある環境水試料からの、下水処理放流水由来の FDOM の迅速かつ簡便な検出事例は、いくつか見られる (2.4.3.4 参照)。しかしながら、特に EEM-PARAFAC 法を適用した FDOM の迅速かつ簡便な検出により、降雨時の下水道で発生し得る雨天時下水を水環境中で検出した事例は、ほとんど確認されていない。

以上、雨天時下水による受水域の衛生学的安全性に対し「指標微生物の測定による病原微生物の存在実

態の推定」という視点でアプローチした研究が多く、「都市排水の簡易指標化による雨天時下水混入の迅速かつ連続的な把握」という工学的視点でアプローチした本研究は着眼点が新しく独創的といえる。

### 2.5.2 本研究の有用性

本研究は、主に現地調査に基づき、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水に対し、高級処理水及び河川水への混入を迅速に検知する簡便な指標としての **FDOM** の指標性を検討するものである。本研究は、取排水システムからみた *de facto potable reuse*, リクレーション用途の再利用に供される重要影響水域において (2.3.4 参照), 汚水中のし尿・雑排水のような点源汚濁負荷だけではなく, 雨水排水中の土壌・道路面などを由来とする面源汚濁負荷も考慮できる可能性を持つ。このような雨天時下水に対し, 高級処理水・河川水への混入だけではなく生物処理・凝集沈殿処理といった水質変換過程が推察される指標として, **FDOM** の指標性を検討しようとする研究事例はみられない。このため, 降雨時の都市排水全般を対象とした河川管理に貢献することが期待される。

具体的には, まず, 流域の汚濁負荷の主な排出者である下水道管理者に対しては, 発生抑制にとどまらない合流式下水道改善対策の見直し, 例えば, 分流式下水道も含め, 発生後の下流側への連絡体制構築などに貢献することが期待される (2.2.4 参照)。次に, 受水域側の河川管理者に対しては, 下水道管理者からの連絡を受けて, 河川利用者への衛生面での注意喚起や水道管理者への連絡体制構築などに貢献することが期待される (2.3.4 参照)。最後に, 水道水源として取水する水道管理者に対しては, 特に経年化浄水施設における原水水質悪化への対応すべき項目 (水道技術研究センター, 2014) の, 濁度のみからの強化などに貢献することが期待される。

以上のことから, **CSO・SSO** 混入を迅速に検知する簡易指標としての, **FDOM** の指標性を検討しようとする本研究は, 非定常の都市排水全般が与える, 下流での水利用にかかる病原微生物リスクが上昇する時間帯を監視により捉えるための重要な研究であるといえる。

### 2.5.3 本研究の応用性

本研究による雨天時下水の混入指標の確立は, 雨天時においてどの **FDOM** が浄水処理の **DBPs** 形成にどの程度寄与するかを把握するための有用な知見を提供する可能性が考えられる (2.4.3.4 参照)。特に, 人為由来のフミン様成分が, **THMs** 生成能 (**THMsFP**) や **HAAsFP** などの **DBPs** 生成能のうち **HAAsFP** との強い相関がすでに明らかになっている (西村ら, 2019)。汚水は下水処理場等で適切な処理がなされ, 浄水場でも厳密な運転管理の下で安全な水道水がつくられ供給されているが, 水道水源中の有機物等により **THMs** や **HAAs** などの **DBPs** が生成する可能性があるため, 水利用においてはより適切な管理が希求されている (西村ら, 2019)。

以上により, 本研究は, 浄水場における **THMsFP** や **HAAsFP** などの **DBPs** 前駆物質の一部を示している可能性がある特異的な **FDOM** 成分についての有用な知見を提供する, 応用性が高いものと考えられる。

## 2.6 第2章のまとめ

本章では, まず公衆衛生対策と降雨時の浸水対策を目的とした都市排水システムの下水道における, 降雨時の衛生学的な問題としての雨天時下水や国内外での雨天時下水問題への対応状況を要約した。次に, 下水道由来と考えられる水系感染性微生物の汚染状況に関する知見を整理した。次に取排水システムが

交錯する流域での水道利用やリクレーション利用が行われている，重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性について論述した．最後に，下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入を迅速かつ連続的に検知する簡易指標候補としての FDOM について論述した．これらの文献調査により残されている課題について整理することで，本研究の位置づけを明らかにした．以下にそのまとめを示す．

- (1) 合流式下水道における CSO と分流式下水道における SSO に関する事例を要約した (2.2.3, 2.2.4 参照)．また，合流式下水道改善のための国内外での取り組みと，その対策としての新技術を要約した結果，今後，重要影響水域においては，主に雨天時を含む下水道施設からの病原微生物の排出管理が必要であることが分かった (2.2.5, 2.2.6, 2.2.8 参照)．さらに，合流式下水道改善の対象となっていない分流式下水道においても，降雨により SSO の発生が問題視されており，病原微生物管理への対応も今後求められることも分かった (2.2.7 参照)．
- (2) 主に下水処理放流水の影響下にある環境水試料中に含まれる，水系感染症のウイルスの存在実態を要約した (2.3.2 参照)．特に，淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の事例について紹介した (2.3.2.2 参照)．また，水環境や下水道での *E. coli* や大腸菌ファージなどの指標微生物を用いた水質管理の取り組みの現状を要約した (2.3.3 参照)．その結果，桂川下流域の下水処理場放流口の下流側河川水中の微生物濃度について，*E. coli* や TC は上流側河川水からの微生物汚染が，大腸菌ファージや水系感染症の NoV は下水処理場放流口からの影響が強いと推察された (2.3.2.2 参照)．また，大腸菌ファージは，ヒト以外の動物糞便からも排出される点や，水環境中で増殖する可能性がある点から，ウイルス汚染指標としての限界があることが分かった (2.3.3.3 参照)．そのため，近年では，ヒトに感染するウイルスそのものをウイルス汚染指標として用いることが受け入れられてきており，さまざまなウイルスについて指標性が議論されていることも分かった (2.3.3.3 参照)．
- (3) 取排水システムが交錯する流域での水道原水やリクレーション利用における病原微生物管理の重要性について要約した (2.3.4.1 参照)．水道水源としての河川水の中には，上流側でかなりの数の下水処理放流に影響されているものがあり，これらの水域は釣り・ボート及び遊泳などのリクレーション用途に供される場合もある (2.3.4.1 参照)．雨天時下水の実態調査事例から，河川水への雨天時下水混入により BOD と TC がともに増加していることが示唆された．衛生微生物と有機物に直接的な関係は不明であるが，下水に由来する衛生微生物と有機物の処理レベルの差は，それぞれ，特性を持っているかもしれない．仮に特性を持つ場合，下水処理場及び雨水吐から放流される雨天時下水や放流先の河川水に対し，水中の有機物を適切に監視することにより，微生物汚染の状況も，ある程度までは把握できる可能性があることを示した (2.3.4.2 参照)．このような重要影響水域や流域の下水道において，人との接触が懸念される雨天時下水の混入を迅速に検知するための知見が不足していることを指摘した (2.3.4.2, 2.3.4.3 参照)．雨水吐での雨天時越流水に対しては濁度，分流汚水への不明水の影響に対しては EC の連続測定が有効であるが，受水域側においては下水道以外の汚濁負荷源が存在し得るため，多様な水の混合による環境水に対し，雨天時下水混入を濁度・EC により検知できない (2.3.4.2, 2.3.4.3 参照)．そこで，DOM が雨天時下水の検知指標となり得る，

という仮説を立てた (2.3.4.3 参照). 高級処理水中 DOM を推定した事例により, 連続的で, 迅速に, 複数の DOM 成分を検出できる蛍光分析により検出できる FDOM が, 高濃度の衛生微生物が存在する CSO・SSO に対し, 高級処理水及び河川水への混入を迅速に検知する簡易指標候補としての可能性があることが分かった (2.3.4.3 参照).

- (4) 最後に FDOM 分析法の蛍光分析を活用した EEM-PARAFAC 法について, 蛍光分析の原理から 3 次元蛍光分光測定による EEM 分析, 得られた EEM スペクトルの解析手法としての PARAFAC に至るまで要約した (2.4.3.1, 2.4.3.2 参照). また, EEM 分析及び EEM-PARAFAC 法を適用した最近の研究の動向を要約した (2.4.3.3, 2.4.3.4 参照). その結果, EEM 分析で得られた EEM の解釈に際し, 従来のピークピッキングによる成分推定には限界があることが分かった (2.4.3.3 参照). また EEM の解析性能を大幅に向上させた EEM-PARAFAC 法を適用することで, 非降雨時における下水処理水の放流先河川への混入により河川水中 FDOM のフミン様成分などが卓越することが分かった (2.4.3.4 参照). しかしながら報告事例は少なく, 特に, EEM-PARAFAC 法を適用した FDOM の迅速かつ連続的な検出により, 降雨時の下水道で発生し得る雨天時下水を水環境中で検出した事例は, 未だ確認されなかった (2.4.3.4 参照). 下水中の FDOM のうちタンパク質様成分が生物処理により大きく減少した事例から, タンパク質様成分は高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理水混入を迅速かつ連続的に検知できる指標となる可能性を持つことが示された (2.4.3.4 参照).
- (5) このように, 下水道からの都市排水による重要影響水域の衛生学的安全性に対して, 「指標微生物の測定による病原微生物の存在実態の推定」という視点でアプローチした研究が多いなか, 「都市排水の簡易指標化による雨天時下水混入の迅速かつ連続的な把握」という工学的視点からアプローチする研究は, これまで例がないと考えられた (2.5.1 参照). また汚水中の下水処理場由来の点源汚濁負荷だけではなく, 雨水排水中の土壌・道路面などに由来する面源汚濁負荷に対し, 異なる処理レベルから FDOM の指標性を検討する研究事例はみられなかった. このような非定常の都市排水全般が与える, 下流での水利用にかかる病原微生物リスクが上昇する時間帯を監視により捉えることは, 水利用の安全性を考慮した場合に有用性が高いと考えられた (2.5.2 参照). さらに, 本研究の成果は, 水道水源中の有機物等により THMs や HAAs などの DBPs が生成する可能性が出てくる (西村ら, 2019) ため, 浄水場における THMsFP や HAAsFP などの DBPs 前駆物質の一部を示している可能性がある特異的な FDOM 成分についての有用な知見を提供する, 応用性が高いものと考えられた (2.5.3 参照).

以上のまとめにより, 下水処理放流水及び河川水に混入することにより水系感染症の衛生学的安全性に悪影響を及ぼす雨天時下水に対し, 蛍光分析を活用した EEM-PARAFAC 法を適用し特異的な FDOM であるタンパク質様成分の存在量を推定することで, 雨天時下水混入の簡易指標化を行うことの意義と重要性が示され, 本研究の位置づけが明らかとなった.

## 参考文献

- **Ahmad, R. and Reynolds, D. M.:** Monitoring of Water Quality Using Fluorescence Technique: Prospect of on-Line Process Control, *Water Research*, Vol. 33, No. 9, pp 2069-2074, 1999.
- **Albinana-Gimenez, N., Miagostovich, M. P., Calgua, B., Huguet, J. M., Matia, L and Girones, R.:** Analysis of adenoviruses and polyomaviruses quantified by qPCR as indicators of water quality in source and drinking-water treatment plants, *Water Research*, Vol. 43, No. 7, pp 2011-2019, 2009.
- **Andersen, C. M. and Bro, R.:** Practical Aspects of PARAFAC Modeling of Fluorescence Excitation-Emission Data, *Journal of Chemometrics*, Vol. 17, No. 4, pp 200-215, 2003.
- **Asano, T., Burton, F. L., Leverenz, H. L., Tsuchihashi, R. and George, T.:** Water Reuse: Issues, Technologies, and Applications, 2007.
- **Baker, A.:** Fluorescence Excitation-Emission Matrix Characterization of Some Sewage-Impacted Rivers, *Environmental Science and Technology*, Vol. 35, No. 5, pp 948-953, 2001.
- **Baker, A. and Spencer, R. G. M.:** Characterization of Dissolved Organic Matter from Source to Sea Using Fluorescence and Absorbance Spectroscopy, *The Science of the Total Environment*, Vol. 333, No. 1-3, pp 217-232, 2004.
- **Bendick, J. A., Miller, C. J., Kindle, B. J., Shan, H., Vidic, R. D. and Neufeld, R. D.:** Pilot Scale Demonstration of Cross-Flow Ceramic Membrane Microfiltration for Treatment of Combined and Sanitary Sewer Overflows, *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 131, No. 11, pp 1532-1539, 2005.
- **Borchardt, M. A., Bertz, P. D., Spencer, S. K. and Battigelli, D. A.:** Incidence of Enteric Viruses in Groundwater from Household Wells in Wisconsin, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 69, No. 2, pp 1172-1180, 2003.
- **Carstea, E. M., Baker, A., Bieroza, M. and Reynolds, D.:** Continuous Fluorescence Excitation-Emission Matrix monitoring of river organic matter, *Water Research*, Vol. 44, No. 18, pp 5356-5366, 2010.
- **Ceppi, S. B., Velasco, M. I. and De Pauli, C. P.:** Differential scanning potentiometry: surface charge development and apparent dissociation constants of natural humic acids, *Talanta*, Vol. 50, No. 5, pp 1057-1063, 1999.
- **Chen, W., Westerhoff, P., Leenheer, J. A. and Booksh, K.:** Fluorescence Excitation-Emission Matrix Regional Integration to Quantify Spectra for Dissolved Organic Matter, *Environmental Science and Technology*, Vol. 37, No. 24, pp 5701-5710, 2003.
- **Coble, P. G.:** Characterization of Marine and Terrestrial DOM in Seawater Using Excitation-Emission Matrix Spectroscopy, *Marine Chemistry*, Vol. 51, No. 4, pp 325-346, 1996.
- **Cohen, E., Levy G. J. and Borisover, M.:** Fluorescent Components of Organic Matter in Wastewater: Efficacy and Selectivity of the Water Treatment, *Water Research*, Vol. 55, pp 323-334, 2014.
- **Cory, R. M., and Kaplan, R. A.:** Biological lability of streamwater fluorescent dissolved organic matter, *Limnol. Oceanogr.*, Vol. 57, No. 5, pp 1347-1360, 2012.
- **da Silva, A. K., Le Saux, J. C., Parnaudeau, S., Pommepuy, M., Elimelech, M. and Le Guyader, F. S.:** Evaluation of Removal of Noroviruses during Wastewater Treatment, Using Real-Time Reverse Transcription-PCR: Different Behaviors of Genogroups I and II, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 73, No. 24, pp 7891-7897, 2007.

- **Engelbrecht, R. S. and Greening, E. O.:** Chlorine Resistant Indicator, *Indicators of Viruses in Water and Food*, Vol. 81, pp 243-265, 1978.
- **Espinosa, A. C., Mazari-Hiriart, M., Espinosa, R., Maruri-Avidal, L., Méndez, E. and Arias, C. F.:** Infectivity and genome persistence of rotavirus and astrovirus in groundwater and surface water, *Water Research*, Vol. 42, No. 10-11, pp 2618-2628, 2008.
- **Fellman, J. B., Hood E., Edwards R. T. and D'Amore, D. V.:** Changes in the Concentration, Biodegradability, and Fluorescent Properties of Dissolved Organic Matter During Stormflows in Coastal Temperate Watersheds, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 114, G01021, doi:10.1029/2008JG000790, 2009.
- **Fellman, J. B., Hood E. and Spencer, R. G. M.:** Fluorescence Spectroscopy Opens New Windows into Dissolved Organic Matter Dynamics in Freshwater Ecosystems: A Review, *Limnology and Oceanography*, Vol. 55, No. 6, pp 2452-2462, 2010.
- **Field, R. and O'Connor, T. P.:** Control Strategy for Storm-Generated Sanitary-Sewer Overflows, *In Global Solutions for Urban Drainage*, pp 1-14, 2002.
- **Flannery, J., Keaveney, S., Rajko-Nenow, P., O'Flaherty, V. and Doré, W.:** Concentration of Norovirus during Wastewater Treatment and Its Impact on Oyster Contamination, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 78, No. 9, pp 3400-3406, 2012.
- **Fong, T. T., Phanikumar, M. S., Xagorarakis, I. and Rose, J. B.:** Quantitative Detection of Human Adenoviruses in Wastewater and Combined Sewer Overflows Influencing a Michigan River, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 76, No. 3, pp 715-723, 2010.
- **Frenette, J-J., Arts, M. T. and Morin, J.:** Spectral gradients of downwelling light in a fluvial lake (Lake Saint-Pierre, St-Lawrence River), *Aquatic Ecology*, Vol. 37, pp 77-85, 2003.
- **Frimmel, F. H.:** Characterization of Natural Organic Matter as Major Constituents in Aquatic Systems, *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 35, No. 1-3, pp 201-216, 1998.
- **Gentry, J., Vinjé, J. and Lipp, E. K.:** A Rapid and Efficient Method for Quantitation of Genogroups I and II Norovirus from Oysters and Application in Other Complex Environmental Samples, *Journal of Virological Methods*, Vol. 156, No. 1-2, pp 59-65, 2009.
- **Gentry-Shields, J., Wang, A., Cory, R. M. and Stewart, J. R.:** Determination of Specific Types and Relative Levels of QPCR Inhibitors in Environmental Water Samples Using Excitation-Emission Matrix Spectroscopy and PARAFAC, *Water Reserch*, Vol. 47, No. 10, pp 3467-3476, 2013.
- **Gurr, C. J. and Reinhard, M.:** Harnessing Natural Attenuation of Pharmaceuticals and Hormones in Rivers, *Environmental Science and Technology*, Vol. 40, No. 9, pp 2872-2876, 2006.
- **Golden, J. B.:** An Introduction to Sanitary Sewer Overflows, *In Seminar Publication: National Conference on Sanitary Sewer Overflows (SSOs)*, pp 1-8, 1995.
- **Hamza, I. A., Jurzik, L. K. Überla and Wilhelm, M.:** Evaluation of Pepper Mild Mottle Virus, Human Picobirnavirus and Torque Teno Virus as Indicators of Fecal Contamination in River Water, *Water Research*. Vol. 45, No. 3, pp 1358-1368, 2011.
- **Hansman, G. S., Sano, D., Ueki, Y., Imai, T., Oka, T., Katayama, K., Takeda, N. and Omura, T.:** Sapovirus in Water, Japan, *Emerging Infectious Diseases*, Vol. 13, No. 1, pp 133-135, 2007.

- **Haramoto, E., Katayama, H., Oguma, K. and Ohgaki, S.:** Application of Cation-Coated Filter Method to Detection of Noroviruses, Enteroviruses, Adenoviruses, and Torque Teno Viruses in the Tamagawa River in Japan, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 71, No. 5, pp 2403-2411, 2005.
- **Hata, A., Katayama, H., Kojima, K., Sano, S., Kasuga, I., Kitajima, M. and Furumai, H.:** Effects of rainfall events on the occurrence and detection efficiency of viruses in river water impacted by combined sewer overflows, *Science of the Total Environment*, Vol. 468-469, pp 757-763, 2014.
- **Hata, A., Hanamoto, S., Shirasaka, Y., Yamashita, N. and Tanaka, H.:** Quantitative Distribution of Infectious F-Specific RNA Phage Genotypes in Surface Waters, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 82, No. 14, pp 4244-4252, 2016.
- **Hayakawa, K. and Sugiyama, Y.:** Spatial and seasonal variations in attenuation of solarultraviolet radiation in Lake Biwa, Japan, *Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology*, Vol. 90, pp 121-133, 2008.
- **Hedges, J. I.:** Global biogeochemical cycles: progress and problems, *Marine Chemistry*, Vol. 39, pp 67-93, 1992.
- **Hood, E., Fellman, J., Spencer, R. G. M., Hernes, P. J., Edwards, R., D'Amore, D. and Scott, D.:** Glaciers as a source of ancient and labile organic matter to the marine environment, *Nature*, Vol. 462, pp 1044-1047, 2009.
- **Hot, D., Legeay, O., Jacques, J., Gantzer, C., Caudrelier, Y., Guyard, K., Lange, M. and Andréoletti, L.:** Detection of Somatic Phages, Infectious Enteroviruses and Enterovirus Genomes as Indicators of Human Enteric Viral Pollution in Surface Water, *Water Research*, Vol. 37, No. 19, pp 4703-4710, 2003.
- **IAWPRC:** Bacteriophages as Model Viruses in Water Quality Control, *Water Research*, Vol. 25, pp 529-545, 1991.
- **Ishii, S. K. L. and Boyer, T. H.:** Behavior of Reoccurring PARAFAC Components in Fluorescent Dissolved Organic Matter in Natural and Engineered Systems: A Critical Review, *Environmental Science and Technology*, Vol. 46, No. 4, pp 2006-2017, 2012.
- **Jiang, S., Noble, R. and Chu, W.:** Human Adenoviruses and Coliphages in Urban Runoff-Impacted Coastal Waters of Southern California, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 67, No. 1, pp 179-184, 2001.
- **Katayama, H., Shimasaki, A. and Ohgaki, S.:** Development of a Virus Concentration Method and Its Application to Detection of Enterovirus and Norwalk Virus from Coastal Seawater, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 68, No. 3, pp 1033-1039, 2002.
- **Katayama, H., Haramoto, E., Oguma, K., Yamashita, H., Tajima, A., Nakajima, H., and Ohgaki, S.:** Development of a Virus Concentration Method and Its Application to Detection of Enterovirus and Norwalk Virus from Coastal Seawater, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 68, No. 3, pp 1033-1039, 2002.
- **Kitajima, M., Iker, B. C., Pepper, I. L. and Gerba, C. P.:** Relative abundance and treatment reduction of viruses during wastewater treatment processes--identification of potential viral indicators, *Science of the Total Environment*, Vol. 488-489, pp 290-296, 2014.
- **Kitajima, M. and Gerba, C. P.:** Aichi Virus 1: Environmental Occurrence and Behavior, *Pathogens*, Vol. 4, No. 2, pp 256-268, 2015.
- **Komatsu, K., Imai, A. and Kawasaki, N.:** Comparison between humic-like peaks in excitation-emission matrix spectra and resin-fractionated humic substances in aquatic environments, *Limnology*, Vol. 20, No. 1, pp 109-120, 2019.

- **Lai, F. H., Field, R., Fan, C. Y. and Sullivan, D.:** Collection System Modeling for Planning/Design of Sanitary Sewer Overflow (SSO) Control, *In Building Partnerships*, pp 1-10, 2000.
- **Lakowicz, J. R.:** Principles of Fluorescence Spectroscopy, Springer US, NY, USA, 2006.
- **Lawaetz, A. J. and Stedmon, C. A.:** Fluorescence intensity calibration using the raman scatter peak of water, *Applied Spectroscopy*, Vol. 63, No. 8, pp 936-940, 2009.
- **Lee, C. S., Lee, C., Marion, J., Wang, Q., Saif, L. and Lee, J.:** Occurrence of human enteric viruses at freshwater beaches during swimming season and its link to water inflow, *Science of the Total Environment*, Vol. 472, pp 757-766, 2014.
- **Long, S. C. and Sobsey, M. D.:** A Comparison of the Survival of F+RNA and F+DNA Coliphages in Lake Water Microcosms, *Journal of Water and Health*, Vol. 2, No. 1, pp 15-22, 2004.
- **Muniesa, M. and Jofre, J.:** Factors Influencing the Replication of Somatic Coliphages in the Water Environment, *Antonie van Leeuwenhoek*, Vol. 86, No. 1, pp 65-76, 2004.
- **Murphy, K. R., Stedmon, C. A., Graeber, D. and Bro, R.:** Fluorescence Spectroscopy Multi-Way Techniques. PARAFAC, *Analytical Methods*, Vol. 5, No. 23, pp 6557-6566, 2013.
- **Okun, D. A.:** “Philosophy of the Safe Drinking Water Act and Potable Reuse”, *Environmental Science and Technology*, Vol. 14, No. 11, pp 1298-1303, 1998.
- **Ogawa, H. and Ogura, N.:** Comparison of two methods for measuring dissolved organic carbon in sea water, *Nature*, Vol. 356, pp 696-698, 1992.
- **Ogawa, H. and Tanoue, E.:** Dissolved Organic Matter in Oceanic Waters, *Journal of Oceanography*, Vol. 59, pp 129-147, 2003.
- **Ogorzaly, L., Tissier, A., Bertrand, I., Maul, A. and Gantzer, C.:** Relationship Between F-Specific RNA Phage Genogroups, Faecal Pollution Indicators and Human Adenoviruses in River Water, *Water Research*, Vol. 43, No. 5, pp 1257-1264, 2009.
- **Ogorzaly, L., Bertrand, I., Paris, M., Maul, A. and Gantzer, C.:** Occurrence, Survival, and Persistence of Human Adenoviruses and F-Specific RNA Phages in Raw Groundwater, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 76, No. 24, pp 8019-8025, 2010.
- **Perdue, E. M. and Gjessing, E. T.:** Introduction, In Organic Acids in Aquatic Ecosystems, *E. M. PERDUE and E. T. GJESSING (eds.): 1-3, John Wiley & Sons. Chichester.*, 1990.
- **Phillips, P. and Chalmers, A.:** Wastewater Effluent, Combined Sewer Overflows, and Other Sources of Organic Compounds to Lake Champlain, *JAWRA Journal of the American Water Resources Association*, Vol. 45, No. 1, pp 45-57, 2009.
- **Rock, K., Da Silva, A., Hooper, J., Mosher, J., Bell, K. and Snyder, S. A.:** What Monitoring Tools Do We Need for Direct Potable Reuse?, The Water Research Foundation, No. 4508, 2015.
- **Rock, K. and Jang, H.:** Assessment of Techniques for Evaluating and Demonstrating Safety of Water from Direct Potable Reuse Treatment Facilities, The Water Research Foundation, No. 4508, 2018.
- **Rosario, K., Symonds, E. M. Sinigalliano, C., Stewart, J. and Breitbart, M.:** Pepper Mild Mottle Virus as an Indicator of Fecal Pollution, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 75, No. 22, pp 7261-7267, 2009.
- **Rutjes, S. A., Italiaander, R., Van den Berg, H. H., Lodder, W. J. and De Roda Husman, A. M.:** Isolation and

Detection of Enterovirus RNA from Large-Volume Water Samples by Using the NucliSens MiniMAG System and Real-Time Nucleic Acid Sequence-Based Amplification, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 71, No. 7, pp 3734-3740, 2005.

● **Sanchez, N. P., Skeriotis, A. T. and Miller, C. M.:** Assessment of Dissolved Organic Matter Fluorescence Parafac Components before and after Coagulation-Filtration in a Full Scale Water Treatment Plant, *Water Research*, Vol. 47, No. 4, pp 1679-1690, 2013.

● **Smeets, P. W. M. H., Medema, G. J. and Van Dijk, J. C.:** The Dutch Secret: How to Provide Safe Drinking Water Without Chlorine in the Netherlands, *Drinking Water Engineering and Science*, Vol. 2, No. 1, pp 1-14, 2009.

● **Stedmon, C. A., Markager, S. and Bro, R.:** Tracing dissolved organic matter in aquatic environments using a new approach to fluorescence spectroscopy, *Marine Chemistry*, Vol. 82, pp 239-254, 2003.

● **Stedmon, C. A. and Bro, R.:** Characterizing Dissolved Organic Matter Fluorescence with Parallel Factor Analysis: A Tutorial, *Limnology and Oceanography: Methods* 6, No. 11, pp 572-579, 2008.

● **Swayne, M., Boone, G., Bauer, D. and Lee, J.:** Wastewater in Receiving Waters at Water Supply Abstraction Points, *EPA-600/12-80-044*, U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, 1980.

● **Tao, J., Mancl, K. M. and Tuovinen, O. H.:** Attenuation of Pollutants in Sanitary Sewer Overflow: Comparative Evaluation of Treatment with Fixed Media Bioreactors, *Bioresour. Technol.*, Vol. 101, No. 6, pp 1781-1786, 2010.

● **Thomas, J. D.:** The Role of Dissolved Organic Matter, Particularly Freeamino Acids and Humic Substances, in Freshwater Ecosystems, *Freshwater Biology*, Vol. 38, pp 1-36, 1997.

● **Thurman, E. M.:** Organic Geochemistry of Natural Waters, *Developments in Biogeochemistry*, 1985.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** Combined Sewer Overflows Guidance For Long-Term Control Plan, Office Of Water, No. 4204, EPA 832-B-95-002, 1995a.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** Combined Sewer Overflows Guidance For Nine Minimum Controls, Office Of Water, No. 4204, EPA 832-B-95-003, 1995b.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** Technologies Used to Reduce the Impacts of CSOs and SSOs, 2004 NPDES CSO Report to Congress, National Pollutant Discharge Elimination System (NPDES), EPA 833-R-04-001, 2004.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** Sanitary Sewer Overflows (SSOs) Overview, National Pollutant Discharge Elimination System (NPDES), <https://www.epa.gov/npdes/sanitary-sewer-overflows-ssos>, LAST UPDATED ON NOVEMBER 1, 2016a.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** Drinking Water Contaminant Candidate List 4-Final, Federal Register, Vol. 81, No. 222, pp 81099-81114, 2016b.

● **USEPA (United States Environmental Protection Agency):** HP, 2018年2月20日最終アクセス.

● **Verheyen, J., Timmen-Wego, M., Laudien, R., Boussaad, I., Sen, S., Koc, A., Uesbeck, A., Mazou, F. and Pfister, H.:** Detection of Adenoviruses and Rotaviruses in Drinking Water Sources Used In Rural Areas of Benin, West Africa, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 75, No. 9, pp 2798-2801, 2009.

● **WHO:** Guidelines for Drinking-water Quality 4th edition, 2011.

● **Wold, S., Esbensen, K. and Geladi, P.:** Principal Component Analysis, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, Vol. 2, No. 1-3, pp 37-52, 1987.

- **Wong, K., Fong, T. T., Bibby, K. and Molina, M.:** Application of Enteric Viruses for Fecal Pollution Source Tracking in Environmental Waters, *Environment International*, Vol. 45, pp 151-164, 2012.
- **Wong, M., Kumar, L., Jenkins, T. M., Xagorarakis, I. Phanikumar, M. S. and Rose, J. B.:** Evaluation of Public Health Risks at Recreational Beaches in Lake Michigan via Detection of Enteric Viruses and a Human-Specific Bacteriological Marker, *Water Research*, Vol. 43, No. 4, pp 1137-1149, 2009.
- **Yamashita, Y. and Jaffé, R.:** Characterizing the Interactions between Trace Metals and Dissolved Organic Matter Using Excitation–Emission Matrix and Parallel Factor Analysis, *Environmental Science and Technology*, Vol. 42, No. 19, pp 7374-7379, 2008.
- **Yang, L., Hur, J. and Zhuang, W.:** Occurrence and Behaviors of Fluorescence EEM-PARAFAC Components in Drinking Water and Wastewater Treatment Systems and Their Applications: A Review, *Environment Science and Pollution Research – International*, Vol. 22, No. 9, pp 6500-6510, 2015.
- **Ye, X. Y., Ming, X., Zhang, Y. L., Xiao, W. Q., Huang, X. N., Cao, Y. G. and Gu, K. D.:** Real-time PCR detection of enteric viruses in source water and treated drinking water in Wuhan, China, *Current Microbiology*, Vol. 65, No. 3, pp 244-253, 2012.
- **朝日新聞 DIGITAL:** 未処理污水こっそり放出 「秘密の管」 111 カ所 仙台, 2017 年 4 月 2 日 14 時 54 分.
- **浅見達也, 柴田智世, 片山浩之, 古米弘明:** 親水活動による感染リスク評価に向けた東京湾沿岸域の降雨後ウイルス汚染実態調査, 第 51 回環境工学研究フォーラム講演集, pp 45-47, 2014.
- **阿部千雅, 中筋康之, 猪木博雅:** 下水道における技術開発の最近の動向, 下水道協会誌, Vol. 42, No. 12, pp 64-75, 2005.
- **荒木公:** 「札幌市合流式下水道改善基本計画」について, 衛生工学シンポジウム論文集, Vol. 13, pp 63-66, 2005.
- **安藤晴夫, 和波一夫, 石井真理奈, 竹内健:** 雨天時水質調査結果について (2) –雨天時における運河部の水質変化–, 東京都環境科学研究所年報 2010, pp 126-131, 2010.
- **飯田和輝, 福嶋研一:** CSO の放流先への影響に関する調査, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 405-407, 2005.
- **池田和弘, 柿本貴志, 日下部武敏:** 河川水分析で短波長領域に検出される蛍光成分の BOD 負荷源に関する指標性について, 第 56 回環境工学研究フォーラム講演集, p 21, 2019.
- **伊藤昭彦:** SPIRIT21 合流改善技術と今後の展開, 下水道協会誌, Vol. 43, No. 528, pp 17-20, 2006.
- **上門卓矢:** 合流式下水処理施設における雨天時消毒機能の評価, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2009.
- **牛木英生, 吉澤明子:** 雨水排水ポンプ場放流水の海の公園への環境影響調査, 第 43 回下水道研究発表会講演集, pp 272-274, 2006.
- **内田翔:** 合流式下水処理場における雨天時水質モニタリングに関する研究, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2008.
- **海賀信好, 大瀧雅寛, 渡辺和宏, 海老江邦雄, 寺嶋勝彦, 比嘉元紀:** 蛍光分析による浄水処理工程の有機物評価, 水道協会雑誌, Vol. 88, No. 7, pp 4-9, 2019.
- **大阪市水道局工務部計画課:** 大阪市の水道水源, 大阪市 HP, 2018.

- 大阪市都市環境局下水道部水質調査課: 下水道業務論文集, No. 24, 2006.
- 大月孝将, 堀江純, 川西諒: 濁度計を用いた合流改善施設の運転方法の改善と評価, 第 52 回下水道研究発表会講演集, 別紙 3p, 2015.
- 大津市建設部: 合流式下水道の改善 ～美しく碧き琵琶湖を守る水のみち～, 2006.
- 大橋隆治, 松本篤士: 合流改善施設(雨水吐口きょう雑物対策)の性能確認調査結果について, 第 43 回下水道研究発表会講演集, pp 290-292, 2006.
- 大牟田市企業局: 大牟田市下水道維持管理年報, 2004.
- 大楽尚史: 京都市における合流式下水道改善への取組, 環境技術, Vol. 35, No. 10, pp 14-20, 2006.
- 岡本誠一郎: 動き出す合流式下水道改善対策, 下水道協会誌, Vol. 39, No. 5, pp 7-13, 2002a.
- 岡本誠一郎: 合流式下水道の基本方針と総合的な対策の推進, 水環境学会誌, Vol. 25, No. 9, pp 518-523, 2002b.
- 沖雅夫, 桑山英延: きょう雑物流出状況解析調査について, 第 44 回下水道研究発表会講演集, pp 280-292, 2007.
- 越智崇, 中村昭, 野崎裕聡: 特殊スクリーン付きスワールによる高速凝集分離システム, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 402-404, 2005.
- 笠原高男: 藤沢市における合流式下水道改善事業について, 下水道協会誌, Vol. 42, No. 5, 2005.
- 金子光美(編): 水道の病原微生物対策, 丸善株式会社, 272 頁, ISBN4-621-07682-5, 2006.
- 加畑雅宏, 伊藤昭彦, 橋本久尚: SPIRIT21 合流改善技術 高速ろ過・凝集沈殿技術の概要, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 423-426, 2005.
- 環境省: 平成 30 年度公共用水域水質測定結果(付表), <https://www.env.go.jp/water/suiiki/h30/h30-3.pdf>, 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020.
- 岸田直裕, 今野祥顕, 原本英司, 浅見真理, 秋葉道宏: 我が国における水道原水中の水系感染性ウイルスおよび原虫の存在実態と指標微生物の有効性, 水道協会雑誌, Vol. 82, No. 10, pp 2-10, 2013.
- 北九州市上下水道局下水道部下水道計画課: 合流式下水道の改善, 公式 HP, <https://www.city.kitakyushu.lg.jp/suidou/s01100019.html>, 最終閲覧日: 2021 年 2 月 3 日, 2011.
- 木村一政: 川崎市における合流式下水道改善対策について, 下水道協会誌, Vol. 39, No. 5, pp 33-36, 2002.
- 木村恵子, 曾根真理, 並河良治, 桑原正明, 角湯克典: 凍結防止剤散布と沿道環境, 国土技術政策総合研究所資料, No. 412, 2007.
- 京都市上下水道局下水道部管理課: 合流式下水道における雨水吐口の分布図, 公式 HP, 2018.
- 京都市上下水道局下水道部管理課: 合流式改善の方法, 公式 HP, <https://www.city.kyoto.lg.jp/suido/page/0000008696.html>, 最終閲覧日: 2021 年 2 月 3 日, 2011.
- 草場大作, 小松俊哉, 姫野修司: CSO の長期連続モニタリングに基づく都市雨水流出解析, 第 44 回下水道研究発表会講演集, pp 274-276, 2005.
- 小池秀雄: 松山市におけるスワール分水槽による合流改善事業について, 下水道協会誌, Vol. 39, No. 5, pp 45-47, 2002.
- 古賀みな子: 大牟田市における環境改善のための下水道, 資源環境対策, Vol. 40, No. 3, 2004.
- 国土交通省: 雨天時浸入水対策について議論します, 報道発表, [http://www.mlit.go.jp/report/press/mizukokudo13\\_hh\\_000413.html](http://www.mlit.go.jp/report/press/mizukokudo13_hh_000413.html), 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020a.

- 国土交通省河川局: 今後の湖沼水質管理の指標について (案), 2010.
- 国土交通省河川局: 今後の河川水質管理の指標について (案)【改訂版】, 2009.
- 国土交通省: 合流式下水道の改善, 公式 HP,  
[http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/crd\\_sewerage\\_tk\\_000136.html](http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/crd_sewerage_tk_000136.html), 最終閲覧日: 2018 年 11 月 1 日, 2010.
- 国土交通省: 下水道における水環境・雨水管理の現状分析, 下水道政策研究委員会 会議資料, 第 4 回, 資料 3-2, 2014.
- 国土交通省: SPIRIT21 合流式下水道改善に向け 4 技術が実用化, 公式 HP,  
<https://www.mlit.go.jp/crd/city/sewerage/gyosei/spirit21/031007.html>, 最終閲覧日: 2018 年 11 月 1 日, 2003.
- 国土交通省都市・地方整備局下水道部: 雨天時浸入水対策ガイドライン (案), 公式 HP,  
<https://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/content/001327259.pdf>, 最終閲覧日: 2020 年 4 月 24 日, 2020b.
- 国土交通省都市・地方整備局下水道部, 日本下水道新技術機構: 合流式下水道の改善対策に関する調査報告書, 2002.
- 小松一弘, 今井章雄, 松重一夫, 奈良郁子, 川崎伸之: 三次元励起蛍光スペクトル法による霞ヶ浦湖水及び流域水中 DOM の特性評価, 水環境学会誌, Vol. 31, No. 5, pp 261-267, 2008.
- 小松一弘, 高津文人, 三浦真吾, 小野寺崇, 珠坪一晃: 下水処理水が河川水質に及ぼす直接的・間接的な影響の評価, 第 56 回環境工学研究フォーラム講演集, p 19, 2019.
- 三小田憲史, 山本千恵子, 関口和彦: 下水処理水に含まれる溶存有機物のキャラクタリゼーションと動態解析, 第 52 回水環境学会年会, P-A35, pp 532, 2018.
- 滋賀県琵琶湖環境科学研究センター: 環境調査情報データベース, <https://www.lberi.jp/investigate/date>, 最終閲覧日: 2020 年 3 月 11 日, 2020.
- 滋賀報知新聞: 超高度処理できずに琵琶湖に放水, 2013 年 9 月 20 日, 2013a.
- 滋賀報知新聞: 高度処理できずに汚水 11 万トン放水, 2013 年 9 月 27 日, 2013b.
- 篠田康弘: 負の遺産からの脱却 - 動き出す合流改善事業 -, 月刊下水道, Vol. 23, No. 5, pp 4-6, 2000.
- 清水芳久 (第 3 章執筆担当), 田中宏明, 田中祐之, 加藤康弘, 高島英二郎, 鈴木穰, 水野忠雄, 田中周平: 水環境中 NOM の抽出および分析方法の確立 (第 3 章), JST CREST「21 世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」に関する報告書, 戦略的創造研究推進事業 CREST, 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」, 2015.
- 白川英樹: 多変量解析的手法による蛍光スペクトル成分分離法とその細胞生理学的実験への応用, 日本生理学雑誌, Vol. 66, No. 12, pp 381-390, 2004.
- 白坂勇也: 琵琶湖南湖におけるウイルス汚染の実態把握およびウイルス汚染指標の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2017.
- 水道技術研究センター: 経年化浄水施設における原水水質悪化等への対応に関する研究, 高濁度原水への対応の手引きについて, 2014.
- 末永遼, 小杉優佳, 高野典礼, 本多了, 池本良子: EEM-PARAFAC 解析による河北潟流域の溶存態有機物の動態調査, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 73, No. 7, pp III\_229-239, 2017.
- 鈴木茂, 金子敏道: 大津市合流改善事業初期雨水貯留管の水理現象と排気対策に関する調査研究, 2004 年度下水道新技術研究所年報, Vol. 2/2, pp 123-130, 2004.

- 鈴木まゆみ: 多変量解析による環境負荷の起源推定法の確立とその適用, 新潟薬科大学大学院応用生命科学研究科博士論文, 2017.
- 鈴木康弘, 中口謙, 平木敬三, 長尾誠也, 工藤充雄, 木村宗人: 三次元励起・蛍光光度法による淀川水系中の蛍光物質の特徴, 地球化学, Vol. 32, pp 21-30, 1998.
- 住友恒, 伊藤禎彦, 坂敏彦: GIS を用いた琵琶湖・淀川流域における水利用形態の評価, 環境衛生工学研究, Vol. 12, No. 3, pp 85-90, 1998.
- 諏訪守, 安井宣仁, 南山瑞彦: 合流式下水道の改善によるノロウイルス負荷の削減効果, 第 53 回下水道研究発表会講演集, pp 431-433, 2016.
- 高相恒人: CSO による影響の把握 —実態調査結果と今後のモニタリングについて—, 水環境学会誌, Vol. 25, No. 9, pp 21-24, 2002.
- 武亨: 合流式下水道改善に見る最新技術の動向, 下水道協会誌, Vol. 41, No. 5, pp 19-25, 2005.
- 竹村昇, 佐藤勝美, 佐藤大士: バイオボール高速ろ過を用いた合流式下水道改善技術, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 456-458, 2005.
- 田中景介: 雨天時の下水処理場における指標微生物及びアンモニアの制御に関する検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2018.
- 田中修司, 武亨, 白崎亮, 池内隆司, 飯田和輝: CSO 放流先水域への影響把握に関する調査研究, 下水道新技術研究所年報, 2003.
- 田中宏明: 水利用は「使い捨て」から「繰り返し型」へ, JST ニュース 2016 年 10 月号, 2016.
- 田中宏明, 山下尚之, 中田典秀: 水道水源への雨天時都市排水のインパクトの評価, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 21-1211-018, 2010.
- 田中宏明, 山下尚之, 花本征也, 端昭彦, 白坂勇也, 山口武志: 淀川水系中流域における病原微生物と指標微生物の動態の比較, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 27-1211-015, 2016.
- 田村務, 西川眞, 飯田和久, 新井田良平, 紫竹美和子, 角田由紀子, 西尾治: 飲料水が原因のノロウイルスによる食中毒事例—新潟県, 病原微生物検出情報, Vol. 26, No. 12, pp 330-331, 2005.
- 丹野智史, 大羽澤圭佑, 藤田昌一, 小松俊哉, 姫野修司: 長岡市の合流式下水道越流水の水質挙動解析と越流水負荷削減対策, 環境工学研究論文集, Vol. 42, pp 129-136, 2005.
- 千種健理, 加納裕士, 越智崇: 特殊スクリーン付きスワール及び沈降性繊維ろ材を用いた上下向流可変式高速ろ過法, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 453-455, 2005.
- 津野洋, 西田薫: 環境衛生工学, 1995.
- 豊岡和宏, 斎藤慎哉, 大橋秀郎: CSO 汚濁負荷計測システムの開発, 学会誌 EICA, Vol. 15, No. 2,3, pp 81-84, 2010.
- 長岡宏幸: 蛍光ライダーを用いた有機物濃度測定法の検討, 首都大学東京大学院システムデザイン研究科修士論文, 2016.
- 中田逸夫, 稲毛克俊: 雨天時活性汚泥法運転時における最終沈殿池の挙動に関する一考察, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 384-386, 2005.
- 中田武志: 倉敷市における合流改善計画のためのモニタリング実施状況, 下水道協会誌, Vol. 41, No. 2, pp 25-32, 2005.
- 永松真一: 高速凝集沈殿処理/アクティブプロセス, 資源環境対策, Vol. 40, No. 3, pp 79-81, 2004.

- 西澤隆, 矢延孝也: 横掻式リンクスクリーンによる夾雑物対策, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 278-280, 2005.
- 西田佳記, 圓佛伊智朗, 西田光希, 松葉祐亮, 田中宏明: 放流汚濁負荷を低減する雨天時下水処理運轉管理に向けた汚泥流出リスク予測手法の検証, 学会誌「EICA」, Vol. 24, No. 2-3, pp 14-21, 2019.
- 西村文武, 和田桂子, 野口智史, 日高平, 水野忠雄, 楠田育成: 木津川上流域における河川水中有機物特性に関する研究, 京都大学環境衛生工学研究会 第 41 回シンポジウム講演論文集, Vol. 33, No. 3, pp 47-49, 2019.
- 日水コン: 電気伝導度を用いた不明水調査技術, 公式 HP, <http://www.nissuicon.co.jp/jigyou/gesuidou/denki-dendou/>, 最終閲覧日: 2021 年 2 月 3 日, 2011.
- 日本応用地質学会中国四国支部: 水の電気伝導度を測る意義, 応用地質 Q&A 中国四国版, 環境地質, pp 3\_12-3\_14, 2019.
- 日本下水道新技術機構: 下水道開発プロジェクト SPIRIT21 WEB Site, <https://www.jiwet.or.jp/spirit21/>, 最終閲覧日: 2018 年 12 月 1 日, 2010.
- 日本下水道新技術機構: 分流式下水道における雨天時浸入水対策計画策定マニュアル (2009 年 3 月), 2009.
- 日本分光: 分光蛍光光度計の基礎 WEB Site, [https://jasco-kun.blogspot.com/2013/07/blog-post\\_11.html](https://jasco-kun.blogspot.com/2013/07/blog-post_11.html), 最終閲覧日: 2018 年 12 月 1 日, 2013.
- 野口智史, 和田桂子, 西村文武, 滝澤雅子, 日高平, 水野忠雄: 木津川上流における河川水質特性に関する調査研究, 京都大学環境衛生工学研究会 第 40 回シンポジウム講演論文集, Vol. 32, No. 3, pp 37-39, 2018.
- 野沢直也, 和田安彦, 尾崎平: 合流式下水道越流水中の重金属負荷量の定量に関する研究, 第 44 回下水道研究発表会講演集, pp 289-291, 2007.
- 橋本徳幸, 中島武尚, 古賀みな子: 雨天時活性汚泥法による有機物除去, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 381-383, 2005.
- 端昭彦, 片山浩之, 春日郁郎, 真名垣聡, 大垣眞一郎: 降雨後の東京湾沿岸域におけるウイルス及び指標微生物の消長, 土木学会第 63 回年次学術講演会, No. 7-138, pp 275-276, 2008.
- 端昭彦, 稲葉愛美, 片山浩之, 古米弘明: 震災後の石巻沿岸域における腸管系ウイルス及び指標微生物の検出と検出阻害評価, 土木学会論文集, Vol. 68, pp 285-296, 2012.
- 林田恵星, 新阜輝一: スクリーンプレートパネルを用いた除塵機による合流式下水道改善技術の実用化, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 275-277, 2005.
- 樋上正晃: セラミック膜を用いた雨天時下水処理方法の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2012.
- 平川真: 既存施設の活用による雨天時高速ろ過施設の導入について, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 393-395, 2005.
- 琵琶湖淀川水質保全機構: BYQ 水環境レポート平成 22 年度版, pp 14, 2011.
- 福岡市道路下水道局計画部下水道計画課: 合流式下水道の改善, 公式 HP, <https://www.city.fukuoka.lg.jp/doro-gesuido/keikaku/hp/gouryuu.html>, 最終閲覧日: 2021 年 2 月 3 日, 2011.
- 古川清: 大阪市における雨天時下水活性汚泥処理法 (3W 処理法) について, 下水道協会誌, Vol. 39, No.

5, pp 40-43, 2002.

- 堀江信之: SPIRIT21 による合流式下水道改善技術の開発評価, 環境技術, Vol. 34, No. 10, pp 2-6, 2005a.
- 堀江信之: 下水道技術開発プロジェクト (SPIRIT21) と合流式下水道改善技術の開発研究, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 426-428, 2005b.
- 堀込純: 合流式の下水処理場における雨天時処理に関する基礎的研究, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2006.
- 松田尚之: 合流式下水道改善対策検討委員会報告について, 建設マネジメント技術 2002 年 4 月号, pp 20-26, 2002.
- 松葉祐亮: 雨天時の下水処理場における衛生微生物の制御に関する基礎検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2019.
- 松本順一郎, 西堀清六: 新版下水道工学, 1994.
- 宮崎太一郎: 分光蛍光光度計の原理と応用, 一般社団法人 日本分析機器工業会, 2018.
- 宮脇将温, 片山雅義, 山下学, 菅谷謙三: 雨天時未処理放流水等の超高速繊維ろ過技術, 第 42 回下水道研究発表会講演集, pp 447-449, 2005.
- 村中厚哉: 有機化合物の構造と色, 化学と教育, Vol. 65, No. 5, pp 246-249, 2017.
- 安井一成, 安藤貢, 吉田一子: 帯広市における合流式下水道の改善効果について, 第 55 回下水道研究発表会講演集, pp 422-424, 2018.
- 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.
- 山本高弘, 中村貴昭: 大阪市における既存施設を利用した合流式下水道の改善, 学会誌 EICA, Vol. 10, No. 2, pp 8-13, 2005.
- 吉村まりな, 山田千尋: 滋賀県における雨天時浸入水に対する取組みについて, 平成 29 年度 (第 39 回) 滋賀県土木技術研究発表会, 下水道部門, 2018.
- 李善太: 限外ろ過膜を用いた下水再生処理プロセスにおけるウイルス除去に関する研究, 京都大学大学院工学研究科博士論文, 2015.

## 第3章 河川水の衛生学的安全性へ与える雨天時下水の影響に関する実態調査

### 3.1 概説

第2章の文献調査(2.3.4.1)で述べたとおり、日本では下水道整備などによる河川水質の改善にともない、水辺でのリクリーションが希求されている。大腸菌群数が環境基準として測定されているが、衛生学的安全性の判断においては指標として不適切であるとして、環境省では大腸菌数に変更する予定としている。しかし、指標としての大腸菌数には腸管系ウイルスなどの病原微生物の代表性が懸念されている。特に、淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の先行研究(Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016)では、桂川下流域の下水処理場放流口の下流側河川水中の微生物濃度について、指標微生物の *E. coli*, TC は上流側河川水からの微生物汚染が、指標候補微生物の FPH や病原微生物の GI, GII-NoV は下水処理場放流口からの影響が強いと推察された(2.3.2.2 参照)。

本章では、この先行研究(Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016)を参考にして、下水処理放流水・河川水に含まれる衛生微生物の降雨時での存在実態を、河川・下水処理場調査により、検出濃度や放流量・河川流量より推定(3.7 参照)した負荷量で検討する(3.8.1, 3.8.2 参照)。また、非降雨時での先行研究に対しても微生物負荷量を推定し(3.7 参照)、非降雨時・降雨時で比較して降雨による負荷量上昇の程度を検討する(3.8.3 参照)。具体的には、流域に大都市がある桂川水系において、下水処理放流水・河川水に含まれるウイルスなどの病原微生物と、大腸菌や大腸菌フェージなどの指標微生物及び指標候補微生物の降雨時での存在実態を、特に非降雨時と比較する。これにより、降雨による下水処理放流水・河川水に含まれる衛生微生物の存在実態の変化を、検出濃度、下水処理放流量及び河川流量を考慮して明らかにする(目的1)。特に、桂川下流域にある都市の大部分は合流式下水道を採用しているため、処理能力が最も大きい下水処理場での雨天時実態の調査は、重要であると考えられる。

本章の実態調査により、下流の水道水源とリクリーション利用での安全性を議論し、河川水質管理と、その流域での下水道などの対策の検討につながることを期待される。将来的には、水の利用における健全な水循環を維持し、水の利用が水循環に及ぼす影響を軽減し、第2章(2.5.2)で述べた川づくりに関わる各主体により総合的な対応を図ることを見据えている。目的1を果たすことで、流域での下水道と水道やリクリーションなどの、水利用者の衛生学的安全性を一層確保することに貢献できると考えられる。

### 3.2 調査対象の衛生微生物の概要(白坂, 2017)

まず、指標微生物としては、TC, *E. coli* に注目した。TC は現在の水質基準における衛生指標細菌である。一方で、TC は土壌由来の細菌等を内包し、ヒト糞便汚染を適切に反映していないと思われる状況が見られるため、現在、環境省において *E. coli* への衛生指標の変更が検討されている(山口ら, 2020)。

次に、病原微生物としては、GI, GII-NoV (Kageyama *et al.*, 2003) に注目した。NoV はカリシウイルス科に属し、約 7,500 塩基の一本鎖(+) RNA をゲノムに持つウイルスであり、直径約 38 nm の正二十面体のカプシドに RNA が覆われた構造を取っている。NoV は現在 GI, GII, GIII, GIV, GV-NoV の 5 つの遺伝子群に分類され、GI-NoV はさらに 9 種類の遺伝子型(GI.1~GI.9)に、GII-NoV は 22 種類の遺伝子型(GII.1~GII.22)に分類される。ヒトに感染力を持つのは GI, GII, GIV-NoV であり、GIII-NoV はウシに、GV-NoV はネズミに感染力を持つ(Oliver *et al.*, 2003; Wobus *et al.*, 2006)。また、GI-NoV に分類されるのはヒトに感染する株のみであるが、GII-NoV はブタに、GIV-NoV はライオンに感染する株も存在するこ

とが報告されている (Nakamura *et al.*, 2010; Martella *et al.*, 2007). さらに, NoV は遺伝子配列が変異しやすく, 特に GII-NoV は流行する遺伝子型の変遷が確認されている. 2002 年以降は GII.4 遺伝子型によるアウトブレイクが頻繁に発生していたが (Menon *et al.*, 2010), 2014/15 シーズンには GII.17 遺伝子型が主要流行株に転じ (Matsushima *et al.*, 2015), 2016/17 シーズンでは GII.2 遺伝子型が主要流行株に転じた (松島ら, 2017).

最後に, 指標候補微生物としては, FPH 及び PMMoV (Zhang *et al.*, 2006) に注目した. FPH は一本鎖 (+) RNA が直径約 26 nm の正二十面体の capsid に覆われた構造を持ち, 多くの水系感染病原ウイルスと構造や大きさが類似している. FPH は GI~GIV の 4 種類の遺伝子群に分類され, GI-FPH は MS2, GII-FPH は GA, GIII-FPH は Q $\beta$ , GIV は SP がそれぞれ代表株である. ヒト糞便からは GII, GIII-FPH が主に検出され, ブタ・ウシ・カモメなどの動物糞便からは GI, GIV-FPH が検出される (Havelaar *et al.*, 1990; Hsu *et al.*, 1995). 一方で, GI-FPH がヒトから (Cole *et al.*, 2003), GII-FPH がブタから (Hsu *et al.*, 1995) 検出された事例も存在する. 環境試料からの FPH の検出について, 以前は F 繊維を持つ大腸菌である *E. coli* K12 F+ が宿主細菌として用いられていたが, 現在はサルモネラ菌に F 繊維を組み込んだ *Salmonella typhimurium* WG49 を用いた手法が主流である (Mooijman *et al.*, 2002). 近年では, RT-qPCR をはじめとする, 遺伝子型別に検出・定量する手法が開発されている (Wolf *et al.*, 2008) ため, 本調査では Mooijman *et al.* の手法のブラック形成法による FPH (Mooijman *et al.*, 2002) と, 定量 real-time-PCR (以下 RT-qPCR) の手法による GI, GII, GIII-FPH (Wolf *et al.*, 2008) の両方に注目した. FPH は水環境中でのウイルス指標の候補として挙げられており (Sobsey *et al.*, 1995), 海水中での挙動が腸管系アデノウイルスと類似していることや (Jiang *et al.*, 2001), 特に GII がアデノウイルスと高い相関が得られることが報告されている (Ogorzaly *et al.*, 2009). しかし, ノロウイルスなどの環境中での挙動は FPH と異なることが指摘されている (Haramoto *et al.*, 2008). また, FPH は遺伝子型によって水処理耐性や環境水中での生残性が異なることが報告されている. 特に GI-FPH は他の遺伝子型や腸管系ウイルスに比べて, 塩素消毒や紫外線消毒に対する耐性及び環境水中での生残性が高いと報告されている (Tree *et al.*, 2003; Long *et al.*, 2004). 各遺伝子群の FPH の環境中での存在割合は地域差が大きい, GIV-FPH が検出されることは稀である (Wolf *et al.*, 2008; Ogorzaly *et al.*, 2009).

一方, PMMoV はピーマンやトウガラシにモザイク病を引き起こす植物ウイルスである. トバモウイルス属に属し, 一本鎖 (+) RNA をゲノムに持つウイルスであり, 長径 300 nm, 短径 20 nm の棒状構造を取っており, 腸管系ウイルスとは大きく異なる. ヒト糞便中のウイルスを対象としたメタゲノム解析の結果, PMMoV が最も豊富に存在する RNA ウイルスであり, 糞便 1 g あたり  $10^6$ ~ $10^9$  Copies の PMMoV が存在すると報告されている (Zhang *et al.*, 2006). PMMoV に感染したトウガラシ等を加工したチリソースやカレー等の食品を摂取することでヒト体内に侵入し, ヒトに感染して増殖することはなく, 年中ほぼ一定の濃度で排出される (Rosario *et al.*, 2009). PMMoV は食事由来でヒト体内に侵入するウイルスであるため, 健常者からも排出されることや, 多くの病原ウイルスが持つ流行期が存在しないため, 検出濃度の季節変動が小さいことが考えられる. 環境試料からの検出事例については, 下水試料や河川試料, 海水試料から高濃度かつ高頻度で検出される事例が報告されている (Haramoto *et al.*, 2013; Kitajima *et al.*, 2014; Symonds *et al.*, 2016). また, ヒト以外の動物糞便からも検出された事例は存在するが, ヒト糞便と比較すると検出濃度は極めて低いため, 環境水試料から検出される PMMoV の大部分はヒト糞便由来であると示唆される (Rosario *et al.*, 2009; Hamza *et al.*, 2011). 以上のことから, PMMoV はヒト糞便汚染の指標と

して近年注目されてきている (Rosario *et al.*, 2009; Kuroda *et al.*, 2015; Symonds *et al.*, 2016).

### 3.3 調査対象の淀川水系における桂川流域の概要

淀川水系の流域は、三重、滋賀、京都、大阪、兵庫及び奈良の2府4県にまたがり、流域面積は8,240 km<sup>2</sup>、流域内の人口は1,198万人、水需要区域内の人口は1,720万人の、日本を代表する水系のひとつである(琵琶湖淀川水質保全機構, 2013). 桂川は京都府内を流れる淀川の主要な支川で、流域面積1,100 km<sup>2</sup>、幹線流路延長114 kmの1級河川である(国土交通省, 2008). 京都市左京区大悲山付近を源流とし、京都市右京区京北地区を西へ横断し、南丹市の世木ダム、日吉ダムを經由して亀岡盆地を南に流れる。亀岡市を南に縦断し、保津峡を經由して嵐山で京都盆地を南に流れる。京都市伏見区で鴨川と合流し、大阪府境付近の乙訓郡大山崎町で宇治川、木津川と合流し淀川となる。桂川流域の特色については、桂川上流域では北山杉の生産地であることから林業が盛んで、中流域の保津峡や嵐山、下流域の鴨川合流、宇治川及び木津川との三川合流など、京都を代表する観光地を有することが挙げられる。また、流域内人口は約180万人であるが、そのうちの約8割が京都市域に集中している(小山ら, 2005).

また、水循環の観点では、桂川の下流側に続く淀川の主な流域である大阪府域で、繰り返し利用される。年間流出量に占める水利用の割合は約60%と言われており(琵琶湖淀川水質保全機構, 2008a), 大阪府域では淀川下流への影響を懸念して、下水処理水を全て淀川以外の河川に放流している(琵琶湖淀川水質保全機構, 2008b). 下水道整備や排水規制などでこれまでのBODやSSなどの汚染指標については水質改善がみられてきた。その一方で、下水処理放流水、浄化槽及び工場からの排水には、これ以外にも病原微生物、微量化学物質が含まれていることが知られてきており、水利用や生物保全の視点から依然課題が残っている可能性がある。特に、病原微生物については、下流の水道水源として、あるいは水質改善に伴うリクレーション利用の視点からも、現状把握と評価が重要となりつつあるが、大腸菌群数以外の視点からの知見は十分ではない。

### 3.4 調査概要

#### 3.4.1 採水地点

降雨時調査(井原ら, 2018)において、主にB下水処理場(図3-1, B)の放流水(図3-2)と、放流先である桂川の約1.7 km上流側地点(久世橋: 図3-1, 地点A)及び、約5.6 km下流側地点(宮前橋: 図3-1, 地点D)の表層水を採水した。久世橋(地点A)、宮前橋(地点D)における流量は、それぞれ桂・納所の各観測所(図3-1, 名称表記)における水位の観測値(国土交通省, 2018)より、水位流量曲線(H-Q式)を用いて推定した。なお、久世橋から宮前橋までの区間内において直接的に処理水を放流している下水処理場は、B下水処理場の他にE下水処理場(図3-1, E)がある。また、第2章(2.3.4.1)の図2-9で示したように、下水処理場以外には、合流式下水道の雨水吐が鴨川をはじめとした複数の河川沿いに位置していると見込まれる。

採水を行った桂川の地点A、Dの概要を表3-1(花本, 2010)に、B及びE下水処理場の概要を表3-2(京都市, 2017)に示す。杉下による桂川区間での流量収支の検討では、桂地点から河川流量・下水処理放流量を地点D手前まで積算し、納所地点の実測流量と比較した(杉下, 2009)。その結果、積算流量/実測流量の割合が75~118%となり、桂川の上流での河川流量と下水処理放流量の収支が概ね取れていることが示唆された(杉下, 2009)。これにより、河川流量と下水処理放流量から各河川地点における



図 3-1 採水地点位置. 黒字（白丸）は河川地点（田中ら,2016; 井原ら,2018）, 白抜き字（黒丸）は下水処理場を示す. 赤字で表記の桂・羽束師及び納所は, 水位・流量の観測地点を示す. 橙字で表記の天神橋地点のある西高瀬川では, 河川水がほとんど下水処理場からの放流水である.

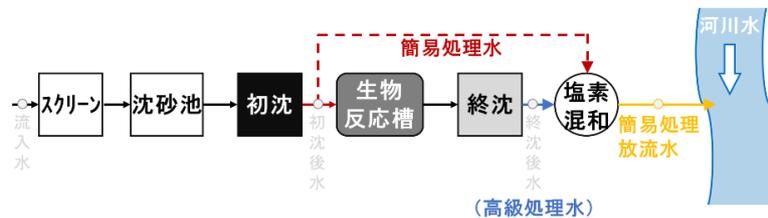


図 3-2 B 下水処理場の採水地点. 降雨時調査（井原ら,2018）において, 場内の放流きょ内で下水処理放流水を 24 時間で連続採水し, 簡易処理放流水の採水を試みた. なお, B 下水処理場における簡易処理とは生物反応槽・最終沈殿池をバイパスさせることである（第 2 章 2.2.2 参照）.

下水処理放流水の混入割合が計算できる（表 3-1）. その結果, B 下水処理場の約 5.6 km 下流側に位置する宮前橋（地点 D）では, 低水流量時には河川水の約 41 %が下水処理放流水と見積もられた（花本, 2010）. 一方, B 下水処理場の 1.7 km 上流側に位置する久世橋（地点 A）においても, 低水流量時には下水混入割合が約 5 %と見積もられた（花本, 2010）. これは, 久世橋のさらに上流域にも, 上流に位置する下水処理場から下水処理水が放流されているためである. また, その地域では, 下水道の普及率は, 中流域に比べてやや低く, 浄化槽などの排水も, 上流域には流入している. なお, 図 3-1 に橙字でプロットした天神橋地点のある西高瀬川では, 河川水がほとんど下水処理場（B, E 下水処理場）からの放流水である. よって, 下水処理放流水の占める割合は, 低水流量時にはほぼ 100 %と考えられる（花本, 2010）. B 下水処理場からの放流先は桂川と西高瀬川の 2 河川である. 本調査では桂川への放流水を採水した. 特に, 桂川への放流する 2 つの処理系のうち日平均放流量が 364,000 m<sup>3</sup> 程度（京都市, 2017）と大きい 1 つの処理系の放流水を採水した.

表 3-1 河川地点の概要 (花本, 2010).

地点名	本研究における位置付け	流量 (m <sup>3</sup> /s)	上流にある主な下水処理場	下水処理場放流水量合計(m <sup>3</sup> /s)	下水処理場放流水の混入割合
天神橋	西高瀬川下流地点	2.28	㊸ 西高瀬川放流, ㊹	2.28	≒ 100%
久世橋	桂川上流地点 (調査区間起点 ㊶)	7.20	その他2箇所	0.33	5%
宮前橋	桂川下流地点 (調査区間終点 ㊺)	18.51	上記4箇所, ㊸ 桂川放流	7.52	41%

表 3-2 下水処理場の概要 (京都市, 2017).

下水処理場	処理方式	処理面積 (ha)	処理人口 (人)	日平均下水量 (m <sup>3</sup> /d)	水処理方法	放流先河川名
㊸	合流式 分流式	8,281	789,100	957,000	嫌気好気活性汚泥法+砂ろ過法	西高瀬川
					嫌気無酸素好気法+砂ろ過法	
					ステップ流入式多段硝化脱窒法	
					標準活性汚泥法	桂川 (調査区間内)
					標準活性汚泥法	
					嫌気好気活性汚泥法	
㊹	合流式 分流式	587	86,200	74,000	ステップ流入式多段硝化脱窒法	西高瀬川
					酸素活性汚泥法+オゾン酸化法	
					ステップ流入式多段硝化脱窒法+オゾン酸化法	

一方、降雨時との比較対象である、2014年～2015年に実施した非降雨時調査(田中ら, 2016)では、B下水処理場からの放流水は桂川に放流する2つの処理系の全てを採水した。また、微生物負荷量の推定により比較検討するうえで、桂川の下流地点を、B下水処理場放流口より約2.6km下流側の羽束師橋(図3-1, 地点C)とした。なお、羽束師橋(地点C)の水位及び流量の値は、直上の羽束師の観測所での測定値(国土交通省, 2018)を用いた。

### 3.4.2 採水日

非降雨時調査(Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016)では、2014年6月から2015年6月までの期間、計14回の採水を行った。採水方法は、全ての地点でスポット採水とした。特にB下水処理場の放流水は、場外の放流口付近で手採水を行った。また、久世橋(地点A)、羽束師橋(地点C)における河川水の採水は、毎回とし、流心の表層水に対し手採水を行った。

一方、降雨時調査(井原ら, 2018)では、2018年3月8日～9日(1回目調査)及び3月15日～16日(2回目調査)の2回、連続採水を行った。採水方法は、全ての地点で24回のスポット採水とした。特にB下水処理場の放流水は、定置式自動採水器LYSAM-SN(NKS社製)を用いて、場内の放流きよから1時間に1回の頻度で24時間採水を行った。また、久世橋(地点A)、宮前橋(地点D)における河川水の採水は、1回目調査のみとし、流心の表層水に対しそれぞれ1回、2回の手採水を行った。

調査日・採水時刻及び採水前の降雨量の総和を表3-3に示す。この降雨情報は、B下水処理場放流口より北方向へ約7.2kmに位置する京都气象台(東経135度43分54秒, 北緯35度0分54秒)にて観測された降雨量データ(気象庁, 2018)から、調査開始時刻の過去24時間の降雨量の総和を算出したものである。また、各調査についての対象微生物測定の有無を表3-4に示す。また、降雨時調査期間中の2018

年3月8～9日、3月15～16日における、京都気象台の降雨強度（気象庁, 2018）と桂川のB下水処理場放流口の上流側（桂観測所）及び下流側（納所観測所）での水文水質データベース（国土交通省, 2018）から得た水位情報を、それぞれ図3-3、図3-4に示す。

表3-3 調査日・採水時刻及び採水前の降雨量。降雨量は、京都気象台（35.015N, 135.732E）で24時間観測された時間雨量（気象庁, 2018）の総和。観測時間は調査前日の午後9時から調査日の午後9時まで。－印は未採水。

調査日	採水時刻				降雨量 (mm)
	Ⓐ久世橋	Ⓑ下水処理場放流口	Ⓒ羽束師橋	Ⓓ宮前橋	
2018.03.08-09	03.08 20:00	03.08 21:00 ~ 03.09 20:00	—	03.08 21:00 22:00	26
2018.03.15-16	—	03.15 21:00 ~ 03.16 20:00	—	—	0.0

表3-4 調査日ごとの各採水地点における対象微生物測定の有無（井原ら, 2018）。第2章で紹介した Hata *et al.*, 田中らによる 2014, 2015 年度の非降雨時での実態調査（Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016）の先行研究事例を併せて示す。○印は測定有り、－印は測定無し。

調査日	採水地点			
	Ⓐ	Ⓑ	Ⓒ	Ⓓ
2014.06.10	○	○	○	—
2014.06.18	○	○	○	—
2014.07.16	○	○	○	—
2014.07.31	○	○	○	—
2014.08.27	○	○	○	—
2014.10.23	○	○	○	—
2014.12.03	○	○	○	—
2014.12.18	○	○	○	—
2015.02.04	○	○	○	—
2015.02.18	○	○	○	—
2015.03.26	○	○	○	—
2015.04.27	○	○	○	—
2015.05.26	○	○	○	—
2015.06.24	○	○	○	—
<b>2018.03.08-09</b>	○	○	—	○
<b>2018.03.15-16</b>	—	○	—	—

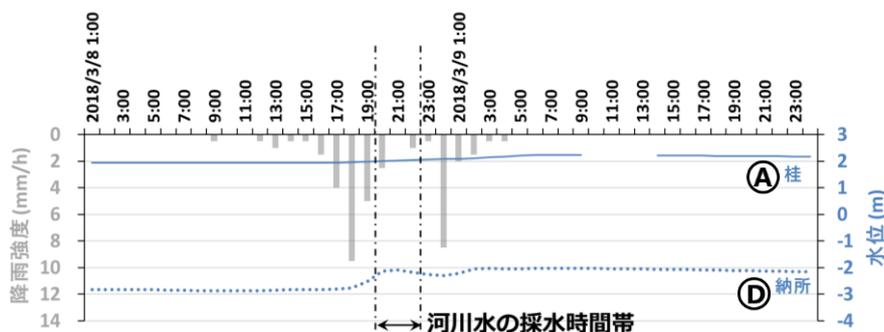


図3-3 降雨時調査の2018年3月8日～9日（1回目調査）の期間における降雨強度及び桂川水位。降雨強度は京都気象台のデータ（気象庁, 2018）を、桂川水位はB下水処理場放流口上流側の桂観測所及び下流側の納所観測所のデータ（国土交通省, 2018）を用いた。桂観測所の水位データには欠測あり。

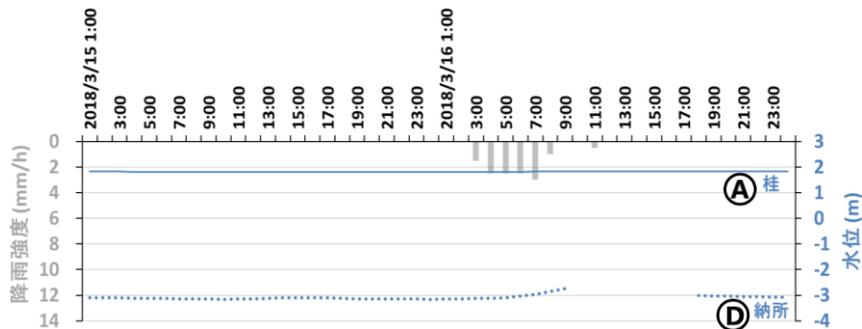


図 3-4 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日（2 回目調査）の期間における降雨強度及び桂川水位。降雨強度は京都気象台のデータ（気象庁, 2018）を、桂川水位は B 下水処理場放流口上流側の桂観測所及び下流側の納所観測所のデータ（国土交通省, 2018）を用いた。桂観測所の水位データには欠測あり。

### 3.5 分析方法

#### 3.5.1 培養法による衛生微生物の検出

本調査では、試料水中の *E. coli*、TC 及び FPH を、培養法により測定した。なお、雨天時調査の試料には、予めチオ硫酸ナトリウムを適正に加え、残留塩素による不活化を防止した。

##### 3.5.1.1 *E. coli*、TC の検出

*E. coli*、TC は XMG 寒天培地（ニッスイ）を用いた平板培養法により検出、定量した。試料 1 mL もしくは 5 mL をシャーレに添加し、寒天培地と混釈し、培地を固化させた後 37°C で一晩培養した。培養操作の後に形成したコロニーを計数し、存在濃度を求めた。なお、流入水試料など濃度が高いと考えられる試料についてはリン酸緩衝液（pH 7.0）により適宜希釈した後、同様の操作に供した。

##### 3.5.1.2 FPH の検出

FPH は宿主として *Salmonella typhimulium* WG49（WG49）を用いたブラック形成法（Mooijman *et al.*, 2002）により検出、定量した。トリプトン 1%、塩化ナトリウム 0.8%、グルコース 0.1%（それぞれ w/v）を含む寒天培地及び対数増殖期に達した WG49 適量と試料 5 mL をシャーレ上で混釈し、培地を固化させた後 37°C で一晩培養した。培養操作の後に形成したブラックを計数し、存在濃度を求めた。なお、流入水試料など濃度が高いと考えられる試料についてはリン酸緩衝液（pH 7.0）により適宜希釈した後、同様の操作に供した。また、特に濃度が低いと考えられる試料については、1 試料あたりに 10 枚のシャーレを用いることで、50 mL からの検出とした。

#### 3.5.2 RT-qPCR による衛生微生物の検出

本調査では、試料水中のウイルスを、一次・二次の濃縮操作に供したのち、定量 PCR 法により測定した。ウイルス濃縮操作及び定量 PCR 法による遺伝子の検出について、以下に述べる。

##### 3.5.2.1 ウイルス濃縮操作

試料中のウイルスは、Katayama *et al.* の手法（陰電荷膜法）により濃縮した。陰電荷膜法とは、多価の陽イオン存在下でウイルスが陰電荷膜に吸着する性質を利用した手法である（Katayama *et al.*, 2002）。

試料に終濃度 25 mM で 2.5 M 塩化マグネシウム水溶液を添加し、ニトロセルロース膜 (type HA, Millipore 社製, 孔径 0.45  $\mu\text{m}$ , 口径 90 mm) に通水した (吸着工程). 通水過程で膜に目詰りが生じた場合は通水を取りやめ, 次の操作に移行した. 続いて 0.5 mM 硫酸 (pH 3.0) 200 mL を膜に通水した (酸洗浄工程). さらに, 1.0 mM 水酸化ナトリウム水溶液 10 mL を膜に通水し, ろ液を捕集した (アルカリ誘出工程). ろ液は 0.5 mM 硫酸 50  $\mu\text{L}$  及び 100 $\times$  TE-Buffer (和光純薬社製) 100  $\mu\text{L}$  と混合し, これを一次濃縮液とした. 一次濃縮液全量を遠心式 UF 濃縮ユニット (centriprep YM-50, Millipore 社製) による濃縮操作に供し, 約 650  $\mu\text{L}$  の二次濃縮液を得た. 濃縮水量は最大 2 L である.

### 3.5.2.2 FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH), RNA ウイルス遺伝子の検出

二次濃縮液を用い, RT-qPCR による RNA 定量を試みた. PCR (polymerase chain reaction: ポリメラーゼ連鎖反応) 法とは, 目的の DNA 断片を大量に増幅して遺伝子を検出する手法である. 水中ウイルスの検出法として 1990 年代から広く用いられ, TaqMan®プローブを用いて, 蛍光強度から定量値を得る RT-qPCR 法等の定量法も開発されてきた (Heid *et al.*, 1996).

まず, 二次濃縮液 140  $\mu\text{L}$  より, QIAamp viral RNA mini kit (Qiagen 社製) による RNA 抽出操作に供し, RNA 抽出液 60  $\mu\text{L}$  を得た. また, 試料中の検出阻害物質の影響評価を目的とし, RNA 抽出直前の二次濃縮液にマウスノロウイルスを終濃度  $2.2 \times 10^3$  copies/ $\mu\text{L}$  となるように添加した (Hata *et al.*, 2011). RNA 抽出液は使用直前まで  $-30$   $^{\circ}\text{C}$  で冷凍保存した. RNA 抽出液 2.5  $\mu\text{L}$  を high performance reverse transcription kit (Life technologies 社製) による逆転写反応 (reverse transcription; RT) に供し, cDNA 5  $\mu\text{L}$  を得た. 得られた cDNA 5  $\mu\text{L}$  から, qPCR による各種ウイルス遺伝子の検出を試みた.

測定対象は GI, GII-NoV (Kageyama *et al.*, 2003), PMMoV (Zhang *et al.*, 2005), GI, GII, GIII の各遺伝子群 (FRNAPHs) の GI, GII, GIII-FPH (Wolf *et al.*, 2008) とした. なお, プライマー及び TaqMan プローブは, 既往文献記載のもの (Kageyama *et al.*, 2003; 北島ら, 2008; Zhang *et al.*, 2006; Wolf *et al.*, 2008) を使用した (白坂, 2017).

## 3.6 河川流量の推定及び下水処理放流水量の入手方法

### 3.6.1 非降雨時調査 (2014, 2015 年度の先行研究)

第 2 章で紹介した Hata *et al.*, 田中らによる 2014・2015 年度の非降雨時での実態調査 (Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016) の期間の 2014 年 6 月~2015 年 6 月 (計 14 回) の桂川河川流量は, 以下のように推定した.

桂川の B 下水処理場放流口の上流側地点 A (桂観測所), 下流側地点 C (羽束師観測所) における河川流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) については, 水文水質データベース (国土交通省, 2018) から各調査日の日平均流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) のデータを手に入れた. また, 下流側の羽束師観測所においてデータ欠測がみられた 2014 年 6 月 18 日, 7 月 31 日及び 12 月 18 日の日平均流量は, 2014 年の羽束師観測所と納所観測所での同日での日平均流量の関係式 (図 3-5,  $n=194$ ) から推定した. 一方, B 下水処理場の下水処理放流水量は, 3.3.1 で示した通り採水箇所が降雨時調査 (2017 年度) とは異なるが, 解析の便宜上, 雨天時調査と同様の処理系のみを対象とし, 管轄の下水道管理者より全 14 調査日の時間流量 ( $\text{m}^3/\text{h}$ ) を入手した. 各採水地点における日平均流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) を, 表 3-5 に示す. 以上により得られた河川流量及び下水処理放流水量は, 各微生物の負荷量の推定に供した (3.7 で後述).

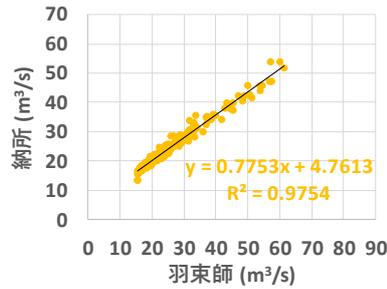


図 3-5 2014 年の羽束師観測所と納所観測所における同日での日平均流量（国土交通省, 2018）の関係式（井原ら, 2018）.  $n = 194$ .

表 3-5 非降雨時調査（2014・2015 年度）における各採水地点での日平均流量（井原ら, 2018）. A, C は河川流量. B は B 下水処理場の下水処理放流量. C の括弧内数値は地点 D の流量からの推定値. B は桂川放流の 2 つの処理系のうち日平均放流量の多い 1 つの処理系のものである. -印はデータ未取得.

調査日	日平均流量 (m³/s)			
	(A)	(B)	(C)	(D)
2014.06.10	13.37	3.15	18.09	—
2014.06.18	9.94	2.85	(8.91)	11.67
2014.07.16	11.35	3.10	15.64	—
2014.07.31	9.40	3.05	(8.78)	11.57
2014.08.27	47.89	3.75	73.26	—
2014.10.23	13.78	3.16	19.73	—
2014.12.03	11.30	2.86	16.22	—
2014.12.18	11.05	3.01	(16.12)	17.26
2015.02.04	30.04	3.11	44.55	—
2015.02.18	27.49	3.42	38.59	—
2015.03.26	27.96	3.06	39.07	—
2015.04.27	25.07	3.17	35.26	—
2015.05.26	15.78	3.07	20.05	—
2015.06.24	27.80	3.35	40.42	—

### 3.6.2 降雨時調査（2017 年度）

本章の降雨時調査期間中の 2018 年 3 月 8 日～9 日（1 回目調査）及び 3 月 15 日～16 日（2 回目調査）における桂川の河川流量は、以下の方法で推定した。

まず、桂川の B 下水処理場放流口の上流側地点 A（桂観測所）、下流側地点 D（納所観測所）における水位（m）の時系列データは、水文水質データベース（国土交通省水管理・国土保全局, 2018）より入手した。管轄の河川管理者より入手した H-Q 式に基づき、時間流量（m³/s）を推定した。本調査で用いた H-Q 式は、桂地点では  $Q = 217.90 \times (H - 1.49)^2$ 、納所地点では  $Q = 32.42 \times (H + 4.13)^2$  である。1 回目調査・2 回目調査における、時間流量（m³/s）の推定結果を、それぞれ図 3-6、図 3-7 に示す。B 下水処理場における通常の高級処理水量、簡易処理水量は、時間流量（m³/h）を管轄の下水道管理者より提供を受け、その数値から 1 秒当たりの放流量（m³/s）を算出した。1 回目調査及び 2 回目調査における下水処理放流量の経時変化を、それぞれ図 3-8、図 3-9 に示す。参考に、各採水地点における下水処理放流水の連続採水時間帯（24 時間）での平均流量（m³/s）を、表 3-6 に示す。以上により得られた河川流量・下水処理場放流量は、各微生物の負荷量の推定に供した（3.7 で後述）。

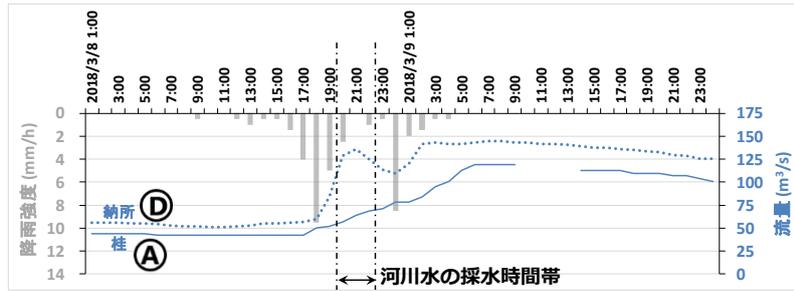


図 3-6 降雨時調査の 2018 年 3 月 8 日～9 日（1 回目調査）における河川の時間流量の推定値及び降雨強度（気象庁, 2018）. H-Q 式により，水位（m）のデータから流量（ $\text{m}^3/\text{s}$ ）を推定した．納所観測所の流量の一部欠損は，水位データの欠測によるものである．

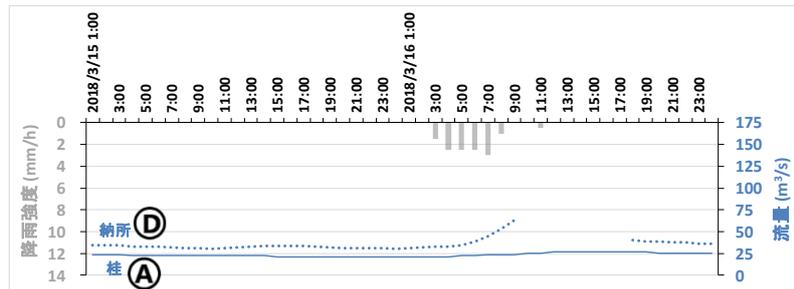


図 3-7 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日（2 回目調査）における河川の時間流量の推定値及び降雨強度（気象庁, 2018）. H-Q 式により，水位（m）のデータから流量（ $\text{m}^3/\text{s}$ ）を推定した．納所観測所の流量の一部欠損は，水位データの欠測によるものである．

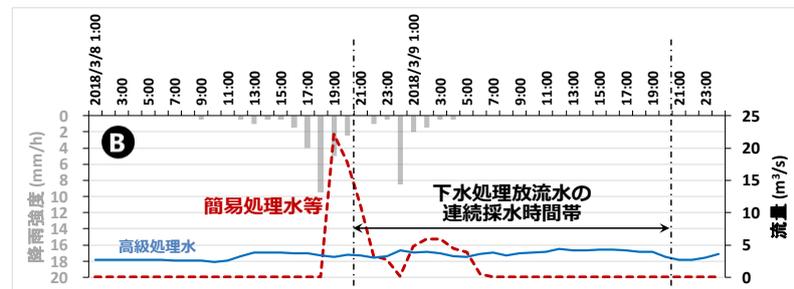


図 3-8 降雨時調査の 2018 年 3 月 8 日～9 日（1 回目調査）における B 下水処理場の下水処理放流水量の経時変化．通常の高級処理水，簡易処理水等の時間流量（ $\text{m}^3/\text{s}$ ）を表示．なお，B 下水処理場における簡易処理とは生物反応槽・最終沈殿池をバイパスさせることである（第 2 章 2.2.2 参照）．

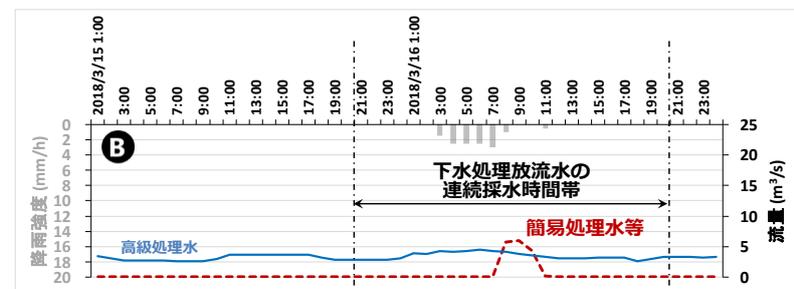


図 3-9 降雨時調査の 2018 年 3 月 15 日～16 日（2 回目調査）における B 下水処理場の下水処理放流水量の経時変化．通常の高級処理水，簡易処理水等の時間流量（ $\text{m}^3/\text{s}$ ）を表示．

表 3-6 降雨時調査の採水地点における連続採水時間帯（24 時間）での平均流量（国土交通省,2018）. 河川流量の括弧内の数値は, H-Q 式に基づく推定値である. B 下水処理場の下水処理放流量は, B 処理場を管轄する下水道管理者より提供を受けた. 一印の地点 C では採水せず.

調査日	連続採水時間帯での平均流量 (m <sup>3</sup> /s)			
	Ⓐ	Ⓑ	Ⓒ	Ⓓ
2018.03.08-09	[ 116.29 ]	5.54	—	[ 134.09 ]
2018.03.15-16	[ 24.07 ]	4.14	—	[ 37.45 ]

### 3.7 衛生微生物負荷量の推定方法

桂川の地点 A, C 及び D の表層水中, ならびに B 下水処理場の放流水中の微生物負荷量は, 微生物濃度と, 河川流量または下水処理放流量（図 3-6, 図 3-8, 図 3-9 及び表 3-5）の値を用いて, 1 時間あたりの負荷量（CFU/h, PFU/h, Copies/h）を算出した. 参考のため, 桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場の位置関係の概略を図 3-10 に, 各地点での降雨情報を表 3-7 に示す.

なお, 非降雨時と降雨時の比較において, 桂川の採水地点 D（降雨時調査）と地点 C（非降雨時調査）は約 3.0 km 離れているが, B 下水処理場放流口の同じ下流側として, 同じように比較した.

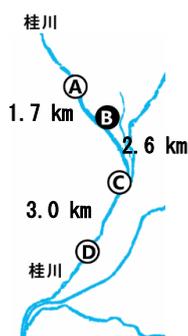


図 3-10 桂川の採水地点 A, C, D 及び B 下水処理場の位置関係. 数字は各区間の流下距離を示す.

表 3-7 2014, 2015, 2017 年度の各調査の降雨情報とデータ数（井原ら, 2018）. 第 2 章での 2014・2015 年度の非降雨時での実態調査（Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016）の先行研究事例. 一印は未採水.

調査	データ数				降雨量 (mm)
	Ⓐ久世橋	Ⓑ下水処理場放流口	Ⓒ羽束師橋	Ⓓ宮前橋	
2014 年度	11	11	11	—	0.0
2015 年度	3	3	3	—	0.0
2018.03.08-09	1	24 (簡易処理の時間帯: 11)	—	2	25.5
2018.03.15-16	—	24	—	—	0.0

### 3.8 調査結果及び考察

#### 3.8.1 衛生微生物の検出濃度

##### 3.8.1.1 培養法による *E. coli*, TC 及び FPH の検出傾向

2018 年 3 月 8 日～9 日, 15 日～16 日に実施された 2 度の降雨時調査により得られた, B 下水処理場の

下水処理放流水，下水処理場の上流側地点 A，下流側地点 B の河川水における 1 時間あたりの *E. coli*，TC 及び FPH の濃度変化を，図 3-11 に示す。

*E. coli* の下水処理放流水中濃度は，1 回目の調査では，簡易処理の発生時に最大  $1.5 \times 10^6$  CFU/L の濃度で検出された。簡易処理終了後，その濃度は徐々に低下し， $6.0 \times 10^2$  CFU/L であった。1 回目の調査では，簡易処理が始まって *E. coli* の濃度が上昇し始めるタイミングでの採水が出来ていなかったと考えられる。それでも，簡易処理放流の発生により，約 2,500 倍に濃度が増加したと考えられる。2 回目の調査においても簡易処理放流の発生に伴い， $4.2 \times 10^4$  CFU/L~ $1.6 \times 10^6$  CFU/L まで，約 150 倍に濃度が増加した。1 回目調査において，下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $5.5 \times 10^3$  CFU/L，地点 D では約  $8.2 \times 10^5$  ~ $1.2 \times 10^6$  CFU/L で検出され，B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 150~200 倍程度に検出濃度が増加したと考えられた。

TC の下水処理放流水中濃度は，1 回目の調査で  $1.5 \times 10^4$ ~ $9.7 \times 10^6$  CFU/L の範囲で変動した。簡易処理の発生により，約 300 倍に濃度が増加したと考えられる。2 回目の調査でも，簡易処理の発生に合わせて約 100 倍に濃度が増加した。1 回目調査において，下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $4.7 \times 10^4$  CFU/L，地点 D では約  $3.1 \times 10^6$ ~ $3.5 \times 10^6$  CFU/L で検出され，B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 50~100 倍程度に検出濃度が増加したと考えられた。

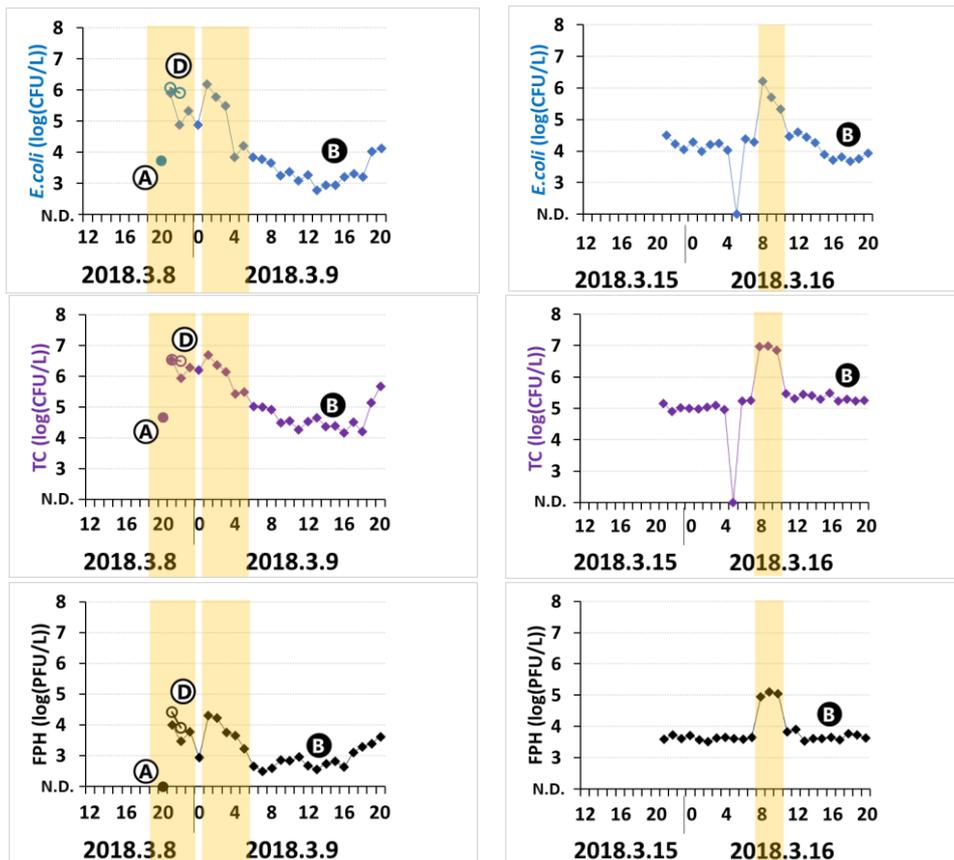


図 3-11 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水（下水処理場の上流側地点 A，下流側地点 B）における 1 時間あたりの *E. coli*，TC 及び FPH の濃度変化 (log(CFU/L), log(PFU/L))。左図は 3 月 8 日～9 日の 1 回目調査の結果，右図は 3 月 15 日～16 日の 2 回目調査の結果を示す。上から *E. coli*，TC，FPH。不検出 (N.D.) 試料分を下端に示す。ハイライトは簡易処理の時間帯を示す。

FPH の下水処理放流水中濃度は、1 回目の調査では、簡易処理の発生時に最大  $2.0 \times 10^4$  PFU/L の濃度で検出され、簡易処理終了後 ( $3.1 \times 10^2$  PFU/L) と比べて約 60 倍に増加していた。2 回目の調査でも  $4.2 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^5$  PFU/L まで増加したことから、簡易処理の発生に合わせて 40 倍程度の濃度の増加が確認された。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $1.0 \times 10^2$  PFU/L、地点 D では約  $7.9 \times 10^3 \sim 2.6 \times 10^4$  PFU/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 100~300 倍程度に検出濃度が増加したと考えられた。

以上のように、1 回目、2 回目の調査ともに、簡易処理による下水処理放流水中の濃度変化幅は、FPH に比べて *E. coli* の方が大きいことが分かった。これらの結果から、FPH に比べて *E. coli* の方が、簡易処理の際に通常時に比べて下水処理放流水中の濃度が上昇しやすいと示唆される。また、簡易処理放流水による上下流側河川水中の濃度変化幅は、*E. coli* に比べて FPH の方が大きいことが分かった。これらの結果から、*E. coli* に比べて FPH の方が、簡易処理の際に通常時に比べて河川水中の濃度が上昇しやすいと示唆される。

### 3.8.1.2 RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子の検出傾向

2018 年 3 月 8 日~9 日、15 日~16 日に実施された 2 度の降雨時調査により得られた、B 下水処理場の下水処理放流水、下水処理場の上流側地点 A、下流側地点 B の河川水における 1 時間あたりの RNA ウイルス遺伝子 (GI, GII-NoV 及び PMMoV) の濃度変化を、図 3-12 に示す。

GI-NoV は、2 回の調査の中で  $1.7 \times 10^2 \sim 2.2 \times 10^4$  Copies/L の範囲で変動した。2 回の調査とも降雨及び簡易処理の発生に合わせて濃度が約 10 倍に増加する結果となった。また、2 回目の調査結果から上昇した放流水中の濃度は雨が止むことに伴い、速やかに降雨以前の濃度に戻ることが確認された。この結果は、qPCR による FRNAPHs の場合と同様であった(3.8.1.3 の RT-qPCR による FRNAPHs の検出傾向を参照)。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $1.9 \times 10^2$  Copies/L、地点 D では約  $2.6 \times 10^3 \sim 5.5 \times 10^3$  Copies/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 10~30 倍程度に検出濃度が増加したと考えられた。

GII-NoV に関しては、1 回目の調査で 3 月 8 日 21:00 から 9 日 5:00 まで簡易処理が発生したにも関わらず、ほとんど不検出 (Not Detected; N.D.) であった。これに対して、2 回目の調査では簡易処理の発生により、最大  $6.1 \times 10^4$  Copies/L の濃度で検出され、降雨前 (3 月 15 日 21:00~16 日 4:00) の平均濃度の  $2.9 \times 10^2$  Copies/L に比べて約 200 倍に増加したことが分かった。このように 1 回目と 2 回目の降雨イベントで、簡易処理発生に伴う NoV 濃度の上昇が異なった理由として、降雨強度の違いが考えられる。最大降雨強度は 1 回目と 2 回目でそれぞれ 9.5 と 3.0 mm/h であった。また、継続雨量はそれぞれ 40.0 と 13.5 mm であった。1 回目の調査の時は、強い降雨によって希釈効果がより強く働いたことで放流水中濃度が N.D. であった可能性が考えられる。GI-NoV も、簡易処理による放流水中濃度の増加幅は、2 回目より 1 回目の調査の方が小さい結果が得られた。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $1.9 \times 10^3$  Copies/L、地点 D では約  $2.3 \times 10^4 \sim 1.6 \times 10^4$  Copies/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ約 10 倍に検出濃度が増加したと考えられた。

PMMoV は、2 回の調査で  $1.7 \times 10^6 \sim 6.0 \times 10^7$  Copies/L の範囲で検出された。PMMoV の場合、簡易処理の発生に伴い、約 10 倍に増加した。ただし、PMMoV は降雨前にもその濃度が高く ( $10^7$  Copies/L)、簡易処理の発生による濃度増加幅が NoV に比べて小さいことが分かった。このことから、PMMoV は降雨時の

簡易処理によって濃度は上昇するものの、その増加幅は NoV に比べて相対的に小さいことが示唆された。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $6.4 \times 10^5$  Copies/L、地点 D では約  $1.6 \times 10^7 \sim 2.6 \times 10^7$  Copies/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 20~40 倍程度に検出濃度が増加したと考えられた。

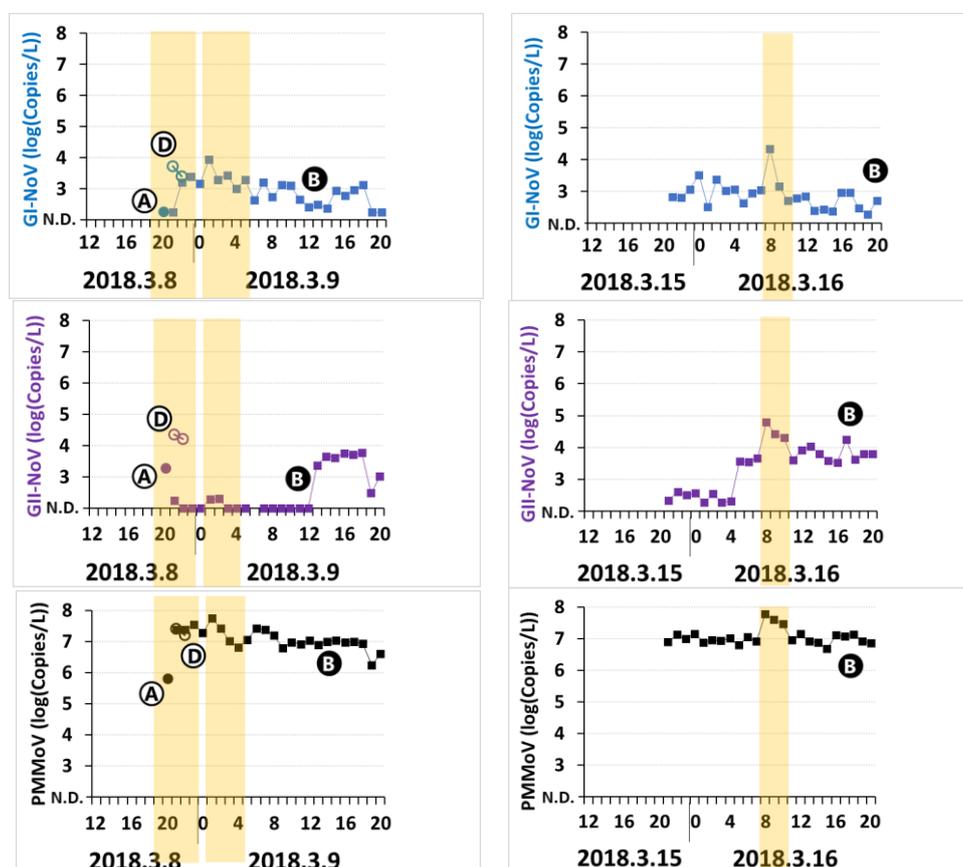


図 3-12 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水（下水処理場の上流側地点 A，下流側地点 B）における 1 時間あたりの RNA ウイルス遺伝子（GI, GII-NoV 及び PMMoV）の濃度変化（log(copies/L)）. 左図は 3 月 8 日～9 日の 1 回目調査の結果，右図は 3 月 15 日～16 日の 2 回目調査の結果を示す. 上から GI-NoV, GII-NoV, PMMoV. 不検出（N.D.）試料分を下端に示す. ハイライトは簡易処理の時間帯を示す.

### 3.8.1.3 RT-qPCR による GI, GII, GIII-FPH の検出傾向

2018 年 3 月 8 日～9 日，15 日～16 日に実施された 2 度の降雨時調査により得られた，B 下水処理場の下水処理放流水，下水処理場の上流側地点 A，下流側地点 B の河川水における 1 時間あたりの FRNAPHs（GI, GII, GIII-FPH）の濃度変化を，図 3-13 に示す。

GI-FPH は，1 回目の調査では，簡易処理発生時に最大  $2.8 \times 10^6$  Copies/L の濃度で検出された。その後，濃度は  $3.2 \times 10^3$  Copies/L まで低下した。簡易処理の発生によって約 1,000 倍に濃度が増加したと考えられる。2 回目の調査においても簡易処理の発生に合わせて約  $4.2 \times 10^4 \sim 2.2 \times 10^6$  Copies/L まで約 50 倍にまで増加した。簡易処理が放流水中の GI-FPH 濃度を大きく増加させることが示された。1 回目調査において，下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $7.2 \times 10^4$  Copies/L，地点 D では約  $1.2 \times 10^5 \sim 3.6 \times 10^5$  Copies/L で検出され，B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ 2~5 倍程度に検出濃度が増加したと考

えられた。

GII-FPH は、簡易処理放流が発生していない時間帯は  $10^5 \sim 10^6$  Copies/L 程度で安定した濃度であったものの、簡易処理の発生に合わせ濃度が約 10 倍に増加することが確認できた。GII-FPH も簡易処理によって濃度が増加するものの、GI-FPH に比べてその影響は小さいと考えられた。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では N.D，地点 D では約  $3.4 \times 10^5 \sim 9.9 \times 10^5$  Copies/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ検出濃度が増加したと考えられた。

GIII-FPH は、簡易処理が発生していないときはほぼ N.D.であったが、簡易処理発生時には  $10^3$  Copies/L 前後の濃度で検出された。このことから、GIII-FPH についても GI 及び GII-FPH と同様に、簡易処理の発生によって濃度が増加することが示された。1 回目調査において、下水処理場放流口の上流側の河川地点 A では N.D，地点 D では約  $7.5 \times 10^2 \sim 1.1 \times 10^4$  Copies/L で検出され、B 下水処理場の下流地点では河川の上流地点に比べ検出濃度が増加したと考えられた。

以上のように、RT-qPCR での定量結果から、下水処理放流水中の FPH は、各 FRNAPHs の違いによって程度の差があるものの、簡易処理の発生によって 10~100 倍程度の濃度増加が確認された。また、河川水中の FPH のうち特に GI-FPH は、簡易処理水の混入による濃度増加が 2~5 倍程度であったが、GII, GIII-FPH は大きな濃度増加が確認された。

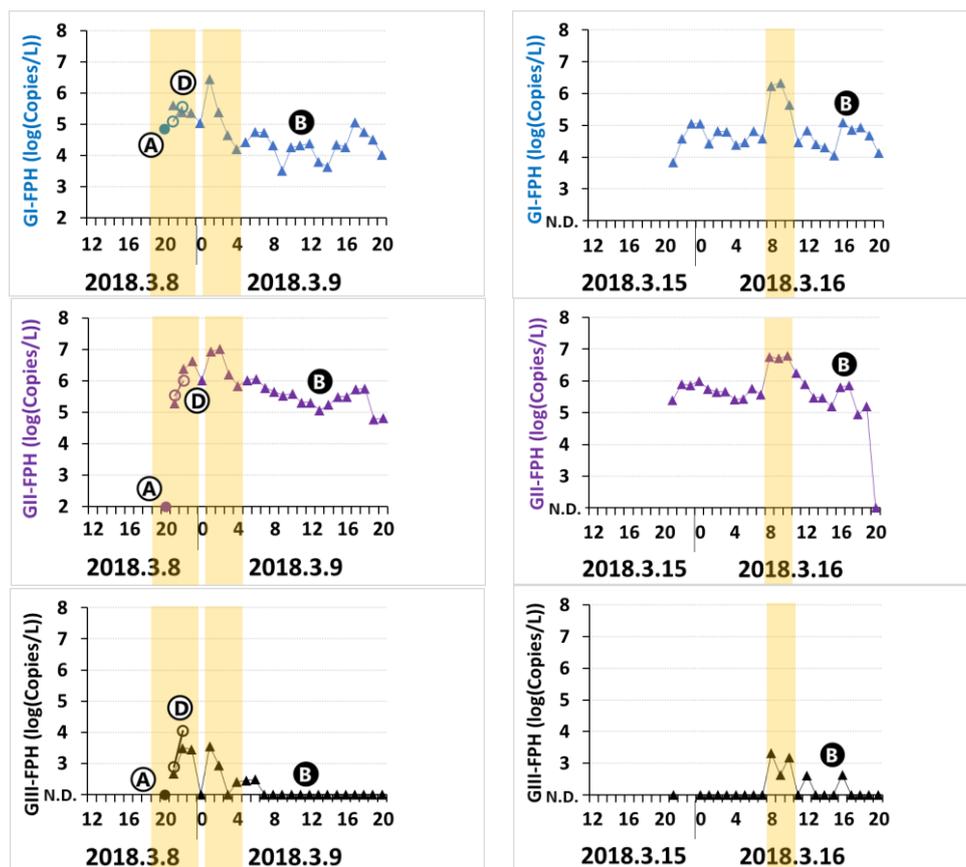


図 3-13 B 下水処理場の下水処理放流水及び河川水（下水処理場の上流側地点 A，下流側地点 B）における 1 時間あたりの FRNAPHs (GI, GII, GIII-FPH) の濃度変化 (log(copies/L))。左図は 3 月 8 日～9 日の 1 回目調査の結果，右図は 3 月 15 日～16 日の 2 回目調査の結果を示す。上から GI-FPH, GII-FPH, GIII-FPH. 不検出 (N.D.) 試料分を下端に示す。ハイライトは簡易処理の時間帯を示す。

### 3.8.2 衛生微生物の負荷量

#### 3.8.2.1 培養法による *E. coli*, TC 及び FPH 負荷量の推移傾向

2018年3月8日～9日（1回目調査）及び15日～16日（2回目調査）に実施された降雨時調査により得られた桂川の採水地点 A, D 及び B 下水処理場放流口からの1時間あたりの *E. coli*, TC 及び FPH の負荷量を図 3-14 に示す。

*E. coli* の負荷量については、1回目、2回目調査ともに簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{14}$  CFU/h 程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中におおむね  $10^{10}$  ~  $10^{12}$  CFU/h の範囲を推移した。処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $10^{12}$  CFU/h, 地点 D では約  $10^{15}$  CFU/h と推定され、河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において、およそ 1000 倍に負荷量が増加したと考えられた。

TC の負荷量については、簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{15}$  CFU/h 程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中におおむね  $10^{11}$  ~  $10^{13}$  CFU/h の範囲を推移した。河川地点 A では約  $10^{13}$  CFU/h, 地点 D では約  $10^{15}$  CFU/h と推定され、河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において、およそ 100 倍に負荷量が増加したと考えられた。

FPH の負荷量については、簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{12}$  ~  $10^{13}$  PFU/h

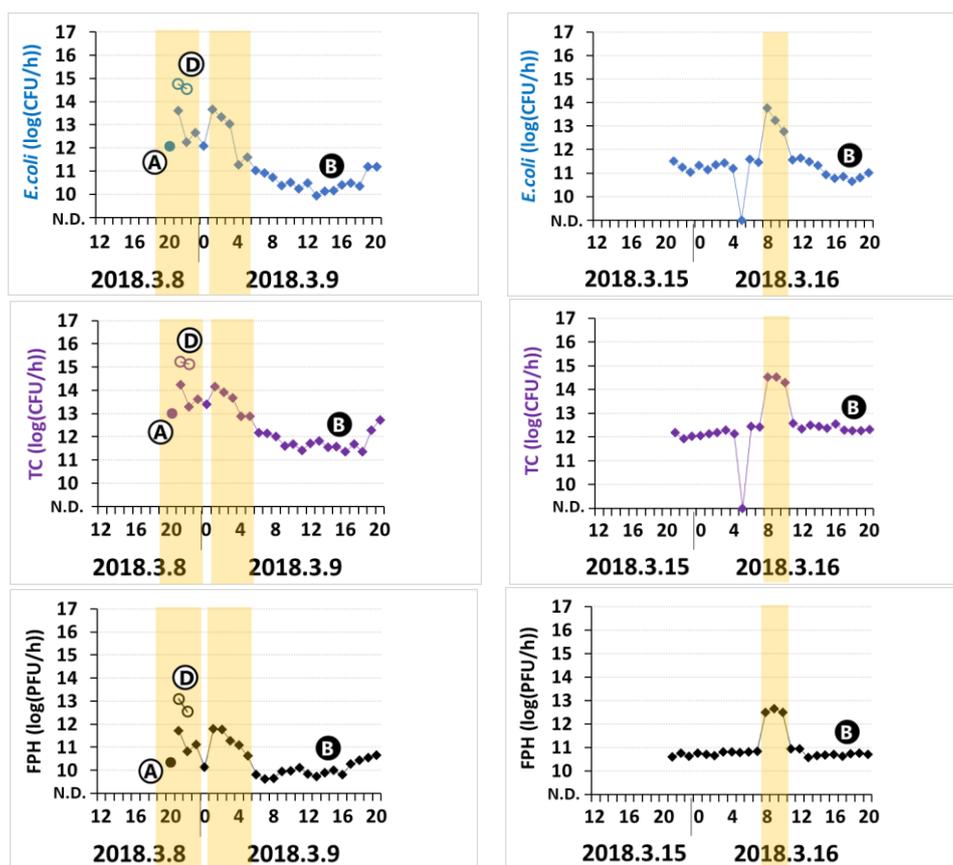


図 3-14 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの *E. coli*, TC 及び FPH の負荷量 (log(CFU/h), log(PFU/h)). 左図は 2018 年 3 月 8 日～9 日, 右図は 2018 年 3 月 15 日～16 日. 上から *E. coli*, TC, FPH. 不検出 (N.D.) 試料分を下端に示す. ハイライトは簡易処理の時間帯を示す. なお, 1 回目調査における河川水のプロット (丸印) は試料数が少ないため, 参考として示す.

程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中におおむね  $10^9 \sim 10^{11}$  PFU/h 程度の範囲を推移した。河川地点 A では約  $10^{10}$  PFU/h、地点 D では約  $10^{13}$  PFU/h と推定され、河川の上流地点にくらべ、B 下水処理場の下流地点において、1000 倍程度に負荷量が増加したと考えられた。

降雨時において *E. coli*、TC、FPH のいずれもが簡易処理が生じた時間帯に簡易処理放流水中の負荷量が増加する結果となった。この結果は、降雨時における沈殿処理・生物処理が不十分な簡易処理水等が生物処理後の高級処理水に大量に混入した結果と解釈される。特に図 3-9 に示した通り、2018 年 3 月 8 日 19:00~21:00 の時間帯では、十分に生物処理を受けた通常の高級処理水  $3.14 \sim 3.51 \text{ m}^3/\text{s}$  に対し、生物反応槽・最終沈殿池をバイパスさせて塩素混和池へ導いた簡易処理水等  $10.6 \sim 22.8 \text{ m}^3/\text{s}$  が混入していた。一方で、降雨時における河川での微生物負荷量については、下流側の河川地点 D の *E. coli*、TC、FPH の負荷量が簡易処理放流水の負荷量より 10 倍程度高い結果となった。この結果は、B 下水処理場以外にも桂川への微生物負荷源があることを示唆している。この点については、3.8.4 において考察する。

### 3.8.2.2 RT-qPCR による RNA ウイルス遺伝子負荷量の推移傾向

桂川の河川地点 A、D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-NoV、GII-NoV 及び PMMoV の負荷量を図 3-15 に示す。

GI-NoV の負荷量については、調査 1 回目、2 回目とも簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{12}$  Copies/h 程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中で  $10^9 \sim 10^{11}$  Copies/h 程度の範囲で推移した。処理場放流口の上流側の河川地点 A では約  $10^{11}$  Copies/h、河川地点 D では約  $10^{13}$  Copies/h と推定され、河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において、負荷量が 100 倍程度に増加したと考えられた。

GII-NoV の負荷量については、調査 2 回目の簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{13}$  Copies/h 程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中に  $10^9 \sim 10^{11}$  Copies/h 程度の範囲を推移した。調査 1 回目では、約半数の処理場放流水の試料で不検出となった。河川地点 A では約  $10^{12}$  Copies/h、河川地点 D では約  $10^{13}$  Copies/h と推定され、河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において、負荷量が 10 倍程度に増加したと考えられた。

PMMoV の負荷量については、調査 1 回目、2 回目とも簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{14} \sim 10^{15}$  Copies/h 程度となった。一方、簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中で  $10^{14}$  Copies/h 程度であった。河川地点 A では約  $10^{14}$  Copies/h、河川地点 D では約  $10^{16}$  Copies/h と推定され、河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において、負荷量が 100 倍程度に増加したと考えられた。

降雨時において、*E. coli* や FPH と同様に、GI-NoV、GII-NoV 及び PMMoV も簡易処理が生じた時間帯に簡易処理放流水中の負荷量が増加する結果となった。この結果は、*E. coli* や FPH と同様に、降雨時における沈殿処理・生物処理が不十分な簡易処理水が生物処理後の高級処理水に大量に混入した結果と解釈される。一方で、降雨時における河川での微生物負荷量については、*E. coli* や FPH と同様に、下流側の河川地点 D での GI-NoV、GII-NoV 及び PMMoV の負荷量が簡易処理放流水中の負荷量より 10 倍程度に高い結果となった。この結果は、B 下水処理場以外にも桂川への微生物負荷源があることを示唆している。

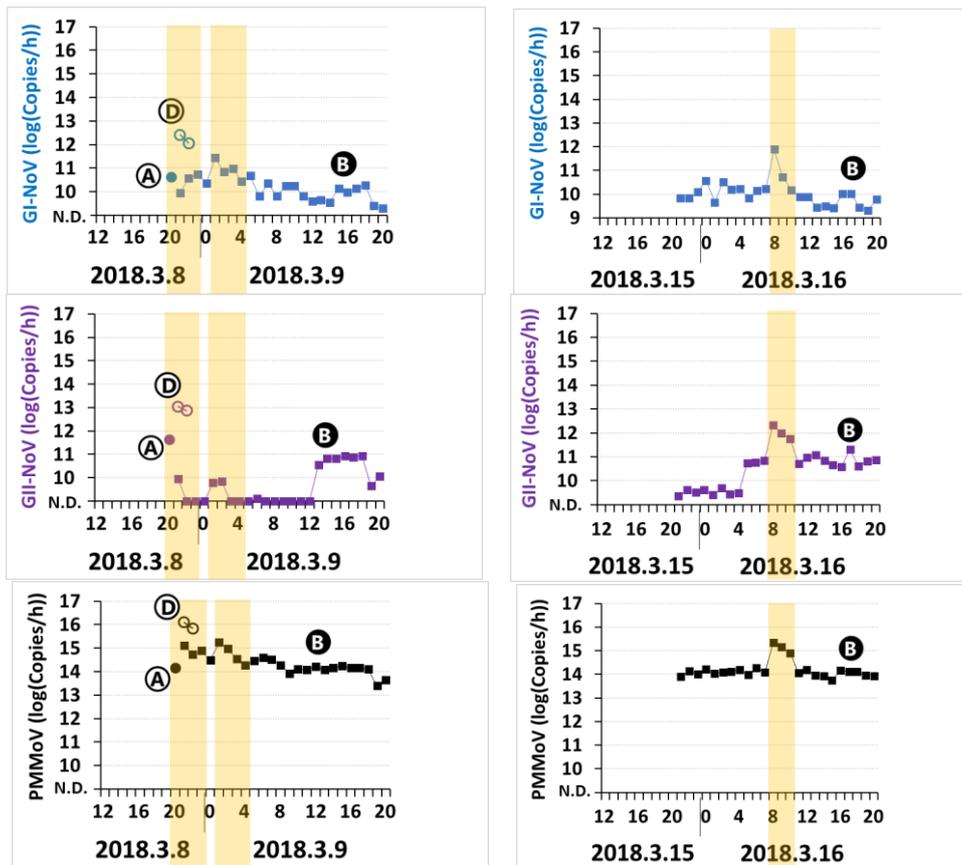


図 3-15 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の負荷量 (log(Copies/h)). 左図は 2018 年 3 月 8 日～9 日, 右図は 2018 年 3 月 15 日～16 日. 上から GI-NoV, GII-NoV, PMMoV. 不検出 (N.D.) 試料分を下端に示す. ハイライトは簡易処理の時間帯を示す. なお, 1 回目調査における河川水のプロット (丸印) は試料数が少ないため, 参考として示す.

### 3.8.2.3 RT-qPCR による FRNAPHs 負荷量の推移傾向

桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-FPH, GII-FPH, GIII-FPH の負荷量を図 3-16 に示す.

GI-FPH の負荷量については, 調査 1 回目, 2 回目ともに簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{13} \sim 10^{14}$  Copies/h 程度となった. 一方, 簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中で  $10^{11} \sim 10^{13}$  Copies/h 程度の範囲を推移した. 処理場放流口の上流側の河川地点 A で約  $10^{13}$  Copies/h, 河川地点 D では約  $10^{14}$  Copies/h となり, 河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点において, 負荷量が 10 倍程度に増加したと考えられる.

GII-FPH の負荷量については, 簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{14} \sim 10^{15}$  Copies/h 程度となった. 一方, 簡易処理がない時間帯では下水処理放流水中に  $10^{12} \sim 10^{13}$  Copies/h 程度の範囲を推移した. 河川地点 A では不検出, 河川地点 D では約  $10^{14} \sim 10^{15}$  Copies/h となり負荷量が大幅に増加したと考えられる.

GIII-FPH の負荷量については, 簡易処理が生じた時間帯において簡易処理放流水中に最大  $10^{10} \sim 10^{11}$  Copies/h 程度となった. 一方, 簡易処理がない時間帯ではほとんど不検出であった. 河川地点 A では不検出, 河川地点 D では約  $10^{12} \sim 10^{13}$  Copies/h となり, 河川の上流地点にくらべ B 下水処理場の下流地点に

において、負荷量が大幅に増加したと考えられる。

降雨時において、*E. coli* や培養法で測定した FPH, NoV と同様に、qPCR で測定した FPH も簡易処理が生じた時間帯に簡易処理放流水中の負荷量が上昇する結果となった。この結果は、*E. coli* や培養法で測定した FPH, NoV と同様に、降雨時における沈殿処理・生物処理が不十分な簡易処理水が生物処理後の高級処理水に大量に混入した結果と解釈される。一方で、降雨時における河川での微生物負荷量については、*E. coli* や培養法で測定した FPH, NoV と同様に、下流側の河川地点 D での GIII-FPH の負荷量が簡易処理放流水中の負荷量より 1~2 log 程度高い結果となった。この結果は、GIII-FPH については B 下水処理場以外にも桂川への微生物負荷源があることを示唆している。その一方、GI-FPH, GII-FPH については B 下水処理場が桂川への主な負荷であると考えられた。

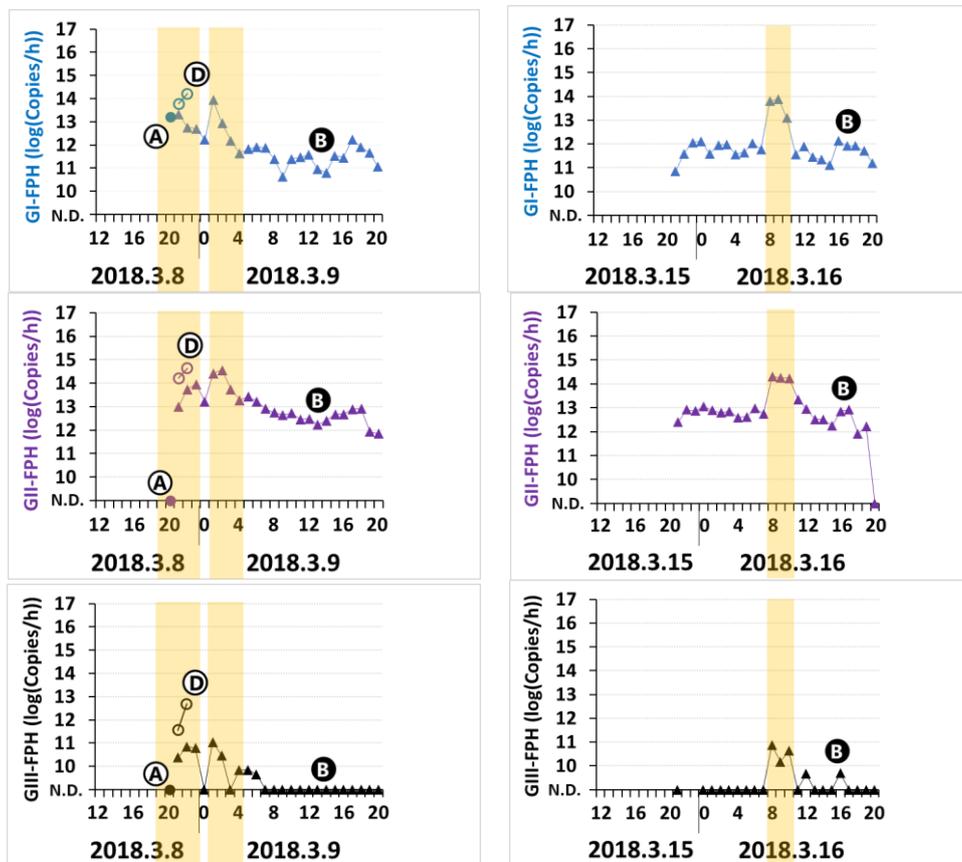


図 3-16 桂川の河川地点 A, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH の負荷量 (log (Copies/h)). 左図は 2018 年 3 月 8 日~9 日, 右図は 2018 年 3 月 15 日~16 日. 上から GI-FPH, GII-FPH, GIII-FPH. 不検出 (N.D.) 試料分を下端に示す. ハイライトは簡易処理の時間帯を示す. なお, 1 回目調査における河川水のプロット (丸印) は試料数が少ないため, 参考として示す.

### 3.8.3 衛生微生物負荷量の降雨時, 非降雨時での比較

#### 3.8.3.1 *E. coli*, TC 及び FPH の負荷量

桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの *E. coli*, TC, FPH の負荷量 (log (CFU/h), log (PFU/h)) を, 非降雨時 (晴天時) と降雨時 (雨天時) でそれぞれ対数軸に図示し, 比較した (図 3-17). なお, ここでは, 雨天時の B 下水処理場の下水処理放流水中の負荷量については,

簡易処理発生時間帯（図 3-14，ハイライト表示）での簡易処理放流水中の負荷量を示している。

*E. coli* の負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値で、晴天時で約  $10^9$  CFU/h，雨天時で約  $10^{13}$  CFU/h となり、降雨により 10,000 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C，D での負荷量の幾何平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^{10}$  CFU/h，約  $10^{11}$  CFU/h，雨天時でそれぞれ約  $10^{12}$  CFU/h，約  $10^{15}$  CFU/h であった。降雨によりそれぞれ 10 倍，10,000 倍程度に増加した。

TC の負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値で、晴天時で約  $10^{10}$  CFU/h，雨天時で約  $10^{14}$  CFU/h となり、降雨により 10,000 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C，D での負荷量の相乗平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^{13}$  CFU/h，約  $10^{13}$  CFU/h，雨天時では、それぞれ約  $10^{13}$  CFU/h，約  $10^{15}$  CFU/h となった。降雨により下流地点では 100 倍程度に増加した。

FPH の負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値で、晴天時で約  $10^{10}$  PFU/h，雨天時で約  $10^{11}$  PFU/h となり、降雨により 10 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C，D での負荷量の幾何平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^9$  PFU/h，約  $10^{10}$  PFU/h となり，雨天時でそれぞれ約  $10^{10}$  PFU/h，約  $10^{13}$  PFU/h であった。降雨によりそれぞれ 10 倍，1000 倍程度に増加した。

B 下水処理場放流口での雨天時における負荷量の増加の原因は、3.8.2.1 で述べた通り、沈殿処理・生物処理が不十分な簡易処理水等が大量に混入することによると考えられる。特に *E. coli*，TC について FPH と比べて雨天時における負荷量の増大が顕著であった。河川の下流地点での雨天時における負荷量の増加は、晴天時に比べて雨天時で顕著であった。この原因の一つは B 下水処理場の簡易処理放流水であると考えられるが、一方で、B 下水処理場の簡易処理放流水の負荷量だけでは河川下流地点での負荷量に達しない。この結果は、B 下水処理場の簡易処理放流水以外の負荷源が存在することを示唆している（3.8.4 で後述）。河川の上流地点 A においても、雨天時の方が晴天時よりも負荷量大きい結果となった。この結果は、地点 A である久世橋のさらに上流部に雨天時に負荷量増大の原因となる負荷源があることを示唆している（3.8.4 で後述）。

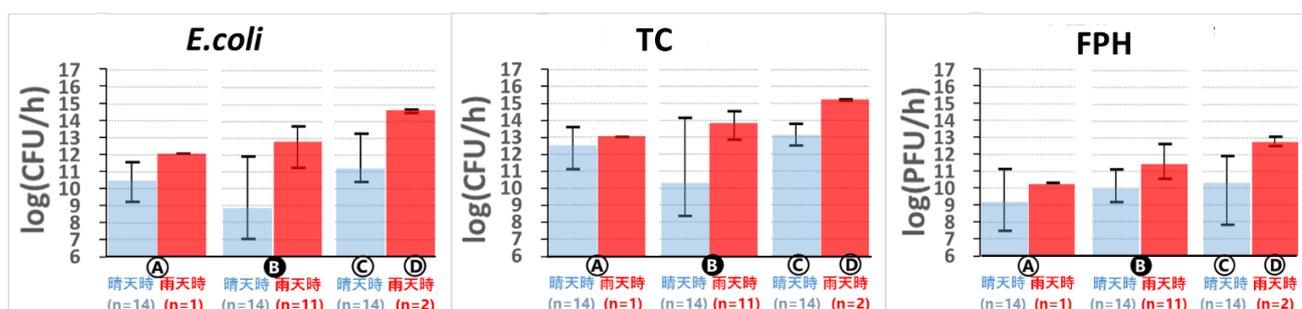


図 3-17 桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの *E. coli*, TC 及び FPH の負荷量 (log (CFU/h), log (PFU/h)) の晴天時・雨天時の比較。晴天時は先行研究の 2014・2015 年度の非降雨時調査 (Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016) の分，雨天時は本研究の 2017 年度の降雨時調査分。バーは幾何平均値で不検出試料分を除く。エラーバーは最大値及び最小値。

### 3.8.3.2 RNA ウイルス遺伝子の負荷量

桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場放流口における 1 時間あたりの GI-NoV, GII-NoV, PMMoV の負荷量 (log (Copies/h)) を，非降雨時 (晴天時) と降雨時 (雨天時) で，それぞれ対数軸で図示し，比

較した (図 3-18)。なお、ここでは、雨天時の B 下水処理場の下水処理放流水中の負荷量については、簡易処理が発生している時間帯 (図 3-18, ハイライト表示) での簡易処理放流水中の負荷量を示している。

GI-NoV の負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値は晴天時で約  $10^7$  Copies/h, 雨天時で約  $10^{11}$  Copies/h となり、降雨により 10,000 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C, D での負荷量の幾何平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^7$  Copies/h, 約  $10^8$  Copies/h となり、雨天時でそれぞれ約  $10^{11}$  Copies/h, 約  $10^{12}$  Copies/h となった。降雨によりともに 10,000 倍程度に増加した。

GII-NoV の負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値は晴天時で約  $10^9$  Copies/h, 雨天時で約  $10^{11}$  Copies/h となり、降雨により 100 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C, D での負荷量の相乗平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^8$  Copies/h, 約  $10^9$  Copies/h となり、雨天時でそれぞれ約  $10^{12}$  Copies/h, 約  $10^{13}$  CFU/h となった。降雨によりともに 10,000 倍程度に増加した。

PMMoV 負荷量については、下水処理放流水中の幾何平均値は晴天時で約  $10^{13}$  Copies/h, 雨天時で約  $10^{15}$  Copies/h となり、降雨により 100 倍程度に増加した。一方、上流側の河川地点 A と下流側の河川地点 C, D での負荷量の幾何平均値は、晴天時でそれぞれ約  $10^{13}$  Copies/h, 約  $10^{14}$  Copies/h となり、雨天時でそれぞれ約  $10^{14}$  Copies/h, 約  $10^{16}$  Copies/h となった。降雨によりそれぞれ 10 倍, 100 倍程度に増加した。

B 下水処理場放流口での雨天時における GI-NoV, GII-NoV, PMMoV の負荷量の増加の原因は、*E. coli*, TC 及び FPH と同じく、沈殿処理・生物処理が不十分な簡易処理水等が大量に混入することによると考えられる。特に GI-NoV, GII-NoV について PMMoV と比べて雨天時における負荷量の増大が顕著であった。河川の下流地点での雨天時における負荷量の増加は、晴天時に比べて若干大きい傾向にあった。この原因の一つは B 下水処理場の簡易処理放流水であると考えられるが、一方で、B 下水処理場の簡易処理放流水の負荷量だけでは河川下流地点での負荷量に達しない。この結果は、B 下水処理場の簡易処理放流水以外の負荷源が存在することを示唆している (3.8.4 で後述)。河川の上流地点 A においても、雨天時の方が晴天時よりも負荷量が大きい結果となった。この結果は、地点 A である久世橋のさらに上流部に雨天時の負荷量増大の原因となる負荷源があることを示唆している (3.8.4 で後述)。

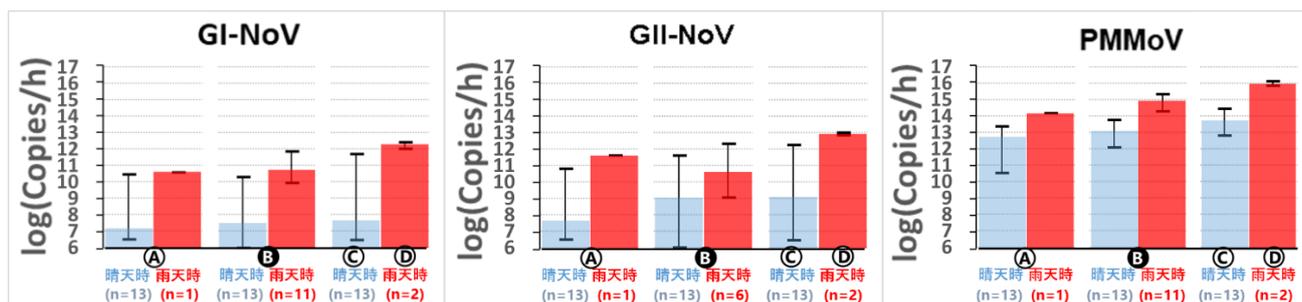


図 3-18 桂川の河川地点 A, C, D 及び B 下水処理場における 1 時間あたりの GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の負荷量 (log (Copies/h)) の晴天時・雨天時の比較。晴天時は先行研究の 2014・2015 年度の非降雨時調査 (Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016) の分, 雨天時は本研究の 2017 年度の降雨時調査分。バーは幾何平均値で不検出試料分を除く。エラーバーは最大値及び最小値。

### 3.8.4 降雨時における桂川流域での衛生微生物負荷源の考察

既に述べたように、河川の下流地点での降雨時における微生物負荷量の増加の原因の一つは、B 下水処

理場の簡易処理放流水であると考えられるが、一方で、B 下水処理場の簡易処理放流水の負荷量だけでは、河川下流地点での負荷量に達しない（図 3-19）。B 下水処理場から西高瀬川に放流する処理系からの負荷（図 3-1、表 3-2 参照）の可能性や、「3.4.1 採水地点」の項で説明したように、B 下水処理場から桂川へ放流する処理系は 2 系統あり、今回の降雨時調査ではそのうちの 1 系のみを採水している。他方の処理系からの負荷が大きいことも可能性としては考えられる。一方で、B 下水処理場の簡易処理放流水以外の負荷源が存在することも考えられる。また、河川の上流地点 A においても、降雨時に微生物負荷量がかなり増加する結果となった（図 3-19 左図）。この結果は、地点 A（久世橋）のさらに上流部に降雨時の負荷量増大の原因となる負荷源があることを示唆している。

具体的には第 2 章 2.3.4.1（図 2-9 (a)）で示した鴨川からの雨水吐由来の雨天時越流水による負荷（図 3-1 参照）が考えられる。また、中流域の都市内では合流式下水道が採用されているため、雨水吐からの降雨時に、遮集できない降雨強度を超える場合には、越流が起こっていると考えられる。上流にある都市における下水道整備の整備はまだ途上（2018 年度末現在、88%の下水道普及率、水洗化率 92%（京都市建設交通部, 2019））で、流域の水路や河川の河床などに堆積していることも原因と考えられる。

桂川における微生物負荷源の探索、降雨時における負荷増大の原因の探索、微生物による負荷増大の程度の違いの探索は、今後の課題であり、さらなるデータの蓄積が必須である。もちろん、河川水と下水処理場放流水で、採水した時間帯が必ずしも流下時間を考慮されていないことや、採水の時間的、採水位置での空間的代表性、分析の技術的な揺れなどの原因も考えられる。この点についてもデータを蓄積して偏りのない情報に基づいた議論が求められる。

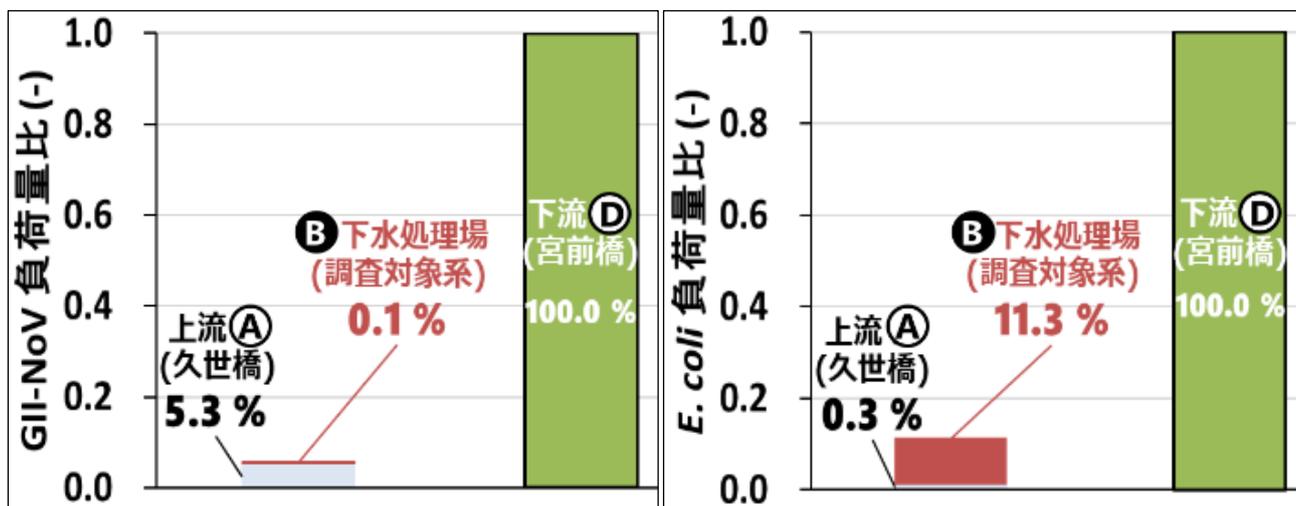


図 3-19 雨天時における桂川上下流の GII-NoV 及び E. coli の負荷量収支。河川地点 A は 2018 年 3 月 8 日 20:00、B 下水処理場は同 21:00、河川地点 D は同 22:00 での微生物負荷量の値を使用。

### 3.9 第 3 章のまとめ

本章の実態調査では、流域に大都市がある桂川水系において、下流域にある都市の排水を受け入れる合流式下水道のうち処理能力が最も大きい下水処理場を対象として、下水処理放流水及び河川水に含まれる衛生微生物の降雨時での存在実態を調査した。この調査データと同地域を対象に非降雨時に調査した先行研究（Hata *et al.*, 2016; 田中ら, 2016）から、検出濃度と流量を考慮した負荷量を算定した。非降

雨時と比較して降雨による微生物負荷量の上昇の程度を検討した。結果を以下にまとめる。

- (1) RT-qPCR による病原微生物 GI, GII-NoV, 指標候補微生物 PMMoV の検出濃度は、降雨により下水処理場放流口ではそれぞれ 10, 200, 10 倍程度に、放流口の上下流河川ではそれぞれ 10~30, 10, 20~40 倍程度に増加した。結果から、降雨による下水処理場からの簡易処理水により下水処理放流水中の病原微生物濃度や、指標候補微生物濃度は増大し、河川での濃度増加に影響を及ぼすことが示唆された (3.8.1.2 参照)。
- (2) GI, GII-NoV, PMMoV の負荷量は、降雨により下水処理場放流口ではそれぞれ 10~1,000, 100~10,000, 100 倍程度に、放流口の上下流河川では、それぞれ 100 倍, 10, 100 倍程度に通過負荷量で増加した。結果から、簡易処理放流水により病原微生物、指標候補微生物の負荷量は増大し、河川での負荷量上昇に影響を及ぼすが、それ以上にこの区間では別の負荷源により大きく負荷量が上昇していることが示唆された。特に病原微生物の GII-NoV 負荷量は、この区間の上流からの負荷源が元々大きいことも示唆された (3.8.2.2 参照)。
- (3) 培養法による指標微生物 *E. coli*, TC, 指標候補微生物 FPH の検出濃度は、降雨により下水処理場放流口ではそれぞれ 150, 100, 60 倍程度に、放流口の上下流河川ではそれぞれ 150~200, 50~100, 100~300 倍程度に増加した。結果から、GI, GII-NoV, PMMoV と同様、降雨による下水処理場からの簡易処理水により下水処理放流水中の指標微生物濃度や、指標候補微生物濃度は増大し、河川での濃度増加に影響を及ぼすことが示唆された (3.8.1.1 参照)。
- (4) *E. coli*, TC, FPH の負荷量は、降雨により下水処理場放流口では *E. coli*, TC のいずれも 100~10,000 倍程度、FPH は 60 倍程度に、放流口の上下流河川では、それぞれ 1,000, 100, 100~300 倍程度に通過負荷量で増加した。結果から、降雨による下水処理場の簡易処理放流水により指標・指標候補とも微生物負荷量は増大し、河川での負荷量上昇に影響を及ぼしているが、それ以上にこの区間では別の負荷源により大きく負荷量が上昇していることが示唆された (3.8.2.1 参照)。
- (5) 先行研究である非降雨時調査から微生物負荷量を算定した結果から、下水処理場では *E. coli* 及び TC を減少させ、河川下流に水質改善効果を持つが、病原ウイルスやその指標候補ウイルスは、むしろ下水処理放流水の寄与が大きく、その項目に関して河川水質は悪化することが明らかとなった。本章の降雨時調査の結果からは、降雨により、病原ウイルスやその指標候補ウイルスはもちろん、*E. coli*, TC も下水処理場の寄与が大きく、河川水質は悪化することが明らかになった。ただし、その増加に寄与する負荷は、上流での河川の負荷量と比べて、同等以上の場合もあるが、比較的小さい場合もある。前者では、下水処理場の放流負荷の改善が大きく効果を持つが、後者の場合は上流負荷の削減も並行して行うことも重要であることが示唆された (3.8.3 参照)。
- (6) 一方、下水処理場からの排出負荷量が、河川の下流での上昇に大きく寄与している場合もあるが、その負荷量だけでは十分説明できない場合も見られた。この場合は、河川の上下流地点の区間で、

下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があることを示唆している。その原因を把握する必要性があることが示唆された (3.8.4 参照)。

以上のように、本章の実態調査では、桂川下流域に位置する合流式の下水処理場において、降雨により発生する雨天時下水（簡易処理水）が通常生物処理後の高級処理水に混入することで、下水処理放流水中の病原ウイルス負荷量の増大を引き起こすことが示された。また、このような簡易処理放流水による放流先の桂川河川水への衛生学的影響の有無が、指標微生物や指標候補ウイルスの負荷量増大で説明できることが示された。これらにより、降雨による簡易処理放流水及び放流先河川水に含まれる衛生微生物の存在実態の変化を、検出濃度、下水処理放水量及び河川流量を考慮して明らかにした（目的1）。

特に GI, GII-NoV, FPH, FRNAPHs (GII-FPH), PMMoV, *E. coli* 及び TC のように、下水処理場からの排出負荷量が河川の下流での上昇に大きく寄与しているが、いずれも下水処理場からの排出負荷量だけでは十分説明できなかった。これにより、河川の上下流地点の区間で下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があり、第2章 2.3.4.1 の図 2-9 (a) に示したとおり、鴨川などに沿って位置する雨水吐からの雨天時越流水である可能性が示された。特に GII-NoV については、河川の上流からの負荷源が元々大きいことも示された。

実態調査の成果は、降雨による簡易処理発生の前を含めて水辺利用をどの程度認めるのか（泳ぎ、水遊び、釣りなど）、水道水源での病原ウイルスなど消毒耐性が高い微生物への対応を考慮した河川管理に貢献できる。また、本成果は、流域の主な排出者である下水道事業に対しては、消毒方法の見直しや合流式下水道改善対策の見直しに貢献できる。

## 参考文献

- Cole, D., Long, S. C. and Sobsey, M. D.: Evaluation of F+ RNA and DNA coliphages as source-specific indicators of fecal contamination in surface waters, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 69, No. 11, pp 6507-6514, 2003.
- Haramoto, E., Katayama, H., Phanuwat, C. and Ohgaki, S.: Quantitative detection of sapoviruses in wastewater and river water in Japan, *Letters in Applied Microbiology*, Vol. 46, No. 3, pp 408-413, 2008.
- Haramoto, E., Kitajima, M., Kishida, N., Konno, Y., Katayama, H., Asami, M. and Akiba, M.: Occurrence of Pepper Mild Mottle Virus in Drinking Water Sources in Japan, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 79, No. 23, pp 7413-7418, 2013.
- Hamza, I. A., Jurzik, L. K., Überla and Wilhelm, M.: Evaluation of Pepper Mild Mottle Virus, Human Picobirnavirus and Torque Teno Virus as Indicators of Fecal Contamination in River Water, *Water Research*. Vol. 45, No. 3, pp 1358-1368, 2011.
- Hata, A., Katayama, H., Kitajima, M., Visvanathan, C., Nol, C. and Furumai, H.: Validation of Internal Controls for Extraction and Amplification of Nucleic Acids from Enteric Viruses in Water Samples, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 77, No. 13, pp 4336-4343, 2011.
- Hata, A., Hanamoto, S., Shirasaka, Y., Yamashita, N. and Tanaka, H.: Quantitative Distribution of Infectious

F-Specific RNA Phage Genotypes in Surface Waters, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 82, No. 14, pp 4244-4252, 2016.

● **Havelaar, A. H., Pot-Hogbeem, W. M., Pot, R. and Hormann, M. P.:** F-specific RNA bacteriophages and sensitive host strains in faeces and wastewater of human and animal origin, *Journal of Applied Bacteriology*, Vol. 69, No. 1, pp 30-37, 1990.

● **Heid, C. A., Stevens, J., Livak, K. J. and Williams, P. M.:** Real time quantitative PCR, *Genome Research*, Vol. 6, No. 10, pp 986-994, 1996.

● **Hsu, F. C., Shieh, Y. S. C., Van Duin, J., Beekwilder, M. J. and Sobsey, M. D.:** Genotyping Male-Specific RNA Coliphages by Hybridization with Oligonucleotide Probes, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 61, No. 11, pp 3960-3966, 1995.

● **Jiang, S., Noble, R. and Chu, W.:** Human Adenoviruses and Coliphages in Urban Runoff-Impacted Coastal Waters of Southern California, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 67, No. 1, pp 179-184, 2001.

● **Kageyama, T., Kojima, S., Shinohara, M., Uchida, K., Fukushi, S., Hoshino, F. B., Takeda, N. and Katayama, K.:** Broadly reactive and highly sensitive assay for Norwalk-like viruses based on real-time quantitative reverse transcription-PCR, *Journal of Clinical Microbiology*, Vol. 41, No. 4, pp 1548-1557, 2003.

● **Katayama, H., Shimasaki, A. and Ohgaki, S.:** Development of a Virus Concentration Method and Its Application to Detection of Enterovirus and Norwalk Virus from Coastal Seawater, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 68, No. 3, pp 1033-1039, 2002.

● **Kitajima, M., Iker, B. C., Pepper, I. L. and Gerba, C. P.:** Relative abundance and treatment reduction of viruses during wastewater treatment processes--identification of potential viral indicators, *Science of the Total Environment*, Vol. 488-489, pp 290-296, 2014.

● **Kuroda, K., Nakada, N., Hanamoto, S., Inaba, M., Katayama, H., Do, A. T., Nga, T. T. V., Oguma, K., Hayashi, T. and Takizawa, S.:** Pepper mild mottle virus as an indicator and a tracer of fecal pollution in water environments: Comparative evaluation with wastewater-tracer pharmaceuticals in Hanoi, Vietnam, *Science of the Total Environment*, Vol. 506-507, pp 287-298, 2015.

● **Long, S. C. and Sobsey, M. D.:** A Comparison of the Survival of F+RNA and F+DNA Coliphages in Lake Water Microcosms, *Journal of Water and Health*, Vol. 2, No. 1, pp 15-22, 2004.

● **Martella, V., Campolo, M., Lorusso, E., Cavicchio, P., Camero, M., Bellacicco, A. L., Decaro, N., Elia, G., Greco, G., Corrente, M., Desario, C., Arista, S., Banyai, K., Koopmans, M. and Buonavoglia, C.:** Norovirus in Captive Lion Cub (*Panthera leo*), *Emerging Infectious Diseases*, Vol. 13, No. 7, pp 1071-1073, 2007.

● **Matsushima, Y., Ishikawa, M., Shimizu, T., Komane, A., Kasuo, S., Shinohara, M., Nagasawa, K., Kimura, H., Ryo, A., Okabe, N., Haga, K., Doan, Y. H., Banyai, K., Katayama, K. and Shimizu, H.:** Norovirus in Captive Lion Cub (*Panthera leo*), *Emerging Infectious Diseases*, Vol. 13, No. 7, pp 1071-1073, 2007.

● **Menon, V. K., George, S., Ramani, S., Illiyaraja, J., Sarkar, R., Kuruvilla, A. K. and Kang, G.:** Genetic analyses of GII.17 norovirus strains in diarrheal disease outbreaks from December 2014 to March 2015 in Japan reveal a novel polymerase sequence and amino acid substitutions in the capsid region, *Eurosurveillance*, Vol. 20, No. 26, 2015.

● **Mooijman, K. A., Bahar, M., Muniesa, M. and Havelaar, A. H.:** Optimisation of ISO 10705-1 on Enumeration

of F-Specific Bacteriophages, *Journal of Virological Methods*, Vol. 103, No. 2, pp 129-136, 2002.

● Nakamura, K., Saga, Y., Iwai, M., Obara, M., Haramoto, E., Kurata, T., Okumura, H., Nagoshi, M. and Takizawa, T.: Frequent detection of noroviruses and sapoviruses in swine and high genetic diversity of porcine sapovirus in Japan during Fiscal Year 2008, *Journal of Clinical Microbiology*, Vol. 48, No. 4, pp 1215-1222, 2010.

● Ogorzaly, L., Tissier, A., Bertrand, I., Maul, A. and Gantzer, C.: Relationship Between F-Specific RNA Phage Genogroups, Faecal Pollution Indicators and Human Adenoviruses in River Water, *Water Research*, Vol. 43, No. 5, pp 1257-1264, 2009.

● Oliver, S. L., Dastjerdi, A. M., Wong, S., El-Attar, L., Gallimore, C., Brown, D. W., Green, J. and Bridger, J. C.: Molecular characterization of bovine enteric caliciviruses: a distinct third genogroup of noroviruses (Norwalk-like viruses) unlikely to be of risk to humans, *Journal of Virology*, Vol. 77, No. 4, pp 2789-2798, 2003.

● Rosario, K., Symonds, E. M., Sinigalliano, C., Stewart, J. and Breitbart, M.: Pepper Mild Mottle Virus as an Indicator of Fecal Pollution, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 75, No. 22, pp 7261-7267, 2009.

● Sobsey, M. D., Battigelli, D. A., Handzel, T. R. and Schwab, K. J.: Male-Specific Coliphages as Indicators of Viral Contamination of Drinking Water, *Report of AWWA research Foundation*, 1995.

● Symonds, E. M., Sinigalliano, C., Gidley, M., Ahmed, W., McQuaig-Ulrich, S. M. and Breitbart, M.: Faecal pollution along the southeastern coast of Florida and insight into the use of pepper mild mottle virus as an indicator, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 121, No. 5, pp 1469-1481, 2016.

● Tree, J. A., Adams, M. R. and Lees, D. N.: Chlorination of Indicator Bacteria and Viruses in Primary Sewage Effluent, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 69, No. 4, pp 2038-2043, 2003.

● Wobus, C. E., Thackray, L. B. and Virgin, H. W.: Murine Norovirus: a Model System to Study Norovirus Biology and Pathogenesis, *Journal of Virology*, Vol. 80, No. 11, pp 5104-5112, 2006.

● Wolf, S., Hewitt, J., Rivera-Aban, M. and Greening, G. E.: Detection and Characterization of F+ RNA bacteriophages in water and shellfish: application of a multiplex real-time reverse transcription PCR, *Journal of Virological Method*, Vol. 149, No. 1, pp 123-128, 2008.

● Zhang, T., Breitbart, M., Lee, W. H., Run, J. Q., Wei, C. L., Soh, S. W. L., Hibberd, M. L., Liu, E. T., Rohwer, F. and Ruan, Y. J.: RNA Viral Community in Human Feces: Prevalence of Plant Pathogenic Viruses, *PLoS Biology*, Vol. 4, No. 1, e3, 2006.

○ 井原賢, 山口武志, 林東範, 田村太一, 牧野樹生, 山下尚之, 田中宏明: 河川の衛生学的安全性へ与える降雨時の都市排水の影響, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 2017 - 5211 - 034, 2018.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2018年10月28日, 2018.

○ 北島正章, 遠矢幸伸, 松原康一, 原本英司, 宇田川悦子, 片山浩之, 大垣眞一郎: 新たな代替指標としてマウス分離株を用いた水道水中のノロウイルスの塩素耐性の解明, 環境工学研究論文集, Vol. 45, pp 361-370, 2008.

○ 京都市上下水道局: 平成29年度版公共下水道統計年報, 2017.

○ 京都府建設交通部水環境対策課: 京都府の汚水処理人口普及率について (平成30年度末), 公式 HP (別添3: 下水処理人口普及率 (平成30年度末)), <http://www.pref.kyoto.jp/gesuido/hukyuritsu30.html>, 最終閲覧日: 2020年10月28日, 2019.

- 国土交通省水管理・国土保全局: 水文水質データベース, 公式 HP, <http://www1.river.go.jp/>, 最終閲覧日: 2018年10月28日, 2018.
- 小山裕貴, 澤井健二, 富田忠明: 淀川水系桂川における上下流交流の動向について, 土木学会第60回年次学術講演会, No. 7-198, pp 395-396, 2005.
- 白坂勇也: 琵琶湖南湖におけるウイルス汚染の実態把握およびウイルス汚染指標の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2017.
- 杉下寛樹: 水環境中における医薬品類の動態と濃度予測に関する研究, 京都大学修士学位論文, 2009.
- 田中宏明, 山下尚之, 花本征也, 端昭彦, 白坂勇也, 山口武志: 淀川水系中流域における病原微生物と指標微生物の動態の比較, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 27-1211-015, 2016.
- 花本征也: 淀川水系における医薬品類の存在実態と水環境中での挙動, 京都大学修士学位論文, 2010.
- 琵琶湖淀川水質保全機構: BYQ 水環境レポート平成 19 年度, pp 14, 2008a.
- 琵琶湖淀川水質保全機構: BYQ 水環境レポート平成 19 年度, pp 255, 2008b.
- 琵琶湖淀川水質保全機構: 琵琶湖・淀川流域の水環境の現状, 琵琶湖・淀川流域の水環境情報, 公式 HP, [http://www.byq.or.jp/kankyo/k\\_01.html](http://www.byq.or.jp/kankyo/k_01.html), 最終閲覧日: 2018年10月28日, 2013.
- 松島勇紀, 石川真理子, 清水智美, 駒根綾子, 清水英明, 松尾千秋, 岡部信彦, 本谷匠, 永田紀子, 水越文徳, 鈴木尚子, 船渡川圭次, 調恒明, 四宮博人, 片山和彦, 長澤耕男, 木村博一: 茨城県と川崎市における 2016/17 シーズンに検出されたヒトノロウイルス GII.P16-GII.2 の分子疫学, *IASR*, Vol. 38, pp 19-20, 2017.
- 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

## 第4章 雨天時下水及び河川水に含まれるFDOMの動態に関する基礎実験

### 4.1 概説

第2章の文献調査では、水道水源としての利用やリクレーション等で用いられる水域のうち、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の対策を特に優先的に行う必要がある重要影響水域で、特に、淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の事例 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016) について紹介した。また水中の有機物を適切に監視することにより、衛生微生物汚染の状況も、ある程度までは把握できる可能性がある (松田, 2002; 山本・中村, 2005; 内田, 2008; 上門, 2009; 安藤ら, 2010; 樋上, 2012; 諏訪ら, 2016) ことを示した。特に下水中のFDOM (清水ら, 2015) のうちタンパク質様成分が生物処理により大きく減少した事例 (Cohen *et al.*, 2014) から、高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理放流水混入といった雨天時下水混入を迅速に検知するうえで、タンパク質様成分が簡易指標候補として可能性を持つことを示した。第3章の実態調査では、重要影響水域の琵琶湖・淀川水系桂川下流域において、下水処理放流水・河川水中の衛生微生物の動態に与える晴天時 (Hata *et al.*, 2016; 田中宏明ら, 2016) と比べた雨天時下水の影響 (井原ら, 2018) を、検出濃度・下水処理放流量及び河川流量を考慮して明らかにした。特にGI, GII-NoV, FPH, FRNAPHs (GII-FPH), PMMoV, *E. coli* 及びTCのように、下水処理場からの排出負荷量が河川の下流での上昇に大きく寄与しているが、いずれも下水処理場からの排出負荷量だけでは十分説明できなかつた。これにより、河川の上下流地点の区間で下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があり、鴨川などに沿って位置する雨水吐からの雨天時越流水である可能性が示された。特にGII-NoVについては、河川の上流からの負荷源が元々大きいことも示された。

以上を踏まえ、①下水中のタンパク質様成分が他の成分に比べ生物処理により大きく減少するかどうか、生物反応槽のHRTやMLSS濃度を考慮して実験的に検討する必要があると考えられる。また、第2章で紹介した雨天時下水処理技術 (2.2.6 参照) のうち高速凝集沈殿処理 (2.2.6.2 (2) 参照) に対しても第5章で検証調査を行ったため、まず、②急速攪拌槽における無機凝集剤の添加量を考慮した実験的な検討が必要である。さらに、③タンパク質様成分が高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理放流水混入を検知できるかどうか、下水の混入割合を変えて実験的に検討する必要がある。しかし、以上3点の検討を詳細に行った研究事例はほとんどない。したがって、本章では雨天時下水の生物処理・凝集処理によるFDOMの水質変化特性を、処理実験 (生物処理実験・凝集処理実験) により示す (4.3.1, 4.3.2 参照)。また、高級処理水への簡易処理水混入や、河川水への簡易処理放流水混入によるFDOMの水質変化特性を、混合実験 (下水混入実験) により示す (4.3.3 参照)。これらの基礎実験により、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されているDOC (Rock *et al.*, 2015; Rock and Jang, 2018) と比べたFDOM、特にタンパク質様成分の利用性を明らかにする (目的2)。なお、FDOM存在量の推定には、第2章2.4.3.1 (清水ら, 2015) で概要を整理したEEM分析を用いた。

### 4.2 実験方法

#### 4.2.1 試料水

##### 4.2.1.1 生物処理実験

生物処理実験のフローと処理条件を図4-1に、実験条件を表4-1に示す。実験には、大津市水再生セン

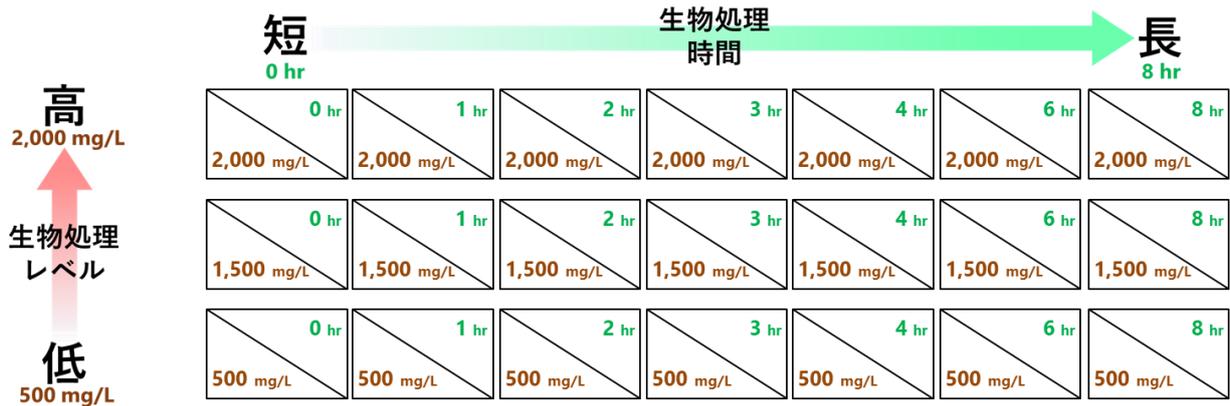


図 4-1 生物処理実験のフローと処理条件. 生物処理条件は上段より Run. 1-1, 1-2, 1-3.

表 4-1 生物処理実験の条件.

実験No.	初沈後水量 (L)	返送汚泥量 (L)	目標MLSS濃度 (mg/L)
Run. 1-1	9,000	6,000	2,000
Run. 1-2	11,250	3,725	1,500
Run. 1-3	9,000	1,000	500

ター (合流式・分流式) における初沈後水と返送汚泥を用いた. 非降雨時の 2017 年 12 月 10 日に採水後直ちに適量混合し, 風量一定, 過曝気条件で混合液を曝気した. 採水のタイミングは, Run. 1-1, 1-2, 1-3 のそれぞれで 0, 1, 2, 3, 4, 6, 8 hr の 7 回とした. 採水試料を 15 mL 遠沈管に分取し, pH, MLSS 測定に用いた (田中景介, 2018; 松葉ら, 2018). 残りの試料は約 10 分静置後の上澄み液をガラス繊維ろ紙 (GF/F, Whatman 社製) でろ過後, ろ液を分析に供した.

#### 4.2.1.2 凝集処理実験

凝集処理実験のフローと処理条件を図 4-2 に, 実験条件を表 4-2 に示す. 実験には, 大津市水再生センター (合流式・分流式) における流入下水を用いた. 流入下水は非降雨時の 2019 年 1 月 11 日に採水した. 晴天時下水として流入下水を無希釈 100 % (Run. 2-1) とし, 超純水で 70 % (Run. 2-2), 40 % (Run. 2-3) で希釈したものを模擬雨天時下水として凝集処理実験に用いた.

実験については, 1 L ビーカーに晴天時下水及び模擬雨天時下水を 1 L 準備した. 凝集剤の添加後, ジ

ヤーテスター（MJS-4H，宮本製作所社製）を用いて急速攪拌（150 r.p.m.，3 min）した．急速攪拌後，速やかに凝集剤無添加の原水と凝集後の試料を採水した．凝集剤として，無機凝集剤の PACl（ポリ塩化アルミニウム， $Al_2O_3$ として 10~11 %含有，高杉製薬社製）を用いた．PACl の添加濃度は，晴天時下水及び模擬雨天時下水の水量 1 L に対して 0 mg/L（無添加），15 mg/L，50 mg/L，200 mg/L，500 mg/L とした．採水した原水及び凝集後の試料をガラス繊維ろ紙（GF/F，Whatman 社製）でろ過後，ろ液を分析に供した．

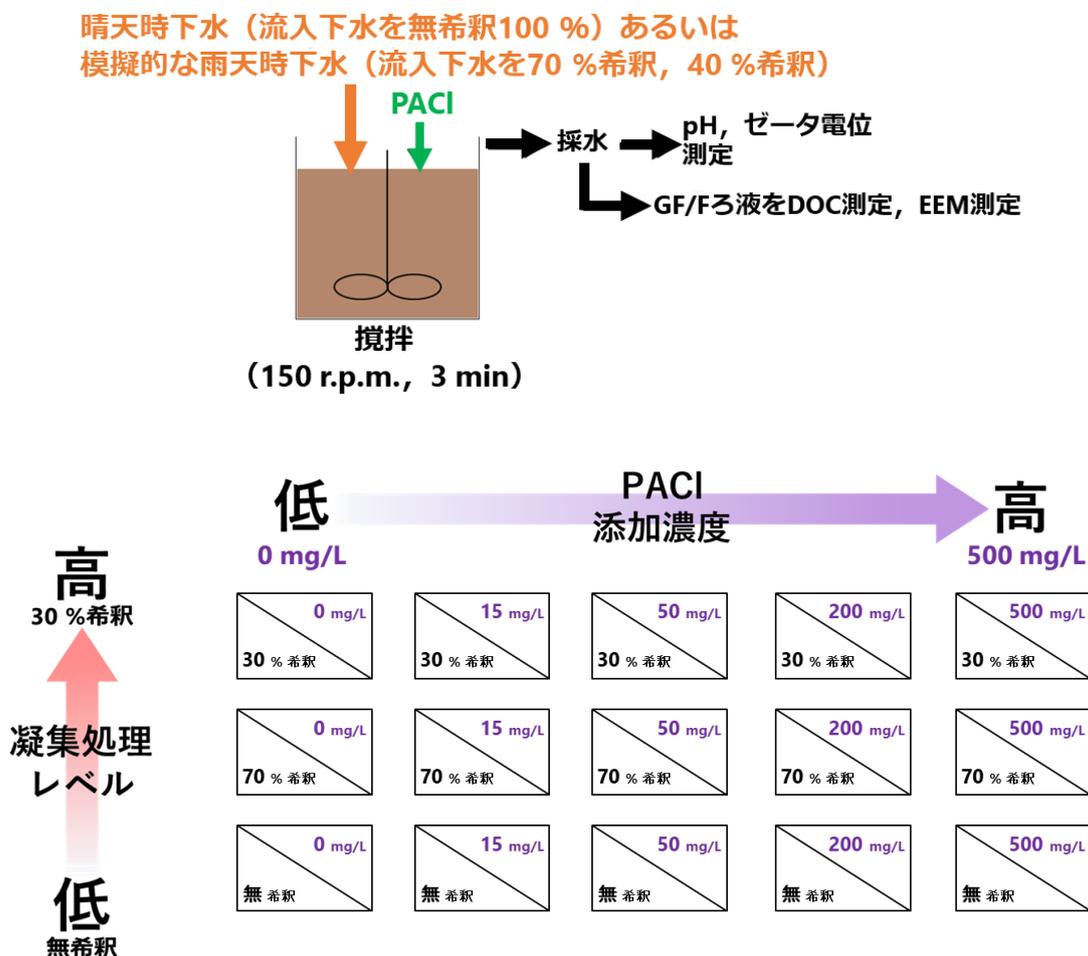


図 4-2 凝集処理実験のフローと処理条件．凝集処理条件は下段より Run. 2-1，2-2，2-3.

表 4-2 凝集処理実験の条件.

実験No.	流入下水の希釈割合
Run. 2-1	無希釈100 %（晴天時下水）
Run. 2-2	70 %（模擬雨天時下水）
Run. 2-3	40 %（模擬雨天時下水）

#### 4.2.1.3 下水混入実験

下水混入実験のフローと混合条件を図 4-3 に，条件を表 4-3 に示す．実験には，湖南中部浄化センター（分流式）における初沈後水・終沈後水を用いた．採水は，非降雨時の 2018 年 10 月 23 日に湖南中部浄

化センターで行った。また、河川水として琵琶湖南湖（南湖）の表層水を用いた。採水は、非降雨時の2018年11月5日に南湖の栗津沖中央地点で行った。

下水の混入方法については、まず、模擬的な簡易処理放流水として、簡易処理水に見立てた初沈後水と高級処理水に見立てた終沈後水との混合割合を、6:0から4:2, 3:3, 2:4, 0:6に段階的に変化させた。次に、模擬的な簡易処理放流水と河川水の混合割合を、6:0（Run. 3-1）から4:2（Run. 3-2）、3:3（Run. 3-3）、2:4（Run. 3-4）、0:6（Run. 3-5）に段階的に変化させた。混合試料をガラス繊維ろ紙（GF/F, Whatman社製）でろ過後、ろ液を分析に供した。

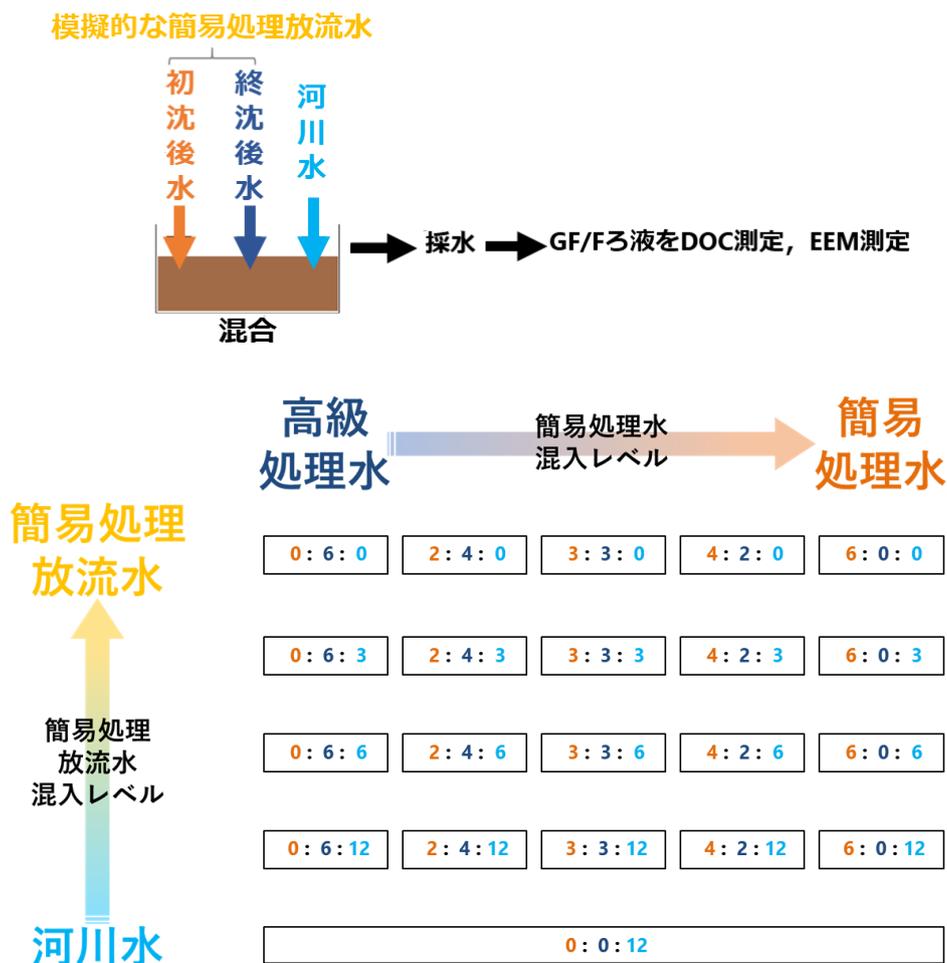


図 4-3 下水混入実験のフローと混合条件。下水混入条件は上段より Run. 3-1, 3-2, 3-3, 3-4, 3-5.

表 4-3 下水混入実験の条件.

実験No.	模擬簡易処理放流水 : 河川水
Run. 3-1	6 : 0 (模擬簡易処理放流水)
Run. 3-2	4 : 2
Run. 3-3	3 : 3
Run. 3-4	2 : 4
Run. 3-5	0 : 6 (河川水)

## 4.2.2 分析方法

DOC 濃度の測定は、燃焼式全有機炭素分析装置 TOC-300V (Mitsubishi 社製) を用いて行った。EEM 分析 (2.4.3.1 参照) は、分光蛍光強度計 Aqualog (Horiba 社製) を用いて行った。EEM 測定の場合は、スキャン範囲を励起波長 Ex: 240~800 nm, 蛍光波長 Em: 243~825 nm, サンプリング間隔は励起光 3 nm, 蛍光 5 nm, 積分時間を 0.1 sec とした。機器の光学的特性による影響を補正するために、Murphy *et al.* を参考にブランク (超純水) の EEM 測定を行い、励起光の 1 次光及び 2 次光のレイリー散乱や水ラマン光散乱のスペクトルを取り除いた (Murphy *et al.*, 2013)。また、Lakowicz を参考に試料とブランク (超純水) から同時に測定した紫外可視吸収スペクトルを用いてインナーフィルター効果による EEM スペクトルの補正を行った (Lakowicz, 2006)。さらに、EEM 測定により得られる蛍光強度の値は機器や印加電圧により異なるため、Lawaetz and Stedmon, Stedmon *et al.* を参考に、得られた EEM に対し超純水の Ex: 350 nm, Em: 397.5 nm において積分時間を 30 sec としたラマン散乱スペクトルのピーク高さにて標準化 (単位: RU) し、分析日ごとの装置の状態の変動を補正した (Lawaetz and Stedmon, 2009; Stedmon *et al.*, 2003)。

EEM 測定で得られた励起・蛍光スペクトルのピークピックアップについては、第 2 章 2.4.1, 2.4.3.1 で説明した終沈後水中の FDOM の構成成分に関する先行研究 (Chen *et al.*, 2003) などを参考にし、図 4-4 に示す 4 つの代表ピーク peak.1, peak.2, peak.3 及び peak.4 に帰属して FDOM 成分を解釈した。タンパク質様成分では Ex: 275 nm, Em: 335 nm における peak.1, 陸域由来フミン様成分 (Stedmon and Markager, 2005) では Ex: 254 nm, Em: 441 nm における peak.2 と、Ex: 341 nm, Em: 441 nm における peak.3, 生物由来フミン様成分 (Rochelle-Newall and Fisher, 2005) では Ex: 240 nm, Em: 348 nm における peak.4 のように、帰属した代表ピークを解釈した。peak.1, 2, 3, 4 のそれぞれを Excel の INDIRECT 関数を活用したマクロ及びテンプレートによりピークピックアップし、各代表ピークにおける蛍光強度値 (単位: RU) を得た。

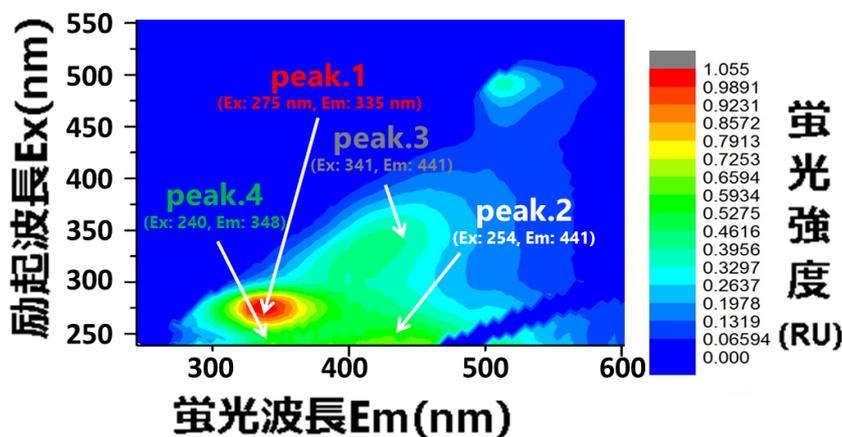


図 4-4 本章で帰属させた 4 つの代表ピーク peak.1 (タンパク質様成分), peak.2 (陸域由来フミン様成分①), peak.3 (陸域由来フミン様成分②) 及び peak.4 (生物由来フミン様成分)。

## 4.3 実験結果及び考察

### 4.3.1 生物処理実験

初沈後水に対する生物処理による EEM の経時変化を、図 4-5 に示す。また、FDOM 成分として EEM スペクトルのピークピックアップにより得られた peak.1 (タンパク質様成分), peak.2, 3 (陸域由来フミン様成分), peak.4 (生物由来フミン様成分) の蛍光強度 (RU) と DOC 濃度 (mg/L) の経時変化を、図 4-6 に

示す。本章の各種実験では、便宜的に peak.1, 2, 3, 4 を同じ重みで積み上げた指標（山口ら, 2018; 山口ら, 2019; 山口ら, 2020）として、FDOM 全成分を図示した。さらに、生物処理実験における MLSS 濃度の平均値・最大値・最小値、DO 濃度・pH の経時変化（田中景介, 2018; 松葉ら, 2018）を図 4-7 に示す。

図 4-7 左側の MLSS 濃度は、Run. 1-1 では平均 2,031 mg/L（最大 2,660 mg/L, 最小 1,640 mg/L）、Run. 1-2 では平均 1,268 mg/L（最大 1,420 mg/L, 最小 950 mg/L）、Run. 1-3 では平均 493 mg/L（最大 550 mg/L, 最小 430 mg/L）であった。図 4-6 右側の DO 濃度は、Run. 1-1（目標 MLSS 濃度 2,000 mg/L）では 6.6~8.0 mg/L、Run. 1-2 目標 MLSS 濃度 1,500 mg/L）では 6.6~8.3 mg/L、Run. 1-3 目標 MLSS 濃度 500 mg/L）では 7.0~7.9 mg/L の範囲で推移した。また、pH は Run. 1-1 では 5.8~7.4、Run. 1-2 では 5.6~7.3 で推移し経過時間に伴い減少傾向であったが、Run. 1-3 では 7.6~8.0 で推移し経過時間に伴いほとんど減少しなかった。

図 4-6 の FDOM 成分のおおよそ全体を表す代表ピークの peak.1, 2, 3, 4 の和 peak.f と DOC 濃度は、全ての Run において経過時間とともに減少傾向となり、特に MLSS 濃度が高い Run. 1-1, 1-2 で peak.f の減少が大きくなった。Run. 1-1, 1-2 では、ともに peak.f と DOC 濃度が類似の減少傾向であり、好気性細菌により易分解性有機物が速やかに分解されたため、FDOM の存在を示す蛍光強度 peak.f、DOC 濃度の減少は時間が進むにつれ収束したと考えられる。Run. 1-3 では、初期（0~1 hr）以降で DOC 濃度の大きな減少は見られず、peak.f は初期（0~1 hr）及び終期（4~8 hr）に増加した。特に、初沈後水に対する 8 hr の生物処理（MLSS 濃度 2,000 mg/L, 1,500 mg/L）により、開始直後（0 hr）と比べ peak.f の蛍光強度、DOC 濃度の両方が減少した。MLSS 濃度 2,000 mg/L（Run. 1-1）の場合、peak.f が約 2.7 RU から約 0.78 RU に減少する傾向となった。一方、DOC 濃度も約 12 mg/L から約 3.9 mg/L と減少し、peak.f と類似の減少傾向となった。また、MLSS 濃度 1,500 mg/L（Run. 1-2）の場合、peak.f が約 3.4 RU から約 1.1 RU に減少する傾向となった。一方、DOC 濃度も約 16 mg/L から約 5.1 mg/L と減少し、peak.f と類似の減少傾向となった。さらに、MLSS 濃度 500 mg/L（Run. 1-3）の場合、peak.f が約 3.3 RU から約 3.1 RU に小さく減少し、peak.1 が約 1.2 RU から約 0.78 RU に比較的大きく減少する傾向となった。一方、DOC 濃度は約 24 mg/L から約 15 mg/L と減少し、peak.f と異なるが peak.1 と類似した減少傾向となった。これは、peak.1, 2, 3, 4 で生物処理による減少の割合を定量的に比較する必要がある、特にタンパク質様成分の代表ピークである peak.1 がより大きく減少しているか検討する必要があると考えられる。

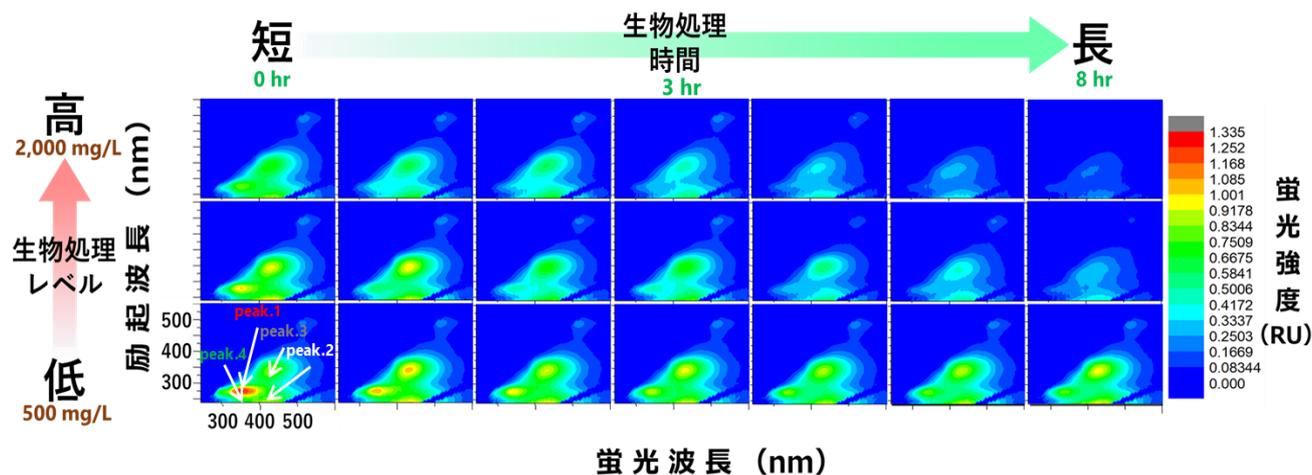


図 4-5 生物処理実験における初沈後水に対する生物処理による EEM の経時変化。生物処理条件は上段より Run. 1-1, 1-2, 1-3.

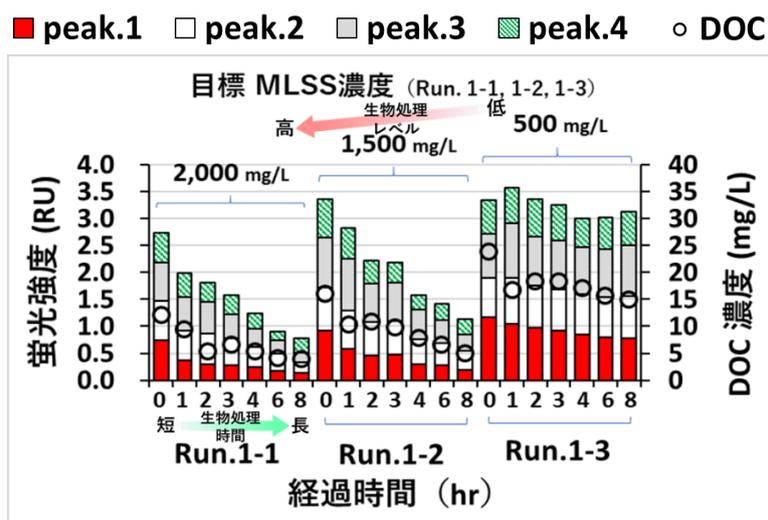


図 4-6 生物処理実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の経時変化。

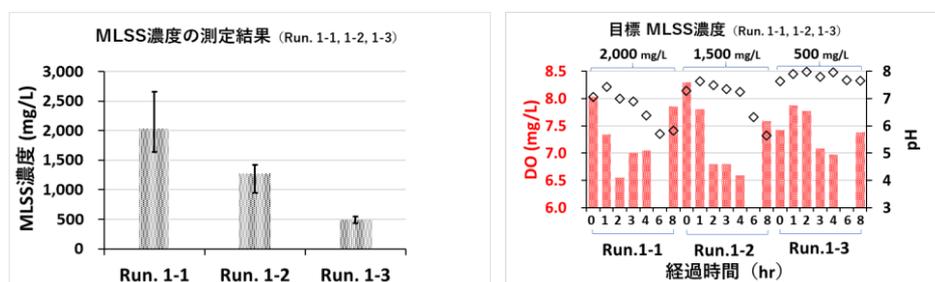


図 4-7 生物処理実験の結果. 左図は, 各 Run における MLSS 濃度の測定結果 (田中景介, 2018; 松葉ら, 2018). バーは算術平均値, エラーバーは最大値と最小値. 右図は, 各 Run における DO 濃度及び pH の測定結果. 各 Run で, 開始 6 hr 経過時の DO 濃度はデータなし.

peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の初発蛍光強度 (peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub>) に対する比と DOC 濃度の初発濃度 (DOC<sub>0</sub>) に対する比の経時変化を図 4-8 に示す. 特に(a) の peak.1/peak.1<sub>0</sub> について, Run. 1-1, 1-2, 1-3 のすべてで DOC/DOC<sub>0</sub> と類似した減少傾向を示した. まず MLSS 濃度 2,000 mg/L (Run. 1-1) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.1/peak.1<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.18 に 82 %程度低下し, DOC/DOC<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.32 に 68 %程度低下した. 次に MLSS 濃度 1,500 mg/L (Run. 1-2) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.1/peak.1<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.20 に 80 %程度低下し, DOC/DOC<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.32 に 68 %程度低下した. 最後に MLSS 濃度 500 mg/L (Run. 1-3) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.1/peak.1<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.67 に 33 %程度低下し, DOC/DOC<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.63 に 37 %程度低下した. 一方, (b) の peak.2/peak.2<sub>0</sub>, (c) の peak.3/peak.3<sub>0</sub>, (d) の peak.4/peak.4<sub>0</sub> のすべてについて, Run. 1-1, 1-2 の両方で DOC/DOC<sub>0</sub> と類似した減少傾向を示したが, Run. 1-3 では DOC/DOC<sub>0</sub> と異なる変化傾向を示した. 例えば peak.2/peak.2<sub>0</sub> について, まず MLSS 濃度 2,000 mg/L (Run. 1-1) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.2/peak.2<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.28 に 72 %程度低下した. 次に MLSS 濃度 1,500 mg/L (Run. 1-2) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.2/peak.2<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.46 に 54 %程度低下した. 最後に MLSS 濃度 500 mg/L (Run. 1-3) の場合, 開始直後 (0 hr) と比べ 8 hr 経過後の peak.2/peak.2<sub>0</sub> が 1.0 から約 1.1 に 10 %程度上昇した. これは, peak.1, 2, 3, 4 のうち peak.1 (タンパク質様成分) の生物処

理による減少率が MLSS 濃度にかかわらず最も大きいことを示している。

初沈後水に対する生物処理による, peak.1/peak.1<sub>0</sub> 及び DOC/DOC<sub>0</sub> と経過時間の関係を整理したものを図 4-9 に示す。図 4-9 左図のタンパク質様成分が, MLSS 濃度 2,000 mg/L, 1,500 mg/L と生物処理レベルが高い～中程度の場合で他の FDOM 成分や図 4-9 右図の DOM 全体と比べ時間経過にともない最も大き

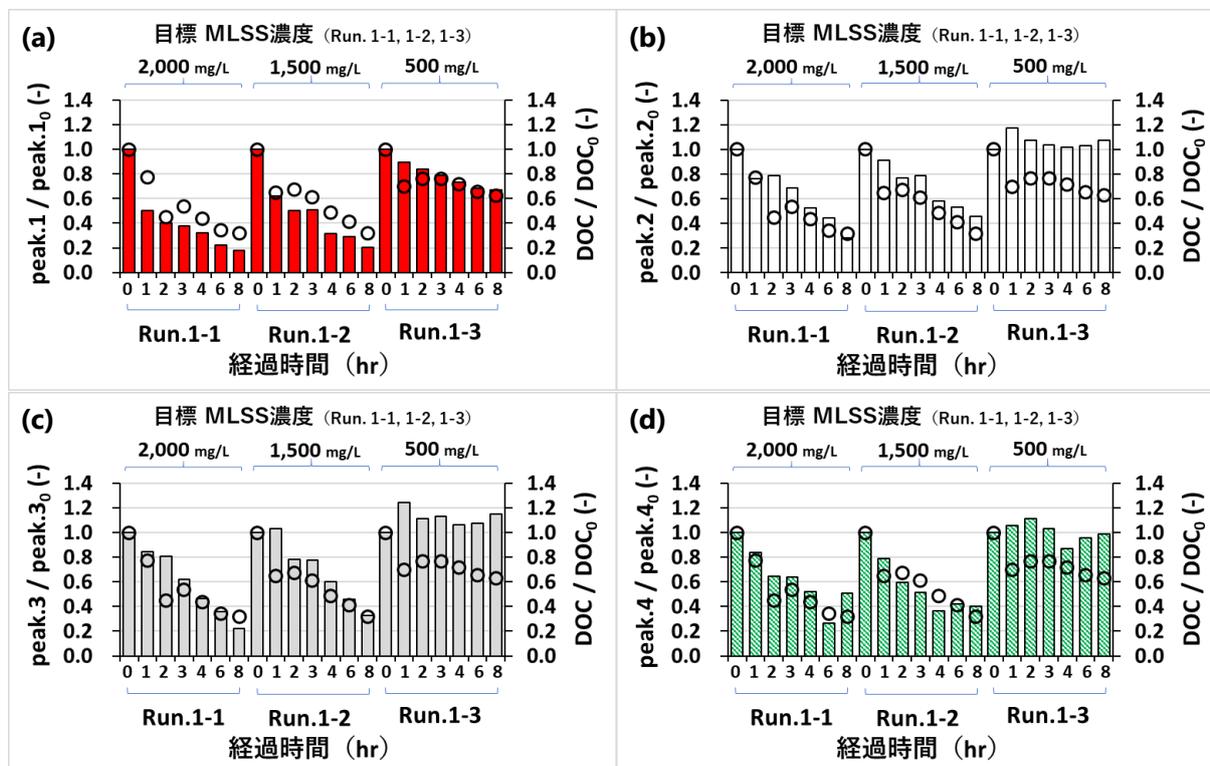


図 4-8 生物処理実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の初発蛍光強度 peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub> に対する比と DOC 濃度の初発濃度 DOC<sub>0</sub> に対する比の経時変化。(a) は peak.1 蛍光強度 (バー) と DOC 濃度 (プロット) の関係, (b) は peak.2 蛍光強度と DOC 濃度の関係, (c) は peak.3 蛍光強度と DOC 濃度の関係, (d) は peak.4 蛍光強度と DOC 濃度の関係。

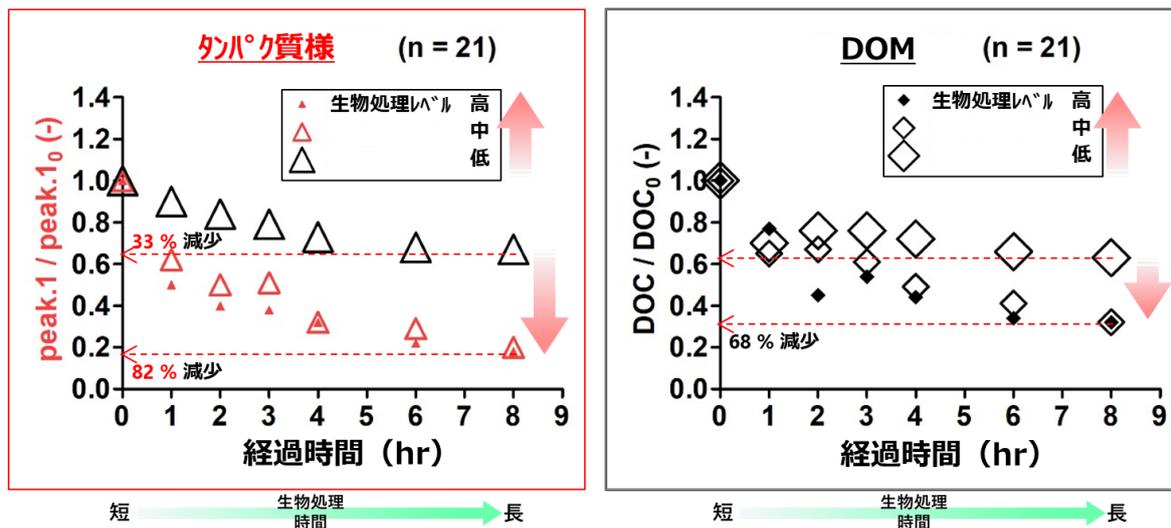


図 4-9 初沈後水に対する生物処理による, peak.1/peak.1<sub>0</sub>, DOC/DOC<sub>0</sub> と経過時間の関係。

く減少した。また、MLSS 濃度 500 mg/L と生物処理レベルが低い場合、タンパク質様成分の減少率は図 4-9 右図の全 DOM の減少率と同程度となった。これは、初沈後水中の FDOM 成分のうちタンパク質様成分が生物処理過程を推察できる指標となる可能性があることが考えられる。

4.3.2 凝集処理実験

流入下水に対する PACl の添加による EEM の変化を、図 4-10 に示す。FDOM 成分として EEM スペクトルのピークピッキングにより得られた peak.1 (タンパク質様成分), peak.2 (陸域由来フミン様成分①), peak.3 (陸域由来フミン様成分②), peak.4 (生物由来フミン様成分) の蛍光強度 (RU) と DOC 濃度 (mg/L) の変化を、図 4-11 に示す。さらに、凝集処理実験におけるゼータ電位・pH の変化を図 4-12 に示す。

図 4-12 のゼータ電位は、PACl の添加濃度 0 mg/L (無添加), 15 mg/L, 50 mg/L, 200 mg/L, 500 mg/L に対し、まず流入下水の無希釈 100 % (Run. 2-1) では、それぞれ-19 mV, -18 mV, -18 mV, -9.6 mV,

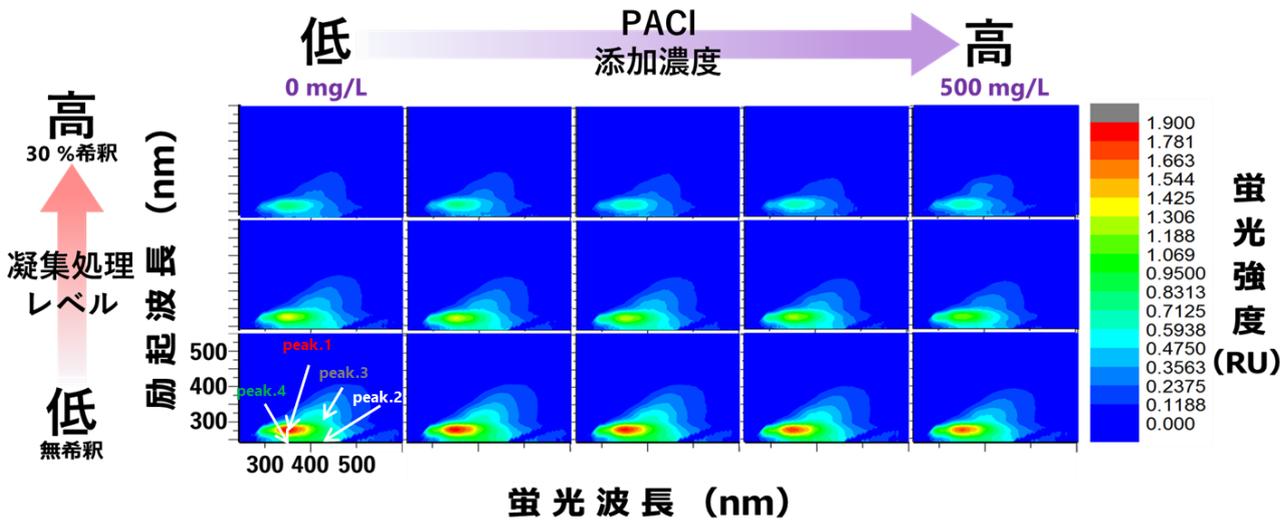


図 4-10 凝集処理実験における流入下水に対する PACl の添加による EEM の変化。凝集処理条件は下段より Run. 2-1, 2-2, 2-3.

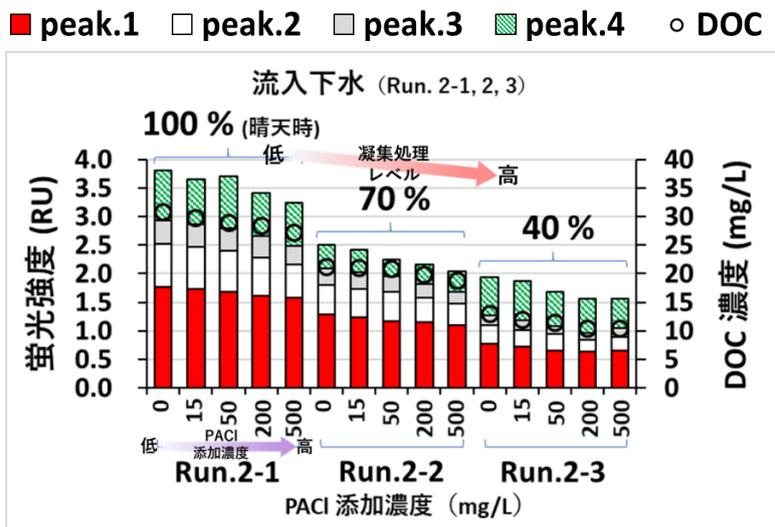


図 4-11 凝集処理実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の変化。

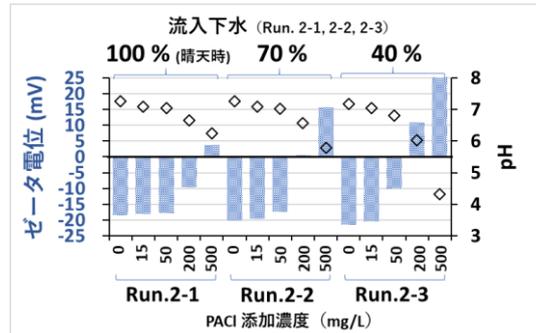


図 4-12 凝集処理実験の結果. 図は, ゼータ電位及び pH の結果.

+3.8 mV であった. 次に超純水で 70 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-2) では, それぞれ-20 mV, -20 mV, -17 mV, +0.49 mV, +16 mV であった. 最後に超純水で 40 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-3) では, それぞれ-22 mV, -21 mV, -10 mV, +11 mV, +25 mV であった. Run. 2-1 では PACI 添加濃度 500 mg/L で, Run. 2-2, 2-3 では PACI 添加濃度 200 mg/L で, それぞれ荷電中和に達し, 粒子態有機物が生成されたため凝集処理が十分行われたと判断できる.

図 4-11 の FDOM 成分のおおよそ全体を表す代表ピークの peak.1, 2, 3, 4 の和 peak.f と DOC 濃度は, 全ての Run において PACI 添加濃度の増加にともないほぼ減少傾向となったが, 流入下水の希釈による減少傾向の違いがみられた. Run. 2-1 (無希釈) では, peak.f が PACI 添加濃度 15 mg/L の 3.66 RU に比べ PACI 添加濃度 50 mg/L の 3.70 RU となりやや増加傾向だったが, peak.1 はそれぞれ 1.74 RU, 1.69 RU となりやや減少傾向であった. Run. 2-3 (40 %に希釈) では PACI 添加濃度 200 mg/L で流入下水中の有機性分子が正荷電になったため, FDOM の存在を示す蛍光強度 peak.f, DOC 濃度の減少は荷電中和を超過した PACI 添加濃度の増加にともない収束したと考えられる. PACI 添加濃度 0 mg/L (無添加) と 500 mg/L を比べると, 流入下水の無希釈 100 % (Run. 2-1) の場合, peak.f が約 2.9 RU から約 2.5 RU に減少する傾向となった. 一方, DOC 濃度も約 31 mg/L から約 27 mg/L と減少し, peak.f と類似の減少傾向となった. また, 超純水で 70 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-2) の場合, peak.f が約 2.1 RU から約 1.7 RU に減少する傾向となった. 一方, DOC 濃度も約 21 mg/L から約 19 mg/L と減少し, peak.f と類似の減少傾向となった. さらに, 超純水で 40 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-3) の場合, peak.f が約 1.3 RU から約 1.0 RU に減少する傾向となった. 一方, DOC 濃度も約 13 mg/L から約 11 mg/L と減少し, peak.f と類似の減少傾向となった. これは, peak.1, 2, 3, 4 で凝集処理による減少の割合を定量的に比較する必要があり, 特にタンパク質様成分の代表ピークである peak.1 がより大きく減少しているか検討する必要があると考えられる.

peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の PACI 無添加蛍光強度 (peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub>) に対する比と DOC 濃度の PACI 無添加濃度 (DOC<sub>0</sub>) に対する比の変化を図 4-13 に示す. 特に, (a) の peak.1/peak.1<sub>0</sub> について, Run. 2-1, 2-2, 2-3 のすべてで DOC/DOC<sub>0</sub> と類似した減少傾向を示した. まず, 流入下水の無希釈 100 % (Run. 2-1) の場合, PACI 無添加 (0 mg/L) 時と比べ PACI 500 mg/L 添加時の peak.1/peak.1<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.89 に 11 %程度低下し, DOC/DOC<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.88 に 12 %程度低下した. 次に, 超純水で 70 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-2) の場合, PACI 無添加と比べ PACI 500 mg/L 添加時の peak.1/peak.1<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.85 に 15 %程度低下し, DOC/DOC<sub>0</sub> が 1.0 から約 0.88 に 12 %程度低下した. 最後に, 超純水で 40 %に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-3) の場合, PACI 無添加と比べ PACI 500 mg/L 添加時の peak.1/peak.1<sub>0</sub>

が 1.0 から約 0.84 に 16%程度減少し、 $DOC/DOC_0$  が 1.0 から約 0.81 に 19%程度低下した。また、(b) の  $peak.2/peak.2_0$  , (c) の  $peak.3/peak.3_0$  について、Run. 2-1, 2-2, 2-3 のすべてで  $DOC/DOC_0$  と異なる減少傾向を示した。まず、流入下水の無希釈 100% (Run. 2-1) の場合、PACl 無添加 (0 mg/L) 時と比べ PACl 500 mg/L 添加時の  $peak.2/peak.2_0$  が 1.0 から約 0.79 に 21%程度低下し、 $peak.3/peak.3_0$  が 1.0 から約 0.78 に 22%程度低下した。次に、超純水で 70%に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-2) の場合、PACl 無添加と比べ PACl 500 mg/L 添加時の  $peak.2/peak.2_0$  が 1.0 から約 0.74 に 26%程度低下し、 $peak.3/peak.3_0$  が 1.0 から約 0.71 に 29%程度低下した。最後に、超純水で 40%に希釈した模擬雨天時下水 (Run. 2-3) の場合、PACl 無添加 (0 mg/L) と比べ PACl 200 mg/L 添加時の  $peak.2/peak.2_0$  が 1.0 から約 0.67 に 33%程度低下し、 $peak.3/peak.3_0$  が 1.0 から約 0.72 に 28%程度低下した。一方、PACl 無添加と比べ PACl 500 mg/L 添加時の  $peak.2/peak.2_0$  が 1.0 から約 0.77 に 23%程度低下し、 $peak.3/peak.3_0$  が 1.0 から約 0.92 に 8%程度低下した。また、(d) の  $peak.4/peak.4_0$  について、Run. 2-1, 2-2, 2-3 のそれぞれで  $DOC/DOC_0$  と異なる変化傾向を示した。これは  $peak.1, 2, 3, 4$  のうち  $peak.2$  (陸域由来フミン様成分①),  $peak.3$  (陸域由来フミン様成分②) の凝集処理による減少率が流入下水のどの希釈割合でも最も大きいことを示している。

流入下水に対する凝集処理による  $peak.2/peak.2_0$  及び  $DOC/DOC_0$  と経過時間の関係を整理したものを図 4-14 に示す。図 4-14 左図の陸域由来フミン様成分が、流入下水の無希釈 100%と凝集処理レベルが低い場合、流入下水を 70%に希釈した凝集処理レベルが中程度の場合で他の FDOM 成分や図 4-14 右図の DOM 全体と比べ PACl 添加濃度の増加にともない最も大きく減少した。また流入下水を 40%に希

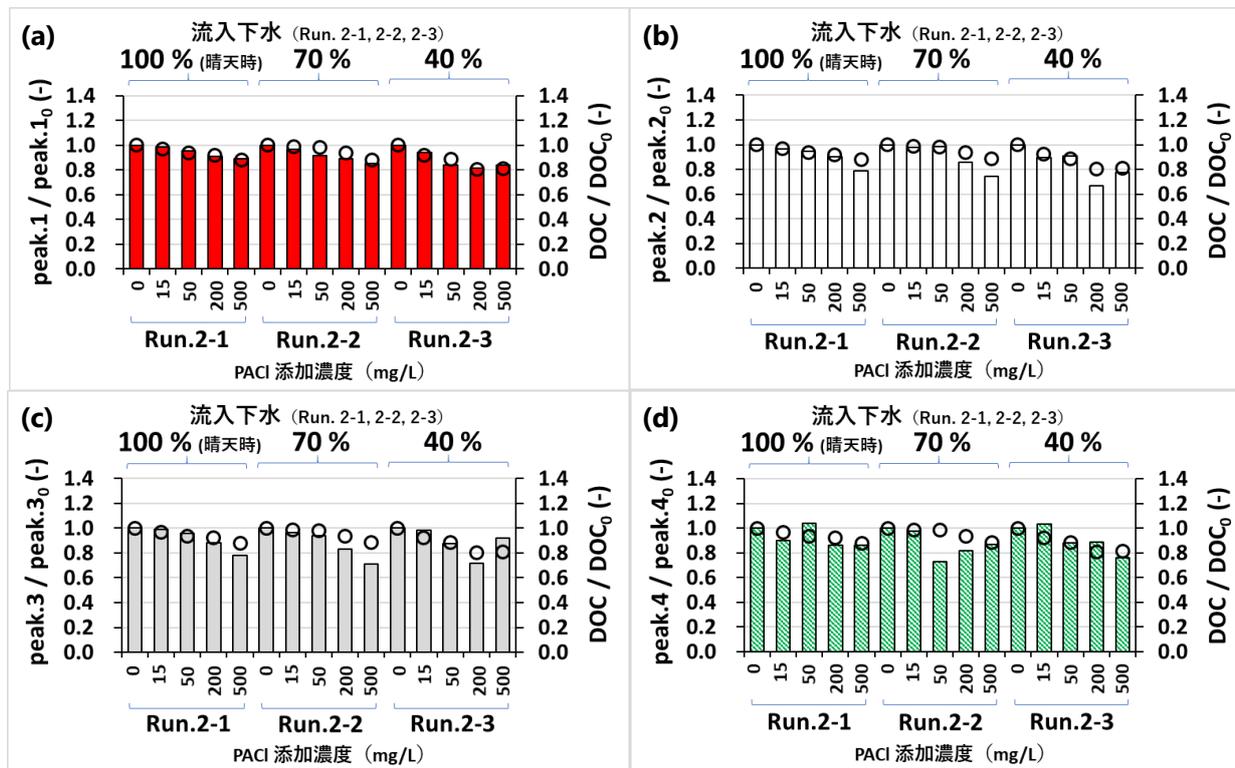


図 4-13 凝集処理実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の PACl 無添加蛍光強度  $peak.1_0, 2_0, 3_0, 4_0$  に対する比と DOC 濃度の PACl 無添加濃度  $DOC_0$  に対する比の変化。(a) は  $peak.1$  蛍光強度 (バー) と DOC 濃度 (プロット) の関係, (b) は  $peak.2$  蛍光強度と DOC 濃度の関係, (c) は  $peak.3$  蛍光強度と DOC 濃度の関係, (d) は  $peak.4$  蛍光強度と DOC 濃度の関係。

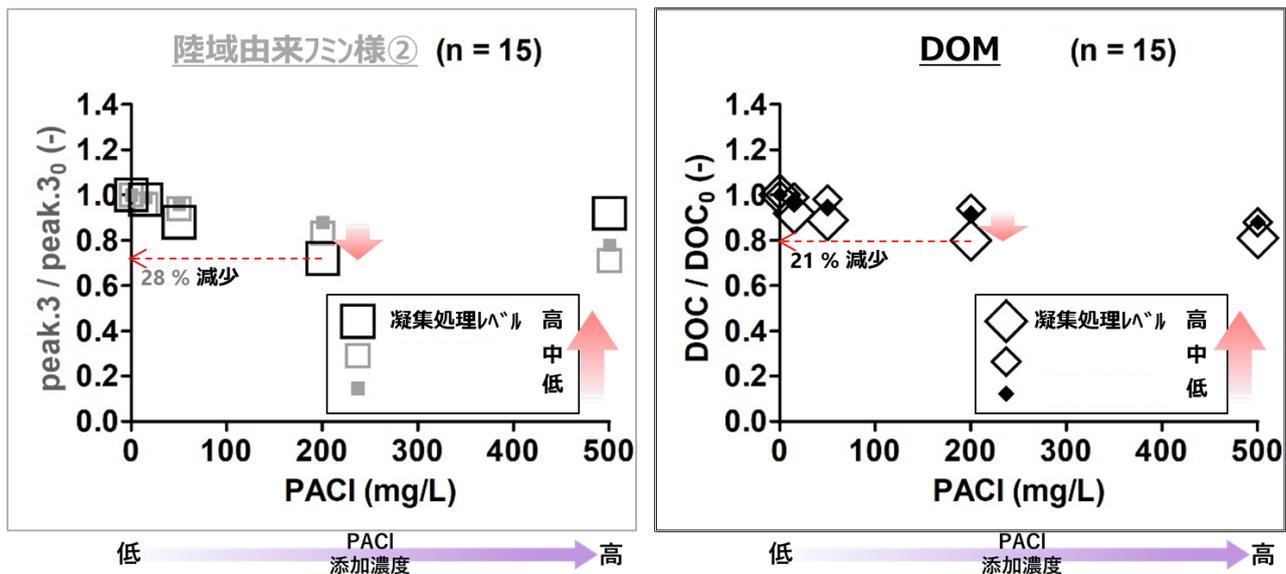


図 4-14 流入下水に対する凝集処理による，peak.2/ peak.2<sub>0</sub>，DOC/ DOC<sub>0</sub>と PACl 添加濃度の関係．

積した凝集処理レベルが高い場合，陸域由来フミン様成分の減少率は PACl 200 mg/L 添加時に最大となった．これは，流入下水中の FDOM 成分のうち陸域由来フミン様成分が凝集処理過程を推察できる指標となる可能性があることが考えられる．

#### 4.3.3 下水混入実験

終沈後水と初沈後水の混合による模擬簡易処理放流水と河川水の混合による EEM の変化を，図 4-15 に示す．FDOM 成分として EEM スペクトルのピークピッキングにより得られた EEM 上の peak.1（タンパク質様成分），peak.2, 3（陸域由来フミン様成分），peak.4（生物由来フミン様成分）の蛍光強度（RU）と DOC 濃度（mg/L）の変化を，図 4-16 に示す．図 4-16 の FDOM 成分のおおよそ全体を表す代表ピークの peak.1, 2, 3, 4 の和 peak.f と DOC 濃度は，全ての Run において終沈後水（高級処理水）への初沈後水（模擬簡易処理水）の混合割合の増加にともない増加傾向となり，河川水混合の希釈効果による増加傾向が小さくなった．Run. 3-1, 3-2, 3-3, 3-4, 3-5 は，いずれも peak.f と DOC 濃度が類似の増加傾向であり，高級処理水への模擬的な簡易処理水混入により FDOM の存在を示す蛍光強度 peak.f，DOC 濃度の増加にともない，模擬的な簡易処理放流水として，通常の下水处理放流水より水質が悪化したと考えられる．特に，簡易処理放流水の河川水混合による希釈効果がない（Run. 3-1）場合，peak.f が約 1.6 RU から約 2.6 RU に増加し，うち peak.1 が約 0.33 RU から約 1.1 RU に増加する傾向となった．一方，DOC 濃度も約 4.6 mg/L から約 14 mg/L へ増加し，peak.f と類似の増加傾向となった．また，簡易処理放流水の河川水混合による希釈効果が高い（Run. 3-4）場合，peak.f が約 0.65 RU から約 1.1 RU に増加し，うち peak.1 が約 0.14 RU から約 0.39 RU に増加する傾向となった．一方，DOC 濃度も約 3.2 mg/L から約 6.9 mg/L へ増加し，peak.f と類似の増加傾向となった．これは，高級処理水への簡易処理水混入による peak.1, 2, 3, 4 の増加の割合を定量的に比較する必要がある，特にタンパク質様成分の代表ピークである peak.1 がより大きく減少しているか検討する必要があると考えられる．

また，全ての模擬簡易処理放流水において peak.f と DOC 濃度は，模擬簡易処理放流水と河川水の混合

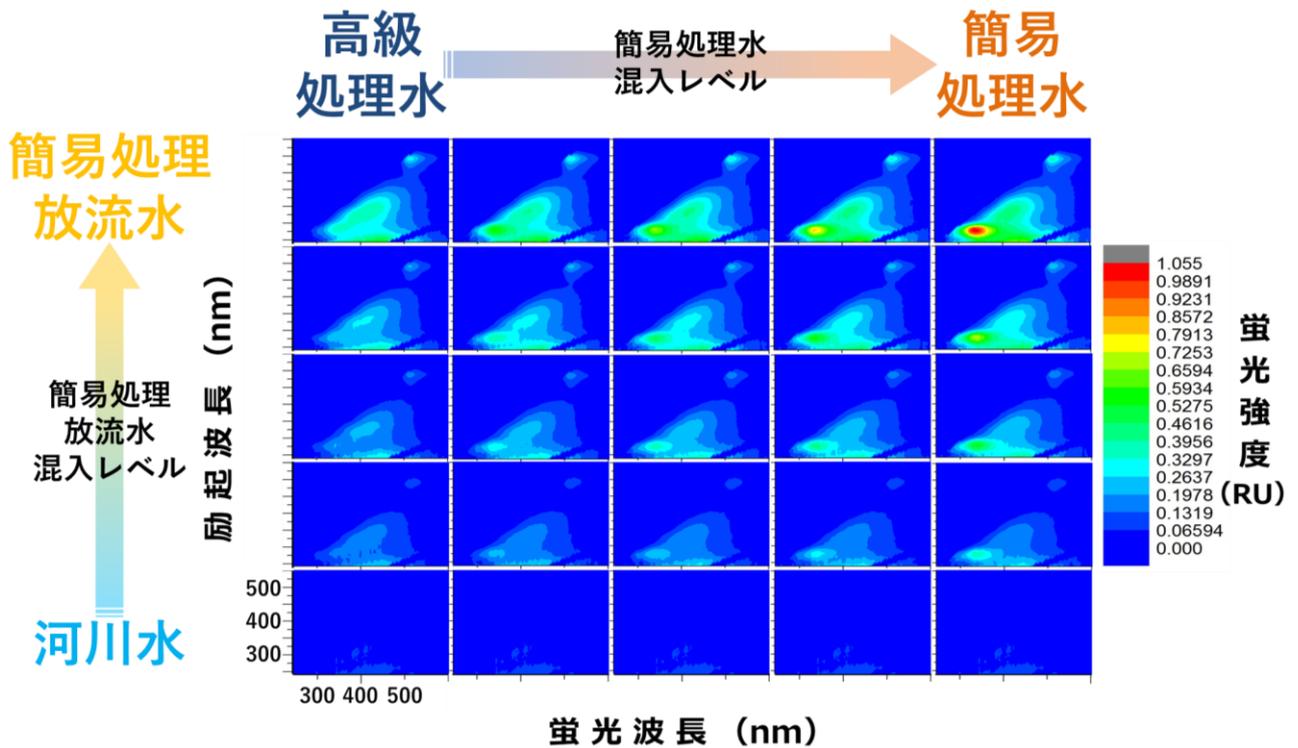


図 4-15 下水混入実験における終沈後水（高級処理水）と初沈後水（模擬簡易処理水）と南湖水（河川水）の混合による EEM の変化. 下水混入条件は上段より Run. 3-1, 3-2, 3-3, 3-4, 3-5.

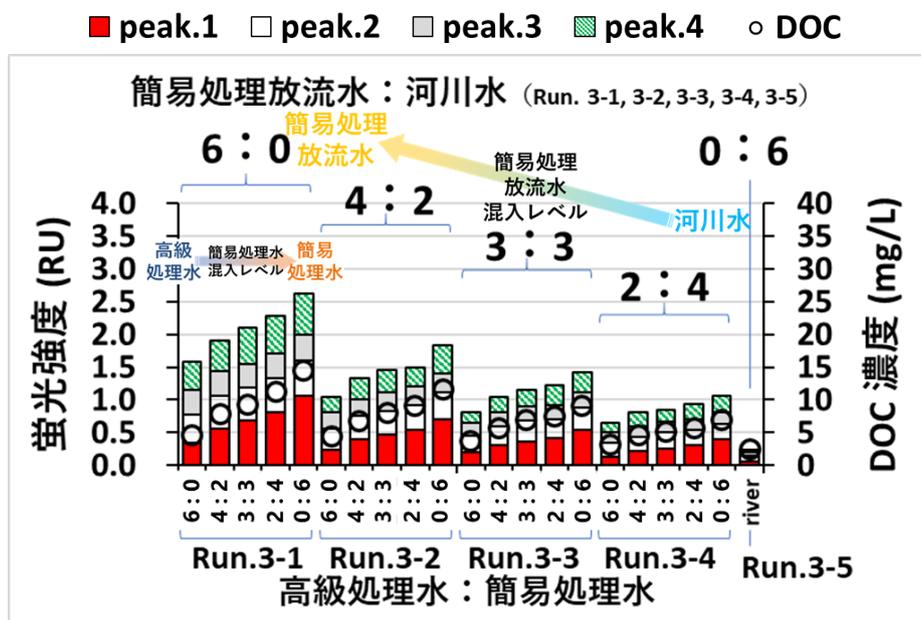


図 4-16 下水混入実験の EEM 上の peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度及び DOC 濃度の変化.

割合を、0:6 (Run. 3-5) から 2:4 (Run. 3-4) , 3:3 (Run. 3-3) , 4:2 (Run. 3-2) , 6:0 (Run. 3-1) に段階的に変化させることで、河川水への簡易処理放流水の混合割合の増加にともない増加傾向となった。特に、高級処理水と簡易処理水の混合割合が 6:0 (通常の下水処理放流水) の場合、peak.f が約 0.24 RU (Run. 3-5) から約 0.65 RU (Run. 3-4) , 約 0.81 RU (Run. 3-3) , 約 1.0 RU (Run. 3-2) , 約 1.6 RU (Run. 3-1) に

増加し、うち peak.1 が約 0.061 RU (Run. 3-5) から約 0.14 RU (Run. 3-4), 約 0.19 RU (Run. 3-3), 約 0.23 RU (Run. 3-2), 約 0.33 RU (Run. 3-1) に増加する傾向となった。一方, DOC 濃度も約 2.4 mg/L (Run. 3-5) から約 3.2 mg/L (Run. 3-4), 約 3.7 mg/L (Run. 3-3), 約 4.4 mg/L (Run. 3-2), 約 4.6 mg/L (Run. 3-1) へ増加し, peak.f と類似の増加傾向となった。一方, 高級処理水と簡易処理水の混合割合が 0:6 (簡易処理水のみ) の場合, peak.f が約 0.24 RU (Run. 3-5) から約 1.1 RU (Run. 3-4), 約 1.4 RU (Run. 3-3), 約 1.8 RU (Run. 3-2), 約 2.6 RU (Run. 3-1) に増加し, うち peak.1 が約 0.061 RU (Run. 3-5) から約 0.39 RU (Run. 3-4), 約 0.53 RU (Run. 3-3), 約 0.71 RU (Run. 3-2), 約 1.1 RU (Run. 3-1) に増加する傾向となった。一方, DOC 濃度も約 2.4 mg/L (Run. 3-5) から約 6.9 mg/L (Run. 3-4), 約 9.1 mg/L (Run. 3-3), 約 12 mg/L (Run. 3-2), 約 14 mg/L (Run. 3-1) へ増加し, peak.f と類似の増加傾向となった。これは, 簡易処理水のみでの簡易処理放流水が河川水へ混入する場合においても, peak.1, 2, 3, 4 の増加の割合を定量的に比較する必要があり, 特に peak.1 がより大きく減少しているか検討する必要があると考えられる。

peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の河川水中蛍光強度 (peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub>) に対する比と DOC 濃度の河川水中濃度 (DOC<sub>0</sub>) に対する比の変化を図 4-17 に示す。特に図 4-17 (a) の peak.1/ peak.1<sub>0</sub>, (d) の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> について, Run. 3-1, 3-2, 3-3, 3-4, 3-5 のすべてで DOC/ DOC<sub>0</sub> と類似した減少傾向を示した。例えば peak.1/ peak.1<sub>0</sub> について, まず簡易処理放流水のみ (Run. 3-1) の場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.1/ peak.1<sub>0</sub> が約 5.5 から約 17 に 309 %程度上昇し, DOC/ DOC<sub>0</sub> が約 1.9 から約 5.9 に 311 %程度上昇した。次に簡易処理放流水が河川水により約 66 %に希釈される (Run. 3-2) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.1/ peak.1<sub>0</sub> が約 3.8 から約 12 に 263 %程度上昇し, DOC/ DOC<sub>0</sub> が約 1.8 から約 4.8 に 267 %程度上昇した。次に簡易処理放流水が河川水により 50 %に希釈される (Run. 3-3) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.1/ peak.1<sub>0</sub> が約 3.2 から約 8.7 に 272 %程度上昇し, DOC/ DOC<sub>0</sub> が約 1.5 から約 3.7 に 247 %程度上昇した。最後に簡易処理放流水が河川水により約 33 %に希釈される (Run. 3-4) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.1/ peak.1<sub>0</sub> が約 2.2 から約 6.4 に 291 %程度上昇し, DOC/ DOC<sub>0</sub> が約 1.3 から約 2.8 に 215 %程度上昇した。また, 図 4-17 (d) の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> について, まず簡易処理放流水のみ (Run. 3-1) の場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> が約 12 から約 17 に 142 %程度上昇した。次に簡易処理放流水が河川水により約 66 %に希釈される (Run. 3-2) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> が約 6.6 から約 12 に 182 %程度上昇した。次に簡易処理放流水が河川水により 50 %に希釈される (Run. 3-3) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> が約 4.6 から約 8.2 に 178 %程度上昇した。最後に簡易処理放流水が河川水により約 33 %に希釈される (Run. 3-4) 場合, 簡易処理水が混入しない (終沈後水: 初沈後水=6:0) 場合と比べ簡易処理水のみ (終沈後水: 初沈後水=0:6) の場合の peak.4/ peak.4<sub>0</sub> が約 4.0 から約 6.9 に 173 %程度上昇した。これは, 高級処理水への簡易処理水の混入割合の増加による peak.1, 2, 3, 4 のうち peak.1 (タンパク質様成分), 4 (生物由来フミン様成分) の増加率が河川水による希釈割合にかかわらず大きいことを示している。

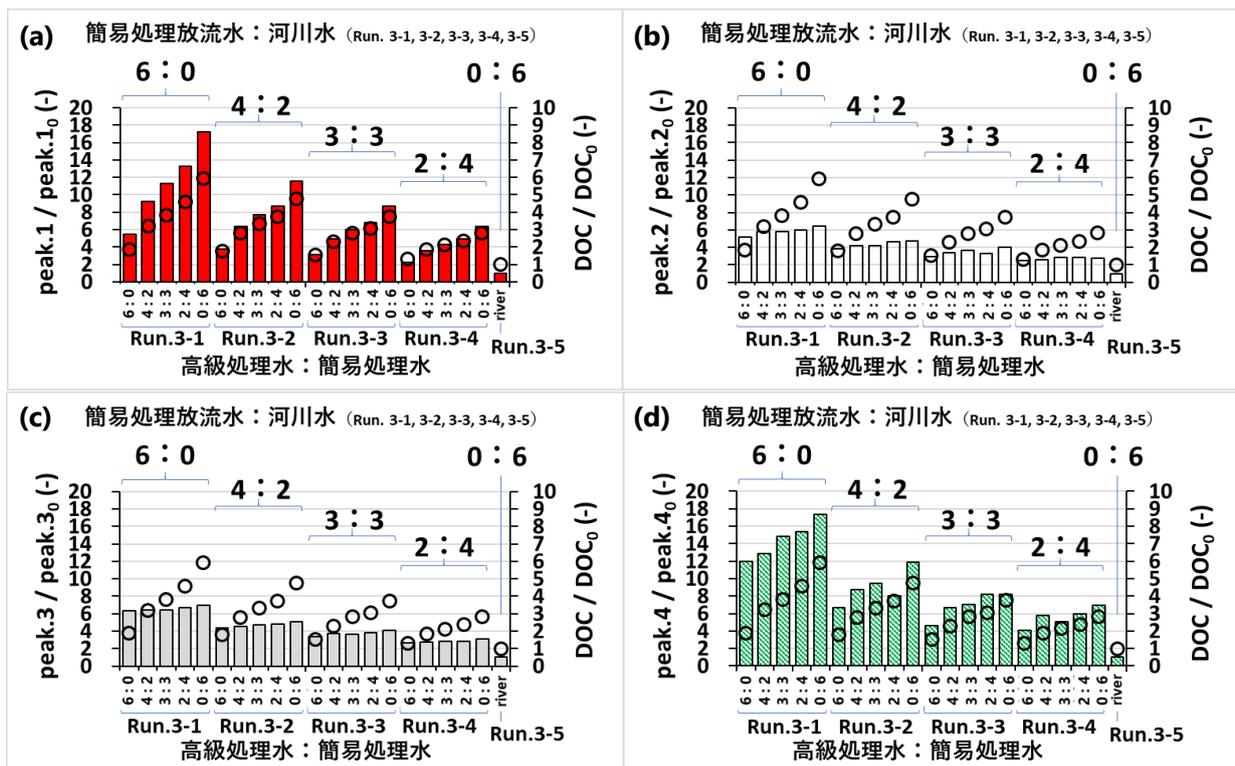


図 4-17 下水混入実験における peak.1, 2, 3, 4 の蛍光強度の河川水中蛍光強度 peak.1<sub>0</sub>, 2<sub>0</sub>, 3<sub>0</sub>, 4<sub>0</sub> に対する比と DOC 濃度の河川水中濃度 DOC<sub>0</sub> に対する比の変化. (a) は peak.1 蛍光強度 (バー) と DOC 濃度 (プロット) の関係, (b) は peak.2 蛍光強度と DOC 濃度の関係, (c) は peak.3 蛍光強度と DOC 濃度の関係, (d) は peak.4 蛍光強度と DOC 濃度の関係.

高級処理水への簡易処理水の混入による, peak.1/peak.1<sub>0</sub>, peak.2/peak.2<sub>0</sub>, peak.3/peak.3<sub>0</sub>, peak.4/peak.4<sub>0</sub> 及び DOC/DOC<sub>0</sub> と簡易処理水の混入割合 (下水混入率) の関係を整理したものを図 4-18 に示す. 図 4-18 左図のタンパク質様成分が, 河川水による希釈割合にかかわらず他の FDOM 成分や図 4-18 右図の DOM 全体と比べ下水混入率の増加にともない最も大きく増加した. また, 図 4-18 右図の DOM 全体の場合と比べ下水混入によるタンパク質様成分の増加率が鋭敏となった. さらに, 河川水への高級処理水混入によりタンパク質様成分が 2.2~5.4 倍に増加し, 河川水への簡易処理水混入によりタンパク質様成分が 6.4~17 倍に増加し, 河川水への簡易処理放流水混入によりタンパク質様成分が 3.6~13 倍に増加した. これは, 河川水混合による希釈効果と生分解履歴のそれぞれの寄与度は不明であるが, 初沈後水中の FDOM 成分のうちタンパク質様成分が下水混入過程を推察できる指標となる可能性があることが考えられる.

#### 4.4 第 4 章のまとめ

本章の基礎実験では, 模擬的な雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM の水質変化特性を, 生物処理実験・凝集処理実験により検討した. また, 高級処理水への模擬的な簡易処理水混入や, 河川水への模擬的な簡易処理放流水混入による FDOM の水質変化特性を, 下水混入実験により検討した. 結果を以下にまとめる.

- (1) 生物処理実験により各代表ピークで蛍光強度の減少率と経過時間を比較した. 結果, FDOM のうち

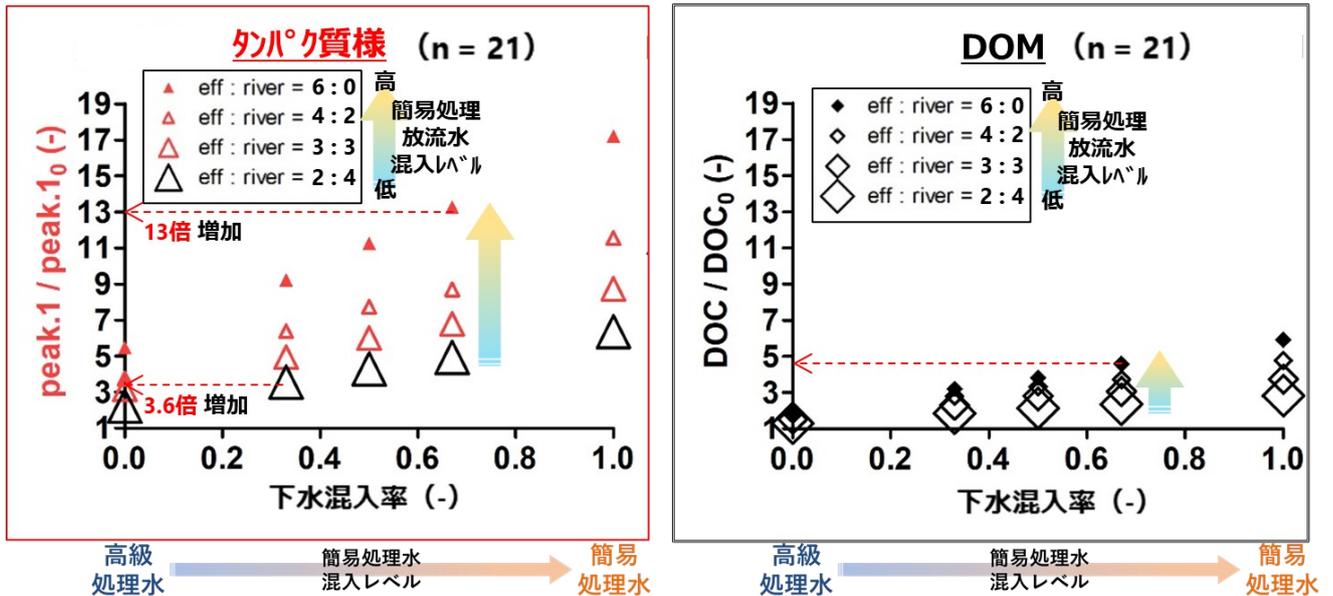


図 4-18 高級処理水への簡易処理水の混入による、peak.1/ peak.1<sub>0</sub> 及び DOC/ DOC<sub>0</sub> と簡易処理水の混入割合（下水混入率）の関係。

タンパク質様成分が、時間経過で最も大きく減少した。よって、経過時間が最長 8 hr の生物処理を受けることによる水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることが示唆された (4.3.1 参照)。

- (2) 凝集処理実験により各代表ピークで蛍光強度の減少率と PACI 添加濃度を比較した。結果、FDOM のうちタンパク質様成分及び陸域由来フミン様成分が、PACI 添加濃度にともない比較的大きく減少し、特に陸域由来フミン様成分が最も大きく減少した。よって、PACI 添加濃度が最大 500 mg/L の凝集処理を受けることによる水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうち陸域由来フミン様成分が有力であることが示唆された (4.3.2 参照)。
- (3) 下水混入実験により各代表ピークで蛍光強度の増加率と下水混入率を比較した。結果、FDOM のうちタンパク質様成分が、下水混入で最も大きく増加した。よって、雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることが示唆された (4.3.3 参照)。

本章で示した各種基礎実験の成果により、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている DOC 濃度 (DOM 指標) に対し、EEM のピークピッキングによる下水中 FDOM の蛍光強度を活用することにより、FDOM のうち特にタンパク質様成分、陸域由来フミン様成分の利用性を明らかにした (目的 2)。すなわち、雨天時下水の生物処理・凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうち、それぞれタンパク質様成分・陸域由来フミン様成分が有力であることが示された。また、高級処理水への雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク

質様成分が有力であることも示された。

今後の課題として以下の事項が挙げられる。EEM データ数が少なくピークピッキングにより蛍光強度を調べたことにより、EEM 上のピークの重なりが考慮されていない。よって EEM データ数を 150 以上に増やし、PARAFAC 解析による各 FDOM 成分のスコア値を用いて再検討する必要があると考えられる。

将来的に確認することが望ましい事項について、以下に述べる。まず、高級処理水への簡易処理水混入に際し、塩素注入の影響が考慮されていないため、塩素処理による FDOM の変化特性を確認することが望ましいと考えられる。次に、生物処理実験において返送汚泥中の FDOM 組成が初沈後水中 FDOM 組成に与える影響について理解するためには、将来的に確認のための検討を行うことが望ましいと考えられる。また、生物処理実験における各 Run の開始直後（経過時間 0 hr）について、返送汚泥と初沈後水の混合液中 FDOM 成分の構成割合に規則性があるかを理解し、次に、凝集処理実験における各 Run の凝集剤無添加（PACl 添加濃度 0 mg/L）についても、流入下水の超純水による希釈による FDOM 成分の構成割合に規則性があるかを理解するためには、将来的に確認のための検討を行うことが望ましいと考えられる。最後に、下水混入実験において河川水混合による希釈効果と生分解履歴のそれぞれの寄与度が不明であるため、全 DOM に対する各 FDOM 成分の割合を用いた検討や、河川水の生分解性を制御した実験系の検討を行うことが望ましいと考えられる。

以降の第 5 章・第 6 章では、主に本章で有力視されたタンパク質様成分・陸域由来フミン様成分の FDOM を対象に、実際の雨天時下水処理や雨天時下水混入において水質変換過程が推察される簡易指標としてふさわしいかどうか、それぞれ FDOM 成分の検知性を検証する。

## 参考文献

- **Chen, W., Westerhoff, P., Leenheer, J. A. and Booksh, K.:** Fluorescence Excitation-Emission Matrix Regional Integration to Quantify Spectra for Dissolved Organic Matter, *Environmental Science and Technology*, Vol. 37, No. 24, pp 5701-5710, 2003.
- **Cohen, E., Levy G. J. and Borisover, M.:** Fluorescent Components of Organic Matter in Wastewater: Efficacy and Selectivity of the Water Treatment, *Water Research*, Vol. 55, pp 323-334, 2014.
- **Lakowicz, J. R.:** Principles of Fluorescence Spectroscopy, Springer US, NY, USA, 2006.
- **Lawaetz, A. J. and Stedmon, C. A.:** Fluorescence intensity calibration using the raman scatter peak of water, *Applied Spectroscopy*, Vol. 63, No. 8, pp 936-940, 2009.
- **Murphy, K. R., Stedmon, C. A., Graeber, D. and Bro, R.:** Fluorescence Spectroscopy Multi-Way Techniques. PARAFAC, *Analytical Methods*, Vol. 5, No. 23, pp 6557-6566, 2013.
- **Rochelle-Newall, E. J. and Fisher, T. R.:** Production of chromophoric dissolved organic matter fluorescence in marine and estuarine environments: an investigation into the role of phytoplankton, *Marine Chemistry*, Vol. 77, No. 1, pp 7-21, 2002.
- **Rock, K., Da Silva, A., Hooper, J., Mosher, J., Bell, K. and Snyder, S. A.:** What Monitoring Tools Do We Need for Direct Potable Reuse?, The Water Research Foundation, No. 4508, 2015.
- **Rock, K. and Jang, H.:** Assessment of Techniques for Evaluating and Demonstrating Safety of Water from Direct

Potable Reuse Treatment Facilities, The Water Research Foundation, No. 4508, 2018.

● **Stedmon, C. A., Markager, S. and Bro, R.:** Tracing dissolved organic matter in aquatic environments using a new approach to fluorescence spectroscopy, *Marine Chemistry*, Vol. 82, pp 239-254, 2003.

● **Stedmon, C. A. and Markager, S.:** Resolving the Variability in Dissolved Organic Matter Fluorescence in a Temperate Estuary and its Catchment Using PARAFAC Analysis, *Limnology and Oceanography*, Vol. 50, No. 2, pp 686-697, 2005.

○ **安藤晴夫, 和波一夫, 石井真理奈, 竹内健:** 雨天時水質調査結果について (2) -雨天時における運河部の水質変化-, 東京都環境科学研究所年報 2010, pp 126-131, 2010.

○ **井原賢, 山口武志, 林東範, 田村太一, 牧野樹生, 山下尚之, 田中宏明:** 河川の衛生学的安全性へ与える降雨時の都市排水の影響, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 2017-5211-034, 2018.

○ **上門卓矢:** 合流式下水処理施設における雨天時消毒機能の評価, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2009.

○ **内田翔:** 合流式下水処理場における雨天時水質モニタリングに関する研究, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2008.

○ **清水芳久 (第3章執筆担当), 田中宏明, 田中祐之, 加藤康弘, 高島英二郎, 鈴木穰, 水野忠雄, 田中周平:** 水環境中 NOM の抽出および分析方法の確立 (第3章), JST CREST 「21世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」に関する報告書, 戦略的創造研究推進事業 CREST, 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」, 2015.

○ **諏訪守, 安井宣仁, 南山瑞彦:** 合流式下水道の改善によるノロウイルス負荷の削減効果, 第53回下水道研究発表会講演集, pp 431-433, 2016.

○ **田中景介:** 雨天時の下水処理場における指標微生物及びアンモニアの制御に関する検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2018.

○ **田中宏明, 山下尚之, 花本征也, 端昭彦, 白坂勇也, 山口武志:** 淀川水系中流域における病原微生物と指標微生物の動態の比較, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 27-1211-015, 2016.

○ **樋上正晃:** セラミック膜を用いた雨天時下水処理方法の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2012.

○ **松田尚之:** 合流式下水道改善対策検討委員会報告について, 建設マネジメント技術 2002年4月号, pp 20-26, 2002.

○ **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「EICA」, Vol. 23, No. 2-3, pp 47-51, 2018.

○ **山口武志, 山下尚之, 田中宏明:** EEM-PARAFAC による河川水中の溶存態有機物の動態へ及ぼす雨天時都市下水の影響検討, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 74, No. 7, pp III\_275-III\_284, 2018.

○ **山口武志, 山下尚之, 田村太一, 田中宏明:** 琵琶湖流出河川水中の溶存態有機物と衛生微生物の動態へ及ぼす雨天時下水の影響調査, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 75, No. 7, pp III\_185-III\_198, 2019.

○ **山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明:** 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

○ **山本高弘, 中村貴昭:** 大阪市における既存施設を利用した合流式下水道の改善, 学会誌「EICA」, Vol. 10, No. 2, pp 8-13, 2005.

## 第5章 下水処理場における雨天時下水中のFDOMの動態に関する検証調査

### 5.1 概説

これまで、まずは第2章の文献調査で述べたとおり、下水処理放流水及び河川水に混入することにより水系感染症の衛生学的安全性に悪影響を及ぼす雨天時下水に対し、蛍光分析を活用したEEM-PARAFAC法を適用し、FDOMのなかの特異的な構成成分であるタンパク質様成分を定量することで、雨天時下水混入の簡易指標化を行うことの意義と重要性が示唆された。また第3章の実態調査で述べたとおり、桂川水系において、下流域にある合流式の下水処理場を対象として、降雨による簡易処理放流水及び放流先河川水に含まれる衛生微生物の存在実態の変化を、検出濃度、下水処理放流量及び河川流量を考慮して微生物負荷量で示した(目的1)。さらに第4章の基礎実験で述べたとおり、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されているDOCと比べるため、EEMのピークピッキングによる下水中FDOMの蛍光強度データを活用し、雨天時下水の生物処理や高級処理水への混入についてFDOMのうち特にタンパク質様成分が、雨天時下水の凝集処理については陸域由来フミン様成分が高い利用率を持つ可能性を示した(目的2)。

本章では、第3章で対象とした下水処理場を含む3箇所の下水処理場を対象に、雨天時下水の生物処理・凝集処理によるFDOM・衛生微生物の水質変化特性を、現地調査により検討する(目的3-1-a, 5.2参照)。また、高級処理水への簡易処理水混入によるFDOM・衛生微生物の水質変化特性を調査により検討し、FDOMの高級処理水への簡易処理水混入指標性を調べる(目的3-1-b, 5.3参照)。これらにより、下水道において雨天時下水によるFDOMの動態を示し、高級処理水への簡易処理水混入をFDOMにより的確に検知できるかを明らかにする(目的3-1)。

本章の検証調査により、雨天時下水の水質変換過程の推察に関し、第4章の基礎実験で明らかになったピークピッキングによるタンパク質様成分・陸域由来フミン様成分の簡易指標としての利用率が、実際の雨天時下水処理や高級処理水への簡易処理水混入水においてEEM-PARAFAC法により適用できるかを検証する。また、タンパク質様成分・陸域由来フミン様成分のようなFDOM指標の濃度と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論し、FDOMが簡易的な衛生指標として適用できるのか限界性を含めて議論する。ここで扱う衛生微生物は、主として指標微生物のTC、大腸菌*E. coli*や指標候補微生物のFPHに注目した。TCは現在の水質基準における衛生指標細菌である。一方で、TCは土壌由来の細菌等を内包し、ヒト糞便汚染を適切に反映していないと思われる状況が見られるため、現在、環境省において*E. coli*への衛生指標の変更が検討されている。また、衛生指標細菌ではヒト病原ウイルスの指標として適切でないことが多くの研究で報告されている。ヒト病原ウイルスの指標候補の一つがFPHである。

### 5.2 雨天時下水処理の調査

#### 5.2.1 調査概要

本調査の全体の流れを以下に述べる。まず合流式下水道排水区からなるA下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち流入水に着目して、FDOMを測定するとともに下水道管理者より入手したBOD、COD、SS等の水質項目との比較をおこなう(5.2.3.2(1)参照)。また雨天時下水の生物処理による水質変化特性として、DOMやFDOMを構成する複数成分の低減状況と最初沈殿池及び活性汚泥法のHRTとの

関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.2 (2) 参照)。

次に分流式下水道排水区の B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水の生物処理による DOM や FDOM の構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.3 (1) 参照)。また雨天時下水の生物処理による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.3 (2) 参照)。

次に合流式下水道の排水区を一部含む分流式下水道排水区の C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち生物処理系の流入水に着目して、晴天時と雨天時で DOM や FDOM の動態比較をおこなう (5.2.3.4 (1) 参照)。また台風時の雨天時下水の生物処理による DOM や各 FDOM 構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.4 (2) 参照)。さらに雨天時下水の生物処理による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.4 (3) 参照)。

最後に C 下水処理場の凝集処理系において、台風時の雨天時下水の凝集処理による DOM や各 FDOM 成分の低減性と無機凝集剤 (PACl) 添加との関連を調べ、PACl 添加濃度と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.5 (1) 参照)。また雨天時下水の高速凝集沈殿処理施設による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の除去率と PACl 添加との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する (5.2.3.5 (2) 参照)。

## 5.2.2 調査方法

### 5.2.2.1 採水地点

#### (1) A 下水処理場 (合流式, 生物処理系)

A 下水処理場 (生物処理系) の処理フローを図 5-1 に示す。A 下水処理場は、昭和 14 年に供用を開始した。計画処理人口は 785,500 人であり、計画処理能力は日最大で 957,000 m<sup>3</sup>/日 (A 系: 119,000 m<sup>3</sup>/日, B 系: 100,000 m<sup>3</sup>/日, C 系: 57,000 m<sup>3</sup>/日, D 系: 休止, E 系: 83,000 m<sup>3</sup>/日, F 系: 83,000 m<sup>3</sup>/日, G 系: 54,000 m<sup>3</sup>/日, H 系: 54,000 m<sup>3</sup>/日, I 系: 90,000 m<sup>3</sup>/日, J 系: 159,000 m<sup>3</sup>/日, K 系: 158,000 m<sup>3</sup>/日) である (京都市, 2020)。本調査では生物処理系として E 系を対象とし、沈砂池の手前の流入下水 (流入水), 初沈後水, 終沈後水を採水した。

#### (2) B 下水処理場 (分流式, 生物処理系)

B 下水処理場 (生物処理系) の処理フローを図 5-2 に示す。B 下水処理場は、昭和 57 年に供用を開始した。計画処理人口は 795,000 人であり、計画処理能力は日最大で 446,400 m<sup>3</sup>/日 (1-A 系: 45,600 m<sup>3</sup>/日, 1-B 系: 60,000 m<sup>3</sup>/日, 2 系: 105,600 m<sup>3</sup>/日, 3 系: 105,600 m<sup>3</sup>/日, 4 系: 86,400 m<sup>3</sup>/日, 5 系: 43,200 m<sup>3</sup>/日) である (滋賀県南部流域下水道事務所, 2018)。本調査では、生物処理系として 3 系を対象とし、初沈後水, 終沈後水を採水した。

#### (3) C 下水処理場 (分流式・合流式, 生物処理系・凝集処理系)

C 下水処理場 (生物処理系) の処理フローを図 5-3 に示す。C 下水処理場処理区では 1,316 ha の分流区域と、初期に整備された 155 ha の合流区域を分離している (大津市, 2017)。合流式下水道の越流対策と

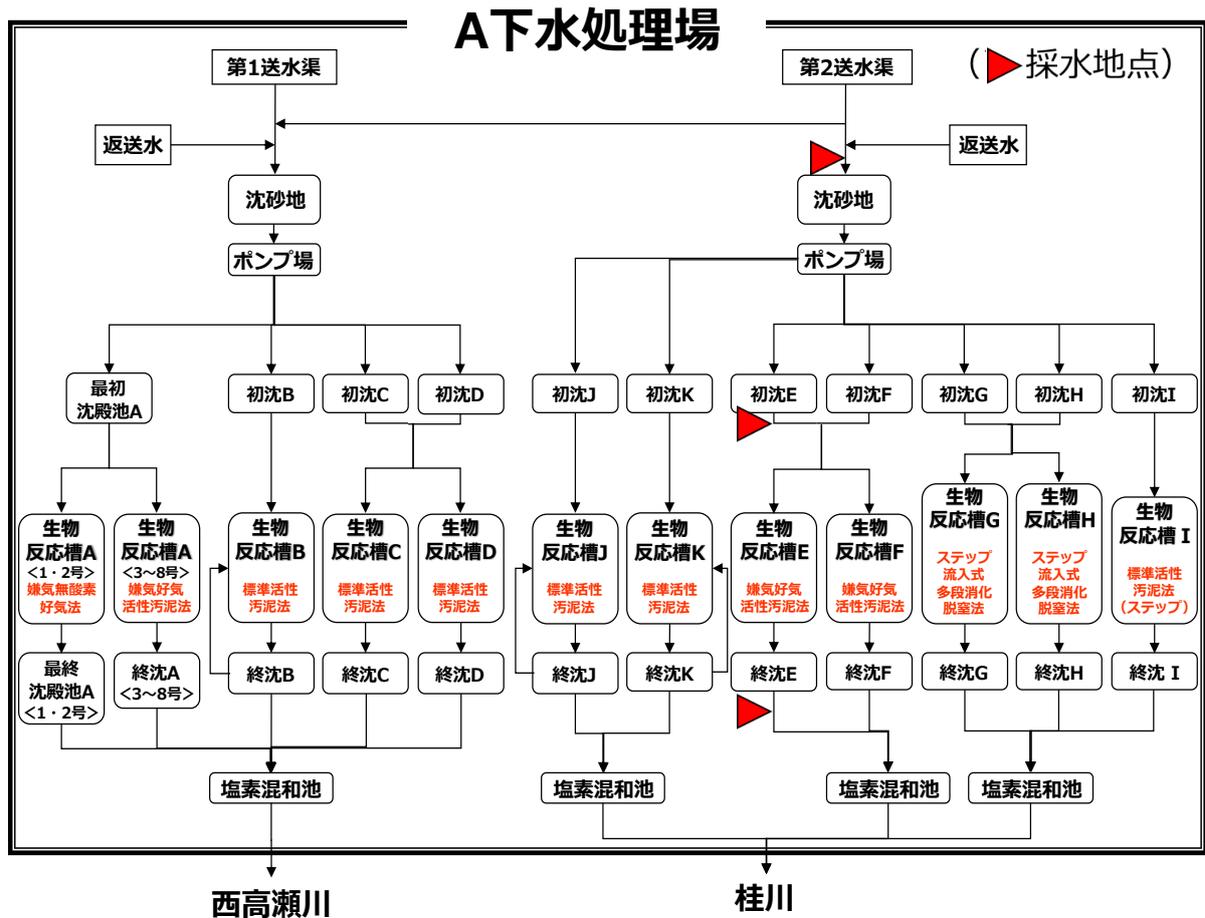


図 5-1 A 下水処理場（合流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点。

して、地下に貯留管を設置し、時間降雨強度 2 mm/h 以上の合流管の越流水を一定量まで貯留管に貯留するとともに、下水処理場に送水し、凝集処理系で合流式雨水を処理している（大津市, 2018）。しかし分離が困難な合流式区域の一部が残りに、雨水が分流污水管に流入するため、生物処理系でも処理されている。

C 下水処理場（生物処理系）は、昭和 44 年に供用を開始した（大津市, 2017）。平成 29 年度の計画処理人口は 106,221 人であり、計画処理能力は日最大で 88,400 m<sup>3</sup>/日（I 系: 33,500 m<sup>3</sup>/日，II 系: 54,900 m<sup>3</sup>/日）である（大津市, 2018）。本調査では、生物処理系として I 系を対象とし、分配槽の流入水、初沈後水、終沈後水を採水した。

C 下水処理場の合流式下水道での雨天時下水を対象とした凝集処理施設の処理フローを図 5-4 に示す。C 下水処理場（凝集処理系）は、平成 26 年に高速凝集沈殿処理施設として供用を開始した。計画処理能力は 77,448 m<sup>3</sup>/日である（大津市, 2018）。本調査では、高速凝集沈殿処理施設の流入下水（流入水）と高速凝集沈殿処理水（処理水）を採水した。高速凝集沈殿処理（アクティブフロ）とは、第 2 章 2.2.5.1 で述べた通り、国土交通省が平成 14 年度より産学官と連携したプロジェクト SPIRIT21 において、平成 15 年度に実用化された 4 技術のうちの一つである（国土交通省, 2003）。この技術では、従来の無機凝集剤のみによる「凝集沈殿法」に高分子凝集剤と沈降促進剤である粒径 100 μm 程度の微流砂（マイクロサンド）を添加することにより、マイクロサンドを核とする凝集フロックの相当径及び密度を大きくすることで、フロックの沈降速度を増加させる。これにより、汚濁物質を取り込んだフロックが速やかに沈降

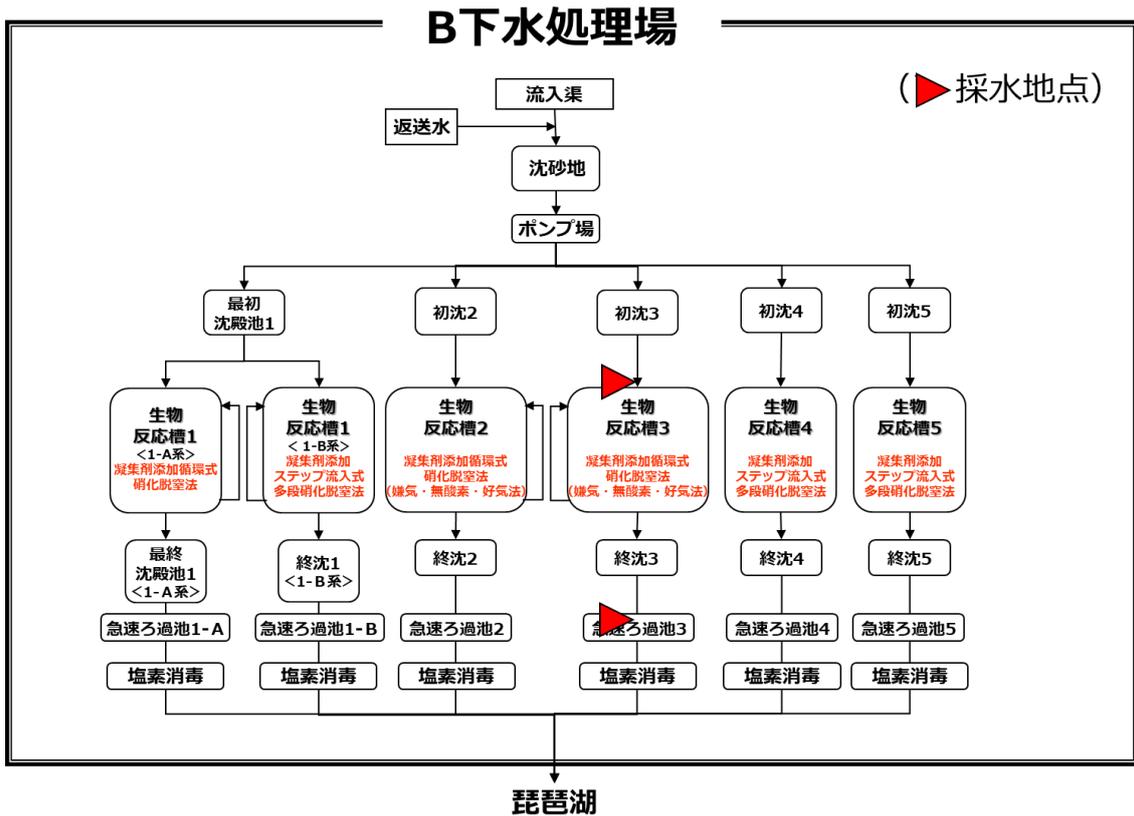


図 5-2 B 下水処理場（分流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点。

するため，設備はコンパクトであるが処理能力の高い処理法とされている（日本下水道新技術機構，2001）。また，傾斜板の効果により沈殿池の表面積が飛躍的に効率化され，敷地面積あたりの水面積負荷が大きく，従来に比べ極めて省スペースで下水を連続処理することができる（環境省，2017）。さらに C 下水処理場（凝集処理系）では，高分子凝集剤にネオフロック（西原環境社製）を使用している。ネオフロックは，アニオン系高分子凝集剤であり，特徴として，至適 pH が広い範囲であり，強粘度性を持ち，攪拌時に壊れにくい強フロックを形成できることが挙げられる。また凝集剤の添加量については，下水道管理者によると流入水の濁度を指標としており，流入水濁度が高い場合は添加量を増やし，流入水濁度が低い場合は，添加量を減らしている。C 下水処理場（凝集処理系）での PACl 注入率を表 5-1（松葉，2019）に示す。C 下水処理場（凝集処理系）における高速凝集沈殿処理フローの詳細を図 5-5（松葉，2019）に示す。処理過程は，次の①～⑥のとおりである（松葉，2019）。

- ① 流入した原水を後段の処理設備での閉塞を防止するために，流入スクリーンで，し渣や夾雑物を除去する。原水 pH が高い，もしくは低い場合，凝集性が低下するため pH 調整剤を注入する。
- ② 凝集槽で原水に PACl を注入して懸濁物質をフロック化する。
- ③ 注入槽でマイクロサンドを添加する。
- ④ 熟成槽で高分子凝集剤（ネオフロック）を注入しマイクロサンドを核とした，より沈降性が高いフロックを形成させる。
- ⑤ 傾斜板付の沈殿槽でフロックを高速沈殿分離し，上澄水を塩素消毒後，処理水として放流する。
- ⑥ 沈殿したフロックは循環ポンプで沈殿槽から引き抜き，マイクロサンド回収装置でマイクロサンドを分離回収して，処理系内で再利用し，分離した汚泥は汚泥貯留槽で回収する。

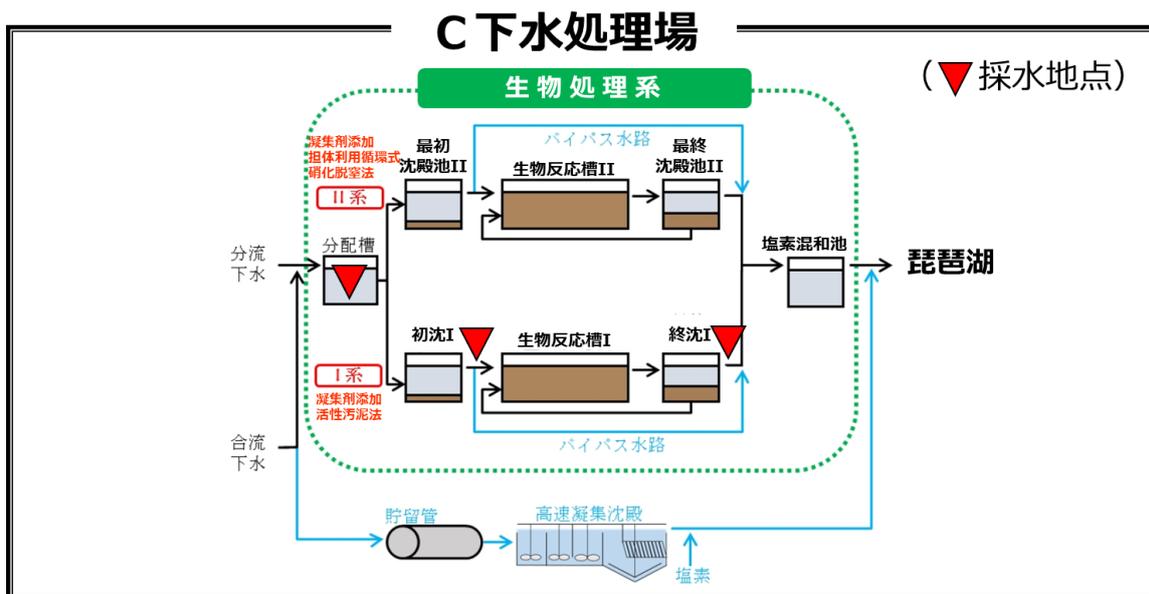


図 5-3 C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点（松葉, 2019）.

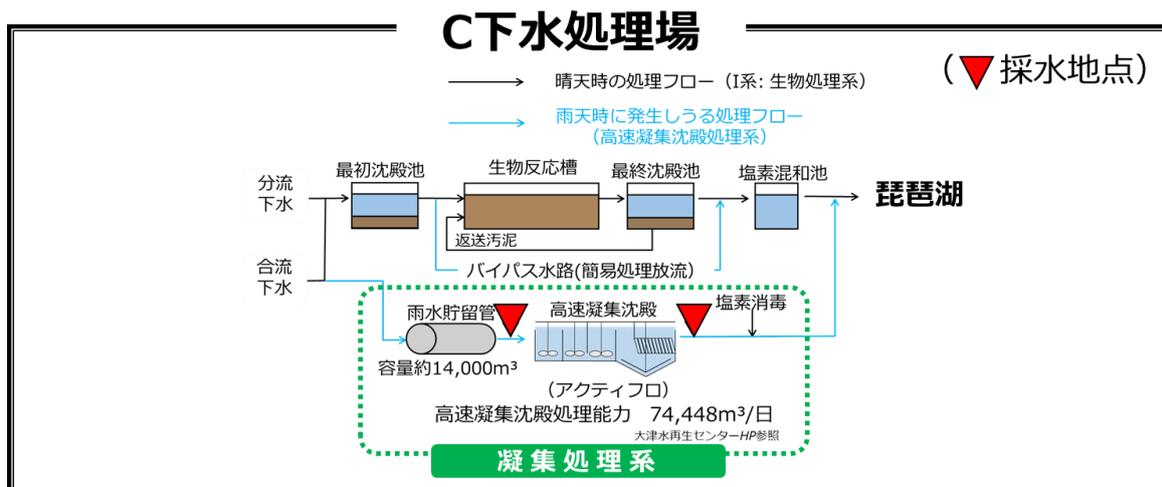


図 5-4 C 下水処理場（分流式・合流式，凝集処理系）の処理フローからみた採水地点（松葉, 2019）.

表 5-1 C 下水処理場（分流式・合流式，凝集処理系）における PACI 注入率の基準（松葉, 2019）.

流入水濁度 (NTU)	PACI 注入率 (mg/L)
2,000	12
150	7
50	5
10	5

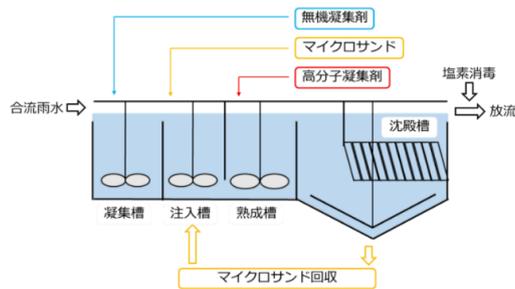


図 5-5 高速凝集沈殿処理フローの詳細 (松葉, 2019).

### 5.2.2.2 採水日と採水方法

A 下水処理場（合流式，生物処理系）において，雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）に流入水，初沈後水，終沈後水の連続採水を行った．方法は流入水，初沈後水，終沈後水の全ての採水地点でコンポジット採水とした．連続採水では定置式自動採水器 LYSAM-SN（NKS 社製）を用い 15 分に 1 回の頻度で 2 時間を 1 試料とした 24 時間採水を行い，各地点でそれぞれ 12 試料を得た．下水道管理者より得られた採水日の E-I 系列流入量と京都気象台の降雨強度（気象庁, 2020）の経時変化を図 5-6 に示す．

B 下水処理場（分流式，生物処理系）において，雨天時の 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm）と 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）に初沈後水，終沈後水の連続採水を行った．採水方法は初沈後水，終沈後水の全ての採水地点でスポット採水とした．連続採水については，ポータブル自動採水器 6712 型または 6712C 型（ISCO 社製）を用いて，1 時間に 1 回の頻度で 1 試料とした 24 時間採水を行い，各地点でそれぞれ 24 試料を得た．下水道管理者より得られた，採水日における 3 系列 1 号池の流入量と処理区内の降雨強度の経時変化を図 5-7 に示す．

C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系・凝集処理系）の生物処理系において，雨天時下水のうち生物処理系の流入水に着目して，雨天時と晴天時で FDOM の動態比較をおこなう（5.2.3.4 (1) 参照）ため，雨天時の 2017 年 6 月 20~21 日（総降雨量 78.0 mm）と晴天時の 2017 年 12 月 20~21 日（総降雨量 0.0 mm）に流入水の連続採水を行った．採水方法は両日程ともスポット採水とした．連続採水については，ポータブル自動採水器 6712 型（ISCO 社製）を用いて，1 時間に 1 回の頻度で 1 試料とした 24 時間採水を行い，両日程でそれぞれ 24 試料を得た．下水道管理者より得られた，採水日における I 系列流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2017）の経時変化を図 5-8 に示す．

また，C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系・凝集処理系）の生物処理系・凝集処理系において，雨天時下水の生物処理・凝集処理による各 FDOM 成分及び衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べる（5.2.3.4 (2), (3) 参照）ため，台風時の 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）に生物処理系の初沈後水と終沈後水を，台風時の 2018 年 9 月 4~5 日（総降雨量 42.5 mm）に凝集処理系の流入水と処理水の連続採水を行った．採水方法は両日程ともスポット採水とした．連続採水については，ポータブル自動採水器 6712 型（ISCO 社製）を用いて，0.5~3 時間に 1 回の頻度で 1 試料とした 12~64 時間程度の採水で，生物処理系の日程でそれぞれ 32 試料，凝集処理系の日程でそれぞれ 24 試料を得た．下水道管理者より得られた，採水日における生物処理系 I 系列・凝集処理系の流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2017; 気象庁, 2018）の経時変化を図 5-9 に示す．

以上の A, B, C 下水処理場で採水した全試料は，採取後 4~7 時間までにガラス繊維ろ紙（Whatman 社製 GF/F，公称粒子径 0.7 μm）でろ過後，ろ液を 5 °C の冷蔵庫で保管し，速やかに分析に供した．

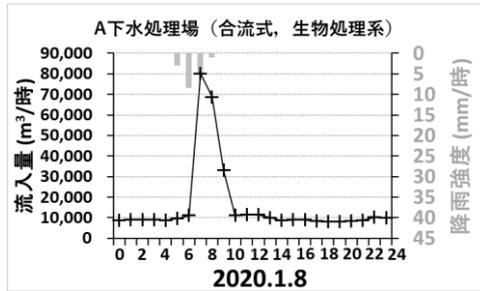


図 5-6 A 下水処理場における雨天時採水日 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の E-I 系列流入量と京都気象台の降雨強度（気象庁, 2020）の経時変化。

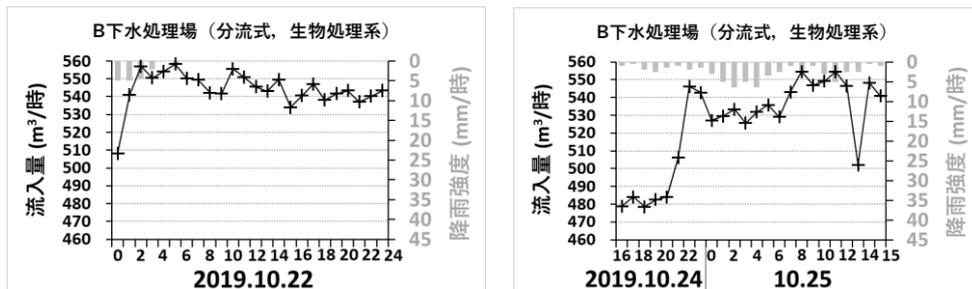


図 5-7 B 下水処理場における雨天時採水日の 3 系列 1 号池の流入量と処理区内の降雨強度の経時変化。左が 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm），右が 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）。

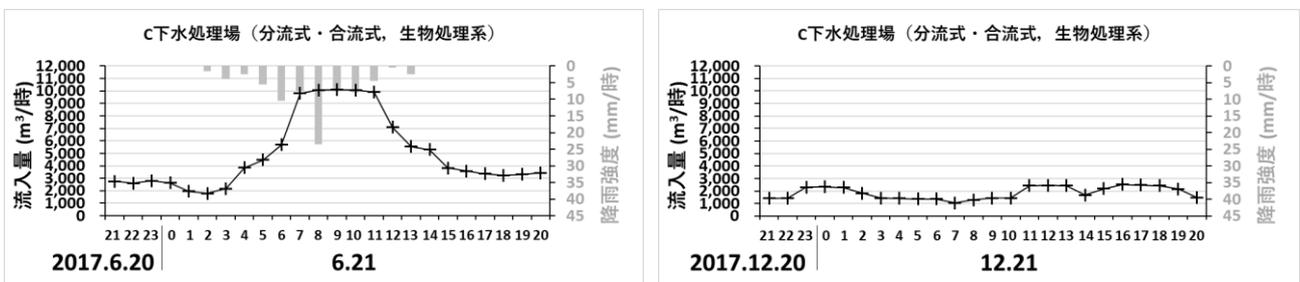


図 5-8 C 下水処理場における雨天時及び晴天時の採水日の I 系列の流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2017）の経時変化。左から 2017 年 6 月 20~21 日（総降雨量 78.0 mm），2017 年 12 月 20~21 日。

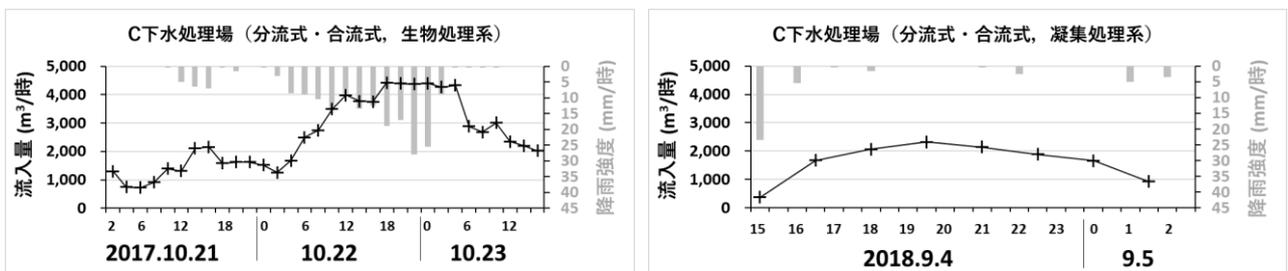


図 5-9 C 下水処理場における台風時採水日の生物処理系 I 系列・凝集処理系の流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2018）の経時変化。左から 2017 年 10 月 21~23 日（生物処理系 I 系列，総降雨量 200 mm），2018 年 9 月 4~5 日（凝集処理系，総降雨量 42.5 mm）。

### 5.2.2.3 分析方法

#### (1) DOM 及び FDOM

第4章4.2.2と同様, DOM 指標の DOC 濃度の測定には燃焼式全有機炭素分析装置 TOC-300V (Mitsubishi 社製) を用い, FDOM の EEM 測定 (2.4.3.1 参照) には分光蛍光強度計 Aqualog (Horiba 社製) を用いた。

#### (2) 衛生微生物

*E. coli*, TC は第3章3.5.1.1と同様, XMG 寒天培地 (ニッスイ社製) を用いた平板培養法により検出, 定量した。FPH は第3章3.5.1.2と同様, 宿主として *Salmonella typhimulium* WG49 (WG49) を用いたブラック形成法 (Mooijman *et al.*, 2002) により検出, 定量した。

### 5.2.2.4 解析方法

対象水の EEM スペクトルに現れる蛍光強度のピークは, 多様な FDOM による蛍光強度ピークが重なっている。さらに, FDOM により発する蛍光強度も異なるため, EEM に現れる蛍光強度ピークを単純に比較するだけではピーク間の定量的な評価ができない。そこで, 第2章2.4.3.2で詳述した PARAFAC 解析により, 対象水の EEM 上の重なり合う各ピーク群 (主成分) を推定することで分離し, FDOM の主成分を定量的に評価した。

対象水は, A, B, C 下水処理場の調査で得られた全 1,277 試料とした。まず, A 下水処理場 (合流式, 生物処理系) における対象水としては, 5.2.2.2 で述べた試料のほか, 既報 (山口ら, 2018; 山口ら, 2020) による試料, 雨天時予備調査 (2018 年 6 月に 1 回), 晴天時予備調査 (2017 年 12 月, 2018 年 2, 7 月に 1 回ずつ) で得られた試料を用いた。内訳は, 流入水 (n = 83), 初沈後水 (n = 19), 終沈後水 (n = 14), 放流水 (n = 153) 及び放流先河川水 (n = 117) で, 総数 386 である。また, B 下水処理場 (分流式, 生物処理系) における対象水としては, 5.2.2.2 で述べた試料, 5.3.2.2 で詳述する放流水試料のほか, 既報 (山口ら, 2019) による試料, 雨天時予備調査 (2020 年 1 月に 1 回) で得られた試料を用いた。内訳は, 初沈後水 (n = 19), 終沈後水 (n = 20), 放流水 (n = 92) 及び放流先河川水 (n = 238) で, 総数 369 である。さらに, C 下水処理場 (分流式・合流式, 生物処理系・凝集処理系) における対象水としては, 5.2.2.2 で述べた試料, 5.3.2.2 で詳述する初沈後水, 終沈後水, 放流水の試料のほか, 既報 (山口ら, 2018) による試料, 生物処理系の雨天時予備調査 (2017 年 11 月, 2020 年 1 月に 1 回ずつ), 凝集処理系の雨天時予備調査 (2018 年 6 月に 1 回) で得られた試料を用いた。内訳は, 流入水 (n = 114), 初沈後水 (n = 176), 終沈後水 (n = 85), 放流水 (n = 14), 凝集処理系流入水 (n = 48), 凝集処理系処理水 (n = 45) 及び放流先河川水 (n = 40) で, 総数 522 である。

PARAFAC 解析には, 対象水の全試料の EEM スペクトルを対象として, Solo (EIGENVECTOR 社製) という解析ソフトを用いた。推定されたいくつかの主成分からなる解析モデルの妥当性の検証については, 仮定した主成分数ごとに core consistency 値 (-), split half analysis の結果 (%), loading (負荷量), residuals (残差) 等を Solo により算出することで総合的に判断した。その結果, 妥当性を有すると判断された解析モデルのうち主成分数が最も多い解析モデルを採用し, 主成分数を推定した。

PARAFAC により, 励起スペクトル及び蛍光スペクトルの負荷量に加え, 各試料の負荷量が得られる。これら各因子 (励起スペクトル, 蛍光スペクトル及び試料蛍光強度) の負荷量を用いて, Stedmon *et al.* を参考に式(5-1)に従い, 各試料のスコア値 (単位: RU) が算出される (Stedmon *et al.*, 2003)。

$$X_{i,j,k} = a_i \times b_j \times c_k, \quad i = 1, \dots, J; \quad j = 1, \dots, J; \quad k = 1, \dots, K \quad (5-1)$$

$X_{i,j,k}$  : 試料  $i$  の  $j$  番目の蛍光波長,  $k$  番目の励起波長におけるスコア値

$a_i$  : 試料  $i$  の蛍光強度の負荷量

$b_j$  :  $j$  番目の蛍光波長におけるスペクトルの負荷量

$c_k$  :  $k$  番目の励起波長におけるスペクトルの負荷量

Murphy *et al.*によれば, スコア値は各ピーク主成分の蛍光強度に相当する (Murphy *et al.*, 2013). よって, FDOM を定量的に解析可能となる.

## 5.2.3 調査結果及び考察

### 5.2.3.1 対象水中の FDOM の主成分推定

図 5-10 に, EEM-PARAFAC で得られた A, B, C 下水処理場の調査で得られた総数 1,277 の EEM データセットに共通して存在するピークの主成分のスペクトルを分離した結果を示す. また, 分離された各ピーク主成分の励起スペクトル及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布を, 図 5-11 に示す. 対象水の EEM には 3 つのピーク主成分 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3) が共通して存在していた. Stedmon and Markager, Yamashita *et al.*, Lu *et al.*によると, Comp.1 (Ex: 254, 338 nm, Em: 436 nm) は陸域由来フミン様成分, Comp.2 (Ex: 275 nm, Em: 335 nm) はタンパク質様成分と類似したピークスペクトルを有する (Stedmon and Markager, 2005; Yamashita *et al.*, 2010; Lu *et al.*, 2013). 陸域由来フミン様成分とは, 名前の通り陸域由来のものであり, 幅広い環境中に存在している (Stedmon and Markager, 2005). 一方, 生物学的及び/または微生物起源のもので, 植物プランクトン由来の非蛍光性 DOM から細菌の働きにより生成される (Rochelle-Newall and Fisher, 2005) 生物由来フミン様成分は, 第 2 章 2.4.3.4 で述べた図 2-17 (清水ら, 2015) では SMP 様物質の一種と考えられ, 本調査の解析からは分離されなかった.

また, 小松ら, 池田らによると, Comp.3 (Ex: 245 nm, Em: 303 nm) はタンパク質中のペプチドに含まれる, あるいは遊離のチロシン様成分と類似したピークスペクトルの位置を有する (小松ら, 2008; 池田ら, 2018). チロシン様成分は巨大なタンパク質中では消光するため, 蛍光を発しないという報告 (小松ら, 2008), 汚水中の生活雑排水に多く含まれ, 特に未処理の生活雑排水に豊富に含まれるという報告 (池田ら, 2014) がある. 本調査の解析では, タンパク質中のチロシン様成分 Comp.3 が分離されたため, タンパク質様成分 Comp.2 を汚水全体に多く含まれる (Carstea *et al.*, 2016) タンパク質中のトリプトファン様成分と解釈した. Comp.2 と Comp.3 の生分解性を比較すると, Comp.3 の方が高い (山下, 2010; 池田ら, 2018) という報告も, Comp.2 の方が高い (Carstea *et al.*, 2016) という報告もある. また, Comp.2 と Comp.3 はともに内部生産される成分でもある (池田ら, 2018). Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の全ピークスペク

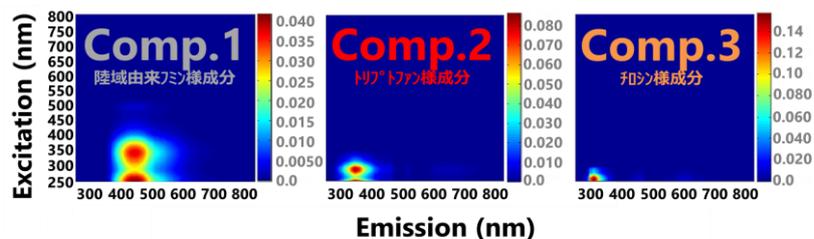


図 5-10 A, B, C 下水処理場の調査で得られた総数 1,277 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル. 段彩法表記の数字は, 励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の積.

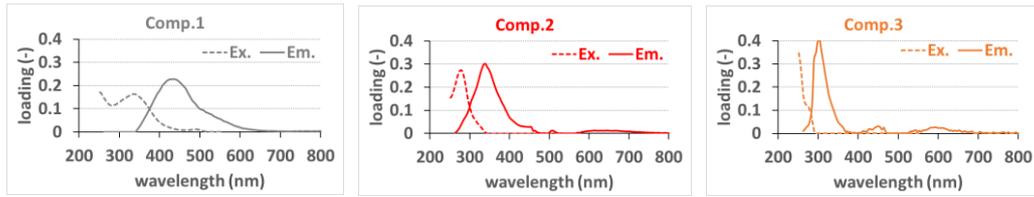


図 5-11 A, B, C 下水処理場の調査で得られた総数 1,277 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布.

トルに対する寄与率は、それぞれ 56 %, 38 %, 3 %であった.

以上により、本研究において注目している FDOM のうちタンパク質様成分は、今回の調査ではさらに Comp.2 のトリプトファン様成分と Comp.3 のチロシン様成分に分離される結果となった.

### 5.2.3.2 A 下水処理場における流入水、初沈後水及び終沈後水に対する検討

#### (1) 流入水中の FDOM の動態

A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日 (総降雨量 17.5 mm) の 2 系列流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 並びに DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比の経時変化を図 5-12 に示す. Comp.f/DOC 比は, FDOM の増減が, 同一の汚濁負荷源によるものか, 異なる汚濁負荷源が存在するか等を判断するために算出した. 本調査では, 便宜的に主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 を同じ重みで積み上げた指標 (山口ら, 2018; 山口ら, 2019) として, FDOM 全成分を図示した.

図 5-12 の左図について, Comp.f 及び DOC 濃度はそれぞれ 8.6~38 RU, 6.6~15 mg/L で推移し, 右図について, Comp.f/DOC 比は 1.2~2.7 RU/(mg/L) で推移した. 特に 2020.1.8 10:00~20:00 の時間帯で Comp.f 及び Comp.f/DOC 比が高くなり, それぞれ 26~38 RU, 2.4~2.7 RU/(mg/L) で推移した. 7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が 33,000~80,000 m<sup>3</sup>/時程度と急に高くなったが, Comp.f/DOC 比は 1.3 RU/(mg/L) 程度で推移した. これは, 本調査においては降雨の影響下であっても流入水中の FDOM の動態にあまり変化がみられなかったと考えられる. また, 左図の Comp.2, Comp.3 はそれぞれ 2.9~14 RU, 1.7~16 RU で推移し, 右図について, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比はそれぞれ 0.44~0.90 RU/(mg/L), 0.15~1.6 RU/(mg/L) で推移した. 特に 14:00~22:00 の時間帯で Comp.2/DOC 比, 10:00~20:00 の時間帯で Comp.3/DOC 比が高

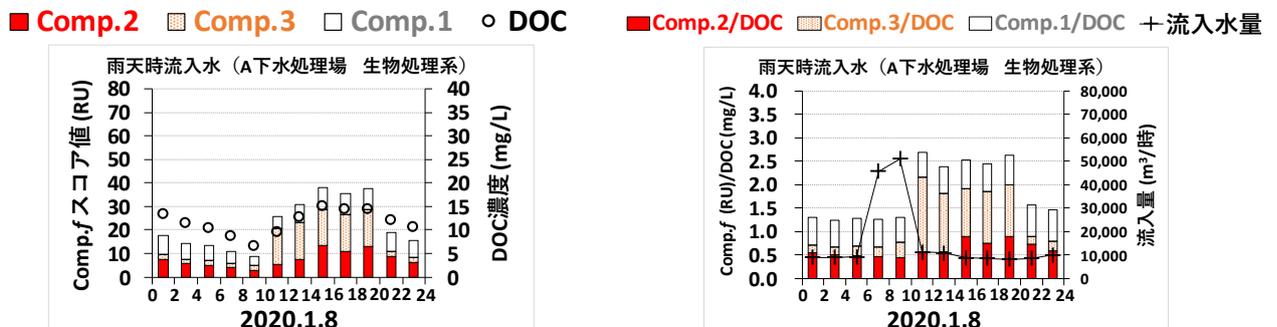


図 5-12 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日 (総降雨量 17.5 mm) の 2 系列流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 並びに DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比及び E-I 系列流入量の経時変化.

くなり、それぞれ 0.72~0.90 RU/(mg/L), 1.0~1.6 RU/(mg/L)で推移した。これは、10:00 以降で降雨の影響がなくなり特に 10:00~14:00 の時間帯で流入水量が深夜よりも約 1.3 倍高くなったため、晴天時汚水の増加の影響によるものと考えられる。特に本調査においては、10:00~14:00 の時間帯で汚水量のうち生活雑排水の増加の影響がし尿の増加の影響より大きく現れたと推察されたため、Comp.2 のトリプトファン様成分よりも Comp.3 のチロシン様成分のほうが高い蛍光強度で検出された可能性が考えられる。

下水道管理者より提供を受けた、A 下水処理場における流入水中の BOD, COD 及び SS 濃度、窒素 (N) 及びりん (P) 濃度の経時変化を図 5-13 に示す。左図について、BOD, COD 及び SS 濃度はそれぞれ 48~95 mg/L, 31~58 mg/L, 56~210 mg/L で推移した。7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、6:00~8:00 の時間帯で BOD, COD 及び SS 濃度は大きなピークとなり、それぞれ 95 mg/L, 58 mg/L, 210 mg/L に達した。8:00~10:00 の時間帯で BOD, COD 及び SS 濃度は急に減少するが、12:00~14:00 の時間帯で特に BOD, COD 濃度は再び増加に転じそれぞれ 73~83 mg/L, 48~56 mg/L 程度で推移したが、SS 濃度は緩やかな減少傾向となった。20:00 以降、特に BOD, COD 濃度は減少傾向となったが、SS 濃度は 62~72 mg/L 程度で比較的安定した。本調査では特に 12:00~20:00 の時間帯における BOD, COD 濃度の増加や 20:00 以降における BOD, COD 濃度の減少は、前述の Comp.3 のチロシン様成分と変化傾向が類似しており、生活雑排水量の影響がし尿の水量の影響より大きく現れた可能性が考えられる。

右図について、有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和の濃度はそれぞれ 4.7~8.3 mg/L, 2.5~7.6 mg/L, 0.20~1.2 mg/L で推移した。図 5-6 のとおり 7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、6:00~8:00 の時間帯で全窒素 (TN) 濃度は小さなピークとなり、有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和の濃度は、それぞれ 8.3 mg/L, 4.5 mg/L, 0.60 mg/L となり、特に有機性 N 濃度が小さなピークに達した。8:00~10:00 の時間帯で TN, 有機性 N 及びアンモニア性 N 濃度は急に減少するが、10:00~12:00 の時間帯で特に TN, アンモニア性 N 濃度は再び増加に転じそれぞれ 14~15 mg/L, 5.4~7.6 mg/L 程度で推移し、有機性 N 濃度は 12:00~14:00 の時間帯で再び増加に転じ 5.5~7.1 mg/L 程度で推移した。また 20:00~22:00 の時間帯で、TN, 有機性 N, アンモニア性 N 濃度はいずれも大きな減少がみられなかった。本調査では特に 12:00~14:00 の時間帯における有機性 N 濃度の増加や 20:00~22:00 の時間帯における有機性 N 濃度の推移は、前述の Comp.2 のトリプトファン様成分と変化傾向が類似しており、し尿の水量の影響が生活雑排水量の影響より大きく現れた可能性が考えられる。また、TP 及び TP とオルト P の差の濃度はそれぞれ 0.90~1.8 mg/L, 0.73~1.7 mg/L で推移した。7:00~9:00 の時間帯で降

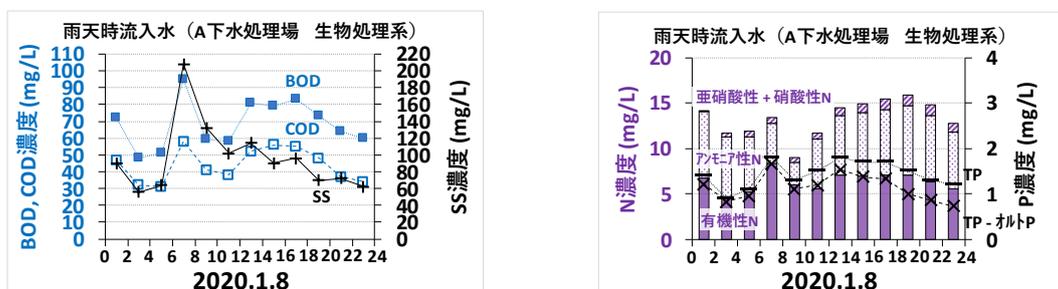


図 5-13 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日 (総降雨量 17.5 mm) の流入水中の BOD, COD 及び SS 濃度、窒素 (N) 及びりん (P) 濃度の経時変化。左図のプロットは BOD, COD 及び SS。右図のバーは有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和。右図のプロットは TP 及び TP とオルト P の差。本調査では、TP とオルト P の差を有機性 P として評価した。

雨により流入量が急に高くなり、6:00~8:00の時間帯でTP及びTPとオルトPの差の濃度は小さなピークとなり、それぞれ1.8 mg/L、1.7 mg/Lに達した。8:00~10:00の時間帯でTP及びTPとオルトPの差の濃度は急に減少するが、10:00~12:00の時間帯で特にTP濃度は再び増加に転じ1.2~1.8 mg/L程度で推移し、TPとオルトPの差の濃度は12:00~14:00の時間帯で再び増加に転じ0.73~1.5 mg/L程度で推移した。また20:00以降で、TP及びTPとオルトPの差の濃度はいずれも大きな減少がみられた。本調査では特に12:00~18:00の時間帯におけるTPとオルトPの差の濃度の増加や20:00以降におけるTPとオルトPの差の濃度の減少は、前述のComp.3のチロシン様成分と変化傾向が類似しており、生活雑排水量の影響がし尿の水量の影響より大きく現れた可能性が考えられる。

以上により、本調査においては降雨の影響下でファーストフラッシュはFDOMの動態に変化を与えなかった。しかし、汚水量増加の影響下で、生活雑排水量の増加はチロシン様成分FDOMの動態に影響を与え、し尿の水量の増加はトリプトファン様成分FDOMの動態に影響を与える可能性が示唆された。本調査では降雨の影響下で実施されたため、降雨の影響のない晴天時で再度検討する必要があると考えられる。

## (2) 初沈後水・終沈後水中のFDOMの動態

下水道管理者より提供を受けた、A下水処理場における雨天時の2020年1月8日(総降雨量17.5 mm)のE系列反応槽のMLSS濃度とE系列最初沈殿池及び反応槽のHRTの経時変化を図5-14に、初沈後水・終沈後水中のスコア値Comp.1、Comp.2及びComp.3の合計値Comp.f、DOC濃度の経時変化を図5-15に示す。図5-14について、本調査では、MLSS濃度は1,625~1,780 mg/L程度、最初沈殿池及び反応槽のHRTはそれぞれ1.5~2.1 hr、7.6~11 hrで推移した。MLSS濃度に大きな変化はみられなかったが、最初沈殿池及び反応槽のHRTはそれぞれ約0.64 hr、約3.4 hrの変化がみられた。これは、7:00~9:00の時間帯で降雨により流入量が急に高くなったためと考えられる。

図5-15左図の初沈後水について、Comp.f及びDOC濃度はそれぞれ9.4~35 RU、8.0~15 mg/Lで推移し、図5-15右図の終沈後水について、Comp.f及びDOC濃度はそれぞれ7.8~12 RU、3.4~4.8 mg/Lで推移し、いずれも午前中は高く午後からは比較的低下するようの変動がみられた。これは、最初沈殿池での沈殿処理によりFDOMはある程度除去されたが、DOMは除去されなかったと考えられる。また、生物処理によりFDOM・DOMともある程度除去されたが、時間帯によっては比較的除去されなかったと考えられる。除去率とHRTの関連については後述する。図5-15左図の初沈後水について、Comp.2及びComp.3はそれぞれ3.2~14 RU、1.8~16 RUで推移し、図5-15右図の終沈後水について、Comp.2は3.5~6.2 RUで推移し、Comp.3は全試料不検出であった。これにより、最初沈殿池での沈殿処理によりFDOMのうちタンパク質様成分が除去されたが、トリプトファン様成分はほとんど除去されず、チロシン様成分がよく除去されたことを示している。また、生物処理によってもFDOMのうちタンパク質様成分が除去され、トリプトファン様成分・チロシン様成分がともによく除去されたが、特にチロシン様成分がよく除去されたことが考えられる。本調査では、5.2.3.1(1)で述べたComp.2とComp.3の生分解性の比較に関して、Comp.3の方が高い(山下, 2010; 池田ら, 2018)という報告と同様の結果となった。

A下水処理場における初沈後水・終沈後水中のComp.f/DOC比の経時変化を図5-16に示す。図5-16左図の初沈後水について、Comp.f/DOC比は1.2~2.4 RU/(mg/L)で推移し、特に18:00~20:00の時間帯でComp.f/DOC比が高くなった。図5-16右図の終沈後水について、Comp.f/DOC比は2.1~2.6 RU/(mg/L)で推移した。18:00~20:00の時間帯を除き、生物処理によりComp.f/DOC比が高くなる結果となった。図5-

■ MLSS    × 生物反応槽HRT    + 初沈HRT

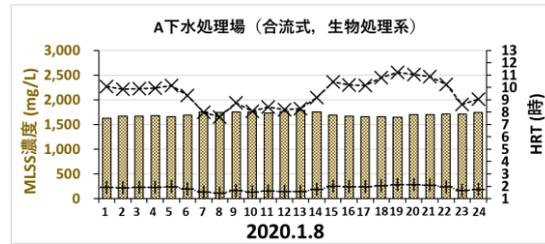


図 5-14 A 下水処理場における雨天時 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の E 系列反応槽の MLSS 濃度と E 系列最初沈殿池及び反応槽 HRT の経時変化。

■ Comp.2    ■ Comp.3    □ Comp.1    ○ DOC

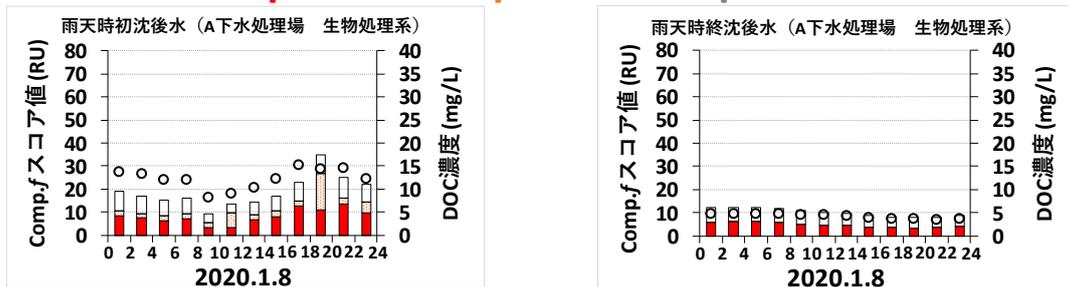


図 5-15 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度の経時変化。横軸は時刻。

16 左図の初沈後水について、Comp.2/DOC 比、Comp.3/DOC 比はそれぞれ 0.36~0.94 RU/(mg/L), 0.15~1.1 RU/(mg/L)で推移し、特に 18:00~20:00 の時間帯で Comp.2/DOC 比、Comp.3/DOC 比がともに高くなった。

図 5-16 右図の終沈後水については、Comp.2/DOC 比は 0.95~1.3 RU/(mg/L)で推移し、Comp.3/DOC 比は全試料 0.0 RU/(mg/L)となった。これらにより、生物処理後の終沈後水中の DOM に占める FDOM の割合は、チロシン様成分が効率よく除去されることを示している。しかし、Comp.1/DOC や Comp.2/DOC の値について、初沈後水よりも生物処理後の終沈後水中の比率は大きくなっている。これは、蛍光性を有しない DOM は、生物処理で FDOM より除去されやすいことを示している。なお、FDOM の各成分に対する生物処理の除去率の比較検討は後述する。本調査では、第 2 章 2.4.3.3 で述べた Cohen *et al.*による FDOM の生物処理に関する知見の通り、生物処理によりタンパク質様成分を強く減少させ、生物処理水中のタンパク質様成分よりもフミン様成分の割合を増加させた (Cohen *et al.*, 2014) という報告と同様の結果となった。また、7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなったが、図 5-16 左図の初沈後水について、8:00~10:00 の時間帯の Comp.f/DOC 比は 1.2 RU/(mg/L)程度へ急に減少した。これは、本調査においては、降雨の影響下で早朝のファーストフラッシュにより、初沈後水中の FDOM の動態に変化を与え、その要因は蛍光性を有しない DOM である可能性が考えられる。

A 下水処理場における初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度、N 及び P 濃度の経時変化を図 5-17 に示す。左図について、BOD, COD 及び SS 濃度はそれぞれ 38~58 mg/L, 22~39 mg/L, 30~83 mg/L で推移した。7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、6:00~8:00 の時間帯で BOD, COD 濃度はピークとなり、それぞれ 58 mg/L, 31 mg/L に達した。また、8:00~10:00 の時間帯で COD, SS 濃度はピークとなり、それぞれ 31 mg/L, 83 mg/L に達した。これは、本調査においては降雨の影響下で、ファースト

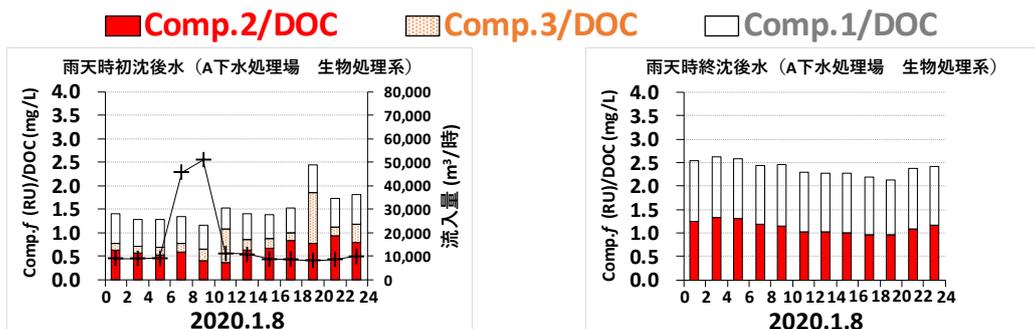


図 5-16 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水中の Comp.f/DOC 比（f = 1, 2, 3）及び E~I 系列流入量，終沈後水中の Comp.f/DOC 比の経時変化。横軸は時刻を示す。

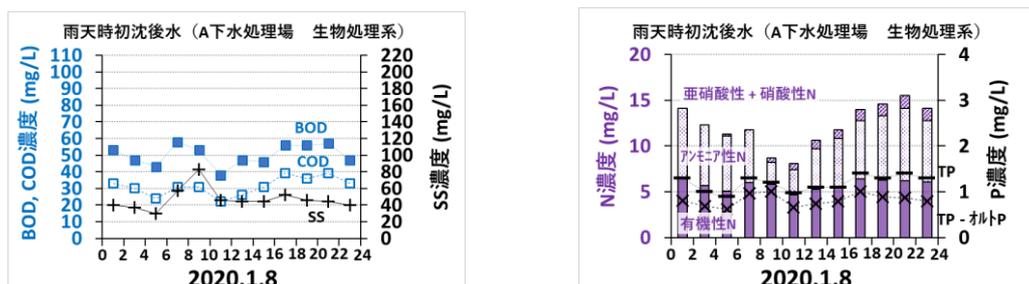


図 5-17 A 下水処理場における雨天時の 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度，N 及び P 濃度の経時変化。左図のプロットは BOD, COD 及び SS。右図のバーは有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和。右図のプロットは TP 及び TP とオルト P の差。本調査では，TP とオルト P の差を有機性 P として評価した。横軸は時刻を示す。

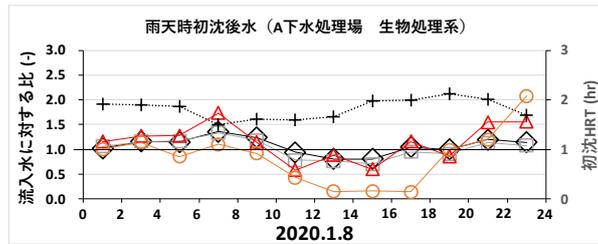
フラッシュにより初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度の動態に変化を与え，そのピーク発生に水質項目で時間差が生じた可能性が考えられる。右図について，有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和の濃度はそれぞれ 4.7~6.5 mg/L, 2.4~7.9 mg/L, 0.00~1.4 mg/L で推移した。7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり，6:00~8:00 の時間帯で TN 濃度は小さなピークとなり，有機性 N, アンモニア性 N 及び亜硝酸性 N と硝酸性 N の和の濃度は，それぞれ 6.0 mg/L, 5.8 mg/L, 0.00 mg/L となり，特に有機性 N 濃度が小さなピークに達した。これは，本調査においては降雨の影響下で，ファーストフラッシュにより初沈後水中の有機性 N 濃度の動態に変化を与えたと考えられる。また，TP 及び TP とオルト P の差の濃度はそれぞれ 0.89~1.4 mg/L, 0.62~1.0 mg/L で推移した。7:00~9:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり，6:00~8:00 の時間帯で TP 濃度は小さなピークとなり，1.3 mg/L に達した。また，8:00~10:00 の時間帯で TP とオルト P の差の濃度は小さなピークとなり，1.0 mg/L に達した。これは，本調査においては降雨の影響下で，ファーストフラッシュにより初沈後水中の有機性 P 濃度の動態に変化を与えたと考えられる。

以上により，本調査においては降雨の影響下でファーストフラッシュにより，初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度の動態に大きな変化を与え，有機性 N, P 濃度の動態にも変化を与えたが，FDOM の動態にも変化を与えたと考えられる。この挙動の類似は，本調査のような朝 7:00 頃のファーストフラッシュによる初沈後水中の BOD, COD 及び SS 濃度の動態や有機性 N, P 濃度の動態の変化は，道路・屋根・土壌などの面源負荷や管内堆積物などのうち最初沈殿池で除去されない汚濁物に由来し，これらの汚濁物

には蛍光性を有しない DOM も多く含まれている可能性が考えられる。

A 下水処理場における流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT, 初沈後水質指標に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化を図 5-18 に示す. 図 5-18 上図について, Comp.1 は 0.70~1.3, Comp.2 は 0.58~1.7, Comp.3 は 0.14~2.1, DOC 濃度は 0.81~1.4 で推移した. いずれの水質指標も, 最初沈殿池の HRT が短くなる 6:00~8:00 の時間帯で高い値を示し, Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の低減率や DOC 除去率が低くなった. Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度のいずれも比が 1.0 より大きくなり, 特に Comp.2 でその傾向が顕著であった. これは, FDOM のなかでもトリプトファン様成分の沈殿処理による低減率が最大で 42% であるが, 6:00~8:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 以降の最初沈殿池の HRT が短くなることにより, 低減率が最小で -73% まで低下することを示している. また, 陸域由来フミン様成分の沈殿処理による低減率が最大で 30% であるが, 6:00~8:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 以降の最初沈殿池の HRT が短くなることにより, 低減率が最小で -34% まで低下することも示している. さらに, チロシン様成分の沈殿処理による低減率が最大で 86% と高いが, 6:00~8:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 以降の最初沈殿池の HRT が短くなることにより, 低減率が -11% まで低下すること, 22:00~24:00 の時間帯では晴天時汚水量の増加により流入量が急に高くなり, 以降の最初沈殿池の HRT が短くなることにより, 低減率が -108% まで低下することも示している. 図 5-18 下図について, Comp.1 は 0.48~1.5, Comp.2 は 0.27~1.6, DOC 濃度は 0.23~0.55 で推移し, Comp.3 は全試料 0.0 となった. Comp.3 を除くすべての水質指標は, 生物反応槽の HRT が短く安定する 8:00~12:00 の時間帯で高い値を示し, Comp.1, Comp.2 の低減率や DOC 除去率が低くなった. Comp.1, Comp.2 のいずれも比が 1.0 より大きくなり, 特に Comp.2 でその傾向が顕著であった. これは, FDOM のなかでもトリプトファン様成分の生物処理による低減率が最大で 73% であるが, 6:00~8:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 8:00~12:00 の時間帯の

◇ DOC   □ Comp.1   ▲ Comp.2   ○ Comp.3   + 初沈HRT



◇ DOC   □ Comp.1   ▲ Comp.2   ○ Comp.3   × 生物反応槽HRT

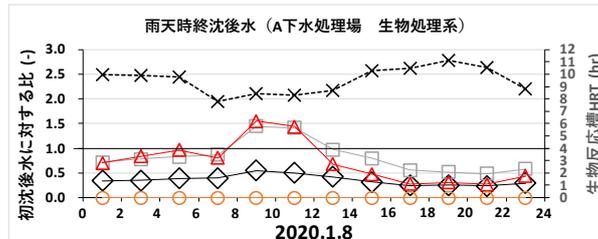


図 5-18 A 下水処理場における流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT, 初沈後水質に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化. 横軸は時刻.

生物反応槽の HRT が短く安定することにより、低減率が最小で-55%まで低下することを示している。また、陸域由来フミン様成分の生物処理低減率が最大で 52%であるが、6:00~8:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、8:00~12:00 の時間帯の生物反応槽の HRT が短くなることにより、低減率が最小で-45%まで低下することも示している。さらに、チロシン様成分の生物処理低減率が生物反応槽の HRT が 7.6~11 hr の範囲では常に 100%であることも示している。これらにより、陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 8.4 hr 程度の HRT では生物反応槽内での低減より増加が上回ったと考えられる。

A 下水処理場における流入水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する初沈後水の Comp.f/DOC 比の比率と初沈 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比の比率と生物反応槽 HRT の経時変化を図 5-19 に示す。図 5-19 上図について、Comp.1/DOC は 0.84~1.0, Comp.2/DOC は 0.62~1.4, Comp.3/DOC は 0.14~1.8 で推移した。特に Comp.3/DOC 濃度については、最初沈殿池の HRT が増加傾向となる 12:00~18:00 の時間帯で低い値を示し、Comp.3/DOC の低減率が高くなった。図 5-19 下図について、Comp.1/DOC は 2.0~2.8, Comp.2/DOC は 1.1~2.9 で推移し、Comp.3/DOC は全試料 0.0 となった。特に Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度については、生物反応槽の HRT が短く安定する 8:00~12:00 の時間帯で高い値を示し、Comp.1/DOC, Comp.2/DOC の低減率が低くなった。

A 下水処理場の流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT を比較したものを図 5-20 に示す。各図中において、本調査により得られた全 12 試料のデータを基に、相関解析を試みた。本調査では、危険率 5%未満 ( $p < 0.05$ ) を有意水準とし、有意でかつ決定係数  $R^2 > 0.5$  の場合、各流入水質指標 (説明変数) と比較対象の初沈 HRT (目的変数) との試料間の傾向に強い相関関係があると判断した。本調査の場合、説明変数が Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度のいずれも  $p > 0.05$  で有意でなかった。したがって、本調査の場合では、流入水質指標に対する

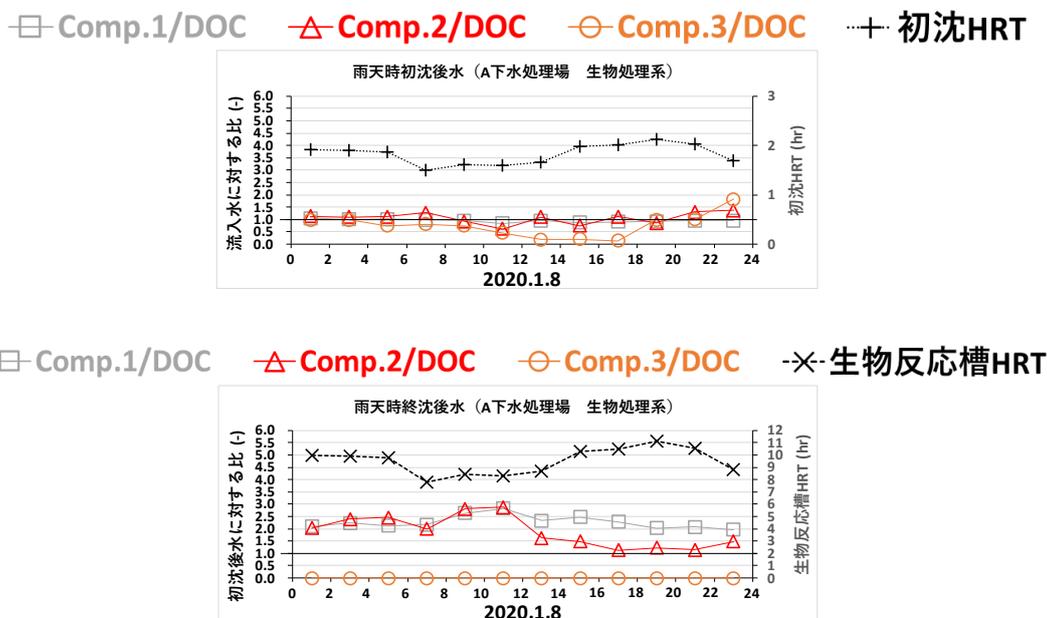


図 5-19 A 下水処理場における流入水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する初沈後水の Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の比率と初沈 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比の比率と生物反応槽 HRT の経時変化。横軸は時刻。

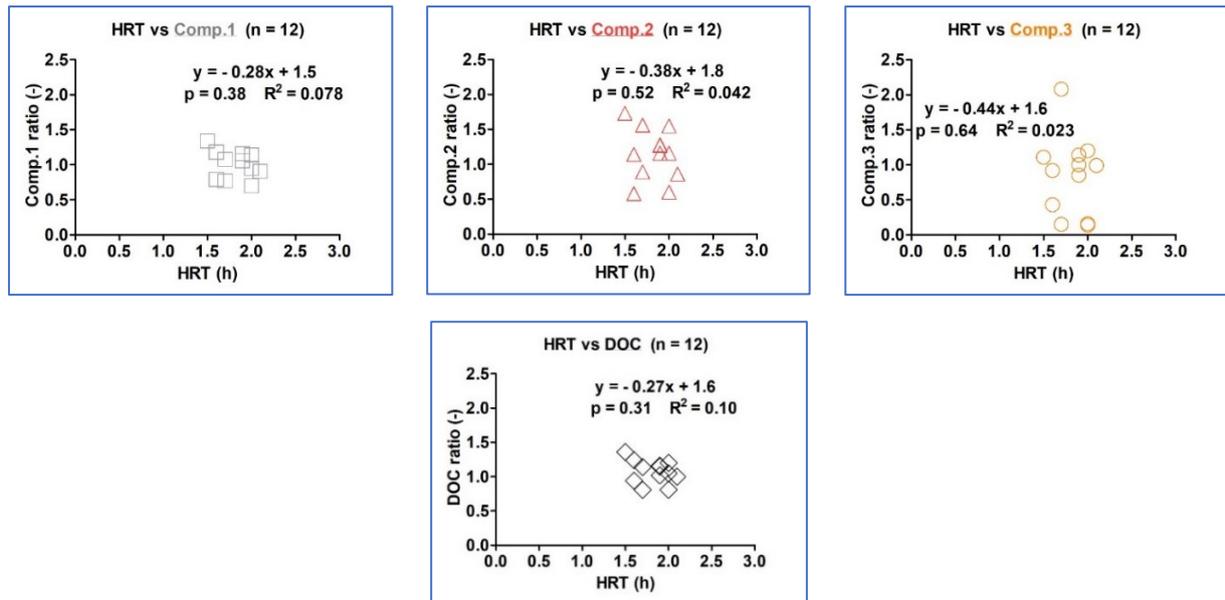


図 5-20 A 下水処理場における流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する初沈後水質指標の比率と初沈 HRT の比較. Comp.1 (上段左), Comp.2 (上段中), Comp.3 (上段右), DOC 濃度 (下段) を説明変数, 初沈 HRT を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析.

初沈後水質指標の比率は, いずれも初沈 HRT と相関を持たないと考えられる.

A 下水処理場の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT を比較したものを図 5-21 に示す. 本調査の場合, 説明変数が Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数は説明変数が Comp.1 で 0.49, Comp.2 で 0.45, DOC 濃度で 0.59 となった. したがって本調査の場合では, 初沈後水質指標に対する終沈後水質指標の比率のうち, Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度のいずれも生物反応槽 HRT と相関を持ち, かつ Comp.1, Comp.2 については中程度の相関関係があり, かつ DOC 濃度については強い相関関係があると考えられる. また, 回帰直線の傾きは, Comp.1 で  $-0.21$  (RU/RU)/h, Comp.2 で  $-0.27$  (RU/RU)/h, DOC 濃度で  $-0.073$  (RU/RU)/h となった. 本調査の場合では, 初沈後水の生物処理による DOM 指標の DOC 濃度の減少より, FDOM 指標の特に Comp.2 の蛍光強度の減少が鋭敏となった. 生物反応槽の HRT が 7.6~11 hr の範囲では生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標として, FDOM のうちタンパク質様成分, 特にトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる. 以上により, 第 4 章 4.3.1 の生物処理実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が, A 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により十分適用可能であると言える. 要因として, 生物処理実験では供試原水として晴天時の C 下水処理場の初沈後水を用いているが, A 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できている可能性が考えられる.

### 5.2.3.3 B 下水処理場における初沈後水及び終沈後水に対する検討

#### (1) 初沈後水・終沈後水中の FDOM の動態

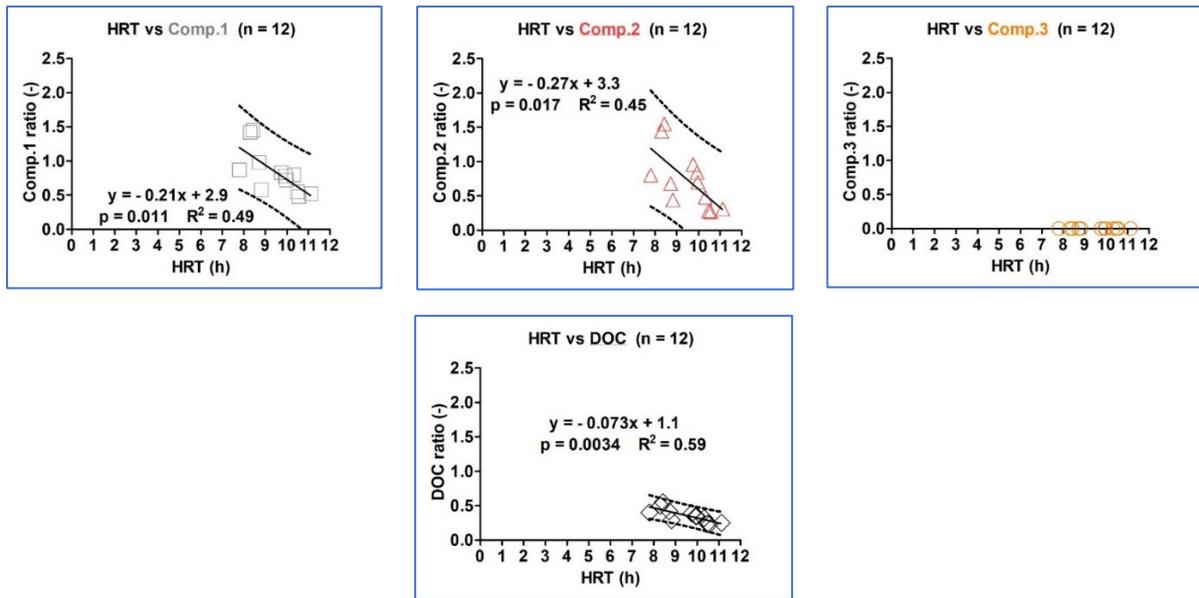


図 5-21 A 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較. Comp.1 (上段左), Comp.2 (上段中), Comp.3 (上段右), DOC 濃度 (下段) を説明変数, 生物反応槽 HRT を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析.

下水道管理者より提供を受けた, B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm) と 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm) の雨天時両日程の 3 系列 1 号池反応槽の MLSS 濃度と HRT の経時変化を図 5-22 に示す. 図 5-22 左図の 2019 年 10 月 22 日において MLSS 濃度は 2,222~2,458 mg/L 程度, HRT は 9.9~11 hr で推移した. また, 図 5-22 右図の 2019 年 10 月 24~25 日において MLSS 濃度は 2,268~2,572 mg/L 程度, HRT は 10~12 hr で推移した. 両日程を比較して, MLSS 濃度に大きな変化はみられなかったが, HRT は 2019 年 10 月 24~25 日の方が長い傾向となり, 10 月 24 日 20:00~22:00 の時間帯において約 2.0 hr の低下がみられた. これは, 採水時間帯を通じて 24 hr 継続した総降雨量 63.0 mm の降雨により, 10 月 24 日 21:00 以降で流入量が急に高くなったためと考えられる.

2019 年 10 月 22 日, 24~25 日における初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比の経時変化を, それぞれ図 5-23, 図 5-24 に示す. 図 5-23 上段左図の 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm) における初沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度

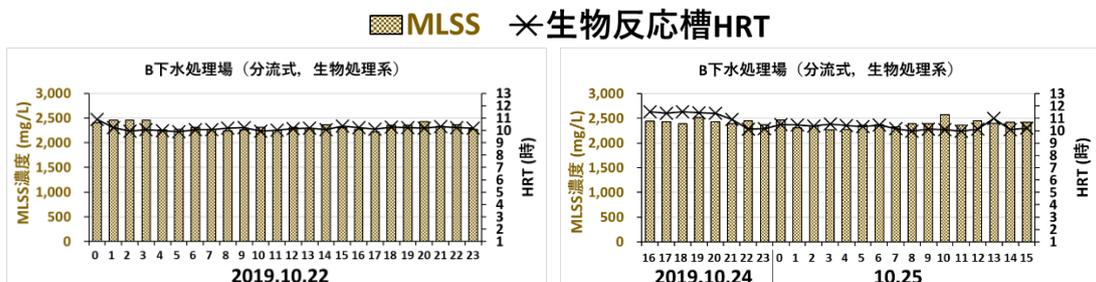


図 5-22 B 下水処理場における雨天時の 3 系列 1 号池反応槽の MLSS 濃度と HRT の経時変化. 左が 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm), 右が 2019 年 10 月 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm). 横軸は時刻.

は、それぞれ 18~30 RU, 14~29 mg/L で推移し、図 5-23 上段右図の同日の終沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 11~15 RU, 4.2~5.4 mg/L で推移した。終沈後水質については、A 下水処理場と同様、いずれも午前中は高く午後からは比較的低下するよう変動がみられた。これは、生物処理により FDOM・DOM ともにある程度除去されたが、時間帯によっては比較的除去されなかったと考えられる。除去率と HRT の関連については後述する。図 5-23 下段左図の 2019 年 10 月 22 日における初沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は、それぞれ 1.0~1.5 RU/(mg/L), 0.41~0.66 RU/(mg/L), 0.040~0.10 RU/(mg/L) で推移し、図 5-23 下段右図の終沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は、それぞれ 2.6~3.0 RU/(mg/L), 0.73~0.86 RU/(mg/L) で推移し、Comp.3/DOC 比は全試料 0.0 RU/(mg/L) となった。

図 5-24 上段左図の 2019 年 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）における初沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 23~40 RU, 25~33 mg/L で推移し、図 5-24 上段右図の同日の終沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 11~13 RU, 6.9~8.1 mg/L で推移した。これは、生物処理により FDOM・DOM ともにある程度除去されたと考えられる。除去率と HRT の関連については後述する。図 5-24 下段左図の 2019 年 10 月 24~25 日における初沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は、それぞれ 0.89~1.4 RU/(mg/L), 0.36~0.73 RU/(mg/L), 0.030~0.27 RU/(mg/L) で推移し、図 5-24 下段右図の終沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は、それぞれ 1.5~1.7 RU/(mg/L), 0.49~0.58 RU/(mg/L) で推移し、Comp.3/DOC 比は全試料 0.0 RU/(mg/L) となった。

これらにより、生物処理後の終沈後水中の DOM に占める FDOM の割合が大きくなることを示している。これは、初沈後水中の蛍光性を有しない DOM が、FDOM より生物処理を強く受けて除去されたこと

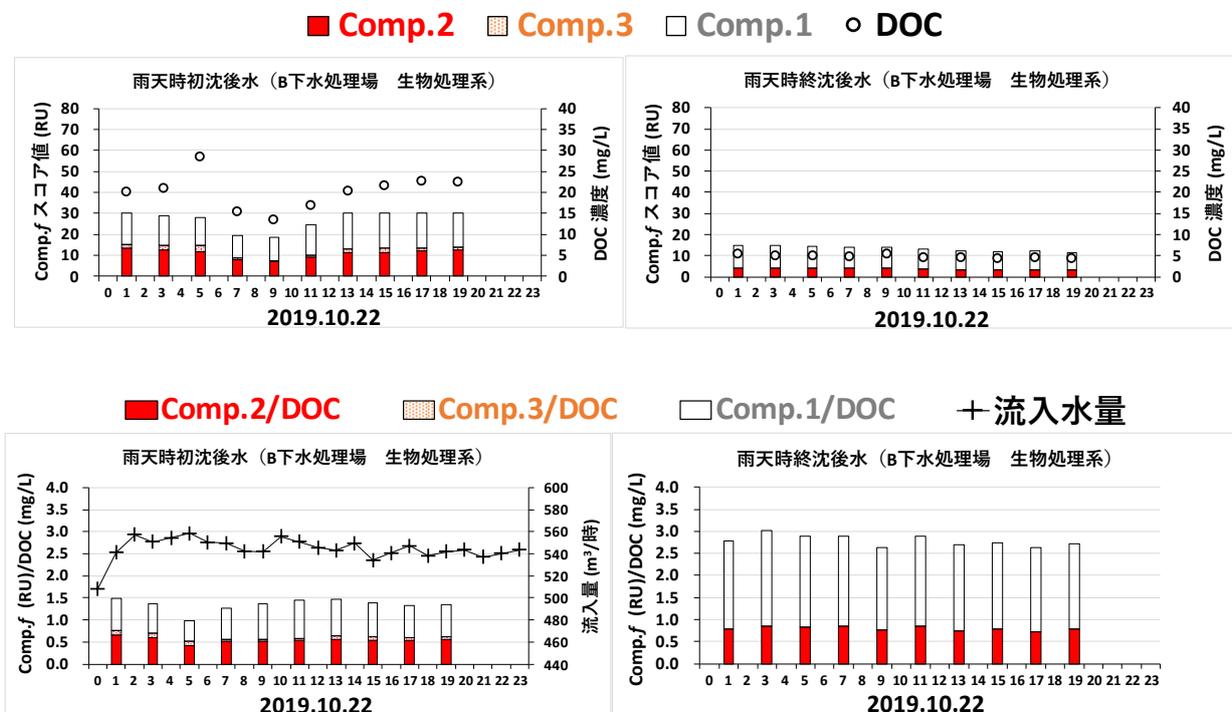


図 5-23 B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm）の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度と、Comp.f/DOC 比及び 3 系列 1 号池流入量の経時変化。上段が Comp.f 及び DOC 濃度、下段が Comp.f/DOC 比。横軸は時刻を示す。

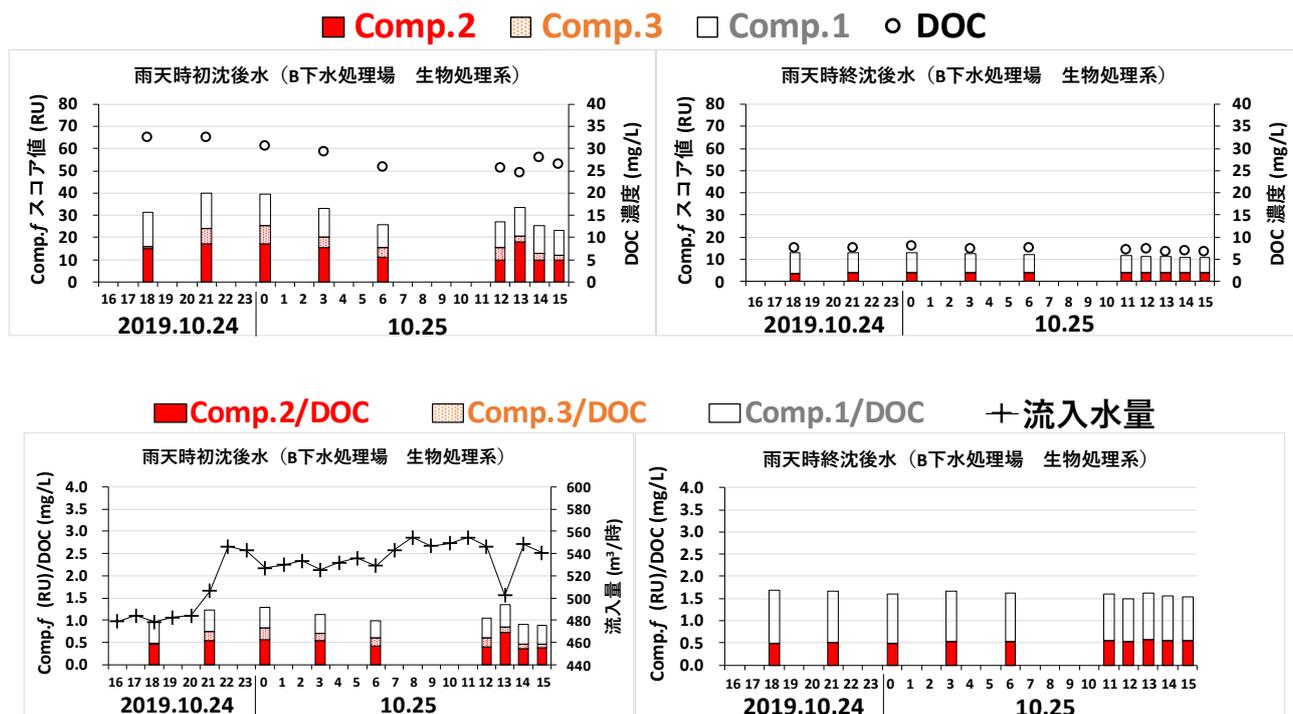


図 5-24 B 下水処理場における 2019 年 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）の初沈後水・終沈後水中の主要成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度と、Comp.f/DOC 比及び 3 系列 1 号池流入量の経時変化。上段が Comp.f 及び DOC 濃度，下段が Comp.f/DOC 比。横軸は時刻を示す。

により、相対的に生物処理後の終沈後水中の DOM に占める FDOM の割合が大きくなった可能性が考えられる。なお、FDOM の各成分に対する生物処理による除去率の比較検討は後述する。本調査では、A 下水処理場の生物処理のケースと同様、第 2 章 2.4.3.3 で述べた Cohen *et al.*による FDOM の生物処理に関する知見の通り、生物処理によりタンパク質様成分を強く減少させ、生物処理水中のタンパク質様成分よりもフミン様成分の割合を増加させた（Cohen *et al.*, 2014）という報告と同様の結果となった。

また、2019 年 10 月 22 日における 1:00~3:00 の時間帯で 0:00~3:00 の 3 hr の降雨により流入量が急に高くなったが、図 5-23 上段左図の初沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度について、5:00 の時点で Comp.f は 29 RU と変化しなかったが、DOC 濃度は 29 mg/L へ急に増加した。また、図 5-23 下段左図の初沈後水中 Comp.f/DOC 比について、同時刻で 1.0 RU/(mg/L)程度へ急に減少した。これは、本調査においては、短時間の降雨の影響下で早朝のファーストフラッシュにより、初沈後水中の FDOM の動態に変化を与え、その要因は、A 下水処理場の初沈後水のケースと同様、道路・屋根・土壌などの面源負荷や管内堆積物などに由来し、これらの汚濁物には蛍光性を有しない DOM が多く含まれている可能性が考えられる。

B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日と 24~25 日の両日程の初沈後水質指標（Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度）に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化を、図 5-25 に示す。図 5-25 左図の 2019 年 10 月 22 日について、Comp.1 は 0.49~0.91, Comp.2 は 0.26~0.58, DOC 濃度は 0.17~0.39 で推移し、Comp.3 は全試料 0.00 となった。また、図 5-25 右図の 2019 年 10 月 24~25 日について、Comp.1 は 0.57~0.83, Comp.2 は 0.22~0.39, DOC 濃度は 0.24~0.29 で推移し、Comp.3 は全試料 0.00 となった。Comp.3 を除くすべての水質指標は、生物反応槽の HRT が短くなる 2019 年 10 月 22 日 5:00~11:00, 10 月 25 日 6:00~12:00 の時間帯で概ね高い値を示し、Comp.1, Comp.2 の低減率や DOC 除去率が低くな

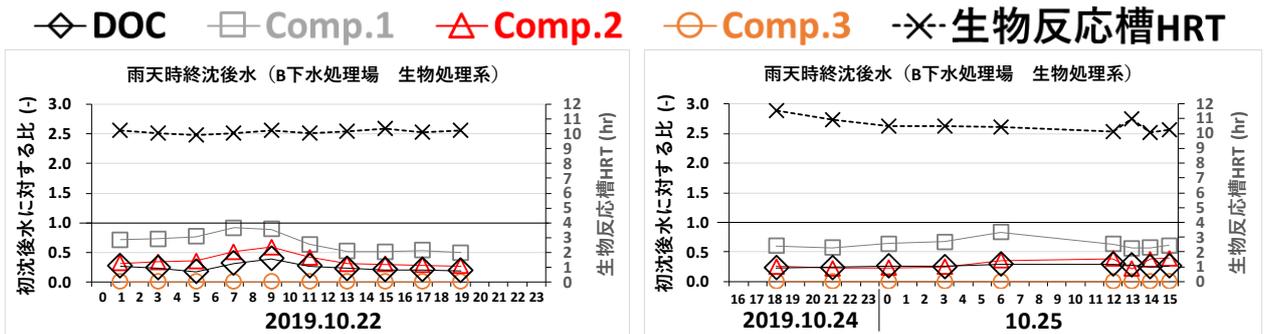


図 5-25 B 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の経時変化. 横軸は時刻を示す. 左図が 2019 年 10 月 22 日, 右図が 2019 年 10 月 24~25 日.

った. FDOM のうち Comp.1, Comp.2 については比が 1.0 に近くなり, 特に Comp.1 でその傾向が顕著であった. これは, FDOM のなかでもトリプトファン様成分の生物処理による低減率が最大で 78% と高いが, 特に 2019 年 10 月 22 日 0:00~3:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 以降の HRT が短くなることにより, 低減率が最小で 42% まで低下することを示している. また, FDOM のなかでも陸域由来フミン様成分の生物処理低減率が, 両日程を通じ最大で 51% と比較的到低く, HRT が低くなることにより, 除去率が最小で 9% 程度まで低下することを示している. さらに, チロシン様成分の生物処理低減率が生物反応槽の HRT が 9.9~12 hr の範囲では常に 100% であることも示している. これらにより, 陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 9.9 hr 程度の HRT では生物反応槽内での低減より増加が上回ったと考えられる.

B 下水処理場における初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比の比率と生物反応槽 HRT の経時変化を図 5-26 に示す. 図 5-26 左図の 2019 年 10 月 22 日について, Comp.1/DOC は 2.3~4.4, Comp.2/DOC は 1.2~2.0 で推移し, Comp.3/DOC は全試料 0.0 となった. 特に Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度は生物反応槽の HRT が最も短くなる 5:00 に高い値を示し, Comp.1/DOC, Comp.2/DOC の低減率が低くなった. 図 5-26 右図の 2019 年 10 月 24~25 日について, Comp.1/DOC は 2.0~2.8, Comp.2/DOC は 0.79~1.5 で推移し, Comp.3/DOC は全試料 0.0 となった. 特に Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度は, 生物反応槽の HRT が

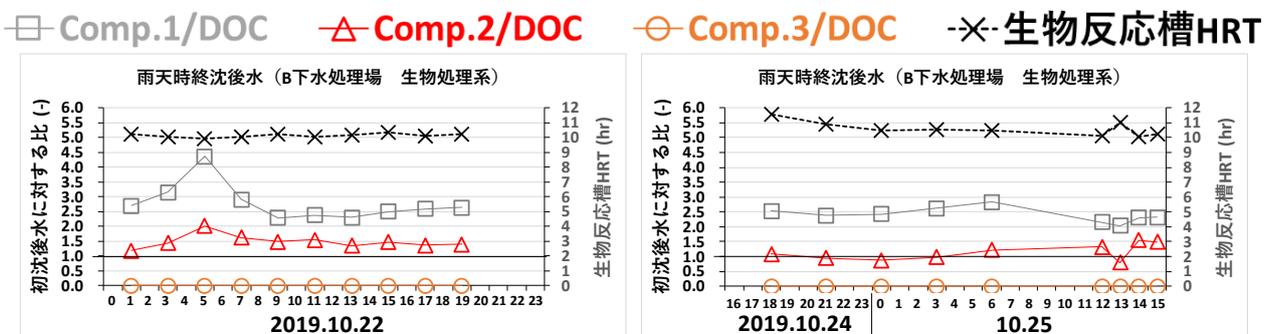


図 5-26 B 下水処理場における初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の比率と生物反応槽 HRT の経時変化. 横軸は時刻を示す. 左図が 2019 年 10 月 22 日, 右図が 2019 年 10 月 24~25 日.

急に長くなる 10 月 25 日 13:00 に低い値を示し、Comp.1/DOC、Comp.2/DOC の低減率が高くなった。

B 下水処理場の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT を比較したものを図 5-27 に示す。本調査の場合、説明変数が Comp.2 の場合のみ  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は 0.27 となった。また、回帰直線の傾きは  $-0.12$  (RU/RU)/h となった。したがって本調査の場合では、初沈後水の生物処理に関し、DOM 指標の DOC 濃度より FDOM 指標の特に Comp.2 の蛍光強度のほうが生物反応槽 HRT と中程度の相関を持つと考えられる。生物反応槽の HRT が 9.9~12 hr の範囲では生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちタンパク質様成分、特にトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる。以上により、第 4 章 4.3.1 の生物処理実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により十分適用可能であると言える。要因として、生物処理実験では供試原水として晴天時の C 下水処理場の初沈後水を用いているが、B 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できていると考えられる。本調査の場合、A 下水処理場と比べ生物反応槽の HRT や MLSS が高く、FDOM や DOM が十分に除去されているため、生物反応槽の状況が多様な場合で調査を行う必要が考えられる。

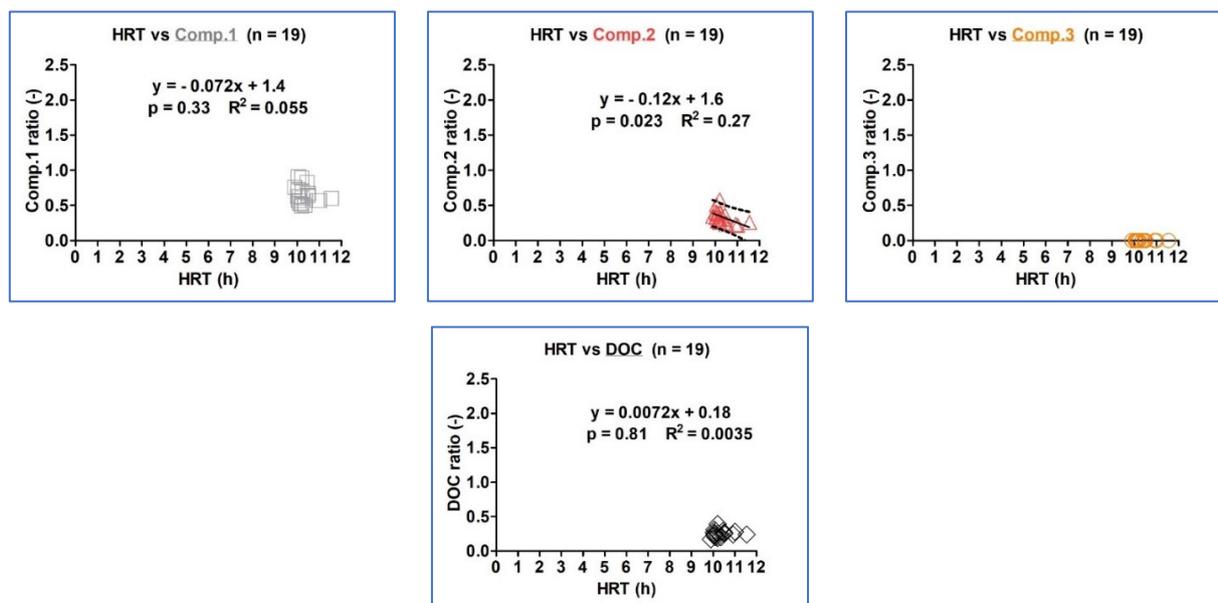


図 5-27 B 下水処理場における初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較。Comp.1 (上段左), Comp.2 (上段中), Comp.3 (上段右), DOC 濃度 (下段) を説明変数, 生物反応槽 HRT を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析。

## (2) 初沈後水・終沈後水中の衛生微生物の動態

B 下水処理場の 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm), 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm) における初沈後水・終沈後水中の TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化を, 図 5-28 に示す。図 5-28 上段左図の 2019 年 10 月 22 日における初沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は, それぞれ 7.8~8.4 log(CFU/L), 6.7~7.5

log(CFU/L), N.D.~3.5 log(PFU/L)で推移し, 図 5-28 下段左図の同日の終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は, それぞれ 4.8~TMT log(CFU/L), 2.7~5.0 log(CFU/L), N.D.~3.4 log(PFU/L)で推移した. また, 図 5-28 上段右図の 2019 年 10 月 24~25 日における初沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は, それぞれ 8.4~TMT log(CFU/L), 7.3~7.7 log(CFU/L), 4.7~5.3 log(PFU/L)で推移し, 図 5-28 下段右図の同日の終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は, それぞれ TMT log(CFU/L), 4.4~4.9 log(CFU/L), N.D. log(PFU/L)で推移した. これは, 生物処理により *E. coli* は両日ともある程度除去されたが, TC は両日ともほとんど除去されず, FPH は 2019 年 10 月 24~25 日のみ採水時間帯を通じて大幅に除去されたと考えられる. 対数除去率と生物反応槽 HRT の関連については後述する.

B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日と 24~25 日の両日程の初沈後水質に対する終沈後水質との差を, 図 5-29 に示す. 図 5-29 左図の 2019 年 10 月 22 日に関して, TC については-3.1~1.9 log(CFU/L), *E.*

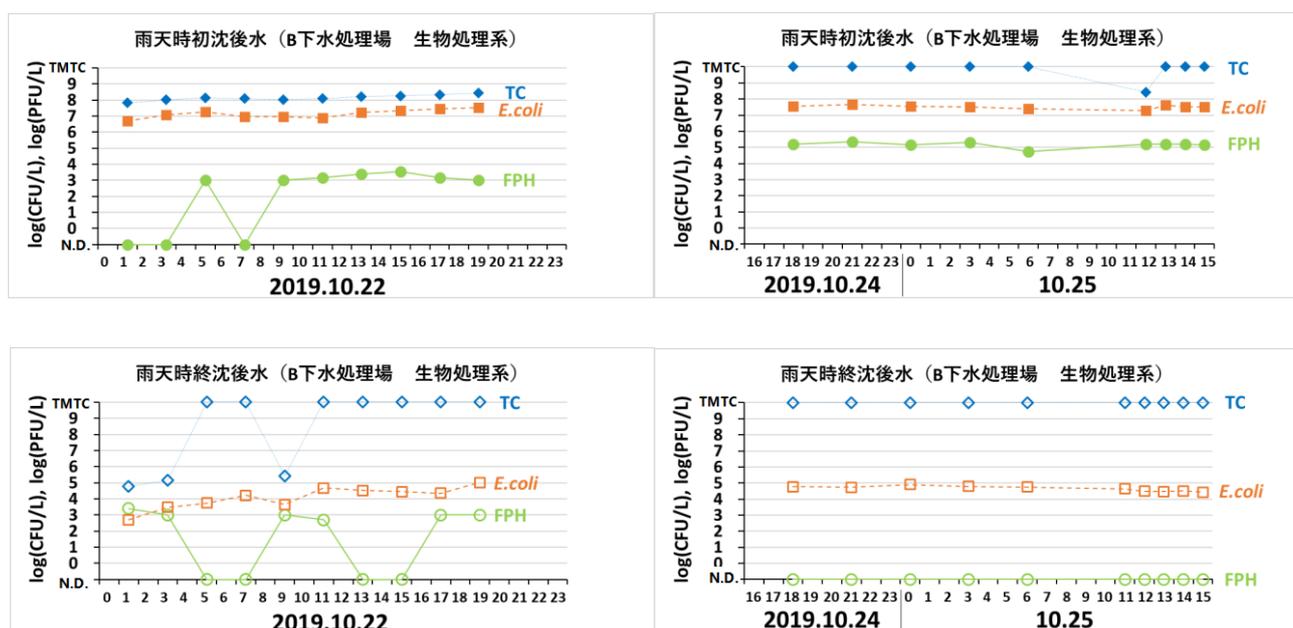


図 5-28 B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日, 24~25 日の初沈後水・終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化. 左が 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm), 右が 2019 年 10 月 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm). 過検出 (TMT) 試料を上端, 不検出 (N.D.) 試料を下端に示す. 横軸は時刻.

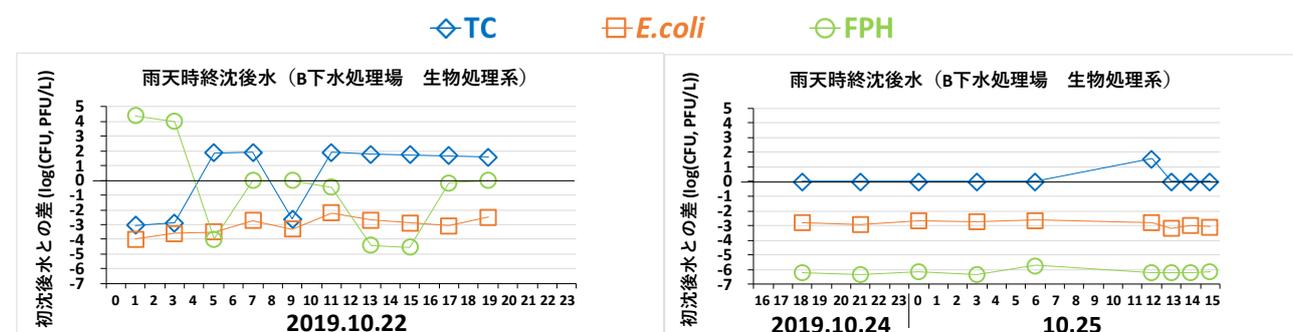


図 5-29 B 下水処理場における初沈後水質に対する終沈後水質との差. 左図が 2019 年 10 月 22 日, 右図が 2019 年 10 月 24~25 日. 上から TC, *E. coli*, FPH. TC に関し TMT を 10 log(CFU/L), FPH に関し N.D. を -1 log(PFU/L)として算出. 横軸は時刻を示す.

*coli* については-4.0~-2.2 log(CFU/L), FPH については-4.5~-4.4 log(PFU/L)で推移した. また, 図 5-29 右図の 2019 年 10 月 24~25 日に関して, TC については 0.0~1.6 log(CFU/L), *E. coli* については-3.2~-2.6 log(CFU/L), FPH については-6.3~-5.7 log(PFU/L)で推移した. 衛生微生物のうち *E. coli* のみ, 生物反応槽の HRT が短くなる 2019 年 10 月 22 日 5:00~11:00 の時間帯で概ね高い値を示し, 除去率が低くなった. これは, 衛生微生物のなかでも *E. coli* の生物処理による対数除去率が最大で 4.0 log(CFU/L)と高いが, 特に 2019 年 10 月 22 日 0:00~3:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり, 以降の HRT が短くなることにより, 対数除去率が最小で 2.2 log(CFU/L)まで低下することを示している. 一方で, TC, FPH の対数除去率と HRT の関連はみられなかった. このことから, 衛生微生物のうち *E. coli* は, 他の TC, FPH と比べ 5.2.3.3 (1) で述べた FDOM のうちトリプトファン様成分と関係を持つ可能性が考えられる.

B 下水処理場の初沈後水・終沈後水に対して Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物の検出濃度を比較したものを図 5-30 に示す. 各図中において, 本調査により得られた全 39 試料のデータを基に, 相関解析を試みた. 本調査では, 危険率 5 %未満 ( $p < 0.05$ ) を有意水準とし, 有意でかつ決定係数  $R^2 > 0.5$  の場合, Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度 (説明変数) と比較対象の TC, *E. coli* 及び FPH 濃度 (目的変数) との試料間の濃度傾向に強い相関関係があると判断した. 本調査の場合, まず図 5-30 上段の TC 濃度に対し, 説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数は説

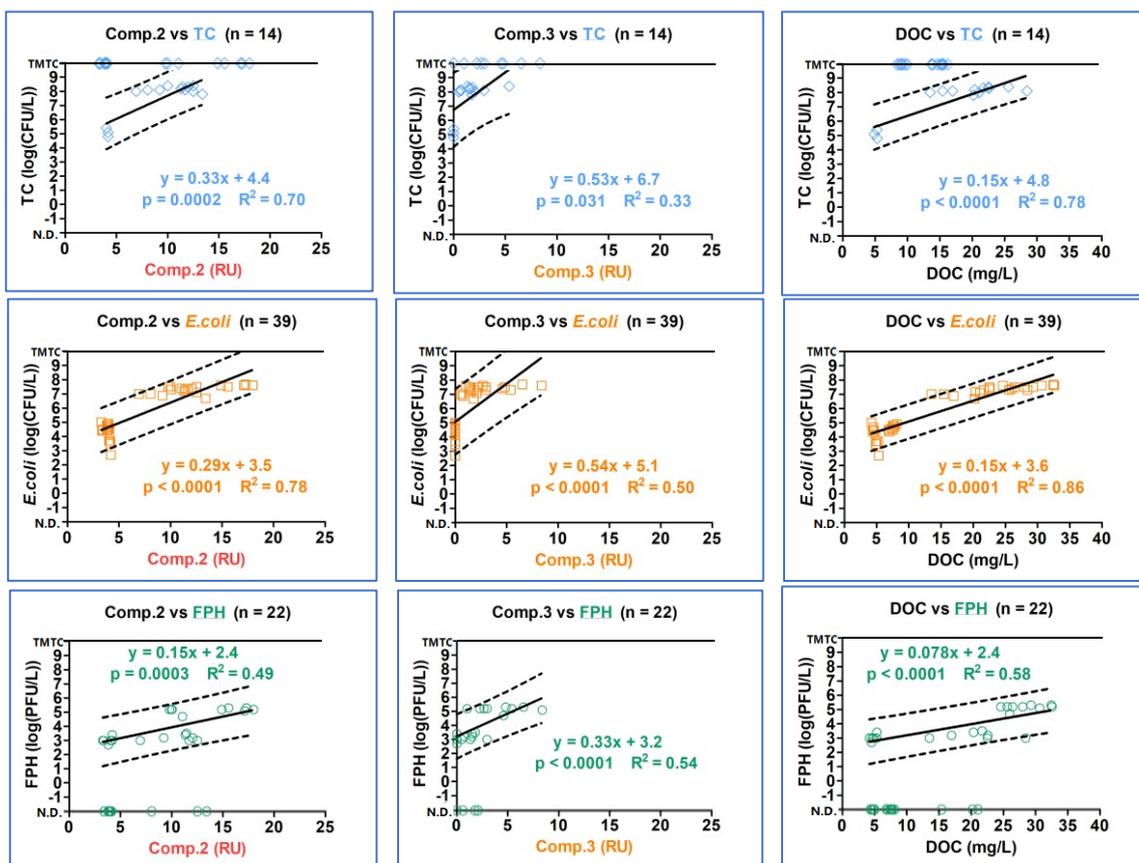


図 5-30 B 下水処理場の初沈後水・終沈後水に対する Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較. 左より Comp.2, Comp.3, DOC 濃度を説明変数, 上より TC, *E. coli* 及び FPH を目的変数として危険率 5 %で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析. 実線は回帰直線, 破線は上より 95 %予測区間の上限, 下限. 過検出 (TMTC) 試料を上端, 不検出 (N.D.) 試料を下端に示す.

明変数が Comp.2 で 0.70, Comp.3 で 0.33, DOC 濃度で 0.78 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は TC 濃度と相関を持ち、かつ Comp.2 の蛍光強度、DOC 濃度のいずれも TC 濃度と強い相関関係があり、かつ Comp.3 の蛍光強度は TC 濃度と中程度の相関関係があると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.2 で  $0.33 (\log(\text{CFU/L}))/\text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.15 (\log(\text{CFU/L}))/(\text{mg/L})$  となった。これは、本調査の場合では終沈後水のプロットが少ないものの、初沈後水の生物処理により TC 濃度が減少する場合、Comp.2 の蛍光強度の減少が鋭敏となる。したがって、HRT が最長 12 hr の生物処理を受けることによる TC 濃度の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる。

次に図 5-30 中段の *E. coli* 濃度に対し、説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は説明変数が Comp.2 で 0.78, Comp.3 で 0.50, DOC 濃度で 0.86 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は *E. coli* 濃度と相関を持ち、かつ Comp.2 の蛍光強度、DOC 濃度のいずれも *E. coli* 濃度と強い相関関係があり、かつ Comp.3 の蛍光強度は *E. coli* 濃度と中程度の相関関係があると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.2 で  $0.29 (\log(\text{CFU/L}))/\text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.15 (\log(\text{CFU/L}))/(\text{mg/L})$  となった。これは、本調査の場合では、初沈後水の生物処理により *E. coli* 濃度が減少する場合、Comp.2 の蛍光強度の減少が鋭敏となる。したがって、HRT が最長 12 hr の生物処理を受けることによる *E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる。

最後に図 5-30 下段の FPH 濃度に対し、説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は説明変数が Comp.2 で 0.49, Comp.3 で 0.54, DOC 濃度で 0.58 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は FPH 濃度と相関を持ち、かつ Comp.3 の蛍光強度、DOC 濃度のいずれも FPH 濃度と強い相関関係があり、かつ Comp.2 の蛍光強度は FPH 濃度と中程度の相関関係があると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.3 で  $0.33 (\log(\text{PFU/L}))/\text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.078 (\log(\text{PFU/L}))/(\text{mg/L})$  となった。これは、本調査の場合では、初沈後水の生物処理により FPH 濃度が減少する場合、Comp.3 の蛍光強度の減少が鋭敏となる。したがって、HRT が最長 12 hr の生物処理を受けることによる FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちチロシン様成分が有力であることを示すと考えられる。

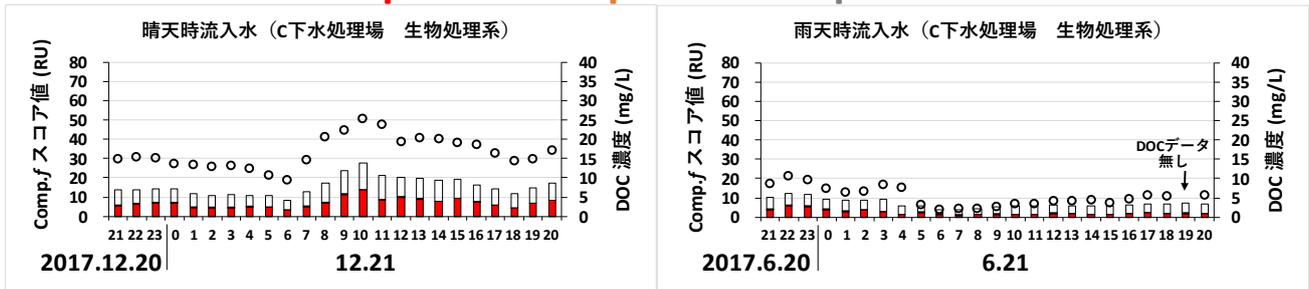
以上により、B 下水処理場の生物処理過程における、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC, *E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であることが考えられる。特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことが考えられる。

#### 5.2.3.4 C 下水処理場の生物処理系における流入水、初沈後水及び終沈後水に対する検討

##### (1) 流入水中の FDOM の動態

C 下水処理場の生物処理系における流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 及び DOC 濃度、FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比及び I 系流入量の経時変化を図 5-31 に示す。図 5-31 左図の晴天時流入水では、上段図の Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 8.4~28 RU 程度、9.5~25 mg/L 程度で推移し、類似の経時変化を示した。Comp.f 及び DOC 濃度ともに、2017 年 12 月 20 日の 10:00, 20:00 にピークがみられ、10:00 ではそれぞれ 28 RU, 25 mg/L に達し、20:00 ではそれぞれ 17

■ Comp.2   ■ Comp.3   □ Comp.1   ○ DOC



■ Comp.2/DOC   ■ Comp.3/DOC   □ Comp.1/DOC   + 流入水量

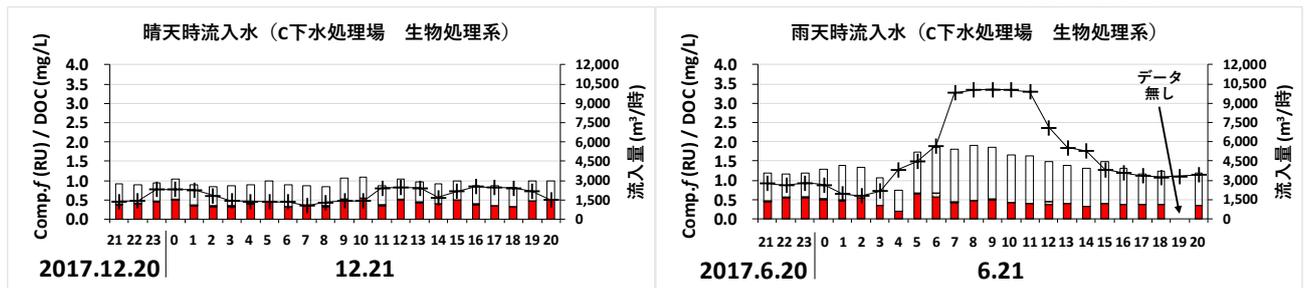


図 5-31 C 下水処理場の生物処理系における I 系流入水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f 及び DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比及び I 系流入水量の経時変化. 左図が 2017 年 12 月 20~21 日 (晴天時), 右図が 2017 年 6 月 20~21 日 (雨天時, 総降雨量 78.0 mm). 横軸は時刻を示す.

RU, 17 mg/L に達した. 下段図の Comp.f/DOC 比は 0.80~1.1 RU/(mg/L) で推移し, Comp.1/DOC, Comp.2/DOC 及び Comp.3/DOC 比では, それぞれ 0.48~0.55 RU/(mg/L), 0.31~0.54 RU/(mg/L), 0.00~0.02 RU/(mg/L) で推移した. 図 5-31 右図の雨天時流入水 (総降雨量 78.0 mm) では, 上段図の Comp.f 及び DOC 濃度は, それぞれ 3.9~12 RU 程度, 2.1~11 mg/L 程度で推移し, 2017 年 6 月 21 日 4:00 を除き類似の経時変化を示した. 図 5-8 に示す通り, 3:00 から 4:00 に流入量が約 1.8 倍増加し, DOC 濃度はそれぞれ約 8.5 mg/L, 7.8 mg/L であったが, Comp.f はそれぞれ約 9.0 RU, 5.8 RU へ急に減少した. これは, 本調査においては, 降雨の影響下で早朝のファーストフラッシュにより, 初沈後水中の FDOM の動態に変化を与え, その要因は, A・B 下水処理場の初沈後水のケースと同様, 道路・屋根・土壌などの面源負荷や管内堆積物などに由来し, これらの汚濁物には蛍光性を有しない DOM が多く含まれている可能性が考えられる. 下段図の Comp.f/DOC 比は 0.75~1.9 RU/(mg/L) で推移し, Comp.1/DOC, Comp.2/DOC 及び Comp.3/DOC 比では, それぞれ 0.56~1.4 RU/(mg/L), 0.19~0.65 RU/(mg/L), 0.00~0.092 RU/(mg/L) で推移した. 特にファーストフラッシュ後では Comp.1/DOC が 0.80~1.4 となり, ファーストフラッシュ前よりも相対的に割合が大きくなった. また, ファーストフラッシュ直後の 6 月 21 日 5:00 に Comp.2/DOC が 0.65 となり, ファーストフラッシュ直前よりも急に割合が大きくなった.

これらにより, 雨天時の流入水中の DOM に占める FDOM の割合が, 晴天時と比べて大きくなる可能性があることを示している. これは, 雨天時下水のうち雨水排水中に道路・屋根・土壌などの面源負荷由来の陸域由来フミン様成分や管内堆積物中のトリプトファン様成分が含まれることにより, 相対的に雨天時の流入水中の DOM に占める FDOM の割合が大きくなった可能性が考えられる.

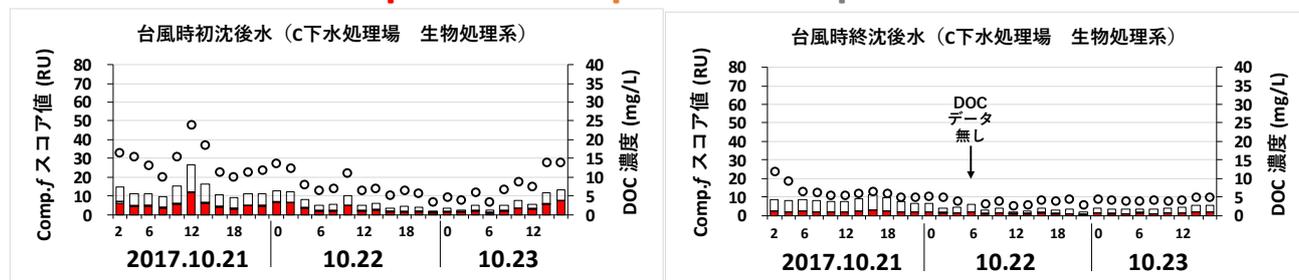
(2) 初沈後水・終沈後水中の FDOM の動態

下水道管理者より提供を受けた、C 下水処理場の生物処理系における台風時の 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）の I 系列 2 号池反応槽の MLSS 濃度と、I 系列 4 池平均の HRT の経時変化を図 5-32 に示す。2017 年 10 月 21~23 日の MLSS 濃度は 1,225~2,417 mg/L 程度、HRT は 1.7~11 hr で推移した。MLSS 濃度、HRT とともに大きな変化がみられた。MLSS 濃度は B 下水処理場のケースより低い傾向となり、10 月 22 日 10:00 以降の時間帯において平均 1,392 mg/L 程度と低くなった。HRT も B 下水処理場のケースより短い傾向となり、10 月 21 日 10:00 以降において平均 3.3 hr 程度と低くなり、10 月 22 日 2:00~12:00 の時間帯において 4.2 hr の低下がみられた。これは、採水時間帯の大部分を占める 40 hr 続いた総降雨量 200 mm の降雨により、10 月 22 日 2:00 以降で流入量が急に高くなったためと考えられる。同日程における初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, 同日程における初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f,



図 5-32 C 下水処理場の生物処理系における台風時の 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）の I 系列 2 号池反応槽の MLSS 濃度と I 系列 4 池平均の HRT の経時変化。横軸は時刻を示す。

■ Comp.2   ■ Comp.3   □ Comp.1   ○ DOC



■ Comp.2/DOC   ■ Comp.3/DOC   □ Comp.1/DOC   + 流入水量

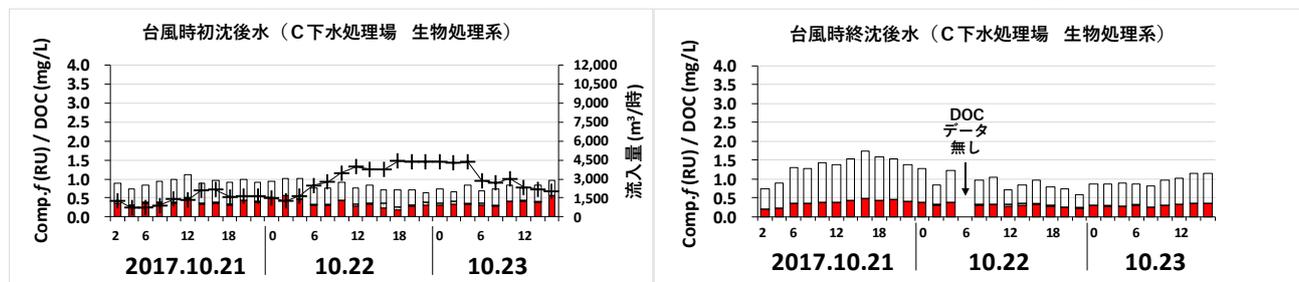
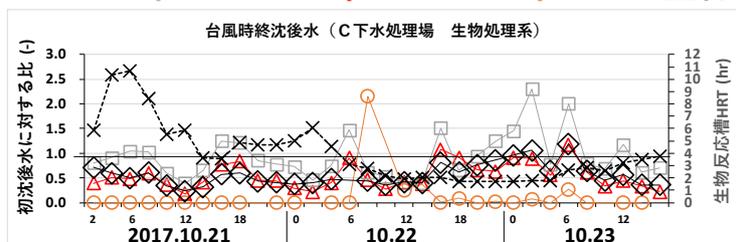


図 5-33 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日の初沈後水・終沈後水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比及び I 系流入量の経時変化。上段が Comp.f 及び DOC 濃度, 下段が Comp.f/DOC 比。横軸は時刻を示す。

DOC 濃度, Comp.f/DOC 比及び I 系流入量の経時変化を, 図 5-33 に示す. 図 5-33 上段左図の 2017 年 10 月 21~23 日 (総降雨量 200 mm) における初沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度は, それぞれ 2.2~27 RU, 3.3~24 mg/L で推移し, 図 5-33 上段右図の同日の終沈後水中 Comp.f 及び DOC 濃度は, それぞれ 1.8~11 RU, 2.7~12 mg/L で推移した. これは, 生物処理により FDOM・DOM とにもある程度除去されたと考えられる. 除去率と HRT の関連については後述する. 図 5-33 下段左図の 2017 年 10 月 21~23 日における初沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は, それぞれ 0.63~1.1 RU/(mg/L), 0.20~0.56 RU/(mg/L), 0.00~0.12 RU/(mg/L) で推移し, 図 5-33 下段右図の終沈後水中 Comp.f/DOC 比, Comp.2/DOC 比, Comp.3/DOC 比は, それぞれ 0.60~1.8 RU/(mg/L), 0.21~0.47 RU/(mg/L), 0.000~0.035 RU/(mg/L) で推移した. これらにより, 生物処理後の終沈後水中の DOM に占める FDOM の特に陸域由来フミン様成分の割合が大きくなることを示している. また, チロシン様成分に関しては初沈後水・終沈後水ともに主成分スコア値がほとんど 0 であることを示している. これは, 初沈後水中の蛍光性を有しない DOM が, FDOM より生物処理を強く受けて除去されたことにより, 相対的に生物処理後の終沈後水中の DOM に占める FDOM の割合が大きくなった可能性が考えられる. なお, FDOM の各成分に対する生物処理による除去率の比較検討は後述する. 本調査では, A・B 下水処理場の生物処理のケースと同様, 第 2 章 2.4.3.3 で述べた Cohen *et al.* による FDOM の生物処理に関する知見の通り, 生物処理によりタンパク質様成分を強く減少させ, 生物処理水中のタンパク質様成分よりもフミン様成分の割合を増加させた (Cohen *et al.*, 2014) という報告と同様の結果となった.

C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比の比

◇-DOC □-Comp.1 ▲-Comp.2 ○-Comp.3 ×-生物反応槽HRT



□-Comp.1/DOC ▲-Comp.2/DOC ○-Comp.3/DOC ×-生物反応槽HRT

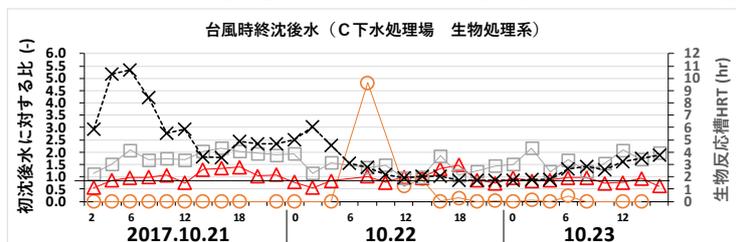


図 5-34 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT, 初沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する終沈後水の Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の比率と生物反応槽 HRT の経時変化. 横軸は時刻を示す.

率と生物反応槽 HRT の経時変化を、図 5-34 に示す。図 5-34 上図について、Comp.1 は 0.40~2.4、Comp.2 は 0.17~1.1、Comp.3 は 0.00~2.2、DOC 濃度は 0.23~1.2 で推移した。Comp.3 を除くすべての水質指標は、生物反応槽の HRT が短くなり、MLSS 濃度が低くなる 2017 年 10 月 21 日 16:00 頃、10 月 22 日 6:00 頃、同 16:00 以降で概ね高い値を示し、Comp.1、Comp.2 の低減率や DOC 除去率が低くなった。FDOM のうち Comp.2 については比が 1.0 に近くなり、一方 Comp.1 については比が 1.0 より大きくなりその傾向が顕著であった。これは、FDOM のなかでもタンパク質様成分の生物処理による低減率が最大で 83% と高いが、特に 2017 年 10 月 22 日 2:00~12:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、以降の HRT が短くなることにより、低減率が最小で-10% まで低下することを示している。また FDOM のなかでも陸域由来フミン様成分の生物処理低減率が両日程を通じ最大で 60% と比較的到低く、HRT が短くなり MLSS 濃度が低くなることにより、低減率が最小で-140% 程度まで低下することを示している。さらに、チロシン様成分の生物処理低減率が生物反応槽の HRT が 1.7~11 hr の範囲では概ね 100% であることも示している。よって、陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 1.7~6.1 hr 程度の HRT では生物反応槽内での低減より増加が上回った可能性が考えられる。図 5-34 下図について、Comp.1/DOC は 0.95~2.2、Comp.2/DOC は 0.56~1.5、Comp.3/DOC は 0.00~4.8 で推移した。特に Comp.1/DOC 濃度、Comp.2/DOC 濃度については、生物反応槽の HRT が最も短くなる 2017 年 10 月 21 日 14:00~16:00 頃、10 月 22 日 16:00~18:00 頃に高い値を示し、Comp.1/DOC、Comp.2/DOC の低減率が低くなった。

C 下水処理場の初沈後水質指標 (Comp.1、Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT を比較したものを図 5-35 に示す。本調査の場合、説明変数が Comp.1、Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度のいずれも  $p > 0.05$  で有意でなかった。したがって、本調査の場合では、初沈後水質指標に対する終沈後水質指標の比率は生物反応槽 HRT と相関を持たないと考えられる。生物反応槽

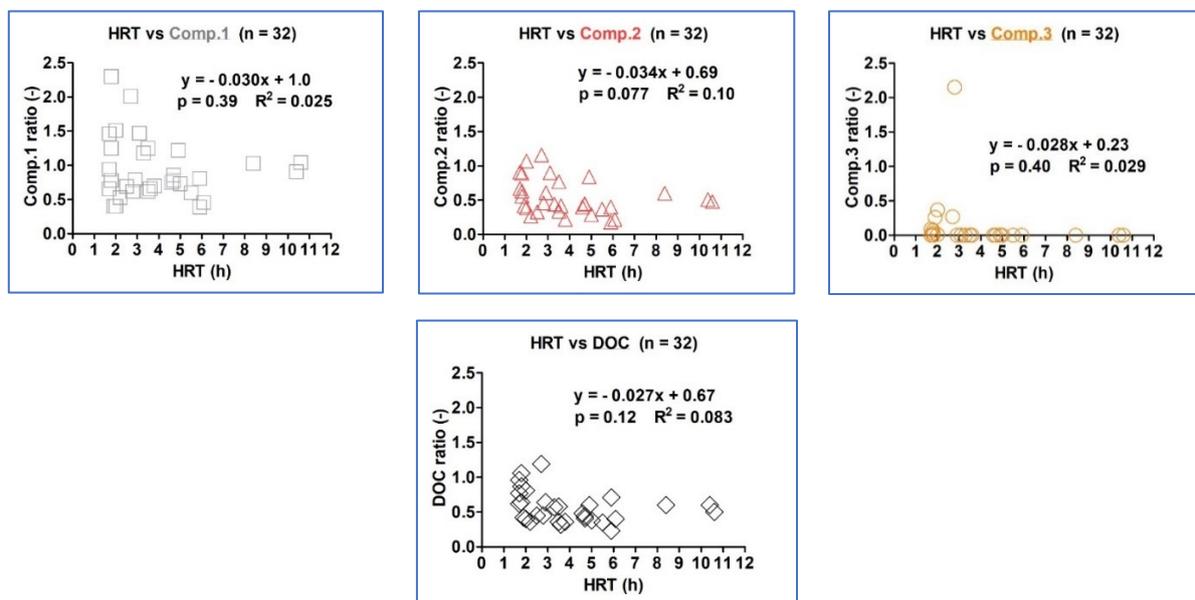


図 5-35 C 下水処理場の生物処理系の初沈後水質指標 (Comp.1、Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率と生物反応槽 HRT の比較。Comp.1 (上段左)、Comp.2 (上段中)、Comp.3 (上段右)、DOC 濃度 (下段) を説明変数、生物反応槽 HRT を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析。

の HRT が 1.7~11 hr の範囲では生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM 成分が有力でないことを示すと考えられる。以上により、第 4 章 4.3.1 の生物処理実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であると言える。要因として、生物処理実験では供試原水として晴天時の C 下水処理場の初沈後水を用いているが、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できていなかった可能性が考えられる。本調査の場合、A・B 下水処理場と比べ生物反応槽の HRT が低く、MLSS の変動が大きく、FDOM 成分や DOM が十分に除去されていないため、生物反応槽の状況が多様な場合で調査を行う必要が考えられる。

### (3) 初沈後水・終沈後水中の衛生微生物の動態

C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）の TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化を、図 5-36 に示す。初沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 7.4~8.7 log(CFU/L), 6.0~7.8 log(CFU/L), 3.0~5.8 log(PFU/L) で推移し、終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 5.0~7.1 log(CFU/L), 3.7~6.3 log(CFU/L), N.D.~4.9 log(PFU/L) で推移した。これは、生物処理により TC, *E. coli* 及び FPH はいずれもある程度除去されたと考えられる。対数除去率と生物反応槽 HRT の関連については後述する。

C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）の初沈後水質に対する終沈後水質との差を、図 5-37 に示す。TC については -3.1~-1.0 log(CFU/L), *E. coli* については -2.9~-0.6 log(CFU/L), FPH については -5.5~0.4 log(PFU/L) で推移した。衛生微生物のうち TC, *E. coli* について、生物反応槽の HRT が短くなり、MLSS 濃度が低くなる 2017 年 10 月 21 日 16:00 頃, 10 月 22 日 6:00 頃, 10 月 23 日 8:00 頃で概ね高い値を示し、除去率が低くなった。これは、衛生微生物のなかでも TC, *E. coli* の生物処理による対数除去率が、それぞれ最大で 3.1 log(CFU/L), 2.9 log(CFU/L) と高いが、特に 2017 年 10 月 21 日 12:00~14:00, 10 月 22 日 2:00~12:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、以降の HRT が短くなることにより、対数除去率がそれぞれ最小で 1.0 log(CFU/L), 0.6 log(CFU/L) まで低下することを示している。一方で、FPH について、生物反応槽の HRT が短くなり、MLSS 濃度が低くなる 2017 年 10 月 21 日 16:00 頃, 10 月 22 日 6:00 頃で概ね高い値を示し、除去率が低くなった。これは、衛生微生物のなかでも FPH の生物処理による対数除去率が、最大で 5.5 log(PFU/L) と高いが、特に 2017 年 10 月 21 日 12:00~14:00 の時間帯で降雨により流入量が急に高くなり、以降の HRT が短くなることにより、対数除去率が最小で -0.4 log(PFU/L) まで低下することを示している。このことから、衛生微生物の TC, *E. coli* 及び FPH は、5.2.3.4 (1) で述べた FDOM のうちトリプトファン様成分と関係を持つ可能性が考えられる。

C 下水処理場の生物処理系の初沈後水・終沈後水に対して Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物の検出濃度を比較したものを図 5-38 に示す。本調査の場合、まず図 5-38 上段の TC 濃度に対し、説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は説明変数が Comp.2 で 0.42, Comp.3 で 0.30, DOC 濃度で 0.47 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は TC 濃度と相関を持ち、かつ中程度の相関関係があるが、Comp.3 の相関性は Comp.2, DOC 濃度に比べやや劣ると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.2 で  $0.40 (\log(\text{CFU/L})) / \text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.20 (\log(\text{CFU/L})) / (\text{mg/L})$  となった。これは、本調査の場合では、初沈後水の生物処理により TC 濃

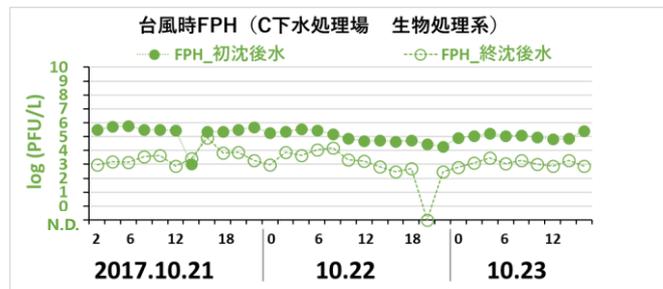
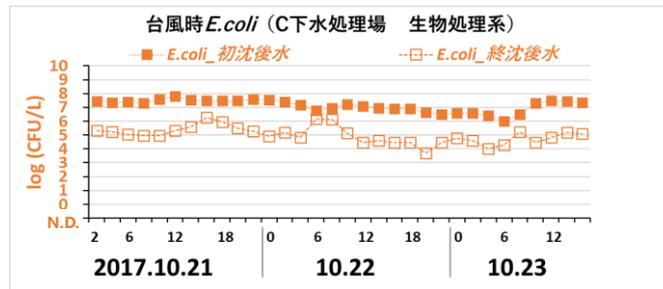
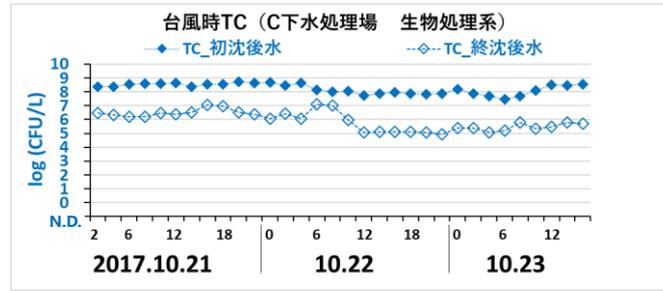


図 5-36 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 10 月 21~23 日（総降雨量 200 mm）の初沈後水・終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化. 上から TC, *E. coli*, FPH. 不検出 (N.D.) 試料を下端に示す. 横軸は時刻を示す.

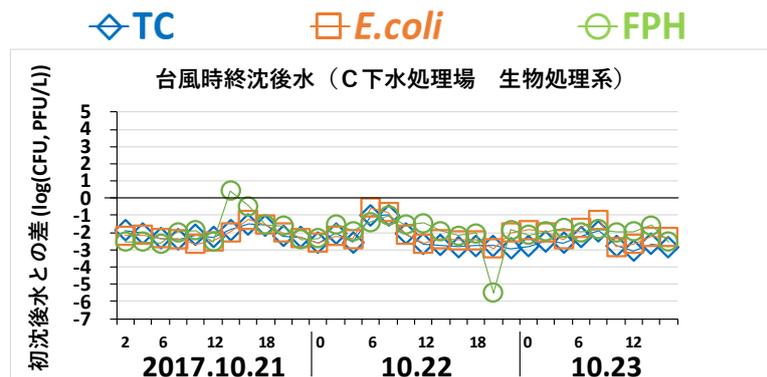


図 5-37 B 下水処理場の生物処理系における初沈後水質に対する終沈後水質との差. 上から TC, *E. coli*, FPH. FPH に関し N.D.を-1.0 log(PFU/L)として算出. 横軸は時刻を示す.

度が減少する場合, Comp.2 の蛍光強度の減少が鋭敏となる. したがって, HRT が最長 11 hr の生物処理を受けることによる TC 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として, FDOM のうちトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる.

次に図 5-38 中段の *E. coli* 濃度に対し、説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は説明変数が Comp.2 で 0.47, Comp.3 で 0.34, DOC 濃度で 0.52 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は *E. coli* 濃度と相関を持ち、かつ DOC 濃度は *E. coli* 濃度と強い相関関係があり、かつ Comp.2, Comp.3 の蛍光強度のいずれも *E. coli* 濃度と中程度の相関関係があるが、Comp.3 の相関性は Comp.2 に比べやや劣ると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.2 で  $0.40 (\log(\text{CFU/L}))/\text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.19 (\log(\text{CFU/L}))/(\text{mg/L})$  となった。これは、本調査の場合では、初沈後水の生物処理により *E. coli* 濃度が減少する場合、Comp.2 の蛍光強度の減少が鋭敏となる。したがって、HRT が最長 11 hr の生物処理を受けることによる *E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として、DOM に比べやや劣るものの FDOM のうちトリプトファン様成分が有力であることを示すと考えられる。

最後に図 5-38 下段の FPH 濃度に対し、説明変数が Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は説明変数が Comp.2 で 0.30, Comp.3 で 0.28, DOC 濃度で 0.30 となった。よって、本調査の場合では、Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度は FPH 濃度と相関を持ち、かつ Comp.2, Comp.3 の蛍光強度と DOC 濃度のいずれも FPH 濃度と中程度の相関関係があると考えられる。また、回帰直線の傾きは、Comp.2 で  $0.28 (\log(\text{PFU/L}))/\text{RU}$ , Comp.3 で  $2.8 (\log(\text{PFU/L}))/\text{RU}$ , DOC 濃度で  $0.13$

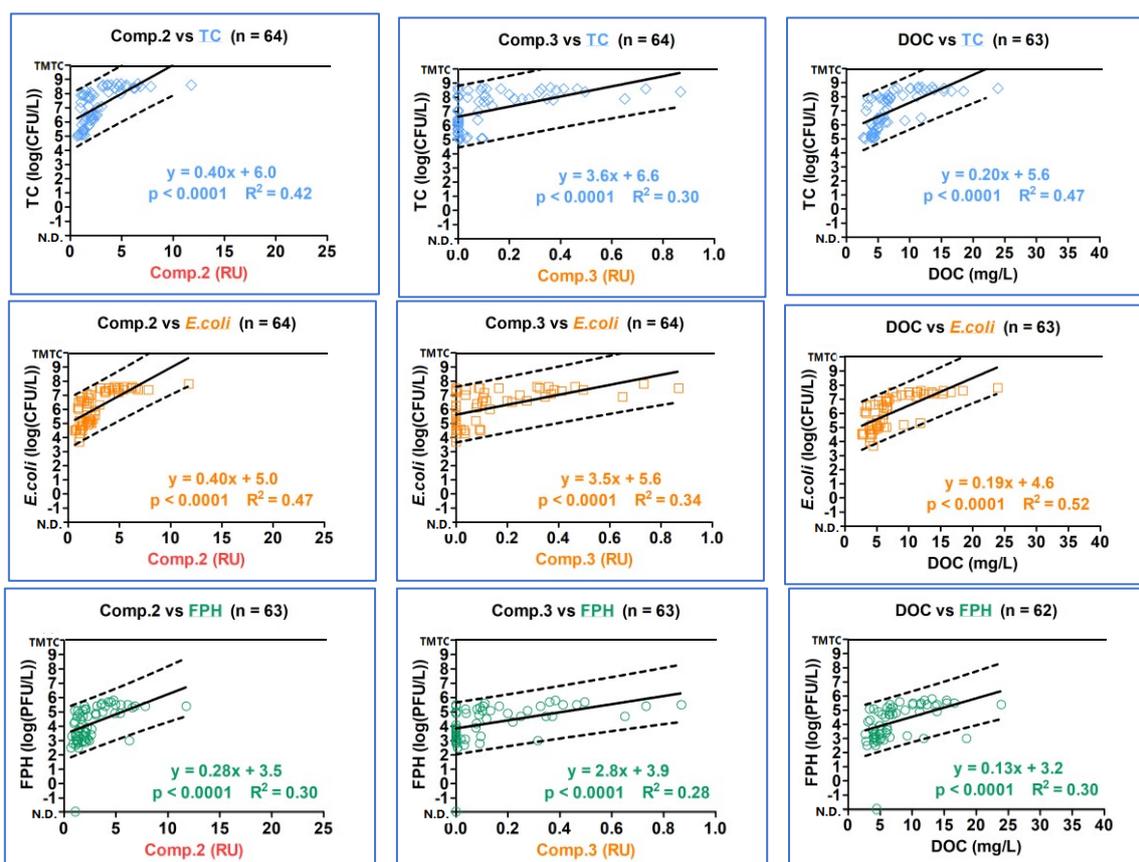


図 5-38 C 下水処理場の生物処理系の初沈後水・終沈後水に対する Comp.2, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較。Comp.2, Comp.3, DOC 濃度を説明変数, TC, *E. coli* 及び FPH を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析。実線は回帰直線, 破線は上より 95% 予測区間の上限, 下限。不検出 (N.D.) の試料を下端に示す。

(log(PFU/L))/(mg/L)となった。これは、本調査の場合では、初沈後水の生物処理により FPH 濃度が減少する場合、Comp.3 の蛍光強度の減少が鋭敏となる。したがって、HRT が最長 11 hr の生物処理を受けることによる FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として、FDOM のうちチロシン様成分が有力であることを示すと考えられる。

以上により、C 下水処理場の生物処理過程における、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC、*E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であることが考えられる。特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことが考えられる。一方で、*E. coli* に対する DOC 濃度の指標性が比較的高いことが考えられる。これは、5.2.3.3 (1) で述べた B 下水処理場の生物処理過程のケースと類似している。また、B 下水処理場の生物処理過程のケースに比べ、概ね相関が弱い結果となった。C 下水処理場において、台風時の流入水・初沈後水・終沈後水中の Comp.f/DOC 比は、いずれも B 下水処理場と比べて大幅に小さい。要因として、5.2.3.4 (2) で述べた初沈後水質指標に対する終沈後水質指標の比率が生物反応槽 HRT と相関を持たないことや、B・C 下水処理場の各処理区の土地利用・下水排除方式の違いにより、雨天時下水中の雨水排水の水質特性が異なることが考えられる。

#### 5.2.3.5 C 下水処理場の凝集処理系における流入水及び処理水に対する検討

##### (1) 流入水・処理水中の FDOM の動態

下水道管理者より提供を受けた、C 下水処理場の凝集処理系における台風時の 2018 年 9 月 4-5 日（総降雨量 42.5 mm）の流入水濁度と、表 5-1 より得られた PACl 添加濃度の経時変化を図 5-39 に、同日程における流入水・処理水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 の合計値 Comp.f, DOC 濃度、Comp.f/DOC 比の経時変化を、図 5-40 に示す。図 5-39 について、2018 年 9 月 4-5 日の流入水濁度は 6.7~33 NTU 程度、PACl 添加濃度は 5 mg/L で推移した。流入水濁度、PACl 添加濃度ともに大きな変化がみられなかった。

図 5-40 上段左図の 2018 年 9 月 4-5 日（総降雨量 42.5 mm）における流入水中 Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 2.8~6.4 RU, 4.2~12 mg/L で推移し、図 5-40 上段右図の同日の処理水中 Comp.f 及び DOC 濃度は、それぞれ 1.7~4.9 RU, 3.9~7.4 mg/L で推移した。これは、凝集処理により FDOM・DOM ともにある程度除去されたと考えられる。除去率と PACl 添加濃度の関連については後述する。図 5-40 下段左図の 2018 年 9 月 4-5 日における流入水中 Comp.f/DOC 比、Comp.1/DOC 比、Comp.2/DOC 比、Comp.3/DOC 比は、それぞれ 0.45~0.87 RU/(mg/L), 0.30~0.57 RU/(mg/L), 0.15~0.39 RU/(mg/L), 0.000~0.027 RU/(mg/L) で推移し、右段下図の同日の処理水中 Comp.f/DOC 比、Comp.1/DOC 比、Comp.2/DOC 比、Comp.3/DOC 比は、それぞれ 0.35~0.83 RU/(mg/L), 0.20~0.48 RU/(mg/L), 0.15~0.35 RU/(mg/L), 0.000~0.024 RU/(mg/L) で推移した。これらにより、凝集処理後の処理水中の DOM に占める FDOM の割合が、陸域由来フミン様成分については小さくなり、トリプトファン様成分・チロシン様成分についてはほとんど変わらず、特にチロシン様成分に関しては流入水・処理水ともに主成分スコア値がほとんど 0であることを示している。これは、流入水中の陸域由来フミン様成分が凝集処理を受けて除去されているが、蛍光性を有しない DOM が、陸域由来フミン様成分より凝集処理を強く受けて除去されたことにより、相対的に凝集処理後の処理水中 DOM に占める FDOM の割合が小さくなった可能性が考えられる。なお、FDOM の各成分に対する凝集処理による除去率の比較検討は後述する。本調査では、C 下水処理場の生物処理のケースと異なり、凝集処理によりトリプトファン様成分を強く減少させず、凝集処理水中のトリプトファン様成分

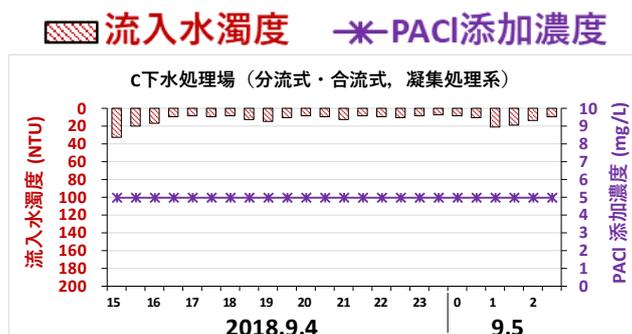


図 5-39 C 下水処理場の凝集処理系における台風時の 2018 年 9 月 4~5 日（総降雨量 42.5 mm）の流入水濁度と、PACl 添加濃度の経時変化。横軸は時刻を示す。

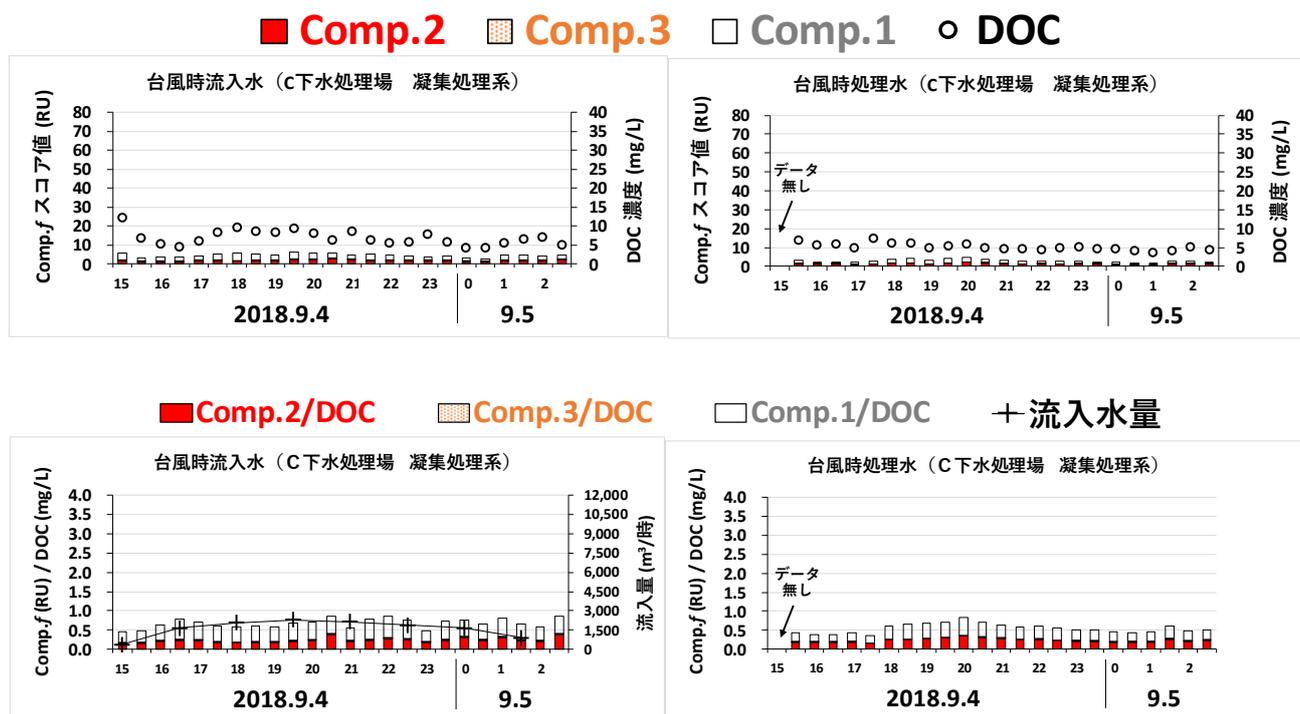
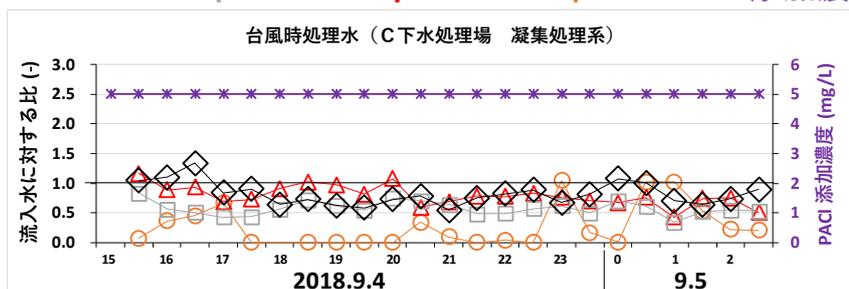


図 5-40 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日（総降雨量 42.5 mm）の流入水・処理水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比及び流入量の経時変化。上段が Comp.f 及び DOC 濃度, 下段が Comp.f/DOC 比。横軸は時刻を示す。

よりも陸域由来フミン様成分の割合を増加させなかった。

C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日の流入水質指標（Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度）に対する処理水質指標の比率と PACl 添加濃度, 流入水の Comp.f/DOC 比（Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度）に対する処理水の Comp.f/DOC 比の比率と PACl 添加濃度の経時変化を, 図 5-41 に示す。図 5-41 上図に関して, Comp.1 については 0.34~0.83, Comp.2 については 0.43~1.2, Comp.3 については 0.0~1.0, DOC 濃度については 0.55~1.3 で推移した。Comp.1 は 2018 年 9 月 4 日 15:30 頃, 18:30 頃, 20:00~20:30 頃, 9 月 5 日 0:00 頃で概ね高い値を示し, Comp.2 は 2018 年 9 月 4 日 15:30 頃, 18:30 頃, 20:00 頃, 22:30 頃, 9 月 5 日 0:30 頃, 1:30~2:00 頃で概ね高い値を示し, Comp.3 は 2018 年 9 月 4 日 17:00 頃, 23:00 頃, 9 月 5 日 0:30~1:00 頃で概ね高い値を示し, DOC 濃度は 2018 年

◇DOC □Comp.1 ▲Comp.2 ○Comp.3 \*PACl添加濃度



□Comp.1/DOC ▲Comp.2/DOC ○Comp.3/DOC \*PACl添加濃度

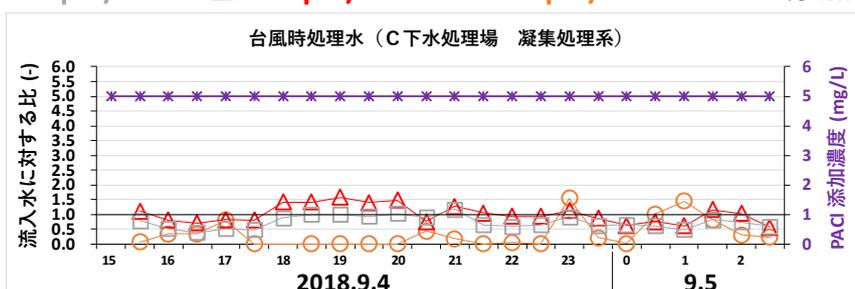


図 5-41 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日の流入水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する処理水質指標の比率と PACl 添加濃度, 流入水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する処理水の Comp.f/DOC 比 (f=1, 2, 3) の比率と PACl 添加濃度の経時変化. 横軸は時刻を示す.

9 月 4 日 16:30 頃, 17:30 頃, 20:30 頃, 22:30 頃, 9 月 5 日 0:00 頃で概ね高い値を示し, Comp.1, Comp.2, Comp.3 の低減率や DOC 除去率が低くなった. FDOM のうち Comp.2 については, 特に 9 月 4 日 15:30 頃, 20:00 頃で比が 1.0 より大きくなり, また DOM を表す DOC 濃度については, 特に 9 月 4 日 16:00~16:30 頃, 9 月 5 日 0:00~0:30 頃で比が 1.0 より大きくなり, Comp.2 と比べその傾向が顕著であった. これは, FDOM のなかでもトリプトファン様成分の凝集処理による低減率が最大で 57%であったが, PACl 添加濃度が 5 mg/L で一定であるにもかかわらず, 除去率が最小で -20%まで低下したことを示している. 一方, FDOM のなかでも陸域由来フミン様成分の凝集処理低減率が, 最大で 66%と比較的に高く, PACl 添加濃度が 5 mg/L で一定であるにもかかわらず, 除去率が最小で 17%程度まで低下したことを示している. これらにより, トリプトファン様成分は PACl 添加濃度 5 mg/L 程度では, 図 5-5 に示す高速凝集沈殿処理の槽内で十分に除去されなかったか, 低減より増加が上回ったことが考えられる. 図 5-41 下図について, Comp.1/DOC は 0.38~1.2, Comp.2/DOC は 0.57~1.6, Comp.3/DOC は 0.00~1.6 で推移した. 特に Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度については, 2018 年 9 月 4 日 18:00~20:00 頃, 21:00 頃, 9 月 5 日 1:30 頃に高い値を示し, Comp.1/DOC, Comp.2/DOC の低減率が低くなったが PACl 添加濃度が 5 mg/L で一定であったため, 図 5-5 に示す後段の注入槽・熟成槽・沈殿槽での要因による可能性が考えられる.

C 下水処理場の凝集処理系の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率を図 5-42 に示す. 比率の算術平均値は, Comp.1 で 0.57, Comp.2 で 0.79, Comp.3 で 0.28, DOC 濃度で 0.82 となり, Comp.3 の蛍光強度の低減率が平均 72%で最も高いが, 前述の通り分布は 0.0~1.0 であるため低減率が不安定となる. 本調査の場合では, PACl 添加濃度が 5 mg/L の凝集処理を

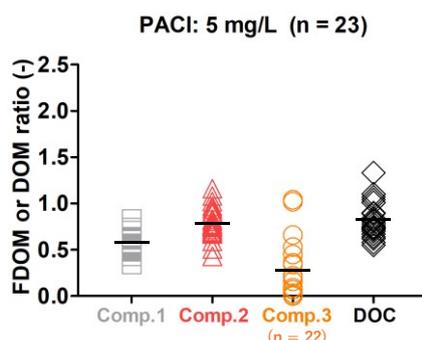


図 5-42 C 下水処理場の凝集処理系の初沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する終沈後水質指標の比率. 横線プロットは算術平均値.

受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうち陸域由来フミン様成分が有力であることを示すと考えられる。したがって、第 4 章 4.3.2 の凝集処理実験で明らかにしたピークピッキングによる陸域由来フミン様成分の凝集処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の雨天時下水の凝集処理では EEM-PARAFAC 法で得られた陸域由来フミン様成分により適用可能であると言える。要因として、凝集処理実験では供試原水として雨天時下水ではなく晴天時の C 下水処理場の流入水を超純水で希釈したものを用いており、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できている可能性が考えられる。また、5.2.2.1 (3) で述べた通り、C 下水処理場の凝集処理過程は、凝集槽での PACl 注入だけではなく、注入槽でのマイクロサンド添加や熟成槽での高分子凝集剤添加がある (図 5-5 参照) ため、これらの影響を考慮して検討する必要性が考えられる。

## (2) 流入水・処理水中の衛生微生物の動態

C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日 (総降雨量 42.5 mm) の TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化を、図 5-43 に示す。流入水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 5.3~5.7 log(CFU/L), 3.5~4.8 log(CFU/L), 2.1~2.8 log(PFU/L) で推移し、処理水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 2.4~4.1 log(CFU/L), 2.0~3.0 log(CFU/L), N.D.~1.9 log(PFU/L) で推移した。これは、凝集処理により TC, *E. coli* 及び FPH はある程度除去されたと考えられる。対数除去率と PACl 添加濃度の関連については後述する。

C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4~5 日の流入水質に対する処理水質との差を、図 5-44 に示す。TC については -2.9~-1.2 log(CFU/L), *E. coli* については -2.5~-1.0 log(CFU/L), FPH については -3.2~-0.5 log(PFU/L) で推移した。衛生微生物のうち TC, *E. coli* について、2018 年 9 月 4 日 15:30 頃, 20:30 頃, 9 月 5 日 0:00 頃に概ね高い値を示し、除去率が低くなった。これは TC, *E. coli* の凝集処理による対数除去率が、それぞれ最大で 2.9 log(CFU/L), 2.5 log(CFU/L) と高いが、PACl 添加濃度が 5 mg/L で一定であるにもかかわらず、対数除去率がそれぞれ最小で 1.2 log(CFU/L), 1.0 log(CFU/L) まで低下したことを示している。一方で衛生微生物のうち FPH について、2018 年 9 月 4 日 16:00~16:30 頃, 23:00~23:30 頃, 9 月 5 日 2:00~2:30 頃に概ね高い値を示し、除去率が低くなった。これは FPH の生物処理による対数除去率が、最大で 3.2 log(PFU/L) であるが、特に 9 月 5 日 0:00 で対数除去率が最小で 0.5 log(PFU/L) まで低下し、その理由が PACl 添加濃度では説明できないことを示している。衛生微生物の TC, FPH は、流入水質に対する処理水質との差の変化傾向が 5.2.3.5 (1) で述べた Comp.1 の陸域由来フミン様成分と類似しているこ

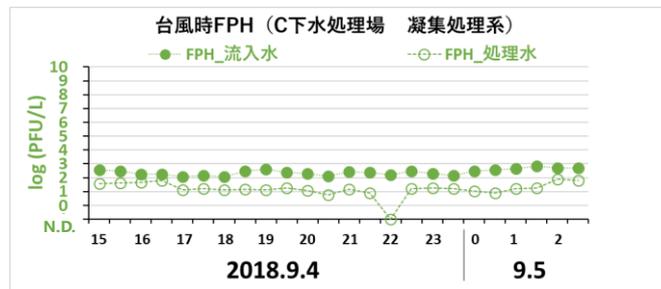
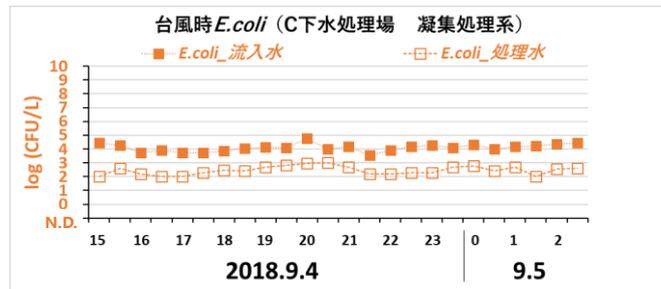
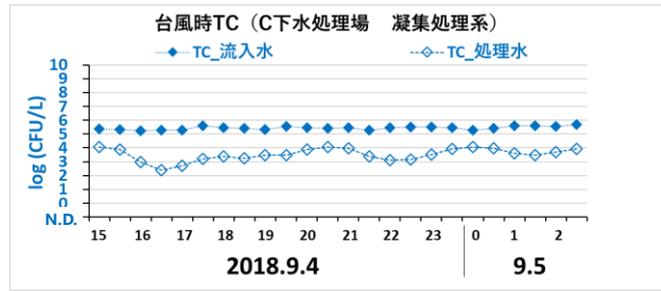


図 5-43 C 下水処理場の凝集処理系における 2018 年 9 月 4-5 日（総降雨量 42.5 mm）の流入水・処理水中 TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化. 上から TC, *E. coli*, FPH. 不検出 (N.D.) 試料を下端に示す. 横軸は時刻を示す.

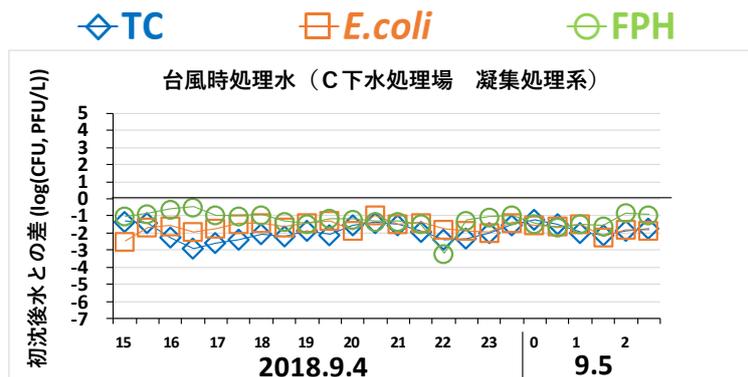


図 5-44 C 下水処理場の凝集処理系における流入水質に対する処理水質との差. 上から TC, *E. coli*, FPH. FPH に関し N.D.を-1.0 log(PFU/L)として算出. 横軸は時刻を示す.

とから, FDOM のうち陸域由来フミン様成分と関係を持つ可能性が考えられる.

C 下水処理場の凝集処理系の流入水・処理水に対して Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物の検出濃度を比較したものを図 5-45 に示す. 本調査の場合, まず図 5-45 上段の TC 濃度に対し説明変数が

Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数は説明変数が Comp.1 で 0.53, Comp.3 で 0.44, DOC 濃度で 0.20 となった. よって, 本調査の場合では, Comp.1, Comp.2 の蛍光強度と DOC 濃度は TC 濃度と相関を持ち, かつ Comp.1 については強い相関関係があるが, Comp.3 の相関性は Comp.1 に比べやや劣り, DOC 濃度の相関性は Comp.1 に比べかなり劣ると考えられる. したがって, PACl 添加濃度が 5 mg/L の凝集処理を受けることによる TC 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として, FDOM のうち陸域由来フミン様成分が有力であることを示すと考えられる.

次に図 5-45 中段の *E. coli* 濃度に対し説明変数が Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数は説明変数が Comp.1 で 0.53, Comp.3 で 0.38, DOC 濃度で 0.25 となった. よって, 本調査の場合では, Comp.1, Comp.2 の蛍光強度と DOC 濃度は *E. coli* 濃度と相関を持ち, かつ Comp.1 については強い相関関係があるが, Comp.3 の相関性は Comp.1 に比べやや劣り, DOC 濃度の相関性は Comp.1 に比べかなり劣ると考えられる. したがって, PACl 添加濃度が 5 mg/L の凝集処理を受けることによる *E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として, FDOM のうち陸域由来フミン様成分・チロシン様成分が有力で, 陸域由来フミン様成分がよりふさわしいことを示すと考えられる.

最後に図 5-45 下段の FPH 濃度に対し説明変数が Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度のいずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数は説明変数が Comp.1 で 0.37, Comp.3 で 0.44, DOC 濃度で 0.21 となった. よつ

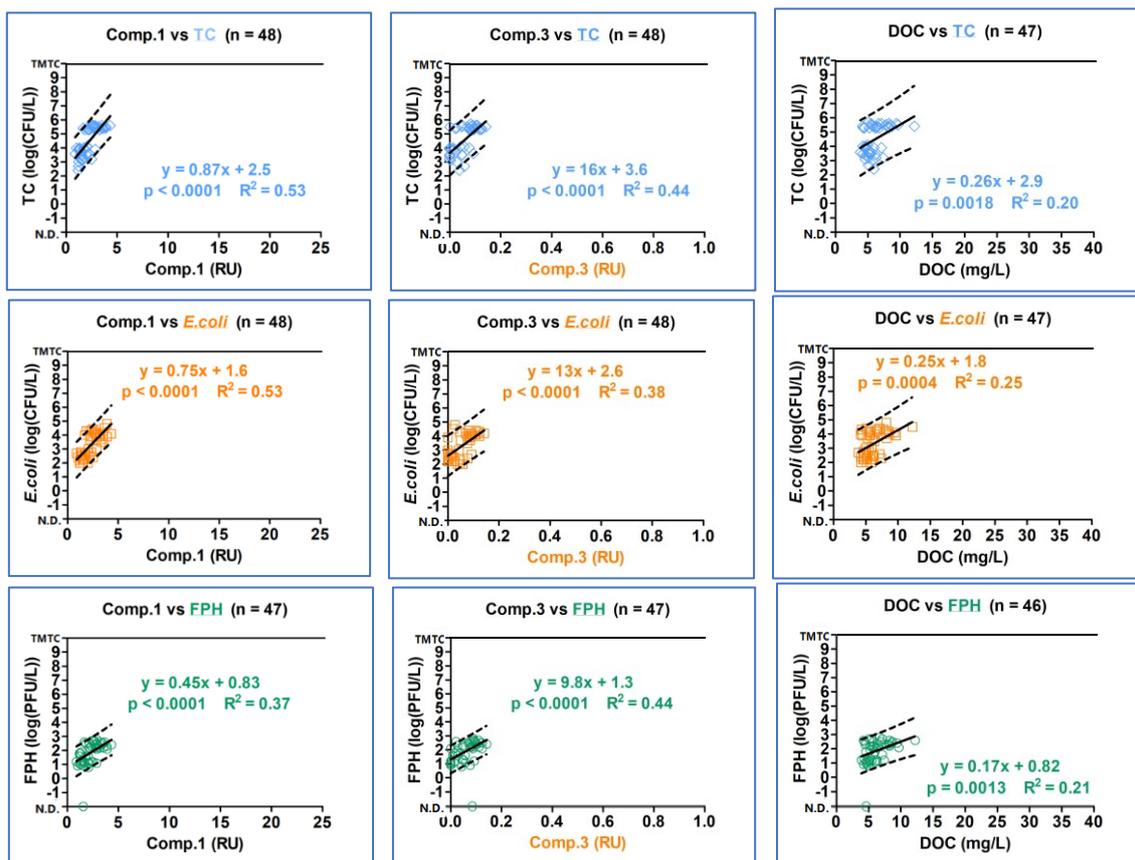


図 5-45 C 下水処理場の凝集処理系の流入水・処理水に対する Comp.1, Comp.3 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較. Comp.1, Comp.3, DOC 濃度を説明変数, TC, *E. coli* 及び FPH を目的変数として危険率 5 %で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析. 実線は回帰直線, 破線は上より 95 %予測区間の上限, 下限. 不検出 (N.D.) の試料を下端に示す.

て、本調査の場合では、Comp.1, Comp.2 の蛍光強度と DOC 濃度は FPH 濃度と相関を持ち、かつ中程度の相関関係があるが、Comp.1 の相関性は Comp.3 に比べやや劣り、DOC 濃度の相関性は Comp.3 に比べかなり劣ると考えられる。したがって、PACl 添加濃度が 5 mg/L の凝集処理を受けることによる FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として、FDOM のうち陸域由来フミン様成分・クロシン様成分が有力であり、クロシン様成分がよりふさわしいことを示すと考えられる。

以上により、C 下水処理場の凝集処理過程における、FDOM のうち陸域由来フミン様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC, *E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であり、*E. coli* では陸域由来フミン様成分、FPH ではクロシン様成分がより有力であることが考えられる。これは、5.2.3.4(3) で述べた C 下水処理場の生物処理過程のケースと大きく異なる。この差異は、処理方式の違いによるものと考えられるが、C 下水処理場の凝集処理系において、台風時の流入水中の Comp.f/DOC 比は、いずれも C 下水処理場生物処理系の台風時の初沈後水と比べて大幅に小さいという点は考慮されていない。要因として、C 下水処理場の凝集処理系・生物処理系の各処理区の土地利用・下水排除方式の違いにより、雨天時下水中の雨水排水の水質特性が異なることが考えられる。

### 5.3 終沈後水（高級処理水）への雨天時下水（簡易処理水）混入の検証調査

#### 5.3.1 調査概要

本調査の全体の流れを以下に述べる。まず合流式の A 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と簡易処理水の混入率（下水混入率）との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する（5.3.3.2(1) 参照）。また、第 2 章 2.2.6.2(5) で紹介した西田らによる汚泥流出リスク予測手法を検証する研究事例（西田ら, 2019）を参考に、高級処理水への簡易処理水混入指標として、FDOM の有効性を検討する（5.3.3.2(2) 参照）。さらに、高級処理水への簡易処理水混入による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ（5.3.3.2(3) 参照）、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する（5.3.3.2(4) 参照）。

次に分流式の B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と下水混入率との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する（5.3.3.3(1) 参照）。また、放流先水域側に対して簡易処理放流リスクの評価に用いる、高級処理水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM, FDOM の指標による簡易処理放流リスク評価精度を検証する（5.3.3.3(2) 参照）。さらに、高級処理水への簡易処理水混入による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ（5.3.3.3(3) 参照）、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討する（5.3.3.3(4) 参照）。

最後に分流式・合流式の C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒前の簡易処理放流水（消毒前水）に着目して、生物反応槽及び最終沈殿池をバイパスする初沈後水（バイパス水）と、混入前の終沈後水（高級処理水）と併せて、同時刻で DOM や FDOM の動態比較をおこなう（5.3.3.4(1) 参照）。また消毒前水に着目して、バイパス水と高級処理水と併せて、同時刻で衛生微生物の動態比較をおこなう（5.3.3.4(2) 参照）。

### 5.3.2 調査方法

#### 5.3.2.1 採水地点

##### (1) A 下水処理場（合流式，生物処理系）

A 下水処理場（生物処理系）の処理フローを図 5-46 に示す。本調査では桂川への放流する E~I 系，J~K 系の 2 つの処理系のうち，特に日平均放流量が 364,000 m<sup>3</sup> 程度（京都市, 2017）と大きい E~I 系を対象とし，塩素消毒後の下水処理放流水（放流水）を採水した。

##### (2) B 下水処理場（分流式，生物処理系）

B 下水処理場（生物処理系）の処理フローを図 5-47 に示す。本調査では，生物処理系として 1~5 系すべてを対象とし，塩素消毒後の放流水を採水した。

##### (3) C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系・凝集処理系）

C 下水処理場（生物処理系）の処理フローを図 5-48 に示す。本調査では，生物処理系として I 系を対象とし，生物反応槽及び最終沈殿池をバイパスする初沈後水（バイパス水），終沈後水（高級処理水），塩素消毒前の簡易処理放流水（消毒前水）を採水した。

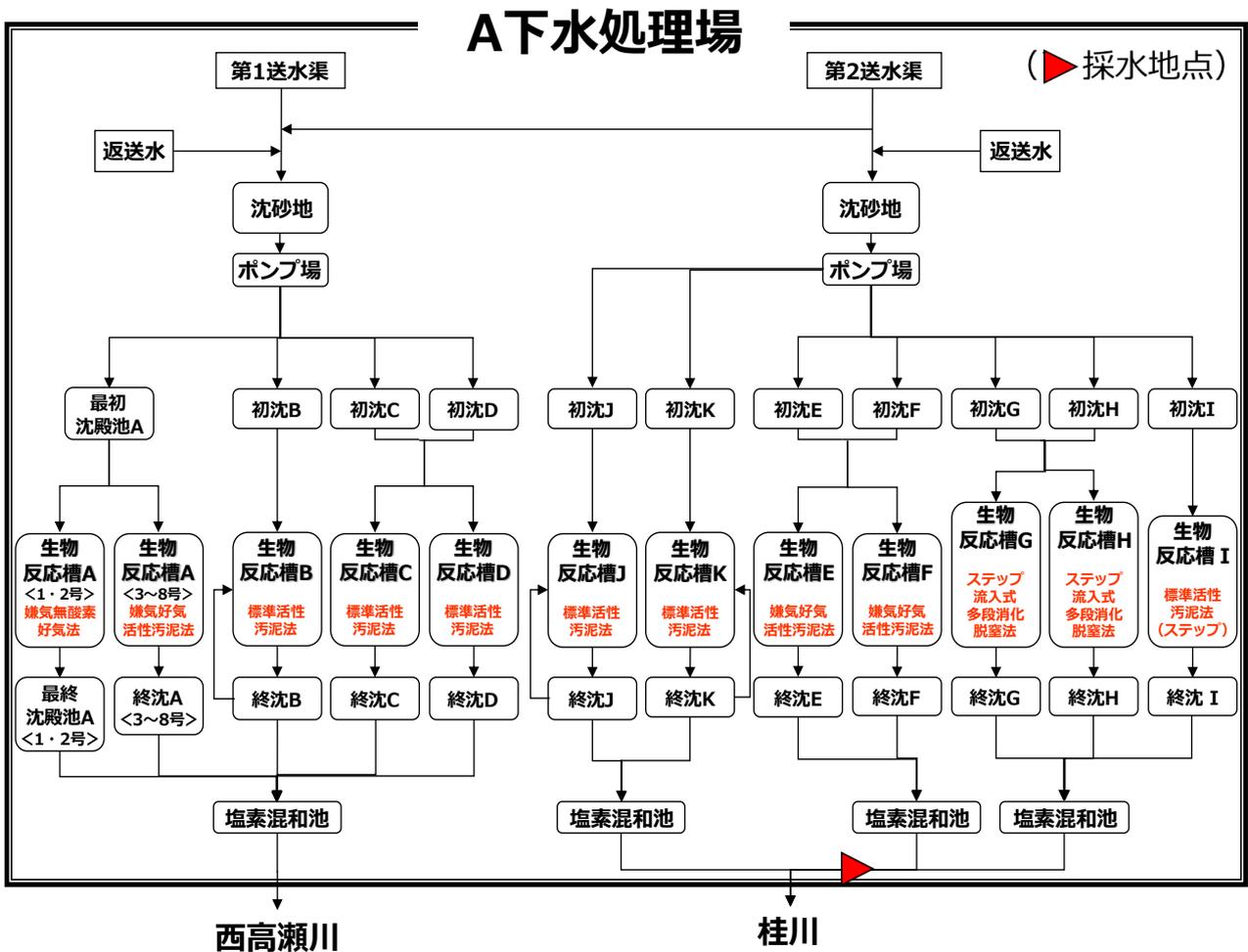


図 5-46 A 下水処理場（合流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点。

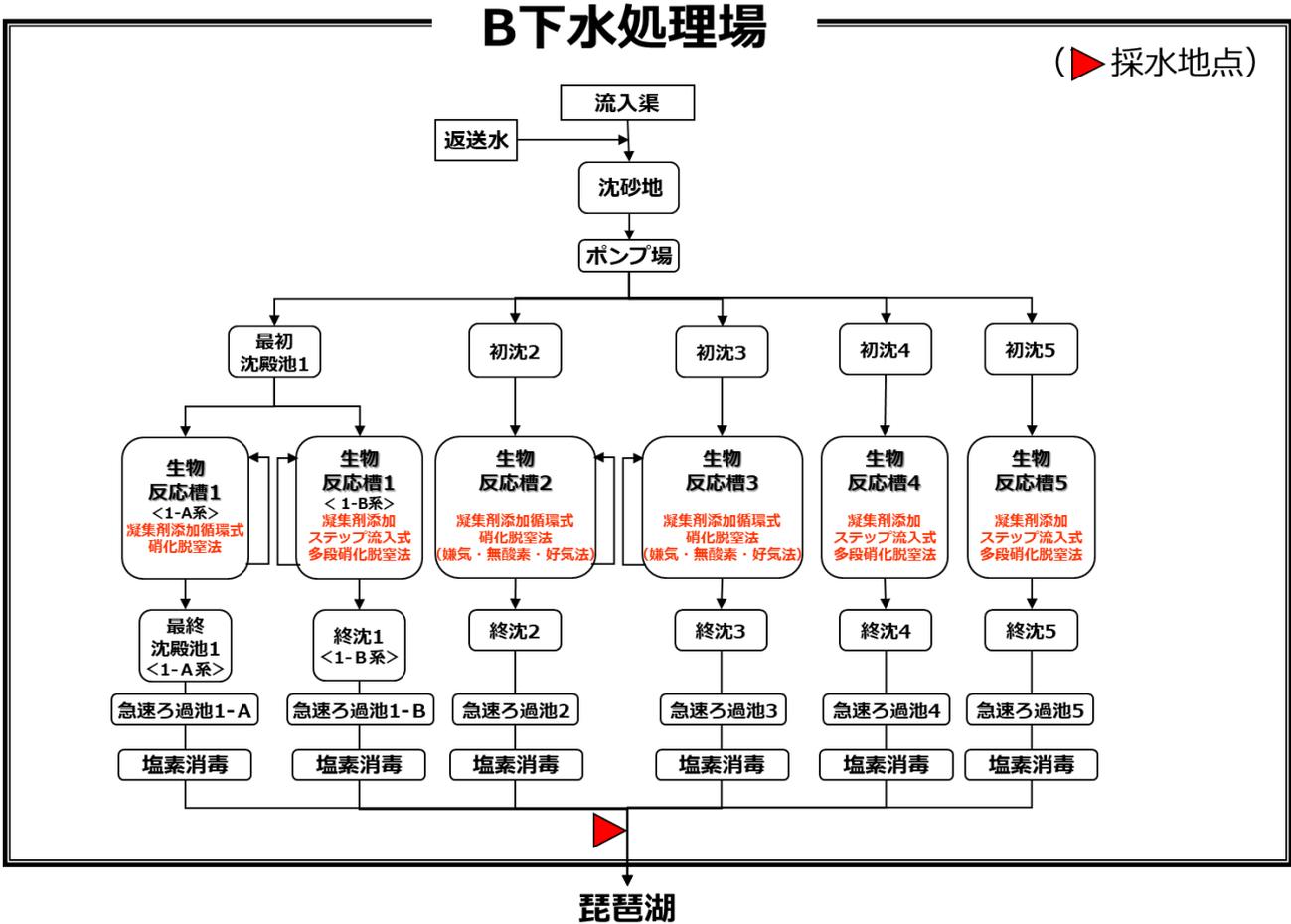


図 5-47 B 下水処理場（分流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点。

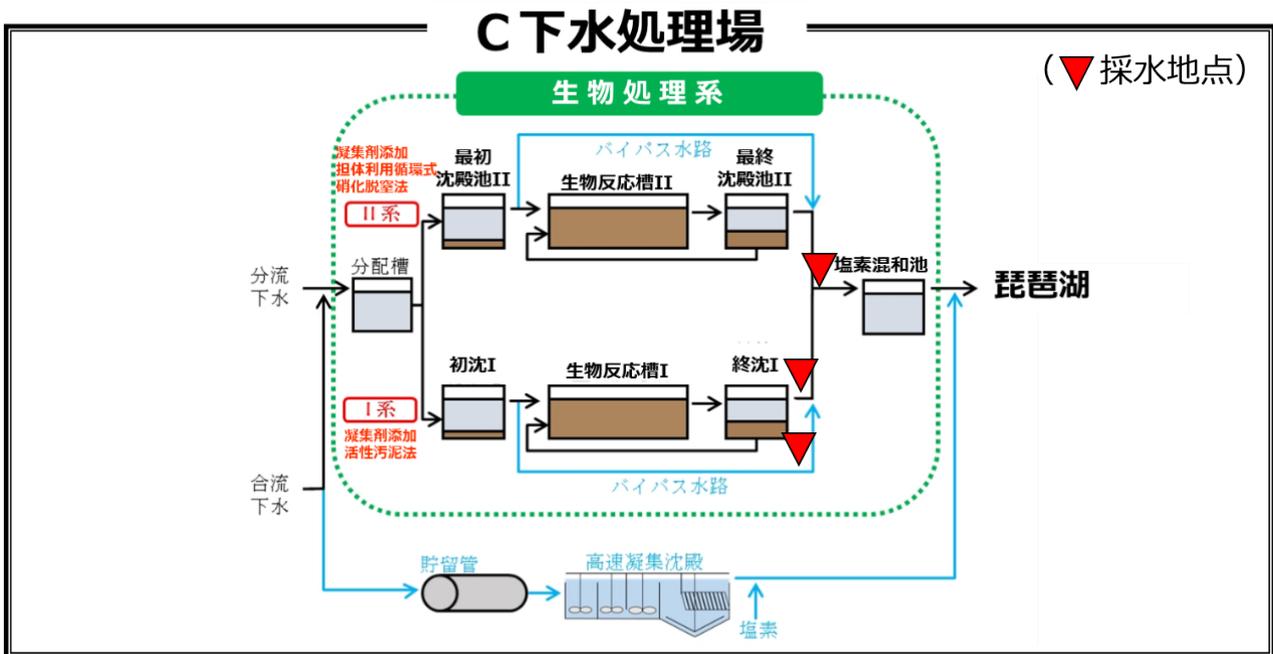


図 5-48 C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系）の処理フローからみた採水地点。

### 5.3.2.2 採水日と採水方法

A 下水処理場（合流式，生物処理系）において，雨天時の 2018 年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm），15~16 日（総降雨量 13.5 mm），2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）に放流水の連続採水を行い，図 5-49 に示す通り簡易処理放流水の採水を試みた．採水方法は両日程ともスポット採水とした．連続採水については，冷蔵機能が搭載された屋外定置式自動採水器 LYSAM-SN（NKS 社製）を用いて，2018 年 3 月では 1 時間に 1 回の頻度で 1 試料とし，2020 年 1 月では 15 分に 1 回の頻度で 2 時間を 1 試料とした 24 時間連続採水を行い，各日程でそれぞれ 24 試料を得た．A 下水処理場の放流先は桂川と西高瀬川があるが，本調査では桂川への放流水を採水した．また，河川水の採水については，2018 年 3 月 8~9 日のみ 1 時間間隔の人力によるスポット採水を，放流口の約 1.7km 上流地点（久世橋）では 1 回，約 5.6km 下流地点（宮前橋）では 2 回行った．久世橋及び宮前橋における流量は，それぞれ桂，納所の各観測所（第 3 章 3.4.1 参照）における水位の観測値（国土交通省，2018）より，H-Q 式を用いて推定した．採水日における下水道管理者より得られた E-I 系列放流量と京都気象台の降雨強度（気象庁，2020）の経時変化を図 5-50 に，採水日の河川の時間流量の推定値及び降雨強度の関係の経時変化を図 5-51 に示す．採水後に DOM 等用の試料より DOM 分析用 500 mL，その他分析用 1,000 mL を分取した．チオ硫酸ナトリウム五水和物をあらかじめ添加した衛生微生物用の試料より 500 mL を分取した．

B 下水処理場（分流式，生物処理系）において，雨天時の 2019 年 10 月 12~13 日（総降雨量 89.0 mm），22 日（総降雨量 17.0 mm），24~25 日（総降雨量 63.0 mm）に連続採水を行い，図 5-52 に示す通り簡易処理放流水の採水を試みた．採水方法は両日程ともスポット採水とした．連続採水については，ポータブル自動採水器 6712 型または 6712C 型（ISCO 社製）を用いて，1 時間に 1 回の頻度で 1 試料とした 24 時間採水を行い，各地点でそれぞれ 24 試料を得た．下水道管理者より得られた，採水日における 3 系列 1 号池の流入量と処理区内の降雨強度の経時変化を図 5-53 に示す．

C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系・凝集処理系）の生物処理系において，消毒前水に着目して，バイパス水と高級処理水と併せて，同時刻で FDOM の動態比較をおこなう（5.3.3.4(1) 参照）ため，雨天時の 2017 年 5 月 13 日（総降雨量 53.0 mm）に連続採水を行い，図 5-54 に示す通りバイパス水，高級処理水，消毒前水の採水を試みた．採水方法は，全ての採水地点でスポット採水とした．連続採水については，1~1.5 時間間隔の人力による 5 時間の採水を行い，各採水地点でそれぞれ 4 試料を得た．採水日における下水道管理者より得られた I 系列流入量と大津気象台の降雨強度（気象庁，2017）の経時変化を図 5-55 に示す．

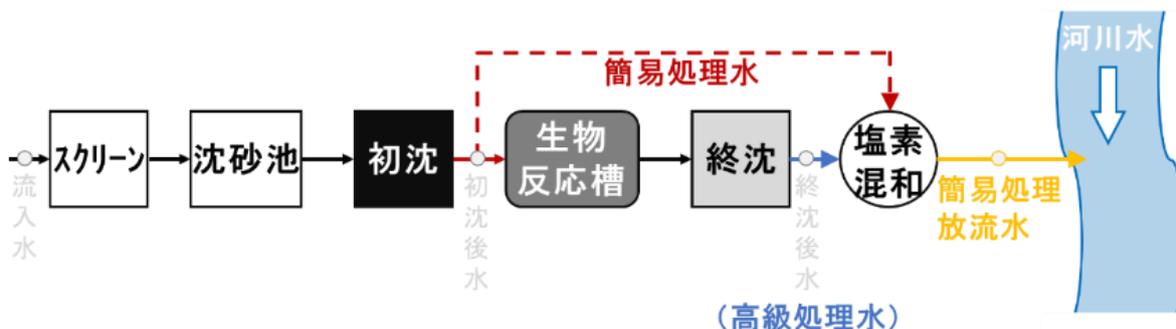


図 5-49 A 下水処理場（合流式，生物処理系）における簡易処理放流水の採水。

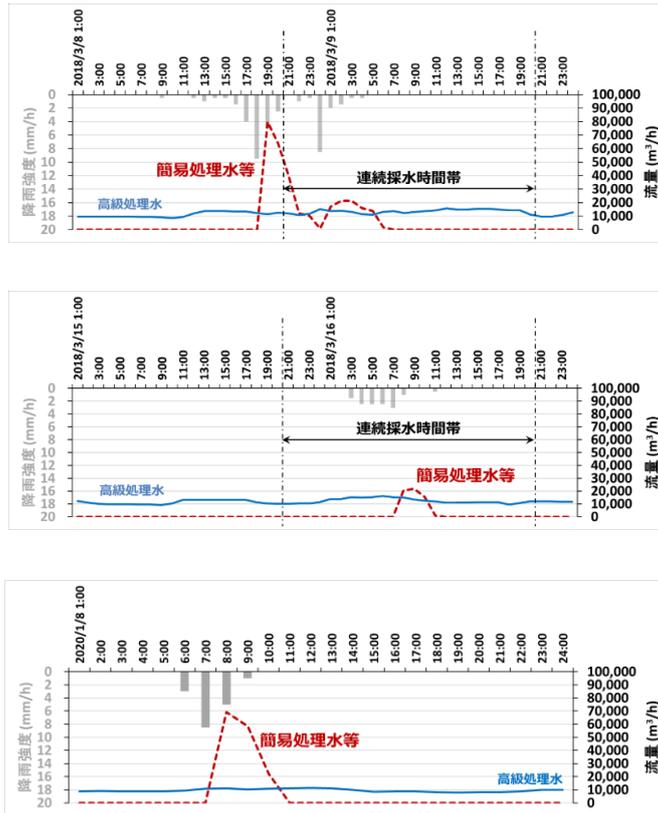


図 5-50 A 下水処理場における雨天時採水日の E-I 系列放流量と京都気象台の降雨強度（気象庁, 2018; 気象庁, 2020）の経時変化. 上から 2018.年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm）, 15~16 日（総降雨量 13.5 mm）, 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）. 横軸は時刻を示す.

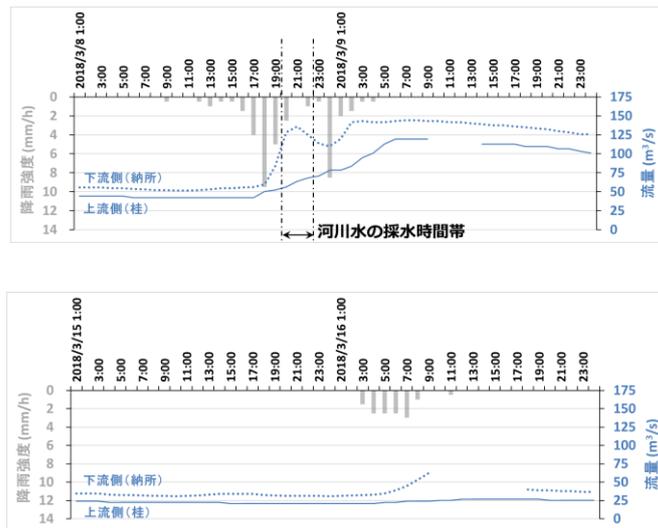


図 5-51 A 下水処理場における雨天時採水日の河川の時間流量の推定値及び降雨強度（気象庁, 2018）. 上から 2018.年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm）, 15~16 日（総降雨量 13.5 mm）. H-Q 式により, 水位 (m) のデータから流量 (m³/s) を推定した. 流量の一部欠損は, 水位データの欠測によるもの. 横軸は時刻.

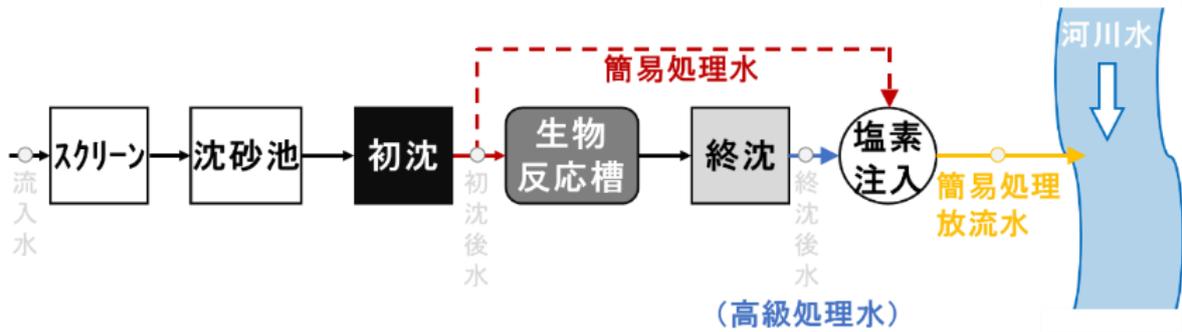


図 5-52 B 下水処理場（分流式，生物処理系）における簡易処理放流水の採水.

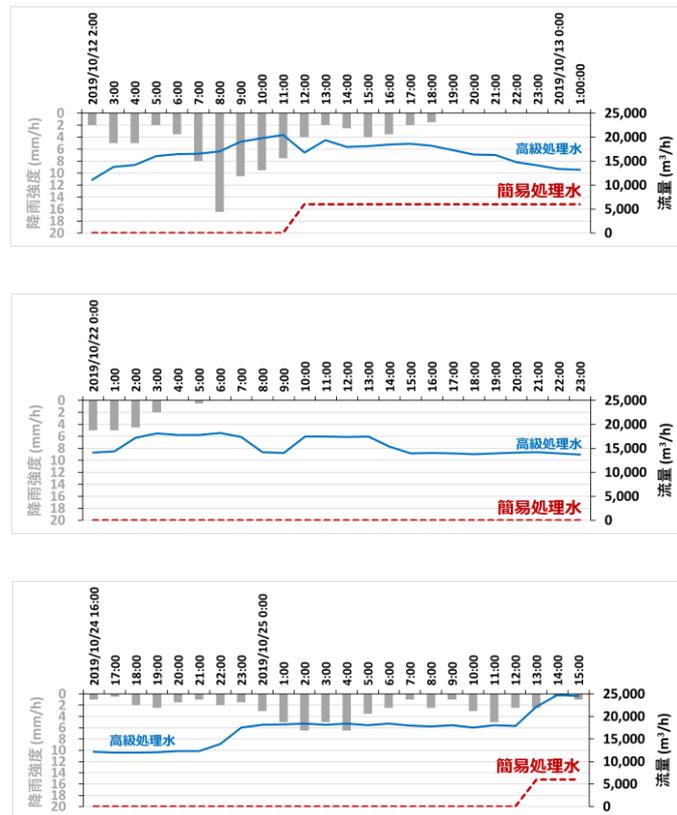


図 5-53 B 下水処理場における雨天時採水日の連続採水時間帯を通じた全 1~5 系列放流量と処理区内の降雨強度（気象庁，2020）の経時変化．上から 2019 年 10 月 12~13 日（総降雨量 89.0 mm），22 日（総降雨量 17.0 mm），24~25 日（総降雨量 63.0 mm）．横軸は時刻．

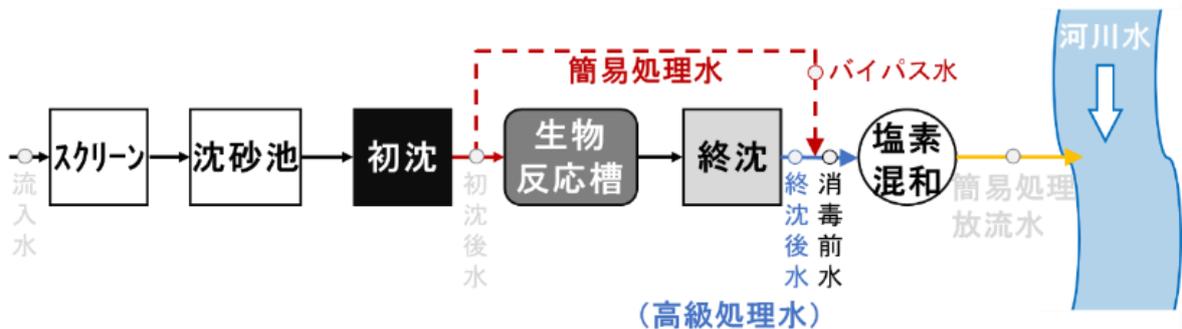


図 5-54 C 下水処理場（分流式・合流式，生物処理系）でのパイパス水，高級処理水，消毒前水の採水.

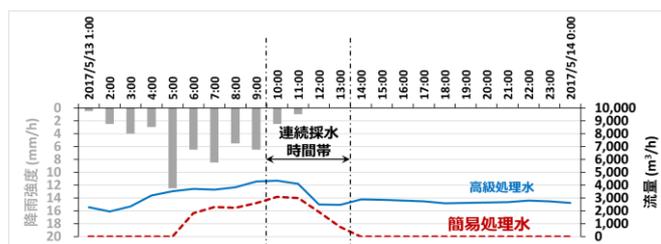


図 5-55 C 下水処理場における雨天時採水日 2017.年 5 月 13 日（総降雨量 53.0 mm）の I 系列放流量と大津気象台の降雨強度（気象庁, 2017）の経時変化. 横軸は時刻.

### 5.3.2.3 分析方法

#### (1) DOM 及び FDOM

5.2.2.3 (1) と同様, DOM 指標の DOC 濃度の測定には燃焼式全有機炭素分析装置 TOC-300V (Mitsubishi 社製) を用い, FDOM の EEM 測定 (2.4.3.1 参照) には分光蛍光強度計 Aqualog (Horiba 社製) を用いた.

#### (2) 衛生微生物

5.2.2.3 (2) と同様, *E. coli*, TC については XMG 寒天培地 (ニッスイ社製) を用いた平板培養法により検出, 定量した. FPH については宿主として *Salmonella typhimulium* WG49 (WG49) を用いたブラック形成法 (Mooijman *et al.*, 2002) により検出, 定量した.

### 5.3.2.4 解析方法

5.2.2.4 と同様, 第 2 章 2.4.3.2 で詳述した PARAFAC により, 対象水の EEM 上の重なり合う各ピーク群 (主成分) を推定することで分離し, FDOM の主成分を定量的に評価した. PARAFAC には, 対象水の全試料の EEM スペクトルを対象として, Solo (EIGENVECTOR 社製) という解析ソフトを用いた.

### 5.3.2.5 終沈後水 (高級処理水) への雨天時下水 (簡易処理水) 混入の評価

#### (1) 簡易処理水混入指標

第 2 章 2.2.6.2 (5) で述べた通り, 雨天時下水の増大に対応し, 放流汚濁負荷を低減するため, 汚泥流出抑制と二次処理水量最大化を実現する雨天時下水処理運転管理に向けた汚泥流出リスク予測手法を検証する研究事例がある. 西田らは, 汚泥流出リスクの評価に用いる指標選定を目的に, 実下水処理場の雨天時処理データに基づき, 二次処理水量, 汚泥沈降モデルによる界面高さ計算値等の指標による汚泥流出リスク評価精度を検証した. 評価精度を後述の F 値に基づき比較した結果, 二次処理水量のみの 0.33 に比べ, 界面高さ計算値では 0.43 となり, 汚泥沈降モデルにより評価精度を向上できた (西田ら, 2019).

これを参考に, A・B 下水処理場で簡易処理放流リスクの評価のため, 簡易処理水混入指標を用いて簡易処理発生を判定できるか検証を試みた. 簡易処理水混入指標の候補については, 調査結果を踏まえ (a) FDOM (トリプトファン様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) を対象とした. (a)~(e) の各指標候補について, 全採水時刻における絶対値を用いた評価だけでなく, 簡易処理放流発生前から発生時刻までの 1 時間ごとの変化に注目し, (a)~(e) の各指標の時間変化量の相対値を用いた評価も行った.

本調査における簡易処理放流発生の管理基準は, 下水処理放流量 ( $\text{m}^3/\text{h}$ ) に対する簡易処理水量 ( $\text{m}^3/\text{h}$ )

の割合である下水混入率とした。一方、簡易処理水混入指標の候補 (a) ~ (e) で設定したリスク判定基準は安全側を考慮し、下水混入率が基準値 0 % を超過した時点での各指標候補の絶対値の最小値を設定した (5.3.3.2 (2), 5.3.3.3 (2) で詳述)。

(2) 評価精度の検証方法

5 つの指標による簡易処理水量の高級処理水量に対する混入率を、指標の値ごとに大小関係と比較し、表 5-2 に示した。例えば、False Negative (FN) は、実際には簡易処理水量の河川水量に対する混入率は基準値 0 % を超過していたが、簡易処理水混入指標に基づくと 0 % 未満すなわち“リスク無し”と判定された場合のことである。これは、提案した簡易処理水混入指標では簡易処理発生を見逃したことを意味しており、簡易処理放流の発生を正しく検知できないと判断できる。また、False Positive (FP) は、簡易処理放水量の河川水への混入がない (基準値 0 %) が、簡易処理水混入指標では“リスク有り”と判定された場合のことである。これは、簡易処理水混入指標では簡易処理発生を誤って検知したこと、いわゆる空振りしたことを意味しており、FN と同様、簡易処理発生を正しく検知できないと判断できる。

表 5-2 簡易処理水量/高級処理水量比の実測値と算出された簡易処理水混入指標の分類。

データ分類		簡易処理放流リスク指標値	
		指標値 > リスク判定基準	指標値 ≤ リスク判定基準
下水混入率 (簡易処理水量/高級処理水量比の実測値)	>0 (基準値)	True Positive (TP)	False Negative (FN)
	=0 (基準値)	False Positive (FP)	True Negative (TN)

$$R_a = \frac{TP + TN}{TP + FP + FN + TN} \tag{5-2}$$

$$R_p = \frac{TP}{TP + FP} \tag{5-3}$$

$$R_r = \frac{TP}{TP + FN} \tag{5-4}$$

$$F = \frac{2 \cdot R_p \cdot R_r}{R_p + R_r} \tag{5-5}$$

ここで、 $R_a(-)$  : 正解率,  $R_p(-)$  : 適合率,  $R_r(-)$  : 再現率,  $F(-)$  : F 値,  $TP(-)$  : TP (True Positive) に該当するデータ数,  $FP(-)$  : FP (False Positive) に該当するデータ数,  $FN(-)$  : FN (False Negative) に該当するデータ数,  $TN(-)$  : TN (True Negative) に該当するデータ数。

そして、式(5-2)~(5-5)に基づき、正解率 (accuracy), 適合率 (precision), 再現率 (recall), F 値を算出し、簡易処理放流リスクの評価精度を検証した。これらの指標において、精度を意味する適合率が低いと簡易処理放流リスクの判定結果の誤り (空振り) が多いことを意味し (図 5-56), 再現率が低いと下水混入率の基準値超過の判定漏れ (見逃し) が多いことを意味する (図 5-57)。一般的に、適合率と再現率はトレードオフの関係にある (西田ら, 2019)。トレードオフの関係とは、再現率を高くしようとするとも適合率が低くなり、適合率を高くしようとするとも再現率が低くなることを意味する。このため、最終的な評価精度は適合率と再現率の調和平均値である F 値により比較した。

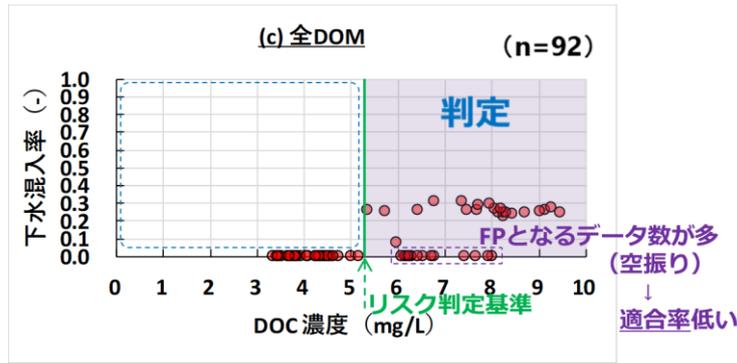


図 5-56 評価精度検証で簡易処理放流リスクの判定結果の空振りにより適合率が低い場合の例。

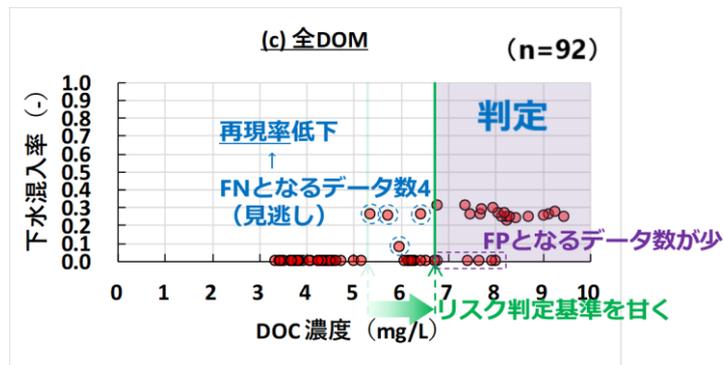


図 5-57 評価精度検証で簡易処理放流リスクの判定結果の見逃しにより再現率が低くなる場合の例。

### 5.3.3 調査結果及び考察

#### 5.3.3.1 対象水中の FDOM の主成分推定

5.2.3.1 と同様、対象水の EEM には陸域由来フミン様成分 Comp.1、トリプトファン様成分 Comp.2 及びチロシン様成分 Comp.3 の 3 つの FDOM ピーク主成分が共通して存在していた。

#### 5.3.3.2 A 下水処理場における放流水（消毒後水）に対する検討

##### (1) 下水処理放流水，放流先河川水中の FDOM の動態

A 下水処理場における下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, DOM に占める FDOM の相対的割合を示す Comp.f/DOC 比の経時変化を図 5-58 に示す。また、2018 年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm）の A 下水処理場放流口の上下流における河川水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比（ $f = 1, 2, 3$ ）の経時変化を図 5-59 に示す。Comp.f を用いる理由は、試料中の FDOM 全成分の相対的な量を指標として推定し、試料間で比較するためである。本調査でも、便宜的に主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 を同じ重みで積み上げた指標として、FDOM 全成分を図示した。

図 5-58 上段左図の 2018 年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm）の雨天時放流水について、DOC 濃度は簡易処理等発生時の 3 月 9 日 1:00 に最大 6.7 mg/L となり、簡易処理等終了後、徐々に DOC 濃度は低下し、3.1 mg/L となった。対して、Comp.f は簡易処理等中断時の 3 月 9 日 0:00 に最大 14 RU となったのち簡易処理等再開後、急に減少し、同 3:00 に 7.9 RU となった。簡易処理等終了後、徐々に Comp.f は低下し、

同 20:00 に 7.3 RU となった。簡易処理等の発生前後で、DOC 濃度は約 1.3 倍、Comp.f は約 1.9 倍に増加したと考えられる。DOC 濃度と Comp.f の変化を比較すると、ピークになる時刻が DOC 濃度では 3 月 9 日 1:00、Comp.f では同 0:00 となり、DOC 濃度と Comp.f では降雨時の挙動が異なる。この差は、DOC 濃度が全 DOM の指標であるのに対して、Comp.f は蛍光成分だけを見ていることに起因すると考えられる。筆者らの既報の研究（山口ら, 2018）から、流入水質を晴天時・雨天時で比較したところ、DOC 濃度に対する FDOM の比率が、雨天時流入水は晴天時流入水より相対的に低くなり、雨天時流入水中に蛍光性を有しない面源由来の DOM の存在が示唆された。これらは、Stedmon and Markager が指摘している、森林または農地に由来する FDOM の存在（Stedmon and Markager, 2005）とは異なる。よって、第 6 章 6.2.3.2 で詳述する筆者らの既報の研究（山口ら, 2018）で示唆された蛍光性を有しない面源由来の DOM は、森林または農地の土壌ではなく、むしろ都市域における路面、屋根面及び下水管内の降雨初期の堆積物（ファーストフラッシュ）に由来している可能性が考えられる。挙動の異なる DOC 濃度と Comp.f のどちらが微生物の指標として優れているのか、5.3.3.2 (4) で検証する。また、図 5-58 下段左図の 3 月 9 日 0:00 から同 1:00 の時間で、Comp.f/DOC 比が 2.6 (RU/(mg/L)) から 1.5 (RU/(mg/L)) へ急に減少した。これは、降雨初期に含まれると考えられる蛍光性の無い DOM が、雨天時初期に B 下水処理場へ流入し、簡易処理水として高級処理水に混入したためと考えられる。一方、3 月 8 日夕方の簡易処理放流では、降雨初期の流入下水は貯留幹線・雨水滞水池に貯留されたと推察されたため、放流水に蛍光性の無い DOM の影響はみられなかったと考えられる。なお、翌 9 日未明の簡易処理放流では貯留幹線及び滞水池が満水状態であったため、前日夕方に比べ降雨初期の下水が貯留できなかった。その結果、そのまま下水処理放流水に含まれたと考えられる。A 下水処理場の放流先河川においては、図 5-59 左図に示す DOC 濃度、Comp.f

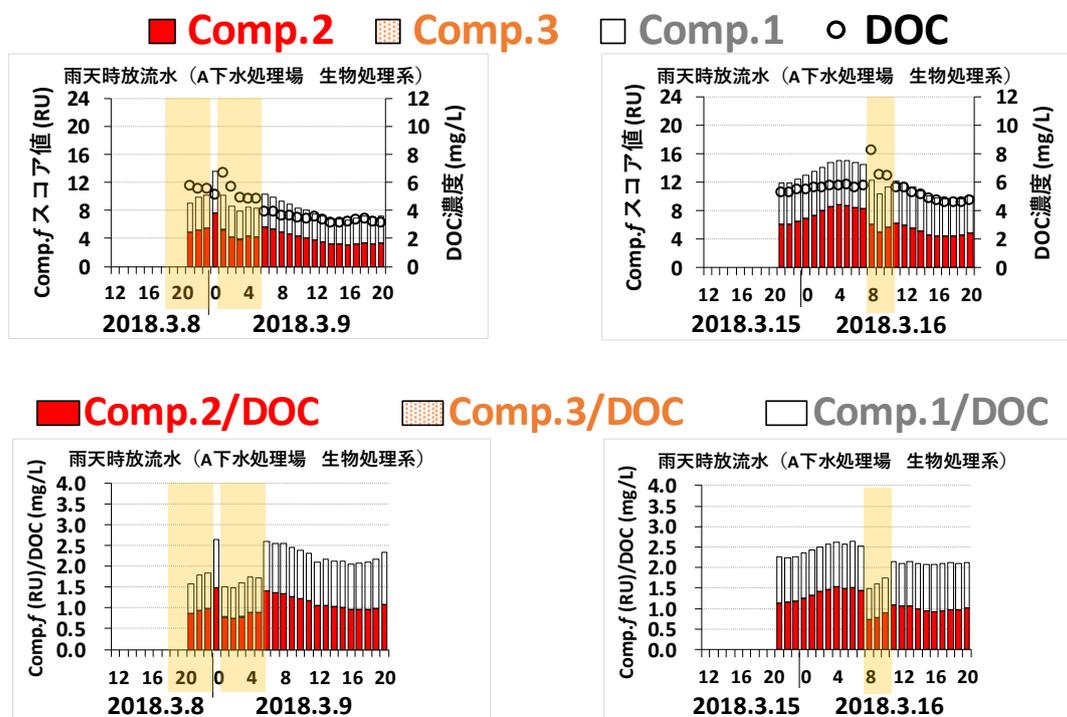


図 5-58 A 下水処理場における下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度、Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の経時変化。左図は 2018 年 3 月 8~9 日 (総降雨量 40.0 mm)、右図は 2018 年 3 月 15~16 日 (総降雨量 13.5 mm)。横軸は時刻を示す。ハイライトは簡易処理等の時間帯。

■ Comp.2   ■ Comp.3   □ Comp.1   ○ DOC   ■ Comp.2/DOC   ■ Comp.3/DOC   □ Comp.1/DOC

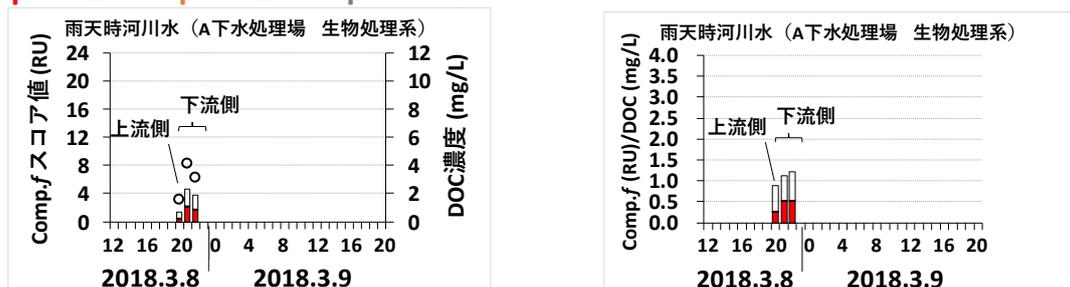


図 5-59 2018 年 3 月 8~9 日（総降雨量 40.0 mm）の A 下水処理場放流口の上下流における河川水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度，Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）の経時変化. 左図は Comp.f 及び DOC 濃度，右図は Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）. 横軸は時刻を示す.

について 3 月 8~9 日の簡易処理放流により，上流側河川水に対する下流側河川水の DOC 濃度は 2.0~2.6 倍程度，Comp.f は 2.7~3.3 倍程度増加した．また，図 5-59 右図に示す Comp.f/DOC 比について 3 月 8~9 日の簡易処理放流により，上流側河川水に対する下流側河川水の Comp.f/DOC 比は 1.2~1.3 倍程度増加した．

図 5-58 下段左図の 2018 年 3 月 15~16 日（総降雨量 13.5 mm）の雨天時放流水について，DOC 濃度は簡易処理等発生時の 3 月 16 日 8:00 に最大 8.3 mg/L となった．簡易処理終了後，徐々に DOC 濃度は低下し，4.6 mg/L となった．対して，Comp.f は 3 月 16 日 4:00 に最大 15 RU となった．簡易処理等終了後，徐々に Comp.f は低下し，同 19:00 に 9.7 RU となった．本調査では簡易処理等の発生により，DOC 濃度は約 1.6 倍，主成分スコア値は約 1.5 倍に変化したと考えられる．DOC 濃度と主成分スコア値の変化を比較すると，ピークになる時刻が DOC 濃度では 3 月 15 日 8:00，Comp.f では同 7:00 となり，1 回目と同様に DOC 濃度と Comp.f では降雨時の挙動が異なる．また，図 5-58 下段右図の 3 月 15 日 7:00 から同 8:00 の時間で，Comp.f/DOC 比が 2.5 (RU/(mg/L)) から 1.5 (RU/(mg/L)) へ急に減少した．

A 下水処理場における 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f，DOC 濃度と，Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）の経時変化を図 5-60 に示す．図 5-60 上段右図について，放流水の Comp.f 及び DOC 濃度はそれぞれ 8.1~12 RU，3.9~6.1 mg/L で推移した．DOC 濃度は簡易処理等発生直後の 1 月 8 日 10:00~12:00 に最大 6.1 mg/L となり，対して Comp.f は 0:00~2:00 に最大 12 RU となった．5.2.3.2 (2) で述べた終沈後水質と比べ，FDOM と DOM の簡易処理等発生中の経時変化傾向が異なる．FDOM・DOM の変化傾向と簡易処理等による下水混入率の変化傾向の関連については後述する．図 5-60 下段右図について，放流水の Comp.f/DOC 比は 1.7~2.5 RU/(mg/L) で推移した．5.2.3.2 (2) で述べた終沈後水質と比べ簡易処理等発生以降の経時変化傾向が異なり，特に簡易処理発生中の 8:00~10:00 に最小 1.7 RU/(mg/L) となった．Comp.f/DOC 比と下水混入率の変化傾向の関連については後述する．

A 下水処理場における終沈後水質指標（Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度）に対する放流水質指標の比率と下水混入率，終沈後水の Comp.f/DOC 比（Comp.1/DOC 濃度，Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度）に対する放流水の Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）の比率と下水混入率の経時変化を図 5-61 に示す．図 5-61 上図について，Comp.1 は 0.86~1.1，Comp.2 は 0.81~1.1，Comp.3 は全試料不検出のため 1.0，DOC 濃度は 1.0~1.4 で推移した．いずれの FDOM 水質指標も下水が混入する 6:00~10:00 の時間帯で低い値を示し Comp.1，Comp.2 の増大率が低くなった．一方 DOM 水質指標は同時間帯で高い値を

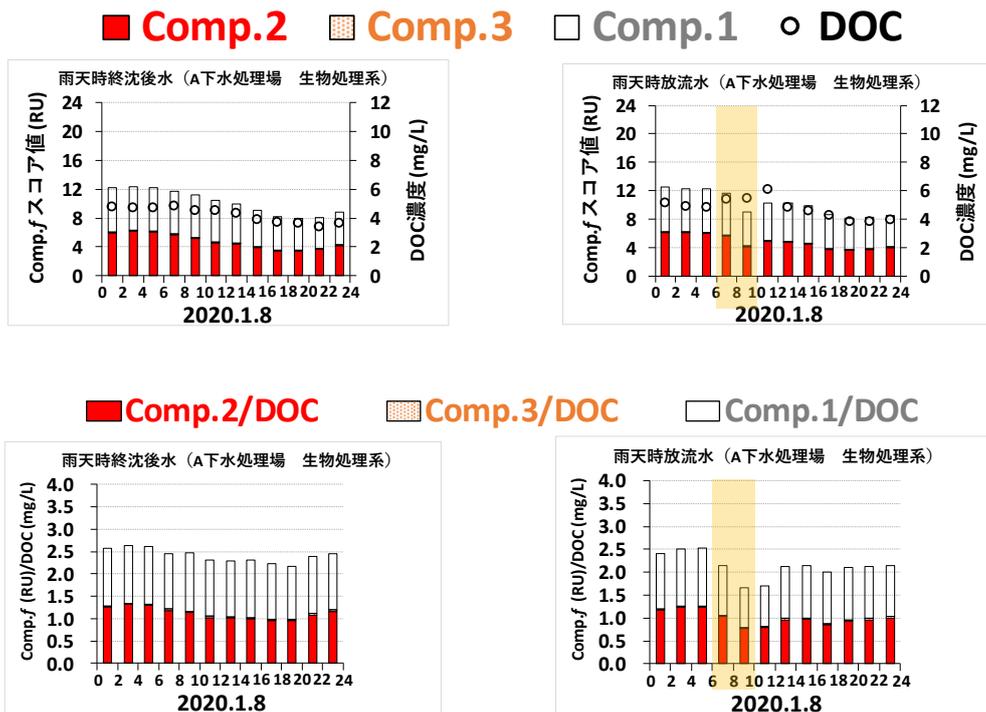


図 5-60 A 下水処理場における 2020 年 1 月 8 日（総降雨量 17.5 mm）の終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の経時変化. 横軸は時刻. ハイライトは簡易処理等の時間帯.

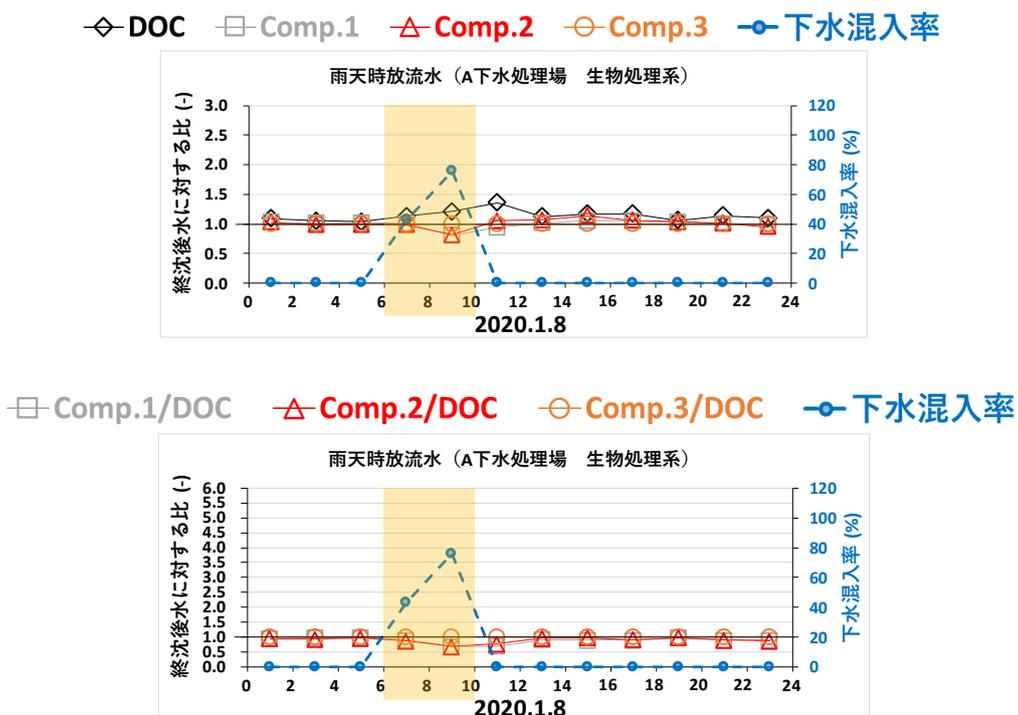


図 5-61 A 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比 (f=1, 2, 3) の比率と下水混入率の経時変化. 蛍光強度 N.D.の終沈後水質指標を 0.1 RU, Comp.f/DOC 比を 0.1 RU/(mg/L)として算出. 横軸は時刻.

示し、DOC 濃度の増大率が高くなり、比が 1.0 より大きくなった。これは、FDOM のなかでもトリプトファン様成分の塩素処理による低減率が最大で 5% であるが、6:00~10:00 の時間帯で降雨により簡易処理が発生し下水が混入することにより、低減率が最大で 19% まで上昇することを示している。また、陸域由来フミン様成分の塩素処理による低減率が最大で 5% であるが、6:00~10:00 の時間帯で降雨により簡易処理が発生し下水が混入することにより、低減率が最大で 14% まで上昇することも示している。図 5-61 下図について、Comp.1/DOC は 0.67~0.99、Comp.2/DOC は 0.67~0.98、Comp.3/DOC は全試料不検出のため 1.0 で推移した。特に Comp.1/DOC 濃度、Comp.2/DOC 濃度については、下水が混入する 6:00~10:00 の時間帯で低い値を示し、Comp.1/DOC、Comp.2/DOC の低減率が高くなった。これらにより、陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 43~76 % 程度の下水混入率では塩素混和池での変化より下水混入によるファーストフラッシュに由来している蛍光性を有しない面源由来 DOM の増大が大きく上回ったことが考えられる。

A 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率を比較したものを図 5-62 に示す。下水混入率の増加にともない、DOC 濃度の水質変化率が概ね増加し、Comp.1 及び Comp.2 の水質変化率が減少した。下水混入率が 43~76 % の範囲では下水混入による水質変化に対し、水質レベル推定の簡易指標として、DOM が有力であることを示すと考えられる。以上により、第 4 章 4.3.3 の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A 下水処理場における実際の雨天時下水の混入では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であるとは言えない。要因として、下水混入実験では供試原水として雨天時下水ではなく晴天時の B 下水処理場の初沈後水を用いているが、A 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できていない可能性が考えられる。

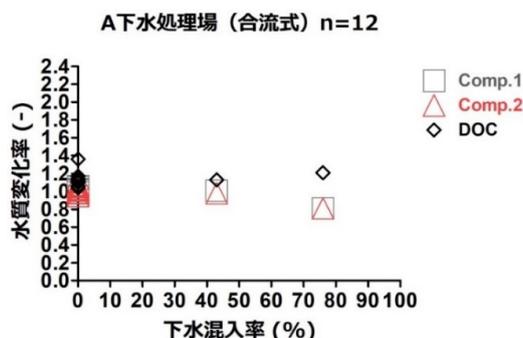


図 5-62 A 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較。

## (2) 終沈後水 (高級処理水) への雨天時下水 (簡易処理水) 混入の評価精度の検証結果

A 下水処理場の生物処理系の放流水に対し、5.3.2.5 (1) に示した 5 つの簡易処理水混入指標の候補 ((a) FDOM (トリプトファン様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度)) による、簡易処理放流リスクの評価精度を、絶対値と時間変化量の相対値で検証した。簡易処理水混入指標の候補 (a) ~ (e) の絶対値と簡易処理発生時の管理基準である下水混入率の関係を図 5-63 に、検証結果を表 5-3 に示す。検証につ

いては、5.3.2.5 (2) に示した簡易処理発生を見逃し False Negative (FN) となるデータ数を 0, 1, 2, 4, 5, 6 となるよう 6 通りのシナリオを設定し、シナリオ毎で検証結果を示す。

図 5-63 の指標候補 (a) ~ (e) と下水混入率の関係について以下に述べる。下水混入率は最大 78 %であった。(a) では Comp.2 スコア値が 3.64 RU, (b) では Comp.f スコア値が 7.88 RU, (c) では DOC 濃度が 3.95 mg/L より大きい範囲, (d) では Comp.2 スコア値/DOC 濃度が 1.50 RU/(mg/L), (e) では Comp.f スコア値/DOC 濃度が 2.65 RU/(mg/L)より小さい範囲において、下水混入率が基準値 0 %を超過した。このことから (a)~(e) に係るリスク判定基準として、それぞれ 3.64 RU, 7.88 RU, 3.95 mg/L, 1.50 RU/(mg/L), 2.65 RU/(mg/L)を設定した。

一方、表 5-3 の検証結果について以下に述べる。まず、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する FN となるデータ数 0 のシナリオにおいて、(a) では他と比べて False Positive (FP) となるデータ数が 62 と少なくなることで適合率は 0.33 と高くなり、結果的に F 値が 0.49 と比較的高くなった。次に、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の、FN となるデータ数 1 のシナリオにおいて、(c) では他と比べて FP となるデータ数が 52 と少なくなることで適合率は 0.36 と高くなり、結果的に F 値が 0.52 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 2 のシナリオにおいて、(c) 及び (d) では他と比べて FP となるデータ数がそれぞれ 49, 47 と少なくなることで適合率はそれぞれ 0.36, 0.37 と高くなり、結果的に F 値がそれぞれ 0.52, 0.53 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 4 のシナリオにおいて、(c), (d) 及び (e) では他と比べて FP となるデータ数がそれぞれ 47, 40, 37 と少なくなることで適合率はそれぞれ 0.36, 0.39, 0.41 と高くなり、結果的に F 値がそれぞれ 0.50, 0.54, 0.56 と比較的高くなった。次に、FN とな

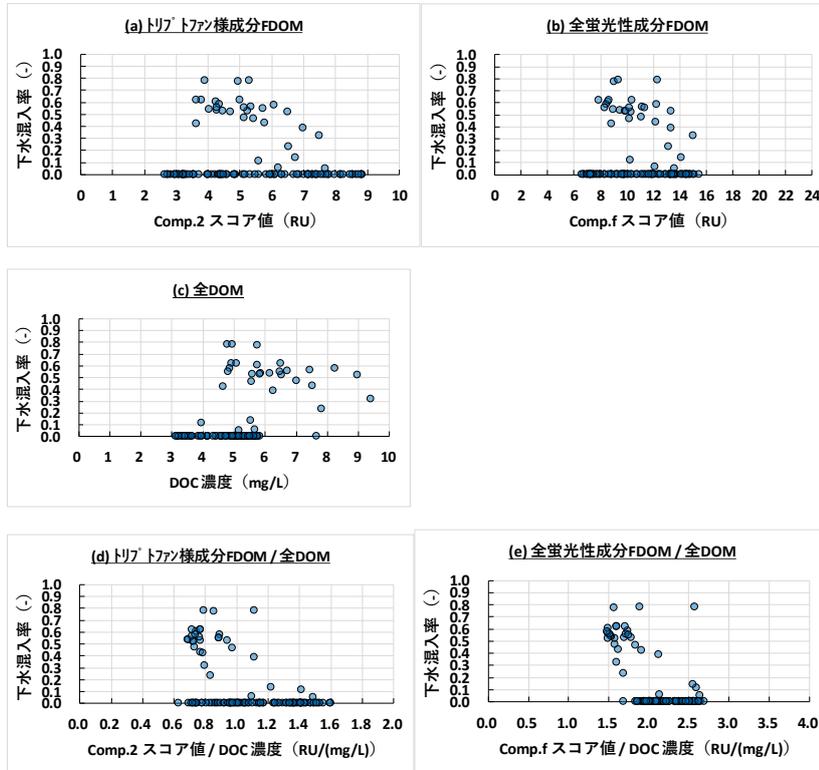


図 5-63 A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値と簡易処理発生管理基準である下水混入率の関係 (n = 112)。

表 5-3 A 下水処理場の生物処理系放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果. 上より FN データ数 0, 1, 2, 4, 5, 6 のシナリオ (n = 112).

項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 3.64 RU	> 7.88 RU	> 3.95 mg/L	< 1.50 RU/(mg/L)	< 2.65 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 30	30	30	30	30
	= 0.0 のデータ数	FN 0	0	0	0	0
		FP 62	67	66	76	80
		TN 20	15	16	6	2
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.45	0.40	0.41	0.32	0.29
適合率: TP / (TP+FP)		0.33	0.31	0.31	0.28	0.27
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.49	0.47	0.48	0.44	0.43
項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 3.65 RU	> 8.32 RU	> 4.64 mg/L	< 1.42 RU/(mg/L)	< 2.60 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 29	29	29	29	29
	= 0.0 のデータ数	FN 1	1	1	1	1
		FP 62	64	52	69	76
		TN 20	18	30	13	6
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.44	0.42	0.53	0.38	0.31
適合率: TP / (TP+FP)		0.32	0.31	0.36	0.30	0.28
再現率: TP / (TP+FN)		0.97	0.97	0.97	0.97	0.97
F値		0.48	0.47	0.52	0.45	0.43
項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 3.80 RU	> 8.51 RU	> 4.78 mg/L	< 1.23 RU/(mg/L)	< 2.59 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 28	28	28	28	28
	= 0.0 のデータ数	FN 2	2	2	2	2
		FP 61	62	49	47	74
		TN 21	20	33	35	8
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.44	0.43	0.54	0.56	0.32
適合率: TP / (TP+FP)		0.31	0.31	0.36	0.37	0.27
再現率: TP / (TP+FN)		0.93	0.93	0.93	0.93	0.93
F値		0.47	0.47	0.52	0.53	0.42
項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 4.04 RU	> 8.68 RU	> 4.92 mg/L	< 1.113 RU/(mg/L)	< 2.15 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 26	26	26	26	26
	= 0.0 のデータ数	FN 4	4	4	4	4
		FP 58	62	47	40	37
		TN 24	20	25	42	45
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.45	0.41	0.50	0.61	0.63
適合率: TP / (TP+FP)		0.31	0.30	0.36	0.39	0.41
再現率: TP / (TP+FN)		0.87	0.87	0.87	0.87	0.87
F値		0.46	0.44	0.50	0.54	0.56
項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 4.272 RU	> 8.87 RU	> 4.92 mg/L	< 1.10 RU/(mg/L)	< 2.14 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 25	25	25	25	25
	= 0.0 のデータ数	FN 5	5	5	5	5
		FP 56	60	47	39	36
		TN 26	22	25	43	46
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.46	0.42	0.49	0.61	0.63
適合率: TP / (TP+FP)		0.31	0.29	0.35	0.39	0.41
再現率: TP / (TP+FN)		0.83	0.83	0.83	0.83	0.83
F値		0.45	0.43	0.49	0.53	0.55
項目		(a) FDOM (トリアンブロン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 4.277 RU	> 8.97 RU	> 4.94 mg/L	< 0.977 RU/(mg/L)	< 1.92 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 24	24	24	24	24
	= 0.0 のデータ数	FN 6	6	6	6	6
		FP 56	58	46	25	5
		TN 26	24	26	57	77
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.45	0.43	0.49	0.72	0.90
適合率: TP / (TP+FP)		0.30	0.29	0.34	0.49	0.83
再現率: TP / (TP+FN)		0.80	0.80	0.80	0.80	0.80
F値		0.44	0.43	0.48	0.61	0.81

るデータ数 5 のシナリオにおいて, (d) 及び (e) では他と比べて FP となるデータ数がそれぞれ 39, 36 と少なくなることで適合率はそれぞれ 0.39, 0.41 と高くなり, 結果的に F 値がそれぞれ 0.53, 0.55 と比較的高くなった. 最後に, FN となるデータ数 6 のシナリオにおいて, (d) 及び (e) では他と比べて FP となるデータ数がそれぞれ 25, 5 と少なくなることで適合率はそれぞれ 0.49, 0.83 と高くなり, 結果的に F 値がそれぞれ 0.61, 0.81 と比較的高くなった.

以上により、簡易処理発生を確実に判定する FN となるデータ数 0 (再現率 1.00) の条件下では、(a) FDOM (トリプトファン様成分) の絶対値の適用可能性が最も高いが、適合率や F 値に関し改善の余地があることが示唆された。また、下水混入率の基準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 1, 2 (再現率 0.97, 0.93) の条件下では、(c) DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が最も高いが、適合率や F 値に関しさらなる改善の余地があることが示唆された。また、FN となるデータ数 4, 5 (再現率 0.87, 0.83) の条件下では、(d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度)、(e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的高いが、適合率や F 値に関しさらなる改善の余地があることが示唆された。さらに、FN となるデータ数 6 (再現率 0.80) の条件下では、(d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度)、(e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に適合率や F 値に関し(e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることが示唆された。

A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標の候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 5-64 に、検証結果を表 5-4 に示す。図 5-64 の指標候補 (a)~(e) の時間変化量と下水混入率の関係について以下に述べる。下水混入率は最大 58%であった。(a) では Comp.2 スコア値の時間変化量が-1.14 RU/h より小さい、または 0.693 RU/h より大きい範囲、(b) では Comp.f スコア値の時間変化量が-0.404 RU/h より小さい、または 1.95 RU/h より大きい範囲、(c) では DOC 濃度の時間変化量が 0.580 (mg/L)/h より大きい範囲、(d) では Comp.2 スコア値/ DOC 濃度の時間変化量が-0.314 {RU/(mg/L)}/h より小さい、または 0.242 RU/h より大きい範囲、(e) では Comp.f ス

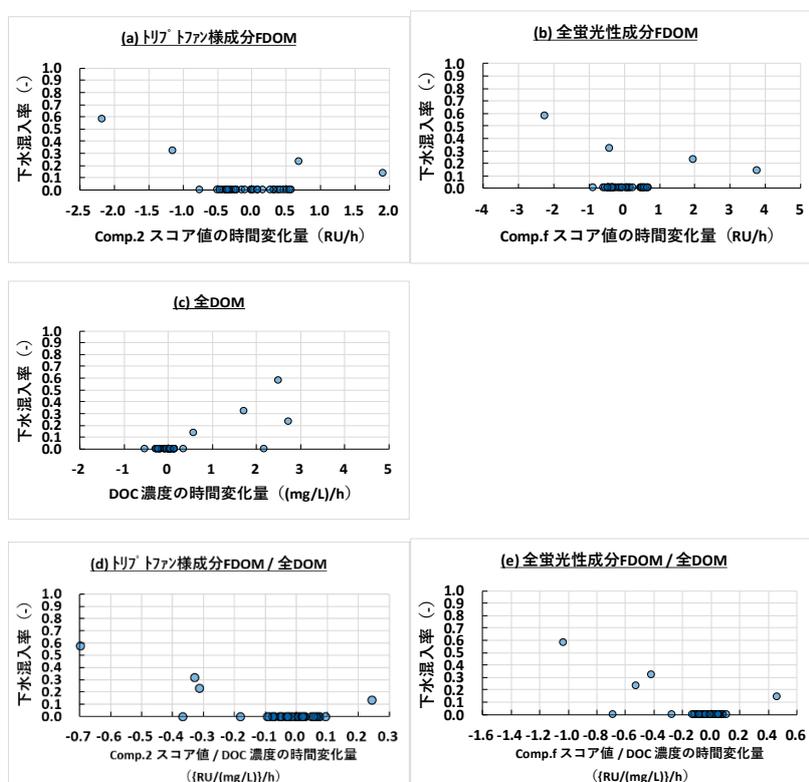


図 5-64 A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n = 39)。

表 5-4 A 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果 (n = 39).

項目		(a) FDOM (トリプトファン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		< -1.14, > 0.693 RU/h	< -0.404, > 1.95 RU/h	> 0.580 (mg/L)/h	< -0.314, > 0.242 {RU/(mg/L)}/h	< -0.414, > 0.461 {RU/(mg/L)}/h
下水 混入 率 の データ 数	> 0.0 TP	4	4	4	4	4
	= 0.0 FN	0	0	0	0	0
	FP	0	9	1	1	1
	TN	35	26	34	34	34
正解率: (TP+TN) / 全データ		1.00	0.77	0.97	0.97	0.97
適合率: TP / (TP+FP)		1.00	0.31	0.80	0.80	0.80
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		1.00	0.47	0.89	0.89	0.89

コア値/DOC濃度の時間変化量が-0.414 {RU/(mg/L)}/hより小さい, または0.461 RU/hより大きい範囲において, 下水混入率が基準値0%を超過した. このことから(a)~(e)に係るリスク判定基準として, それぞれ-1.14, 0.693 RU/h, -0.404, 1.95 RU/h, 0.580 (mg/L)/h, -0.314, 0.242 {RU/(mg/L)}/h, -0.414, 0.461 {RU/(mg/L)}/hを設定した. 一方, 表5-4の検証結果については, 簡易処理発生を見逃さず, 確実に判定するFNとなるデータ数0となるシナリオのみを示す. (a)では他と比べてFPとなるデータ数が0となることで適合率は1.00と高くなり, 結果的にF値が1.00と最も高くなった. 以上により, 簡易処理発生を確実に判定するFNとなるデータ数0(再現率1.00)の条件下では, (a) FDOM(トリプトファン様成分)の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることが示唆された.

### (3) 下水処理放流水, 放流先河川水中の衛生微生物の動態

A 下水処理場における下水処理放流水中, 放流先河川水中のTC, *E. coli*及びFPHの検出濃度の経時変化を, 図5-65に示す. 第3章3.7.2.1で詳述した通り3月8日と3月9日の簡易処理放流では, 衛生微生物のTC, *E. coli*及びFPH濃度は, その簡易放流の発生した後と比べてそれぞれ300, 2,500及び60倍程度増加した. 3月16日の簡易処理放流でも, TC, *E. coli*及びFPH濃度は, その簡易放流の発生する前と比べてそれぞれ100, 150及び40倍程度増加した. 特に3月8~9日の簡易処理放流により, 上流側河川水に対する下流側河川水のTC, *E. coli*, FPH濃度が, それぞれ100, 200, 25,000倍程度増加した.

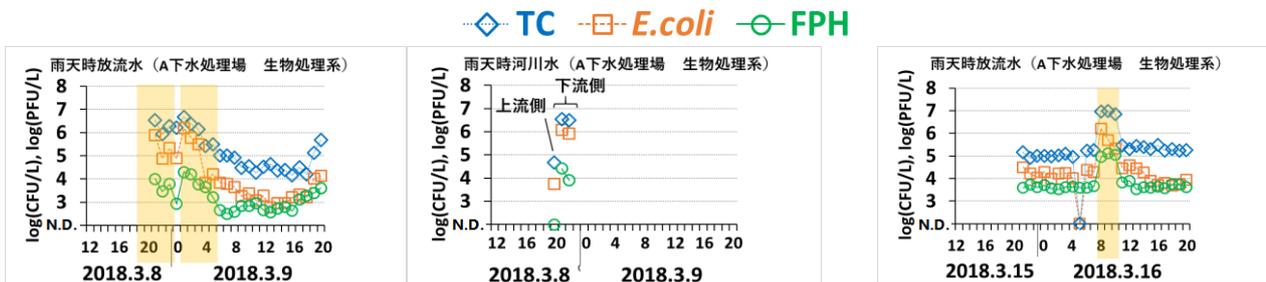


図 5-65 A 下水処理場における下水処理放流水中, 放流先河川水中の衛生微生物濃度の経時変化. 左図・中図は2018年3月8~9日(総降雨量40.0mm), 右図は2018年3月15~16日(総降雨量13.5mm). 参考のため2018年3月8~9日のみ河川水試料の結果も中図に示す. 不検出(N.D.)試料を下端に示す. 横軸は時刻を示す. 雨天時放流水におけるハイライトは簡易処理等の時間帯.

(4) 雨天時の下水処理放流水質の動態比較

A 下水処理場における下水処理放流水中のトリプトファン様成分 Comp.2 及び DOC 濃度と、衛生微生物検出濃度の動態を比較したものを図 5-66 に示す。図 5-66 左側の Comp.2 を説明変数とした場合、特に *E. coli* 濃度とは  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数は 0.11 となった。よって、Comp.2 は高級処理水への簡易処理水混入に対し、TC 及び FPH のいずれとも相関を持たず、*E. coli* とは弱い相関を持つと考えられる。一方で図 5-66 右側の DOC 濃度を説明変数とした場合、対象とした TC、*E. coli* 及び FPH 濃度の中では、いずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数はそれぞれ 0.57, 0.68, 0.67 となった。よって、DOC 濃度は高級処理水への簡易処理水混入に対し、TC、*E. coli* 及び FPH のいずれとも強い相関を持ち、特に *E. coli* 及び FPH と比較的に強い相関を持つと考えられる。また、回帰直線の傾きは、*E. coli* 及び FPH 濃度ではそれぞれ  $0.61$  ( $\log(\text{CFU/L})/(\text{mg/L})$ ),  $0.43$  ( $\log(\text{PFU/L})/(\text{mg/L})$ ) となった。これは、本調査の場合では、A 下水処理場における高級処理水への簡易処理水混入の場合、*E. coli* 濃度の増加が FPH 濃度の増加より鋭敏となり、下水混入率が最大 78 % となることによる *E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM より DOM の存在量である DOC 濃度はふさわしいことを示すと考えられる。また、TC 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM はふさわしくないが、DOC 濃度はふさわしいことを示すと考えられる。

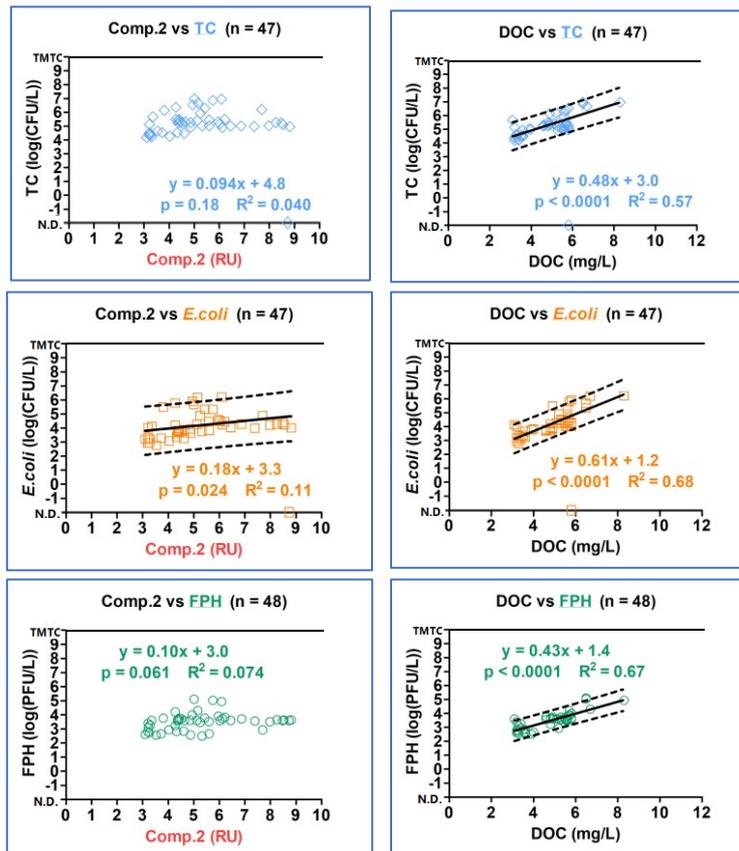


図 5-66 A 下水処理場における下水処理放流水に対する Comp.2 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較。Comp.2 (左段), DOC 濃度 (右段) を説明変数, TC (上段), *E. coli* (中段) 及び FPH (下段) を目的変数として危険率 5 % で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析。実線は回帰直線, 破線は上より 95 % 予測区間の上限, 下限。不検出 (N.D.) の試料を下端に示す。

### 5.3.3.3 B 下水処理場における放流水（消毒後水）に対する検討

#### (1) 下水処理放流水中の FDOM の動態

B 下水処理場における 2019 年 10 月 12~13 日（総降雨量 89.0 mm）の下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比の経時変化を, 図 5-67 に示す. 図 5-67 左図の下水処理放流水中 Comp.f 及び DOC 濃度は, それぞれ 12~16 RU, 6.1~9.1 mg/L で推移し, 図 5-67 右図の Comp.f/DOC 比は, 1.6~2.5 RU/(mg/L)で推移した. Comp.f は簡易処理等発生直後の 10 月 12 日 11:00 に最大 16 RU となり, DOC 濃度は簡易処理等発生時の 10 月 12 日 12:00 に最大 9.1 mg/L となった. 簡易処理等の発生により, Comp.f は約 1.3 倍, DOC 濃度は約 1.5 倍に増加したと考えられる. Comp.f と DOC 濃度の変化を比較すると, ピークになる時刻が Comp.f では 10 月 12 日 11:00, DOC 濃度では同 12:00 となり, Comp.f と DOC 濃度では降雨時の挙動が異なる. この差は, DOC 濃度が全 DOM の指標であるのに対して, Comp.f は蛍光成分だけを見ていることに起因すると考えられる. また, 10 月 12 日 10:00 から 11:00 の時間で, Comp.f が 15 RU から 16 RU へ増加し, DOC 濃度が 6.1 mg/L から 8.2 mg/L へ増加したが, Comp.f/DOC 比が 2.5 (RU/(mg/L))から 1.9 (RU/(mg/L))へ急に減少した. これは, 分流汚水由来の FDOM が, 5.3.3.2 (1) で述べた降雨初期に含まれると考えられる蛍光性の無い DOM とともに, 雨天時初期に B 下水処理場へ流入し, 簡易処理水として高級処理水に混入したためと考えられる. 挙動の異なる DOC 濃度と Comp.f のどちらが微生物の指標として優れているのか, 5.3.3.3 (4) で検証する.

B 下水処理場における 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm）の終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比 (f=1, 2, 3) の経時変化を図 5-68 に示す. 図 5-68 上段右図について, 放流水の Comp.f 及び DOC 濃度はそれぞれ 11~13 RU, 3.7~4.6 mg/L で推移した. 簡易処理が発生しなかったため, 5.2.3.3 (1) で述べた終沈後水質と比べ FDOM と DOM の経時変化傾向が類似している. 図 5-68 下段右図について, 放流水の Comp.f/DOC 比はそれぞれ 2.7~3.1 RU/(mg/L)で推移した. 5.2.3.1 (1) で述べた終沈後水質と比べ経時変化の傾向が類似している.

B 下水処理場における 2019 年 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）の終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f, DOC 濃度と, Comp.f/DOC 比 (f=1, 2, 3) の経時変化を図 5-69 に示す. 図 5-69 上段右図について, 放流水の Comp.f 及び DOC 濃度はそれぞれ 11~14 RU, 6.2~11 mg/L で推移した. Comp.f は簡易処理等発生直後の 10 月 25 日 13:00 に最大 14 RU となり, DOC 濃度は簡易処理等発生時の 10 月 25 日 14:00 に最大 11 mg/L となった. 5.2.3.1 (1) で述べた終沈後水質と比べ, FDOM と DOM の簡易処理等発生中の経時変化傾向が異なる. FDOM・DOM の変化傾向と簡易処理等による下水混入率の変化傾向の関

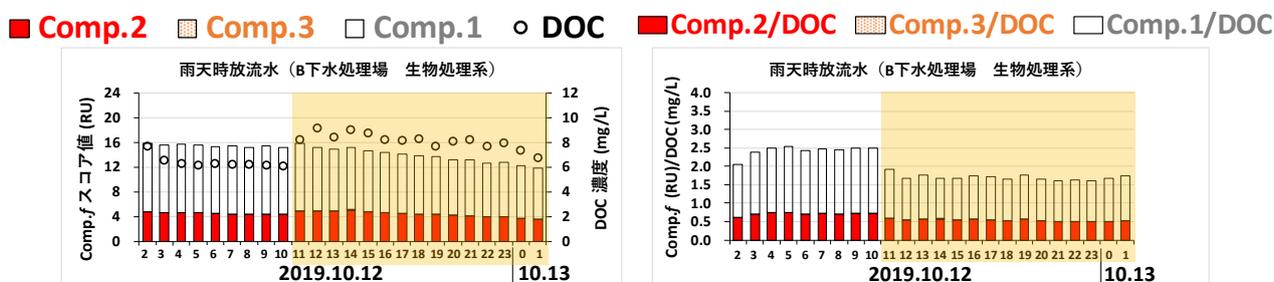


図 5-67 B 下水処理場の 2019 年 10 月 12~13 日（総降雨量 89.0 mm）における下水処理放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度, Comp.f/DOC 比 (f=1, 2, 3) の経時変化. 横軸は時刻を示す. ハイライトは簡易処理等の時間帯.

連については後述する。図 5-67 下段右図について、放流水の Comp.f/DOC 比はそれぞれ 1.3~2.0 RU/(mg/L) で推移した。5.2.3.1 (1) で述べた終沈後水質と比べ、簡易処理等発生中の経時変化傾向が異なり、特に簡

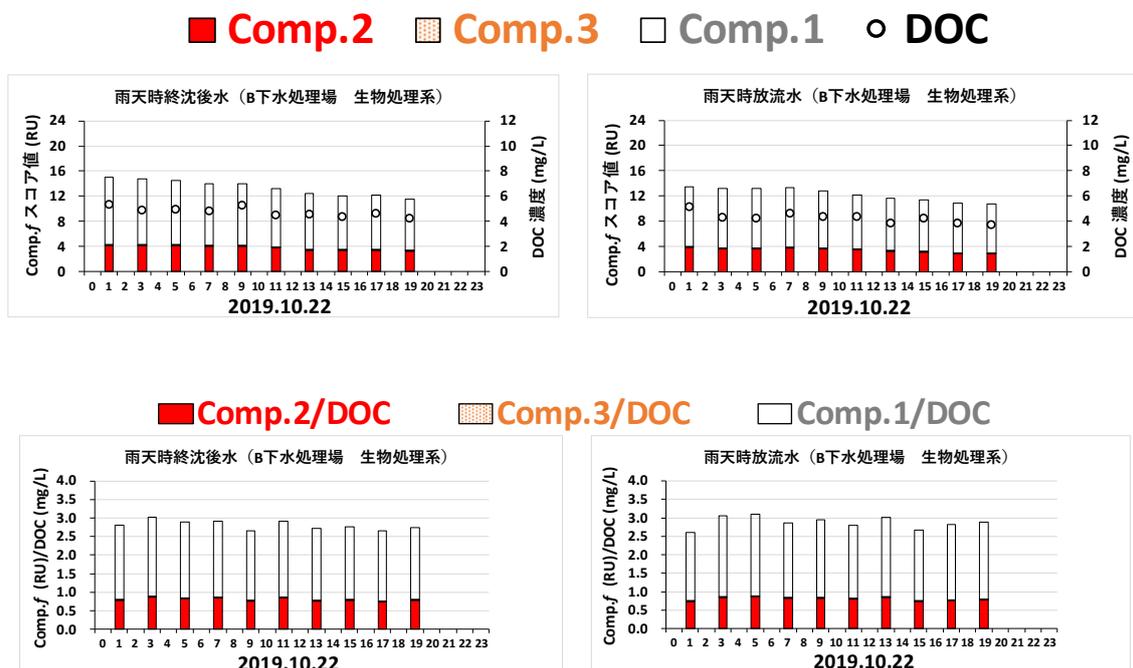


図 5-68 B 下水処理場の 2019 年 10 月 22 日（総降雨量 17.0 mm）における終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度，Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）の経時変化。横軸は時刻を示す。

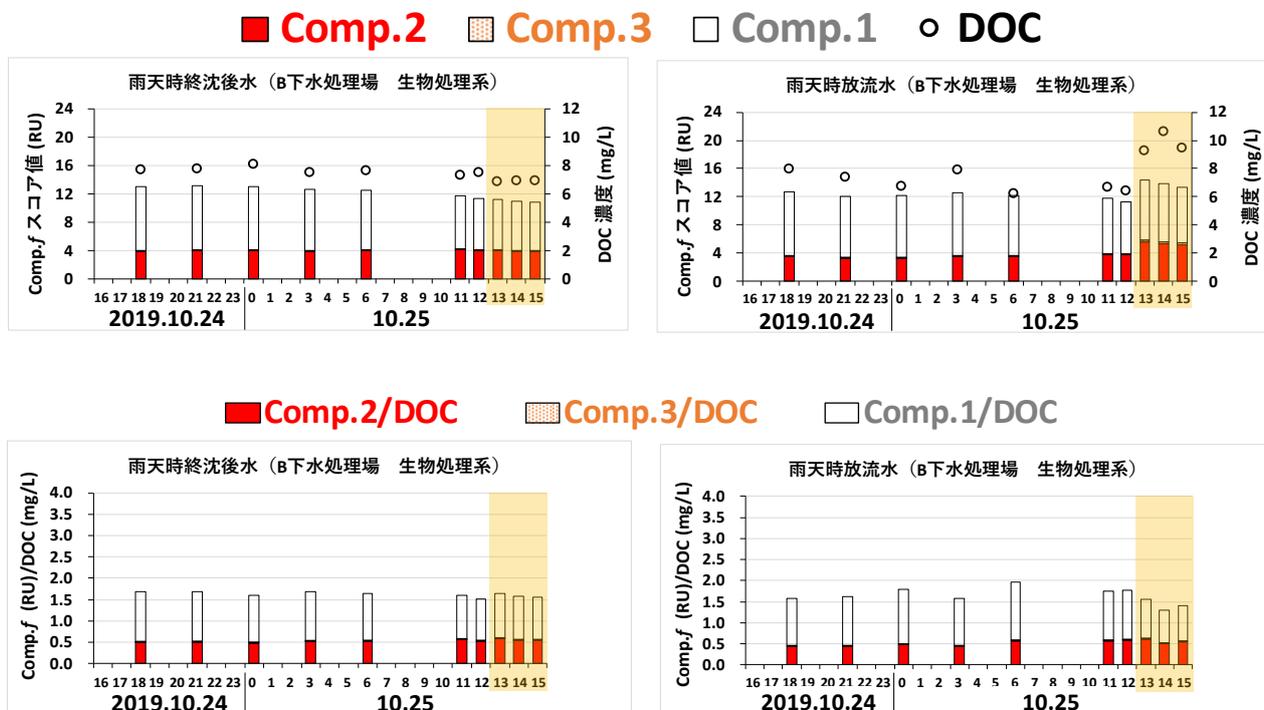
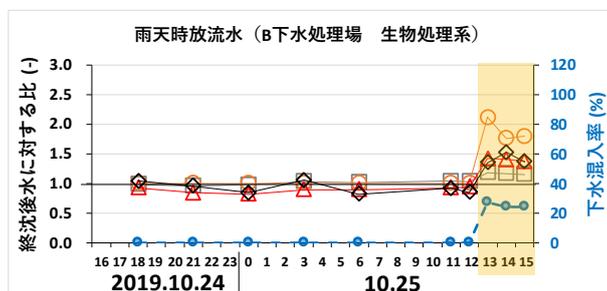


図 5-69 B 下水処理場の 2019 年 10 月 24~25 日（総降雨量 63.0 mm）における終沈後水・放流水中の主成分スコア値 Comp.f 及び DOC 濃度，Comp.f/DOC 比（f=1, 2, 3）の経時変化。横軸は時刻を示す。ハイライトは簡易処理等の時間帯。

易処理発生中の10月25日14:00に最小1.3 RU/(mg/L)となった。Comp.f/DOC比と下水混入率の変化傾向の関連については後述する。これは、2019年10月12~13日(総降雨量89.0mm)の調査と同様、分流汚水由来のFDOMが、5.3.3.2(1)で述べた降雨初期に含まれると考えられる蛍光性の無いDOMとともに、雨天時初期にB下水処理場へ流入し、簡易処理水として高級処理水に混入したためと考えられる。挙動の異なるComp.fとDOC濃度のどちらが微生物の指標として優れているのか、5.3.3.3(4)で検証する。

B下水処理場における簡易処理が発生した2019年10月24~25日(総降雨量63.0mm)の終沈後水質指標(Comp.1, Comp.2及びComp.3とDOC濃度)に対する放流水質指標の比率と下水混入率、終沈後水のComp.f/DOC比(Comp.1/DOC濃度, Comp.2/DOC濃度及びComp.3/DOC濃度)に対する放流水のComp.f/DOC比(f=1, 2, 3)の比率と下水混入率の経時変化を図5-70に示す。図5-70上図について、Comp.1は0.95~1.2, Comp.2は0.82~1.4, Comp.3は1.0~2.1, DOC濃度は0.82~1.5で推移した。いずれの水質指標も下水が混入する10月25日13:00~15:00の時間帯で高い値を示しComp.1, Comp.2及びComp.3とDOC濃度のすべてで増大率が高くなった。特にFDOM水質指標のうちComp.3は同時時間帯で比較的高い値を示し、Comp.3の増大率が高くなったが検出値は低く0.18~0.21 RUで推移した。これは、FDOMのなかでもトリプトファン様成分の塩素処理による低減率が最大で18%であるが、13:00~15:00の時間帯で降雨により簡易処理が発生し下水が混入することにより、低減率が最小で-40%まで低下することを示している。また、陸域由来フミン様成分の塩素処理による低減率が最大で5%であるが、同時時間帯で降雨により簡易処理が発生し下水が混入することにより、低減率が最小で-20%まで低下することも示してい

◇ DOC   □ Comp.1   ▲ Comp.2   ○ Comp.3   ● 下水混入率



□ Comp.1/DOC   ▲ Comp.2/DOC   ○ Comp.3/DOC   ● 下水混入率

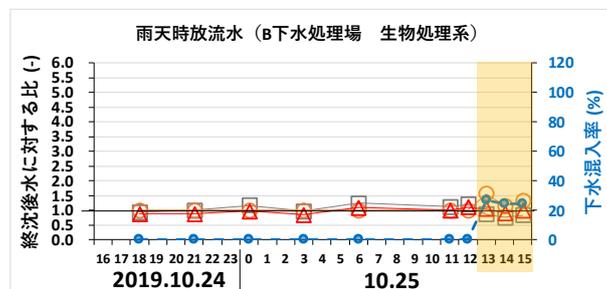


図5-70 B下水処理場における終沈後水質指標(Comp.1, Comp.2及びComp.3とDOC濃度)に対する放流水質指標の比率と下水混入率、終沈後水のComp.f/DOC比(Comp.1/DOC濃度, Comp.2/DOC濃度及びComp.3/DOC濃度)に対する放流水のComp.f/DOC比(f=1, 2, 3)の比率と下水混入率の経時変化。蛍光強度N.D.の終沈後水質指標を0.1 RU, Comp.f/DOC比を0.1 RU/(mg/L)として算出。横軸は時刻。

る。図 5-70 下図について、Comp.1/DOC は 0.95~1.2, Comp.2/DOC は 0.82~1.4, Comp.3/DOC は 1.0~1.6 で推移した。特に Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度については、下水が混入する 13:00~15:00 の時間帯で低い値を示し、Comp.1/DOC, Comp.2/DOC の低減率が高くなった。これらにより、陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 24~27 %程度 of 下水混入率では塩素混和池での変化より下水混入によるファーストフラッシュに由来している蛍光性を有しない面源由来 DOM の増大が大きく上回った可能性が考えられる。

B 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率を比較したものを図 5-71 に示す。下水混入率の増加にともない、DOC 濃度の水質変化率が概ね増加し、Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の水質変化率も増加した。下水混入率が 24~27 %の範囲では雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM が有力であることを示すと考えられる。以上により、第 4 章 4.3.3 の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の雨天時下水の混入では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により十分適用可能であると言える。要因として、下水混入実験では供試原水として晴天時の B 下水処理場の初沈後水を用いているが、B 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できている可能性が考えられる。

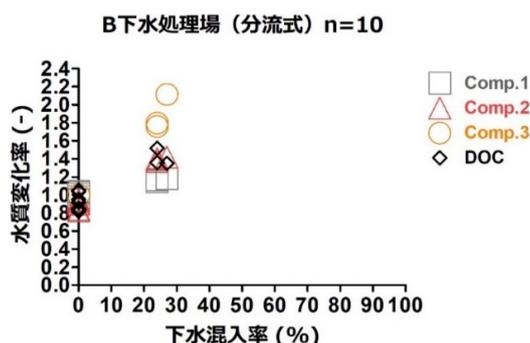


図 5-71 B 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較。

## (2) 高級処理水への雨天時下水混入の評価精度の検証結果

B 下水処理場の生物処理系の放流水に対し、5.3.2.5 (1) に示した 5 つの簡易処理水混入指標の候補 ((a) FDOM (トリプトファン様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度)) による、簡易処理放流リスクの評価精度を、絶対値と時間変化量の相対値で検証した。簡易処理水混入指標の候補 (a) ~ (e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 5-72 に、検証結果を表 5-5 に示す。検証については、5.3.2.5 (2) に示した簡易処理発生を見逃し FN となるデータ数を 0, 1, 2, 4, 5, 6 となるよう 6 通りのシナリオを設定し、シナリオ毎で検証結果を示す。

図 5-72 の指標候補 (a) ~ (e) と下水混入率の関係について以下に述べる。下水混入率は最大 31 %であった。(a) では Comp.2 スコア値が 3.54 RU, (b) では Comp.f スコア値が 11.8 RU, (c) では DOC 濃度が 5.36 mg/L より大きい範囲, (d) では Comp.2 スコア値/DOC 濃度が 0.835 RU/(mg/L), (e) では Comp.f スコ

ア値/DOC濃度が2.70 RU/(mg/L)より小さい範囲において、下水混入率が基準値0%を超過した。このことから(a)~(e)に係るリスク判定基準として、それぞれ3.54 RU, 11.8 RU, 5.36 mg/L, 0.835 RU/(mg/L), 2.70 RU/(mg/L)を設定した。

一方、表5-5の検証結果について以下に述べる。まず、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定するFNとなるデータ数0のシナリオにおいて、(c)及び(e)では他と比べてFalse Positive (FP)となるデータ数がそれぞれ16, 19と少なくなることで適合率はそれぞれ0.59, 0.55と高くなり、結果的にF値がそれぞれ0.74, 0.71と比較的高くなった。次に、下水混入率の基準値超過の判定漏れが1回の、FNとなるデータ数1のシナリオにおいて、(c)及び(e)では他と比べてFPとなるデータ数がそれぞれ16, 18と少なくなることで適合率はそれぞれ0.58, 0.55と高くなり、結果的にF値がそれぞれ0.72, 0.70と比較的高くなった。次に、FNとなるデータ数2のシナリオにおいて、(c)及び(e)では他と比べてFPとなるデータ数がともに16と少なくなることで適合率はともに0.57と高くなり、結果的にF値がともに0.70と比較的高くなった。次に、FNとなるデータ数4のシナリオにおいて、(c), (d)及び(e)では他と比べてFPとなるデータ数がそれぞれ5, 7, 7と少なくなることで適合率はそれぞれ0.79, 0.73, 0.73と高くなり、結果的にF値がそれぞれ0.81, 0.78, 0.78と比較的高くなった。次に、FNとなるデータ数5のシナリオにおいて、(c)及び(e)では他と比べてFPとなるデータ数がそれぞれ4, 6と少なくなることで適合率はそれぞれ0.82, 0.75と高くなり、結果的にF値がそれぞれ0.80, 0.77と比較的高くなった。最後に、FNとなるデータ数6のシナリオにおいて、(c), (d)及び(e)では他と比べてFPとなるデータ数がそれぞれ3, 6, 6と少なくなることで適合率はそれぞれ0.85, 0.74, 0.74と高くなり、結果的にF値がそれぞれ0.79, 0.74, 0.74と比較的高くなった。

以上により、簡易処理発生を確実に判定するFNとなるデータ数0（再現率1.00）や、下水混入率の基

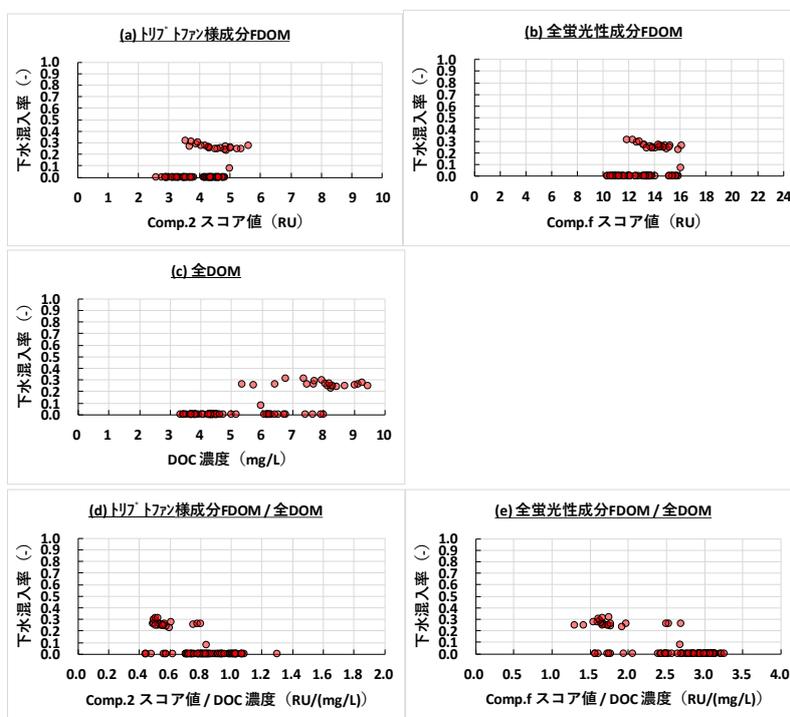


図5-72 B下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補(a)~(e)の絶対値と簡易処理発生管理基準である下水混入率の関係(n=92)。

表 5-5 B 下水処理場の生物処理系放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果. 上より FN となるデータ数 0, 1, 2, 4, 5, 6 のシナリオ (n=92).

項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 3.54 RU	> 11.8 RU	> 5.36 mg/L	< 0.835 RU/(mg/L)	< 2.70 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	23	23	23	23
	= 0.0 のデータ数	FN	0	0	0	0
		FP	44	48	16	34
	TN	25	21	53	35	50
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.52	0.48	0.83	0.63	0.79
適合率: TP / (TP+FP)		0.34	0.32	0.59	0.40	0.55
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.51	0.49	0.74	0.58	0.71
項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 3.67 RU	> 12.2 RU	> 5.74 mg/L	< 0.802 RU/(mg/L)	< 2.68 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	22	22	22	22
	= 0.0 のデータ数	FN	1	1	1	1
		FP	34	42	16	26
	TN	35	27	53	43	51
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.62	0.53	0.82	0.71	0.79
適合率: TP / (TP+FP)		0.39	0.34	0.58	0.46	0.55
再現率: TP / (TP+FN)		0.96	0.96	0.96	0.96	0.96
F値		0.56	0.51	0.72	0.62	0.70
項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 3.74 RU	> 12.6 RU	> 5.97 mg/L	< 0.780 RU/(mg/L)	< 2.54 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	21	21	21	21
	= 0.0 のデータ数	FN	2	2	2	2
		FP	37	40	16	22
	TN	32	29	53	47	53
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.58	0.54	0.80	0.74	0.80
適合率: TP / (TP+FP)		0.36	0.34	0.57	0.49	0.57
再現率: TP / (TP+FN)		0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
F値		0.52	0.50	0.70	0.64	0.70
項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 3.95 RU	> 13.1 RU	> 6.77 mg/L	< 0.608 RU/(mg/L)	< 1.98 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	19	19	19	19
	= 0.0 のデータ数	FN	4	4	4	4
		FP	34	38	5	7
	TN	35	31	64	62	62
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.59	0.54	0.90	0.88	0.88
適合率: TP / (TP+FP)		0.36	0.33	0.79	0.73	0.73
再現率: TP / (TP+FN)		0.83	0.83	0.83	0.83	0.83
F値		0.50	0.48	0.81	0.78	0.78
項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 4.06 RU	> 13.2 RU	> 7.36 mg/L	< 0.595 RU/(mg/L)	< 1.93 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	18	18	18	18
	= 0.0 のデータ数	FN	5	5	5	5
		FP	34	35	4	7
	TN	35	34	65	62	63
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.58	0.57	0.90	0.87	0.88
適合率: TP / (TP+FP)		0.35	0.34	0.82	0.72	0.75
再現率: TP / (TP+FN)		0.78	0.78	0.78	0.78	0.78
F値		0.48	0.47	0.80	0.75	0.77
項目		(a) FDOM (トリアン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 4.18 RU	> 13.3 RU	> 7.49 mg/L	< 0.573 RU/(mg/L)	< 1.78 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP	17	17	17	17
	= 0.0 のデータ数	FN	6	6	6	6
		FP	32	33	3	6
	TN	37	36	66	63	63
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.59	0.58	0.90	0.87	0.87
適合率: TP / (TP+FP)		0.35	0.34	0.85	0.74	0.74
再現率: TP / (TP+FN)		0.74	0.74	0.74	0.74	0.74
F値		0.47	0.47	0.79	0.74	0.74

準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 1 (再現率 0.96), 2 (再現率 0.91), 5 (再現率 0.78) の条件下では, (c)DOM (DOC 濃度), (e)FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的高く, 特に FN となるデータ数 5 (再現率 0.78) の条件下では, 特に適合率や F 値に関し(c) DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的に高くなることが示唆された. また, 下水混入率の基準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 4 (再現率 0.83), 6 (再現率 0.74) の条件下では, (c) DOM (DOC 濃度),

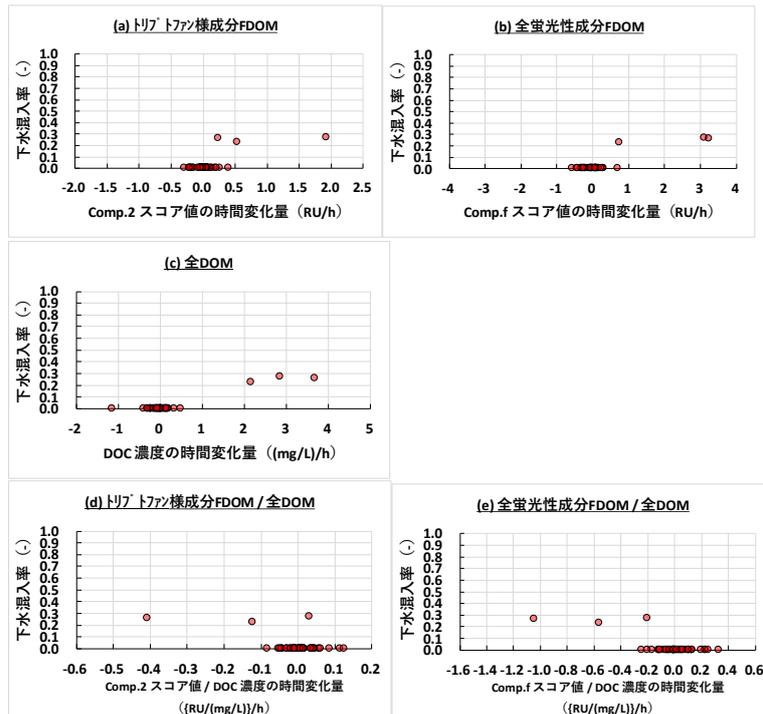


図 5-73 B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n = 58)。

表 5-6 B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果 (n = 58)。

項目		(a) FDOM (トリプトファン様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 0.243 RU/h	> 0.733 RU/h	> 2.15 (mg/L)/h	< 0.0311 (RU/(mg/L))/h	< -0.202 (RU/(mg/L))/h
地下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 3	3	3	3	3
	= 0.0 のデータ数	FN 0	0	0	0	0
		FP 2	0	0	31	2
	TN 40	42	42	11	40	
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.96	1.00	1.00	0.31	0.96
適合率: TP / (TP+FP)		0.60	1.00	1.00	0.09	0.60
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.75	1.00	1.00	0.16	0.75

(d) FDOM/DOM (トリプトファン様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的高く, 特に FN となるデータ数 4 (再現率 0.83) の条件下では, 適合率や F 値に関し(c) DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることが示唆された。

B 下水処理場の生物処理系の放流水に対する簡易処理水混入指標の候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 5-73 に, 検証結果を表 5-6 に示す. 図 5-73 の指標候補 (a)~(e) の時間変化量と下水混入率の関係について以下に述べる. 下水混入率は最大 27%であった. (a) では Comp.2 スコア値の時間変化量が 0.243 RU/h より大きい範囲, (b) では Comp.f スコア値の時間変化量が 0.733 RU/h より大きい範囲, (c) では DOC 濃度の時間変化量が 2.15 (mg/L)/h より大きい範囲, (d) では Comp.2 スコア値/DOC 濃度の時間変化量が 0.0311 {RU/(mg/L)}/h より小さい範囲, (e) では Comp.f スコア値/DOC 濃度の時間変化量が -0.202 {RU/(mg/L)}/h より小さい範囲において, 下水混入率が基準値 0%を超過した. このことから (a)~(e) に係るリスク判定基準として, それぞれ 0.243 RU/h, 0.733 RU/h, 2.15 (mg/L)/h, 0.0311 {RU/(mg/L)}/h, -0.202 {RU/(mg/L)}/h を設定した. 一方, 表 5-6 の検証結果

については、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する FN となるデータ数 0 となるシナリオのみを示す。(b) 及び (c) では他と比べて FP データ数が 0 となることで適合率は 1.00 と高くなり、結果的に F 値が 1.00 と最も高くなった。これにより、簡易処理発生を確実に判定する FN データ数 0 (再現率 1.00) の条件下では、(b)FDOM (全蛍光成分)、(c)DOM (DOC 濃度) の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることが示唆された。

### (3) 下水処理放流水中の衛生微生物の動態

B 下水処理場における下水処理放流水中の TC, *E. coli* 及び FPH の検出濃度の経時変化を、図 5-74 に示す。簡易放流が発生しなかった上図の 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm) の放流水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 5.4~5.9 log(CFU/L), 3.2~3.8 log(CFU/L), N.D.~3.0 log(PFU/L) で推移した。また、簡易放流が 15 h 発生した左図の 10 月 12~13 日 (総降雨量 89.0 mm) の放流水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ TMTc log(CFU/L), 4.0~6.1 log(CFU/L), N.D.~4.0 log(PFU/L) で推移した。さらに、簡易放流が 3 h 発生した右図の 10 月 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm) の放流水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、それぞれ 5.5~TMTc log(CFU/L), 3.7~6.4 log(CFU/L), N.D.~4.8 log(PFU/L) で推移した。

10 月 12~13 日の簡易処理放流では、衛生微生物の TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、その簡易放流の発生前と比べてそれぞれ 1, 60 及び >1,000 倍程度増加した。10 月 24~25 日の簡易処理放流でも、TC, *E. coli* 及び FPH 濃度は、その簡易放流の発生する前と比べてそれぞれ 90, 300 及び >70,000 倍程度増加した。

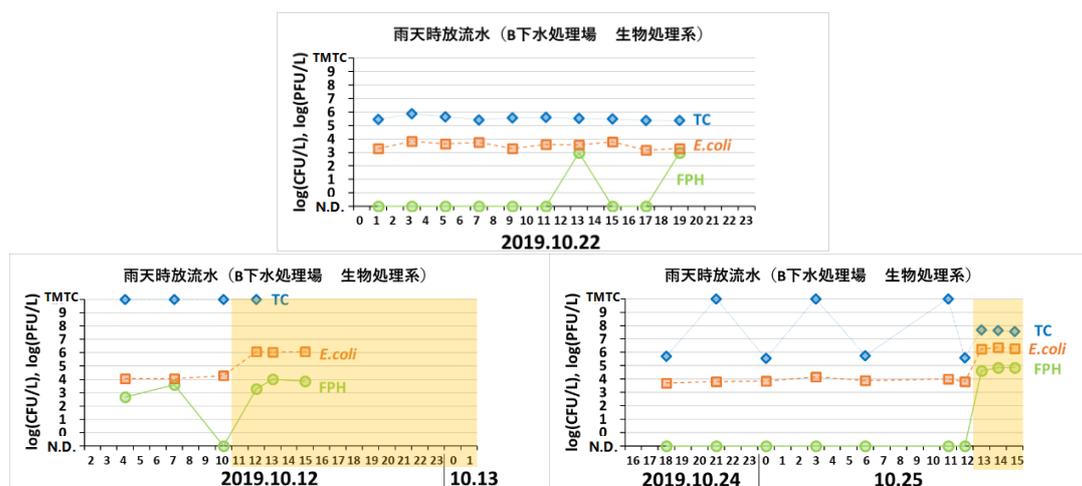


図 5-74 B 下水処理場の下水処理放流水中の衛生微生物濃度の経時変化。上図は 2019 年 10 月 22 日 (総降雨量 17.0 mm)、左下図は 10 月 12~13 日 (総降雨量 89.0 mm)、右下図は 24~25 日 (総降雨量 63.0 mm)。過検出 (TMTc) 試料を上端、不検出 (N.D.) 試料を下端。横軸は時刻。ハイライトは簡易処理時間帯。

### (4) 雨天時の下水処理放流水質の動態比較

B 下水処理場における下水処理放流水中のトリプトファン様成分 Comp.2 及び DOC 濃度と、衛生微生物検出濃度の動態を比較したものを図 5-75 に示す。図 5-75 左段の Comp.2 を説明変数とした場合、対象とした TC, *E. coli* 及び FPH 濃度の中では、いずれも  $p < 0.05$  で有意であり、決定係数はそれぞれ 0.91, 0.79, 0.55 となった。よって、Comp.3 は高級処理水への簡易処理水混入に対し、TC, *E. coli* 及び FPH のいずれとも強い相関を持ち、また TC, *E. coli* と比較的に強い相関を持ち、さらに TC との相関が極めて

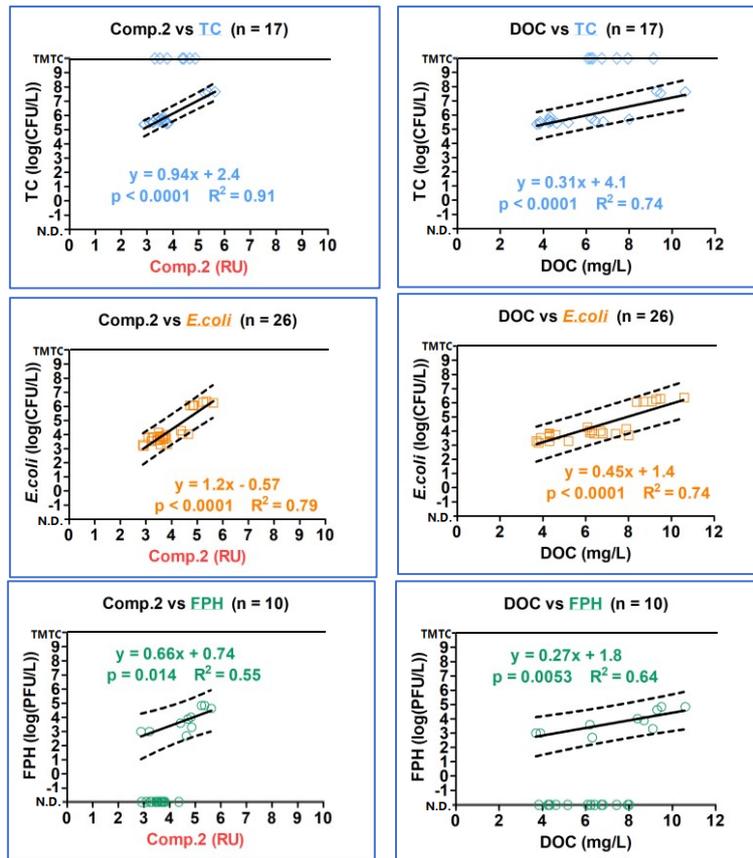


図 5-75 B 下水処理場における下水処理放流水に対する Comp.2 及び DOC 濃度と衛生微生物濃度の比較。Comp.3 (左段), DOC 濃度 (右段) を説明変数, TC (上段), *E. coli* (中段) 及び FPH (下段) を目的変数として危険率 5% で解析ソフト GraphPad Prism を用いた検定により相関解析。実線は回帰直線, 破線は上より 95% 予測区間の上限, 下限。過検出 (TMTC) 試料を上端, 不検出 (N.D.) 試料を下端に示す。

高いと考えられる。また, 回帰直線の傾きは, TC, *E. coli* 及び FPH 濃度ではそれぞれ 0.94 (log(CFU/L)/(mg/L)), 1.2 (log(CFU/L)/(mg/L)), 0.66 (log(PFU/L)/(mg/L)) となった。これは, 本調査の場合では, B 下水処理場における高級処理水への簡易処理水混入により DOC 濃度が増加する場合, *E. coli* 濃度の増加が特に鋭敏となり, 下水混入率が最大 31% となることによる TC, *E. coli* 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として, FDOM のうちタンパク質様成分はふさわしいことを示すと考えられる。

一方で, 図 5-75 右段の DOC 濃度を説明変数とした場合, 対象とした TC, *E. coli* 及び FPH 濃度の中では, いずれも  $p < 0.05$  で有意であり, 決定係数はそれぞれ 0.74, 0.74, 0.64 となった。よって, DOC 濃度は高級処理水への簡易処理水混入に対し, TC, *E. coli* 及び FPH のいずれとも強い相関を持ち, 特に TC, *E. coli* と比較的に高い相関を持つが, Comp.2 と比べて TC, *E. coli* のいずれも相関性が劣ると考えられる。また, 回帰直線の傾きは, TC, *E. coli* 濃度ではそれぞれ 0.31 (log(CFU/L)/(mg/L)), 0.45 (log(CFU/L)/(mg/L)) となった。これは, 本調査の場合では, B 下水処理場における高級処理水への簡易処理水混入の場合, *E. coli* 濃度の増加が TC 濃度の増加より鋭敏となり, 下水混入率が最大 31% となることによる *E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として, DOM の存在量である DOC 濃度は比較的にふさわしいことを示すと考えられる。また, *E. coli* 濃度の増加ほど鋭敏ではないが, FPH

濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として DOC 濃度は比較的にふさわしいことを示すと考えられる。

### 5.3.3.4 C 下水処理場の生物処理系における消毒前水に対する検討

#### (1) 終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の FDOM の動態

C 下水処理場の生物処理系での 2017 年 5 月 13 日（総降雨量 53.0 mm）における下水処理放流水中のスコア値 Comp.f (f = 1, 2, 3) 及び DOC 濃度の経時変化を、図 5-76 に示す。5.3.2.2 の図 5-55 に示す通り、下水混入率が 38~42% の 2017 年 5 月 13 日 9:30 の時点では、終沈後水中 Comp.1, Comp.2 及び DOC 濃度がそれぞれ 3.5 RU, 1.6 RU, 3.4 mg/L で、バイパス水中ではそれぞれ 4.7 RU, 2.0 RU, 4.8 mg/L で、消毒前水中ではそれぞれ 4.0 RU, 1.5 RU, 3.7 mg/L であった。下水混入率 42% の 10:30 の時点では、終沈後水中 Comp.1, Comp.2 及び DOC 濃度がそれぞれ 3.3 RU, 1.5 RU, 3.1 mg/L で、バイパス水中ではそれぞれ 5.6 RU, 2.3 RU, 6.3 mg/L で、消毒前水中ではそれぞれ 4.1 RU, 1.5 RU, 3.7 mg/L であった。下水混入率 42~43% の 11:30 の時点では、終沈後水中 Comp.1, Comp.2 及び DOC 濃度がそれぞれ 3.3 RU, 1.4 RU, 3.4 mg/L で、バイパス水中ではそれぞれ 5.3 RU, 2.5 RU, 5.6 mg/L で、消毒前水中ではそれぞれ 4.3 RU, 1.6 RU, 3.9 mg/L であった。下水混入率 23% の 13:00 の時点では、終沈後水中 Comp.1, Comp.2 及び DOC 濃度がそれぞれ 3.2 RU, 1.5 RU, 2.8 mg/L で、バイパス水中ではそれぞれ 4.9 RU, 2.1 RU, 5.4 mg/L で、消毒前水中ではそれぞれ 3.6 RU, 1.6 RU, 3.4 mg/L であった。Comp.3 は全試料不検出であった。

これらの結果のうち 9:30, 10:30 については、終沈後水質と比べ、FDOM と DOM の簡易処理発生中の経時変化傾向が異なる。FDOM・DOM の変化傾向と簡易処理による下水混入率の変化傾向の関連については後述する。これは、終沈後水（高級処理水）に対し、初沈後水（バイパス水）が混入することによる塩素消毒前の簡易処理放流水（消毒前水）の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちトリプトファン様成分はふさわしくないことを示すと考えられる。理由として、分流式・合流式の C 下水処理場において放流水量が増加傾向の時間帯では、5.3.3.2 (1) で述べた合流式の A 下水処理場での結果に類似して、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性が関係している可能性がある。一方、11:30, 13:00 については、終沈後水質と比べ、FDOM と DOM の簡易処理発生中の経時変化傾向が類似している。これは、高級処理水に対し、バイパス水が混入することによる塩素消毒前の簡易処理放流水の水質変換過程が推察される簡易指標として、FDOM のうちトリプトファン様成分はふさわしいことを示すと考えられる。理由として、C 下水処理場において放流水量が減少傾向の時間帯では、5.3.3.3

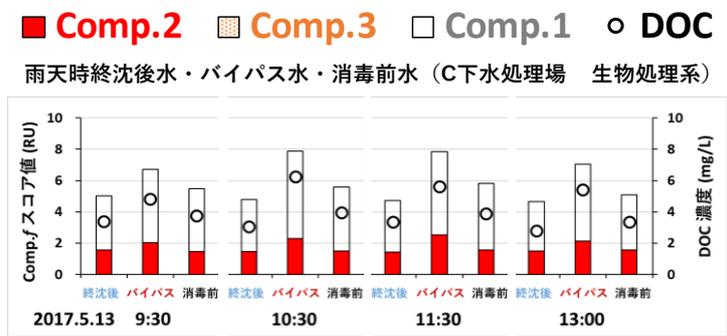
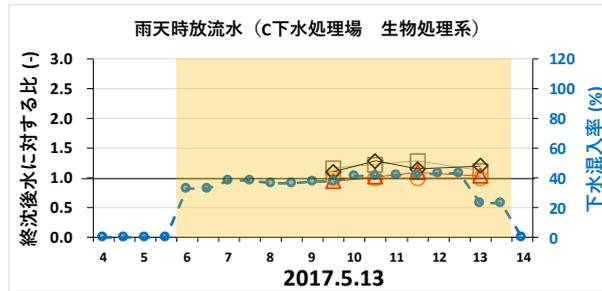


図 5-76 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 5 月 13 日（総降雨量 53.0 mm）における終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の主成分スコア値 Comp.f (f = 1, 2) 及び DOC 濃度の経時変化。横軸は時刻。

◇-DOC   □-Comp.1   ▲-Comp.2   ○-Comp.3   ●-下水混入率



□-Comp.1/DOC   ▲-Comp.2/DOC   ○-Comp.3/DOC   ●-下水混入率



図 5-77 C 下水処理場での終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2, Comp.3, DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度, Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比の比率と下水混入率の経時変化. 蛍光強度 N.D.の終沈後水質指標を 0.1 RU, Comp.f/DOC 比を 0.1 RU/(mg/L)とする. 横軸は時刻. ハイライトは簡易処理時間帯.

C下水処理場 (分流式・合流式) n=4

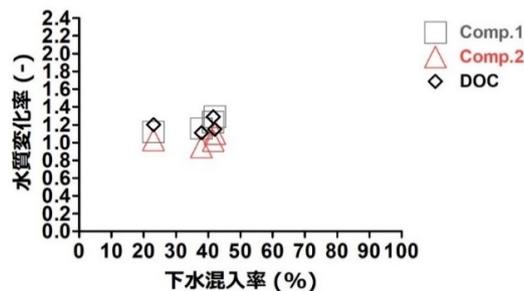


図 5-78 C 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率の比較.

(2) で述べた分流式の B 下水処理場での結果に類似して, C 下水処理場に流入する雨天時下水中の汚水, 特にし尿の水質特性が関係している可能性が考えられる.

C 下水処理場における簡易処理が発生した 2017 年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) の終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率と下水混入率, 終沈後水の Comp.f/DOC 比 (Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度及び Comp.3/DOC 濃度) に対する放流水の Comp.f/DOC 比 (f = 1, 2, 3) の比率と下水混入率の経時変化を図 5-77 に示す. 図 5-77 上図について, Comp.1 は 1.1~1.3, Comp.2 は 0.95~1.1, Comp.3 は全試料不検出のため 1.0, DOC 濃度は 1.1~1.3 で推移した. いずれの FDOM 水質指標も汚水, 特にし尿が比較的多く混入した可能性のある 11:30~13:00 の時間

帯で高い値を示し Comp.1, Comp.2 のいずれも増大率が高くなった。図 5-77 下図について、Comp.1/DOC は 0.93~1.1, Comp.2/DOC は 0.79~0.95, Comp.3/DOC は全試料不検出のため 1.0 で推移した。Comp.1/DOC 濃度, Comp.2/DOC 濃度については、汚水、特にし尿が比較的多く混入した可能性のある 11:30 頃に高い値を示し、Comp.1/DOC, Comp.2/DOC の低減率が低くなった。これらにより、陸域由来フミン様成分やトリプトファン様成分は 23~43 %程度 of 下水混入率では放流水量が減少傾向の時間帯の下水混入による汚水、特にし尿に由来する FDOM の増大が大きく上回った可能性が考えられる。

C 下水処理場における終沈後水質指標 (Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度) に対する放流水質指標の比率 (水質変化率) と下水混入率を比較したものを図 5-78 に示す。下水混入率の 23.1 % から 37.9 % への増加にともない、Comp.2 と DOC 濃度の水質変化率が減少し、Comp.1 の水質変化率が減少した。下水混入率の 37.9 % から 41.6 % への増加にともない、Comp.1, Comp.2 と DOC 濃度の水質変化率がいずれも増加した。下水混入率の 41.6 % から 42.1 % への増加にともない、Comp.1 と Comp.2 の水質変化率が増加し、DOC 濃度の水質変化率が減少した。データ数が少ないため、下水混入率が 23.1~42.1 % の範囲では下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM と DOM のどちらが有力であるかを示せなかった。以上により、第 4 章 4.3.3 の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の雨天時下水の混入では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により十分適用可能であるとは言えない。要因として、下水混入実験では供試原水として雨天時下水ではなく晴天時の B 下水処理場の初沈後水を用いているが、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水の水質特性を考慮できていない可能性が考えられる。

## (2) 終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の衛生微生物の動態

C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) における終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の TC, *E. coli* 及び FPH 並びに主成分スコア値 Comp.2 の経時変化を、図 5-79 に示す。下水混入率 38~42 % の 2017 年 5 月 13 日 9:30 の時点では、終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH がそれぞれ 2.2 log(CFU/L), 1.7 log(CFU/L), -1.1 log(PFU/L) で、バイパス水中ではそれぞれ 4.8 log(CFU/L), 4.3 log(CFU/L), 2.2 log(PFU/L) で、消毒前水中ではそれぞれ 4.8 log(CFU/L), 4.1 log(CFU/L), 1.6 log(PFU/L) であった。下水混入率 42 % の 10:30 の時点では、終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH がそれぞれ 2.3 log(CFU/L), 1.8 log(CFU/L), -1.4 log(PFU/L) で、バイパス水中ではそれぞれ 5.4 log(CFU/L), 5.0 log(CFU/L), 1.6 log(PFU/L) で、消毒前水中ではそれぞれ 4.8 log(CFU/L), 4.3 log(CFU/L), 1.7 log(PFU/L) であった。下水混入率 42~43 %

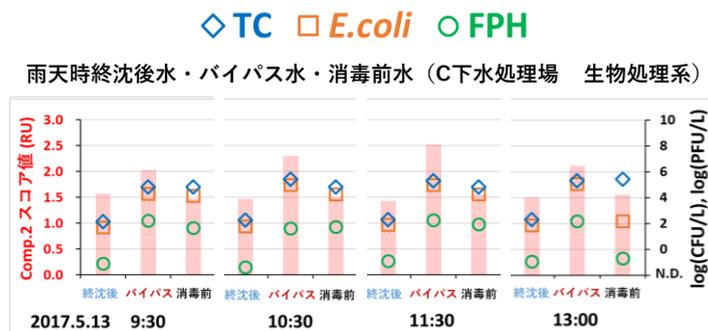


図 5-79 C 下水処理場の生物処理系における 2017 年 5 月 13 日 (総降雨量 53.0 mm) における終沈後水・簡易処理水・消毒前水中の TC, *E. coli* 及び FPH 並びに主成分スコア値 Comp.2 の経時変化。横軸は時刻。

の 11:30 の時点では、終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH がそれぞれ 2.3 log(CFU/L), 1.9 log(CFU/L), -0.92 log(PFU/L)で、バイパス水中ではそれぞれ 5.3 log(CFU/L), 5.0 log(CFU/L), 2.3 log(PFU/L)で、消毒前水中ではそれぞれ 4.8 log(CFU/L), 4.2 log(CFU/L), 1.9 log(PFU/L)であった。下水混入率 23 %の 13:00 の時点では、終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH がそれぞれ 2.3 log(CFU/L), 1.9 log(CFU/L), -0.92 log(PFU/L)で、バイパス水中ではそれぞれ 5.3 log(CFU/L), 5.1 log(CFU/L), 2.2 log(PFU/L)で、消毒前水中ではそれぞれ 5.4 log(CFU/L), 2.2 log(CFU/L), -0.70 log(PFU/L)であった。

これらの結果のうち 9:30, 10:30 については、バイパス水の混入による終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度から消毒前水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度への、それぞれ 2.5~2.6 log(CFU/L), 2.4~2.5 log(CFU/L), 2.7~3.1 log(PFU/L)の増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分とは関係がほとんどないことを示すと考えられる。理由として、分流式・合流式の C 下水処理場において放流量が増加傾向の時間帯では、5.3.3.2 (1) で述べた合流式の A 下水処理場での結果に類似して、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の雨水排水に高濃度の TC, *E. coli* 及び FPH が存在している可能性が考えられる。一方、11:30, 13:00 については、バイパス水の混入による終沈後水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度から消毒前水中 TC, *E. coli* 及び FPH 濃度への、それぞれ 2.5~3.1 log(CFU/L), 0.3~2.3 log(CFU/L), 0.2~2.8 log(PFU/L)の増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分と関係している可能性を示すと考えられる。理由として、分流式・合流式の C 下水処理場において放流量が減少傾向の時間帯では、5.3.3.3 (4) で述べた分流式の B 下水処理場での結果に類似して、C 下水処理場に流入する雨天時下水中の汚水に高濃度の TC, *E. coli* 及び FPH が存在しているためと考えられる。

#### 5.4 第 5 章のまとめ

本章の検証調査では、A, B, C 下水処理場を対象に、雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM・衛生微生物の水質変化特性、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を現地調査により検討し、FDOM の雨天時下水の簡易指標性を検証した。結果を以下にまとめる。

- (1) 合流式の A 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち流入水・初沈後水に着目して、FDOM と BOD, COD, SS 等の水質項目との比較をおこなった。結果より、本調査では降雨の影響下でファーストフラッシュは流入水中 FDOM の動態に変化を与えず、降雨より汚水量増加の影響下で、特に生活雑排水量の増加はタンパク質様成分 FDOM のうちチロシン様成分の動態に影響を与え、一方し尿の水量の増加はタンパク質様成分 FDOM のうちトリプトファン様成分の動態に影響を与えることが示唆された (5.2.3.2 (1) 参照)。また、本調査では降雨の影響下でファーストフラッシュは初沈後水中 FDOM の動態に変化を与え、面源負荷や管内堆積物などのうち最初沈殿池で除去されない汚濁物に由来し、これらの汚濁物には蛍光性を有しない DOM も多く含まれていることが示唆された (5.2.3.2 (2) 参照)。
- (2) A 下水処理場の雨天時下水の生物処理による FDOM の水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の低減状況と最初沈殿池及び活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、第 4 章 4.3.1 の生物処理実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換

過程が推察される簡易指標としての利用性が、A 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることが示唆された (5.2.3.2 (2) 参照)。

- (3) 分流式の B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水の生物処理による DOM や FDOM の構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることが示唆された (5.2.3.3 (1) 参照)。
- (4) B 下水処理場での生物処理による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、対象とした衛生微生物 TC, *E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であり、特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことが示唆された (5.2.3.3 (2) 参照)。
- (5) 分流式・合流式の C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち流入水に着目して、晴天時と雨天時で DOM や FDOM の動態比較をおこなった。結果より、雨天時の流入水中の DOM に占める FDOM の割合が晴天時と比べて大きくなり、面源負荷の陸域由来フミン様成分や管内堆積物中のトリプトファン様成分が含まれることによる可能性があることが示唆された (5.2.3.4 (1) 参照)。
- (6) C 下水処理場の雨天時下水の生物処理による DOM や各 FDOM 構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A・B 下水処理場と異なり、C 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理において EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることが示唆された (5.2.3.4 (2) 参照)。
- (7) C 下水処理場での生物処理による各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC, *E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であること、特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことが示唆された (5.2.3.4 (3) 参照)。
- (8) C 下水処理場の凝集処理系において、雨天時下水の凝集処理による DOM の除去率や各 FDOM 成分の低減率と無機凝集剤 (PACl) 添加との関連を調べ、PACl 添加濃度と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、第 4 章 4.3.2 の凝集処理実験で明らかにしたピークピッキ

ングによる陸域由来フミン様成分の凝集処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の雨天時下水の凝集処理において EEM-PARAFAC 法で得られた陸域由来フミン様成分により適用可能であることが示唆された (5.2.3.5 (1) 参照).

- (9) C 下水処理場での凝集処理による各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した. 結果より、FDOM のうち陸域由来フミン様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC, *E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であり、*E. coli* では陸域由来フミン様成分、FPH ではチロシン様成分がより有力であることが示唆された (5.2.3.5 (2) 参照).
- (10) A 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と簡易処理水の混入率 (下水混入率) との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した. 結果より、第 4 章 4.3.3 の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることが示唆された (5.3.3.2 (1) 参照).
- (11) A 下水処理場の放流先水域側に対し簡易処理放流リスクの評価に用いる、高級処理水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM, FDOM の指標による簡易処理放流リスク評価精度を検証した. 結果として、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 6 の条件下では、トリプトファン様成分/DOC 濃度比、全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に適合率や F 値に関し全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることが示唆された (5.3.3.2 (2) 参照). また、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下では、トリプトファン様成分の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることが示唆された (5.3.3.2 (2) 参照).
- (12) A 下水処理場において、高級処理水への簡易処理水混入による TC, *E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した. 結果として、高級処理水への簡易処理水混入の場合、*E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM より DOM の存在量である DOC 濃度はふさわしいこと、TC 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM はふさわしくないが、DOC 濃度はふさわしいことが示唆された (5.3.3.2 (4) 参照).
- (13) B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM の水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と下水混入率との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び

FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果として、ピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることが示唆された (5.3.3.3 (1) 参照)。

(14) B 下水処理場の放流先水域側に対して簡易処理放流リスクの評価に用いる、高級処理水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM、FDOM の指標による簡易処理放流リスク評価精度を検証した。結果として、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 4、6 の条件下では、DOC 濃度、トリプトファン様成分/DOC 濃度比、全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に判定漏れデータ数 4 の条件下では、適合率や F 値に関し DOC 濃度の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることが示唆された (5.3.3.3 (2) 参照)。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下では、全蛍光成分、DOC 濃度の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることが示唆された (5.3.3.3 (2) 参照)。

(15) B 下水処理場において、高級処理水への簡易処理水混入による各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果として、高級処理水への簡易処理水混入の場合、TC、*E. coli* 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM のうちトリプトファン様成分はふさわしいことが示唆された (5.3.3.3 (4) 参照)。

(16) C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒前の簡易処理放流水 (消毒前水) に着目して、生物反応槽及び最終沈殿池をバイパスする初沈後水 (バイパス水) と、混入前の終沈後水 (高級処理水) と併せて、同時刻で DOM や FDOM の動態比較をおこなった。結果として、ピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることが示唆された (5.3.3.4 (1) 参照)。

(17) C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち簡易処理放流水に着目して、バイパス水と高級処理水と併せて、同時刻で衛生微生物の動態比較をおこなった。結果として、簡易処理の初期～中期においては、バイパス水の混入による高級処理水中濃度から消毒前水中濃度への増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分とは関係がほとんどないことが示唆された (5.3.3.4 (2) 参照)。また、簡易処理の中期～終期においては、バイパス水の混入による高級処理水中濃度から消毒前水中濃度への増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分と関係している可能性が示唆された (5.3.3.4 (2) 参照)。

以上のように、本章の検証調査では、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによる FDOM 成分の雨天時下水処理や雨天時下水混入による水質変換過程が推察

される簡易指標としての利用性が、実際の雨天時下水処理や高級処理水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを、タンパク質様成分をトリプトファン様成分とチロシン様成分に分離して明らかにした (目的 3-1)。また、FDOM 指標の蛍光強度と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論することで、FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲も明らかにした。

特に実際の雨天時下水処理では、生物処理系の場合においてトリプトファン様成分で生物処理実験の結果を適用することができ生物処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示され、凝集処理系の場合において陸域由来フミン様成分で凝集処理実験の結果を適用することができ凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示された。高級処理水への簡易処理水混入では、分流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができ高級処理水への簡易処理水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があること、全蛍光成分の時間変化の相対値は簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることが示された。また、合流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかつたが、その時間変化の相対値は簡易処理発生を確実に判定する条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることが示された。また、分流式・合流式の場合も、トリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかつた。さらに、簡易的な衛生指標としての適用範囲については、分流式では生物処理・混入のいずれもトリプトファン様成分が適用可能であり、分流式・合流式では生物処理に対しトリプトファン様成分・チロシン様成分ともに適用可能で、凝集処理に対し陸域由来フミン様成分が適用可能であることが示された。

## 参考文献

- Carstea, E. M., Bridgeman, J., Baker, A. and Reynolds, D. M.: Fluorescence spectroscopy for wastewater monitoring: a review, *Water Research*, Vol. 95, pp 205-219, 2016.
- Cohen, E., Levy G. J. and Borisover, M.: Fluorescent Components of Organic Matter in Wastewater: Efficacy and Selectivity of the Water Treatment, *Water Research*, Vol. 55, pp 323-334, 2014.
- Lu, Y., Bauer, J. E., Canuel, E. A., Yamashita, Y. and Chambers, R. M.: Photochemical and Microbial Alteration of Dissolved Organic Matter in Temperate Headwater Streams Associated with Different Land Use, *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, Vol. 118, No. 2, pp 566-580, 2013.
- Mooijman, K. A., Bahar, M., Muniesa, M. and Havelaar, A. H.: Optimisation of ISO 10705-1 on Enumeration of F-Specific Bacteriophages, *Journal of Virological Methods*, Vol. 103, No. 2, pp 129-136, 2002.
- Rochelle-Newall, E. J. and Fisher, T. R.: Production of chromophoric dissolved organic matter fluorescence in marine and estuarine environments: an investigation into the role of phytoplankton, *Marine Chemistry*, Vol. 77, No. 1, pp 7-21, 2002.
- Stedmon, C. A. and Markager, S.: Resolving the Variability in Dissolved Organic Matter Fluorescence in a Temperate Estuary and its Catchment Using PARAFAC Analysis, *Limnology and Oceanography*, Vol. 50, No. 2, pp 686-697, 2005.
- Yamashita, Y., Scinto, L. J., Maie, N., and Jaffé, R.: Dissolved Organic Matter Characteristics Across a

Subtropical Wetland's Landscape: Application of Optical Properties in the Assessment of Environmental Dynamics, *Ecosystems*, Vol. 13, No. 7, pp 1006-1019, 2010.

○ 池田和弘, 高橋基之, 柿本貴志, 見島伊織, 渡邊圭司: 三次元励起蛍光スペクトル法による河川水質モニタリング, 第 48 回日本水環境学会年会講演集, p 14, 2014.

○ 池田和弘, 柿本貴志: 河川水質モニタリングへの EEM-PARAFAC 法の適用に関する基礎的検討: BOD の推測, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 74, No. 7, pp III\_265-III\_274, 2018.

○ 大津市企業局: 水道・下水道・ガス事業年報平成 29 年版, 2017.

○ 大津市企業局: 大津市の合流式下水道について, 公式 HP, <http://www.city.otsu.lg.jp/>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 31 日, 2018a.

○ 大津市企業局: 水道・下水道・ガス事業年報平成 30 年版, 2018b.

○ 環境省: 平成 28 年度環境技術実証事業 湖沼等水質浄化技術分野 実証試験結果報告, 2017.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 28 日, 2017.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 28 日, 2018.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2020 年 2 月 14 日, 2020.

○ 京都市上下水道局: 平成 29 年度版公共下水道統計年報, 公式 HP, <https://data.city.kyoto.lg.jp/node/93542>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 28 日, 2017.

○ 京都市上下水道局: 令和元年度版公共下水道統計年報, 公式 HP, <https://data.city.kyoto.lg.jp/node/101303>, 最終閲覧日: 2020 年 2 月 14 日, 2020.

○ 国土交通省: SPIRIT21 合流式下水道改善に向け 4 技術が実用化, 公式 HP, <https://www.mlit.go.jp/crd/city/sewage/gyosei/spirit21/031007.html>, 最終閲覧日: 2018 年 11 月 1 日, 2003.

○ 国土交通省水管理・国土保全局: 水文水質データベース, 公式 HP, <http://www1.river.go.jp/>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 28 日, 2018.

○ 小松一弘, 今井章雄, 松重一夫, 奈良郁子, 川崎伸之: 三次元励起蛍光スペクトル法による霞ヶ浦湖水及び流域水中 DOM の特性評価, 水環境学会誌, Vol. 31, No. 5, pp 261- 267, 2008.

○ 滋賀県南部流域下水道事務所: 湖南中部処理区における大雨等の異常時における運転計画書 (案), 2018.

○ 清水芳久 (第 3 章執筆担当), 田中宏明, 田中祐之, 加藤康弘, 高島英二郎, 鈴木穰, 水野忠雄, 田中周平: 水環境中 NOM の抽出および分析方法の確立 (第 3 章), JST CREST 「21 世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」に関する報告書, 戦略的創造研究推進事業 CREST, 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」, 2015.

○ 西田佳記, 圓佛伊智朗, 西田光希, 松葉祐亮, 田中宏明: 放流汚濁負荷を低減する雨天時下水処理運転管理に向けた汚泥流出リスク予測手法の検証, 学会誌「EICA」, Vol. 24, No. 2-3, pp 14-21, 2019.

○ 日本下水道新技術機構: 高速凝集沈殿処理技術の実用化に関する研究, 下水道新技術研究所 年報ダイジェスト, No. 9, 2001.

○ 松葉祐亮: 雨天時の下水処理場における衛生微生物の制御に関する基礎検討, 京都大学大学院工学研

究科修士論文, 2019.

○ 山口武志, 山下尚之, 田中宏明: 蛍光分析を活用した処理場での雨天時下水中の溶存有機成分の挙動特性に関する検討, 下水道研究発表会講演集, Vol. 55, pp 428-430, 2018.

○ 山口武志, 山下尚之, 田中宏明: EEM-PARAFAC による河川水中の溶存態有機物の動態へ及ぼす雨天時都市下水の影響検討, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 74, No. 7, pp III\_275-III\_284, 2018.

○ 山口武志, 山下尚之, 田村太一, 田中宏明: 琵琶湖流出河川水中の溶存態有機物と衛生微生物の動態へ及ぼす雨天時下水の影響調査, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 75, No. 7, pp III\_185-III\_198, 2019.

○ 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

○ 山下洋平: 海洋における発色団含有溶存有機物の機能と動態に関する研究, 海の研究, Vol. 19, pp 41-56, 2010.

## 第6章 河川水中のFDOMの動態に及ぼす雨天時下水の影響に関する検証調査

### 6.1 概説

第5章の検証調査では、第4章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによるFDOM成分のタンパク質様成分のうちEEM-PARAFAC法により分離されたトリプトファン様成分が、実際の雨天時下水の生物処理や分流式下水処理場での高級処理水への簡易処理水混入において生物処理による水質変換過程が推察される簡易指標として関係性があることが示された。また、ピークピッキングによるFDOM成分の陸域由来フミン様成分がEEM-PARAFAC法によっても同様に分離され、実際の雨天時下水の凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として関連していることが示された。特に、高級処理水への簡易処理水混入では、分流式下水処理場の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができたが、簡易処理発生を見逃さない条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用するためには全蛍光成分の時間変化の相対値を用いることがより有力であることも示された。合流式下水処理場の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかったが、その時間変化の相対値は簡易処理発生を見逃さない条件下での簡易処理放流リスク評価へ十分適用できることも示された。

本章では、第3章で対象とした合流式の下水処理場からの雨天時下水中のFDOMが桂川に流入する際、受水域である桂川での降雨時のFDOMと衛生微生物の水質変化を検討し、河川水への簡易処理放流水混入指標としてFDOMの有効性を検討する(6.2参照)。また、分流式の下水処理場からの放流水混入率が1~7%程度と低い琵琶湖南湖から流出する瀬田川で、降雨時におけるFDOMと衛生微生物の水質変化を検討し、河川水への簡易処理水混入指標性としてのFDOMの有効性を検討する(6.3参照)。以上の通り、本章は第4章の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるFDOM成分のタンパク質様成分の利用性が、実際の河川水においてもEEM-PARAFAC法で適用できるかの検知性を検討するものである。

### 6.2 下水処理放流水混入率が高い河川(桂川)での調査

#### 6.2.1 調査概要

本調査の全体の流れを以下に述べる。本調査では、桂川下流域への放流量が最も大きい、第3章で対象とした合流式のB下水処理場に注目した。雨天時下水のうち流入水、初沈後水、終沈後水、放流水に着目して、FDOMの水質変化特性を確認する(6.2.3.2参照)。次に、第2章2.2.6.2(5)で紹介した西田らによる汚泥流出リスク予測手法を検証する研究事例(西田ら,2019)を参考に、放流先河川水への簡易処理水混入の検知指標として、DOM、FDOMの有効性を検討する(6.2.3.3,6.2.3.4参照)。最後に、A下水処理場の雨天時下水のうち放流水、放流先河川水での衛生微生物の存在実態を把握する(6.2.3.5参照)。

衛生微生物は、第3章の測定対象のうち指標候補微生物の大腸菌ファージGI, GII, GIII-FPH(Wolf *et al.*, 2008)とPMMoV(Zhang *et al.*, 2005)、病原微生物のノロウイルスの遺伝子群GI, GII-NoVである。

#### 6.2.2 調査方法

##### 6.2.2.1 採水地点

本調査での採水地点位置を図6-1に、採水対象の下水処理場の採水地点を図6-2に示す。雨天時において、B下水処理場(図6-1, B)の流入水、初沈後水、終沈後水及び放流水(図6-2)と、放流先である桂川の上流地点(久世橋, 図6-1地点A)及び下流地点(宮前橋, 図6-1地点D)の表層水を採水した。久

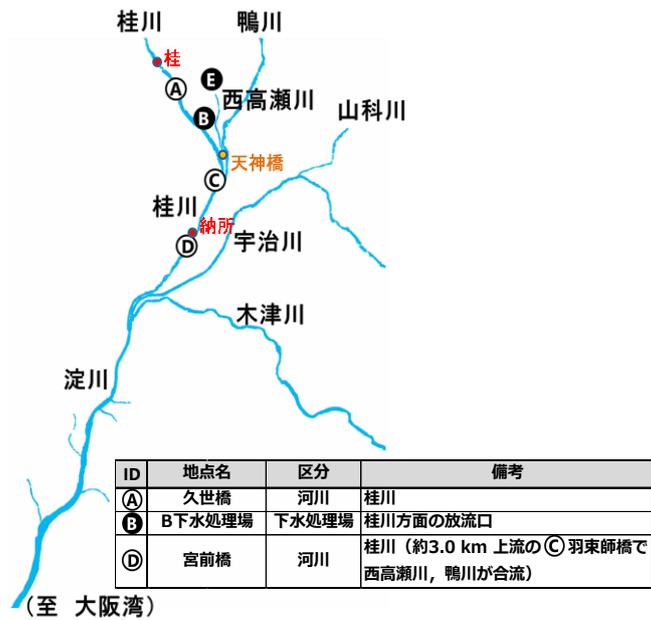


図 6-1 採水地点位置. 黒字(白丸)は河川地点, 白抜き字(黒丸)は下水処理場を示す. 赤字で表記の桂・羽束師及び納所は, 水位・流量の観測地点を示す. 橙字で表記の天神橋地点のある西高瀬川では, 河川水がほとんど下水処理場からの放流水である.

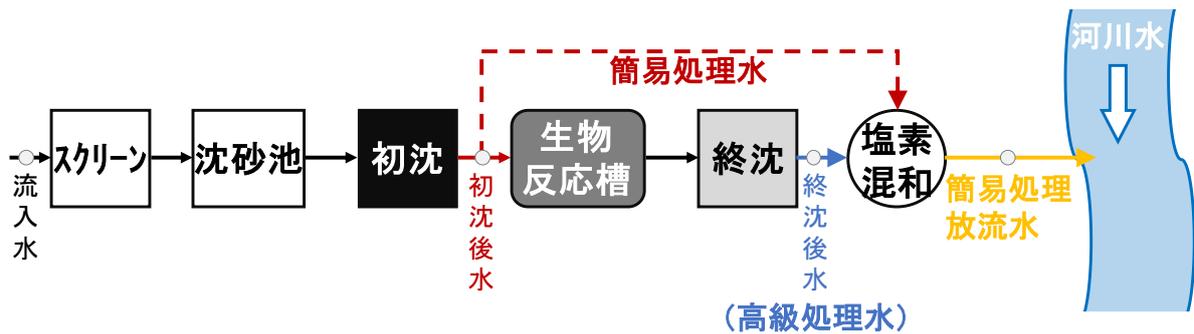


図 6-2 B 下水処理場の採水地点. 降雨時調査において, 場内の放流きよ内で下水処理放流水を 24 時間で連続採水し, 簡易処理放流水の採水を試みた. なお, B 下水処理場における簡易処理とは生物反応槽・最終沈殿池をバイパスさせることである(第 2 章 2.2.2 参照).

世橋(地点 A)及び宮前橋(地点 D)における水位及び流量は, それぞれ桂, 納所の各観測所(図 6-1, 名称表記)における水位の観測値を入力として, 河川管理者より提供を受けた H-Q 式を用いて流量を推定した. なお久世橋から宮前橋までの約 7.3 km の区間内で直接的に処理水を放流している下水処理場は, B 下水処理場の他に E 下水処理場(図 6-1, E)がある. また第 2 章 2.3.4.1 の図 2-9 で示したように, 下水処理場以外には合流式下水道の雨水吐口が複数の河川, 特に鴨川に沿って位置していると見込まれる.

採水を行った桂川の地点 A, D の概要や, B 及び E 下水処理場の概要については, 第 3 章 3.3.1 で詳述したとおりである. B 下水処理場からの放流先は桂川と西高瀬川の 2 河川である. 本調査では桂川への放流水を採水した. 特に, 第 5 章 5.3 高級処理水への簡易処理水混入の検証調査と同様, 桂川への放流する A 下水処理場 E~I 系, J~K 系の 2 つの処理系のうち日放流量が 364,000 m<sup>3</sup> 程度(京都市, 2017) と大きい, 第 5 章 5.3.2.1 (1) で述べた A 下水処理場 E~I 処理系の放流水を採水した.

### 6.2.2.2 採水日と採水方法

2018年2月10日～11日（1回目調査）、2月28日～3月1日（2回目調査）及び6月23日～24日（3回目調査）に雨天時調査を行った。各調査期間中の京都气象台での降雨強度（気象庁,2018）及びB下水処理場の放流量の経時変化を、図6-3に示す。また、各調査期間中の京都气象台での降雨強度及び河川の時間流量の推定値の経時変化を、図6-4に示す。B下水処理場では、全ての地点でコンポジット採水とした。1回目調査（総降雨量19.5mm）では流入水、初沈後水及び放流水を対象に1時間につき300mL/10minを6回の時間比例で、さらに終沈後水を対象に高級処理水量900m<sup>3</sup>あたり100mLの流量比例で、いずれも定置式自動採水器LYSAM-SN型（NKS社製）を用いて7～24時間の連続採水を行った。なお、流入水及び初沈後水については、簡易処理放流の発生前後に合わせて2月10日17:00～23:00の連続採水とした。2回目調査（総降雨量15.5mm）では放流水を対象に1時間につき500mL/20minを3回の時間比例で、定置式自動採水器LYSAM-SN型（NKS社製）を用いて16時間の連続採水を行った。3回目調査（総降雨量18.0mm）では放流水を対象に1時間につき300mL/10minを6回の時間比例で、定置式自動採水器LYSAM-SN型（NKS社製）を用いて24時間の連続採水を行った。一方の地点A及び地点Dでは、1,2,3回目調査とも、いずれの地点も20分につき50～100mL程度のスポット採水を人力で行った。地点Aでは1～2時間、地点Dでは5～11時間の連続採水を行った。

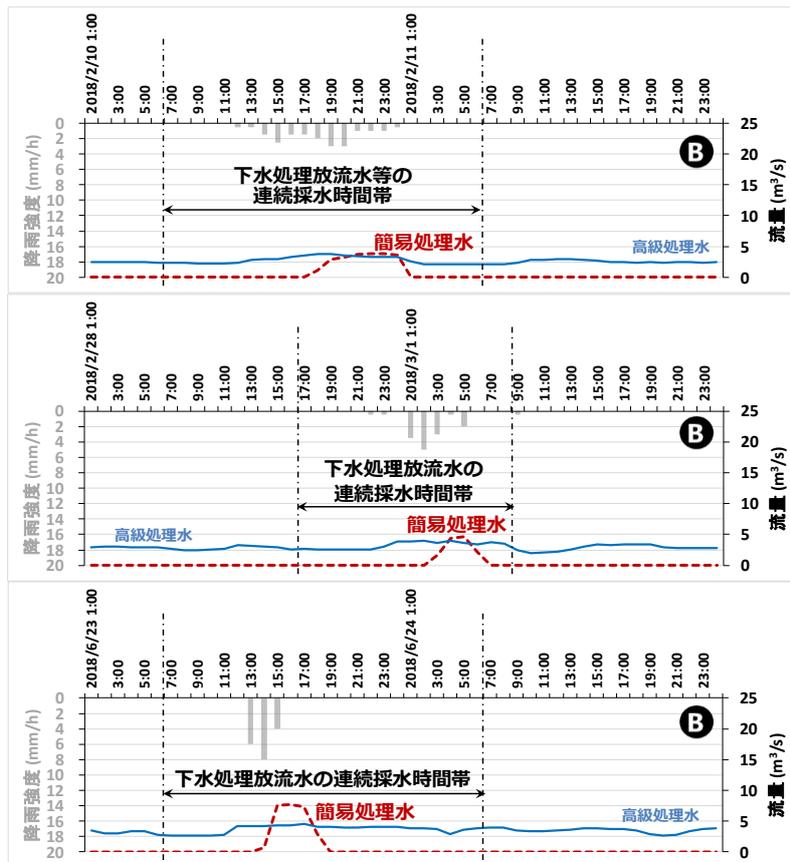


図6-3 B下水処理場放流量と降雨強度の経時変化。上から1回目調査（総降雨量19.5mm）、2回目調査（総降雨量15.5mm）、3回目調査（総降雨量18.0mm）。降雨強度は京都气象台のデータ（気象庁,2018）である。

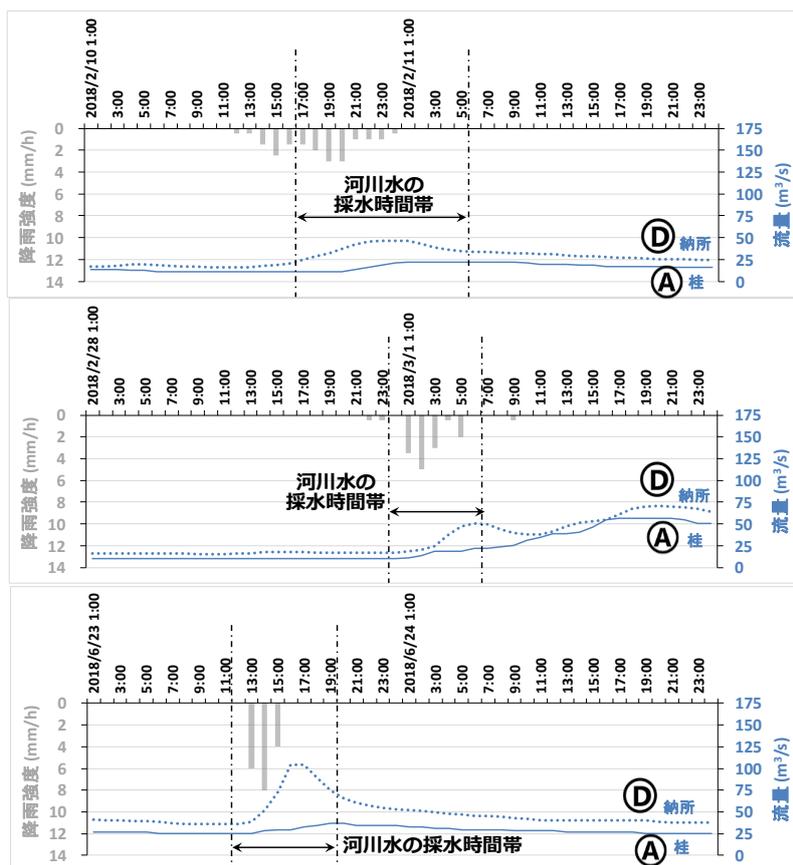


図 6-4 河川の時間流量の推定値. 上から 1 回目調査 (総降雨量 19.5 mm), 2 回目調査 (総降雨量 15.5 mm), 3 回目調査 (総降雨量 18.0 mm). 納所観測所 H-Q 式 (第 3 章で詳述) により, 納所観測所の水位 (m) のデータ (国土交通省, 2018) から流量 (m<sup>3</sup>/s) を推定した.

特に B 下水処理場では, 晴天時との比較のために, 2017 年 12 月 15 日~16 日, 2018 年 7 月 11 日~12 日に晴天時予備調査を行った. 2017 年 12 月 15 日~16 日の晴天時予備調査では流入水を対象に, 1 時間につき 500 mL のスポット採水をポータブル自動採水器 6712 型 (ISCO 社製) により 24 時間の連続採水を試みた. 一方 2018 年 7 月 11 日~12 日の晴天時予備調査では放流水を対象に, 1 時間につき 500 mL のスポット採水をポータブル自動採水器 6712 型 (ISCO 社製) により 24 時間の連続採水を試みた.

採水した試料のうち約 50 mL をポリプロピレン製遠沈管に収集し保冷したまま実験室に持ち帰り, 採取後 4~7 時間までにガラス繊維ろ紙 (Whatman 社製 GF/F, 公称粒子径 0.7 μm) でろ過後, ろ液を 5 °C の冷蔵庫で保存した. なお, ろ紙からの DOM の溶出を考慮し, あらかじめ約 50 mL の超純水で通水し, 通水後のろ紙からの DOM のろ液への溶出がみられないことを確認した.

### 6.2.2.3 分析方法

#### (1) DOM 及び FDOM

第 4 章 4.2.2 と同様, DOM 指標の DOC 濃度の測定には燃焼式全有機炭素分析装置 TOC-300V (Mitsubishi 社製) を用い, FDOM の EEM 測定 (2.4.3.1 参照) には分光蛍光強度計 Aqualog (Horiba 社製) を用いた.

## (2) 衛生微生物

本調査では、河川水中の衛生微生物の指標として有力な、GI, GII, GIII-FPH 及び PMMoV を、病原微生物として GI, GII-NoV を主要な試料のみ測定した。試料中のウイルスは Katayama *et al.* の手法である陰電荷膜法 (Katayama *et al.*, 2002) により濃縮した。一次濃縮液・二次濃縮・定量 PCR 法による遺伝子検出 (Hata *et al.*, 2011) の条件は第 3 章の実態調査と同様で第 3 章 3.5.2 の通りである。

### 6.2.2.4 解析方法

第 2 章 2.4.3.2 で詳述した PARAFAC により、対象水の EEM 上の重なり合う各ピーク群 (主成分) を推定することで分離し、FDOM の主成分を定量的に評価した。B 下水処理場 (合流式) における対象水としては、6.2.2.2 で述べた試料のほか、既報 (山口ら, 2020) による試料、雨天時予備調査 (2018 年 6 月に 1 回)、晴天時予備調査 (2017 年 12 月, 2018 年 2, 7 月に 1 回ずつ) で得られた試料を用いた。内訳は、第 5 章 5.3 の高級処理水への簡易処理水混入の検証調査と同様、流入水 (n = 70)、初沈後水 (n = 7)、終沈後水 (n = 3)、放流水 (n = 141) 及び放流先河川水 (n = 114) で、総数 335 である。なお、PARAFAC の条件については、第 5 章の検証調査と同様である。

### 6.2.2.5 桂川河川水への雨天時下水 (簡易処理水) 混入の評価

#### (1) 簡易処理水混入指標

第 5 章 5.3.2.5 と同様、桂川で簡易処理放流リスクの評価のため、いくつかの指標を用いて簡易処理発生を判定できるか検証した。河川水への簡易処理水の混入指標の候補は、(a) FDOM (タンパク質様成分)、(b) FDOM (全蛍光成分)、(c) DOM (DOC 濃度)、(d) FDOM/DOM (タンパク質様成分/DOC 濃度)、(e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) とした。(a)~(e) の各指標候補について、宮前橋で採水した時刻を、B 処理場の簡易処理水の宮前橋地点への流下到達が想定される時刻として注目した評価も行った。

本調査における河川水への簡易処理水混合の管理基準は、桂川納所観測所における河川流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) に対する簡易処理水量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) の割合である下水混入率とした。一方、簡易処理水混入指標の候補 (a)~(e) で設定したリスク判定基準は安全側を考慮し、下水混入率が基準値 0 % を超過した時点での各指標候補の絶対値の最小値を設定した (6.2.3.4 で詳述)。

なお、B 下水処理場における簡易処理放流発生と、桂川地点 D の宮前橋での河川水への簡易処理水の混入指標との流下時間による時差については、納所地点での調査期間ごとの最大河川流量を仮定して計算した。具体的には、納所地点における平均流速  $v$  と流量  $Q$  の関係式  $v = 0.099\sqrt{Q} - 0.194$  (杉下, 2009) から調査期間ごとの最大流速を推定した。B 下水処理場放流口~宮前橋地点間では流速 0.42 m/s に対し流下時間 218 min との試算結果 (杉下, 2009) を参考に、B 下水処理場放流口から宮前橋地点までの流下時間を、1, 2, 3 回目調査でそれぞれ 140 min, 140 min, 80 min と仮定した。

#### (2) 評価精度の検証方法

第 5 章 5.3.2.5 (2) と同様、5 つの指標による簡易処理水量の河川水量に対する混入率を、指標の値ごとに大小関係を比較し、評価精度を検証した。

## 6.2.3 調査結果及び考察

### 6.2.3.1 B 下水処理場の下水，下水処理水及び桂川河川水中の FDOM の主成分推定

図 6-5 に、EEM-PARAFAC で得られた B 下水処理場（合流式）における総数 335 の EEM データセットに共通して存在するピークの主成分のスペクトルを分離した結果を示す。また、分離された各ピーク主成分の励起スペクトル及び蛍光スペクトルの負荷量（loading）の分布を、図 6-6 に示す。EEM-PARAFAC で得られた B 下水処理場（合流式）における総数 335 の EEM データセットには、3 つのピーク主成分（Comp.1, Comp.2 及び Comp.3）が共通して存在していた。Stedmon and Markager, Yamashita *et al.*, Lu *et al.*によると、Comp.1（Ex: 254, 338 nm, Em: 436 nm）は陸域由来フミン様成分、Comp.2（Ex: 275 nm, Em: 335 nm）はタンパク質様成分と類似したピークスペクトルを有する（Stedmon and Markager, 2005; Yamashita *et al.*, 2010; Lu *et al.*, 2013）。また、Yamashita *et al.*, Lu *et al.*によると、Comp.3（Ex: 239, 305 nm, Em: 348 nm）は生物由来のフミン様成分と類似したピークスペクトルを有する（Yamashita *et al.*, 2010; Lu *et al.*, 2013）と報告されている。この生物由来フミン様成分とは、生物学的及び／または微生物起源のもので、植物プランクトン由来の非蛍光性 DOM から細菌の働きにより生成され（Rochelle-Newall and Fisher, 2005）る SMP 様物質の一種と考えられ、第 5 章の検証調査の解析からは分離されなかった。生物由来フミン様成分は、第 2 章 2.4.3.4 で述べたように、Cohen *et al.*によるとタンパク質様成分と同様に生物学的処理により減少する（Cohen *et al.*, 2014）。なお、第 2 章 2.4.3.4 で述べた、小松らが下水処理放流水中の図 2-17（清水ら, 2015）に示されていない特異的な FDOM 成分として着目している（小松ら, 2019）、既報（Komatsu *et al.*, 2019）より生活雑排水起源である可能性が示唆されている Ex: 491 nm, Em: 515 nm 付近にピークを持つ河川水中の下水由来成分（Cory and Kaplan, 2012）は、本調査の解析から分離されなかった。Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の全ピークスペクトルに対する寄与率は、それぞれ 36 %, 35 %, 25 %であった。

Stedmon and Markager による淡水・海水・下水処理放流水 1,276 試料での解析結果では、Ex: <250 nm, Em: 448 nm 付近に、下水中に存在せず森林あるいは農地に由来する FDOM のピーク主成分（No.1）が推

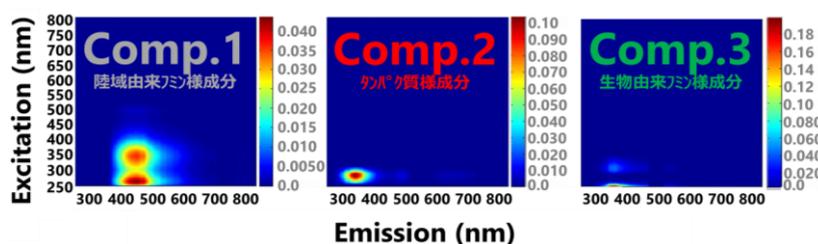


図 6-5 B 下水処理場（合流式）及び桂川河川水における総数 335 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル。段彩法表記の数字は、励起及び蛍光スペクトルの負荷量（loading）の積を示す。

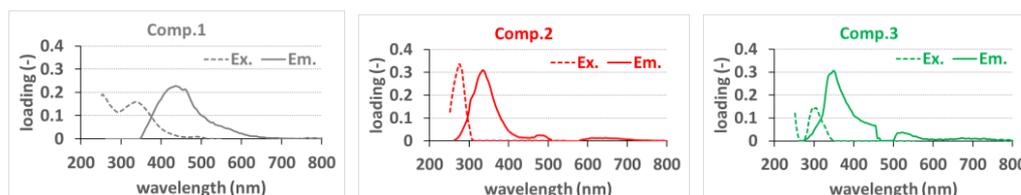


図 6-6 B 下水処理場（合流式）及び桂川河川水における総数 335 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量（loading）の分布。

定された (Stedmon and Markager, 2005). しかし, 本研究ではこのような森林や農地に由来している FDOM 推定されなかった. これは, 本調査における採水地点のほとんどが, 森林または農地の土壌より, むしろ都市下水の影響を大きく受けているためと考えられる. さらに, 本研究における採水時間帯の大部分が, 雨天時の簡易処理放流の影響を大きく受けているためと考えられる.

### 6.2.3.2 降雨時における B 下水処理場での FDOM の動態

1 回目調査 (総降雨量 19.5 mm) における晴天時流入水 (予備調査), 雨天時流入水, 雨天時初沈後水, 雨天時終沈後水及び雨天時放流水の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f と DOC 濃度の経時変化を, 図 6-7 に示す. また, 1 回目調査における晴天時流入水 (予備調査), 雨天時流入水, 雨天時初沈後水, 雨天時終沈後水及び雨天時放流水の DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率の経時変化を, 図 6-8 に示す. Comp.f を用いる理由は, 試料中の FDOM 全成分の相対的な量を指標として推定し, 試料間で比較するためである. 本研究では, 便宜的に主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 を同じ重みで積み上げた指標 (山口ら, 2018; 山口ら, 2019) として, FDOM 全成分を図示した.

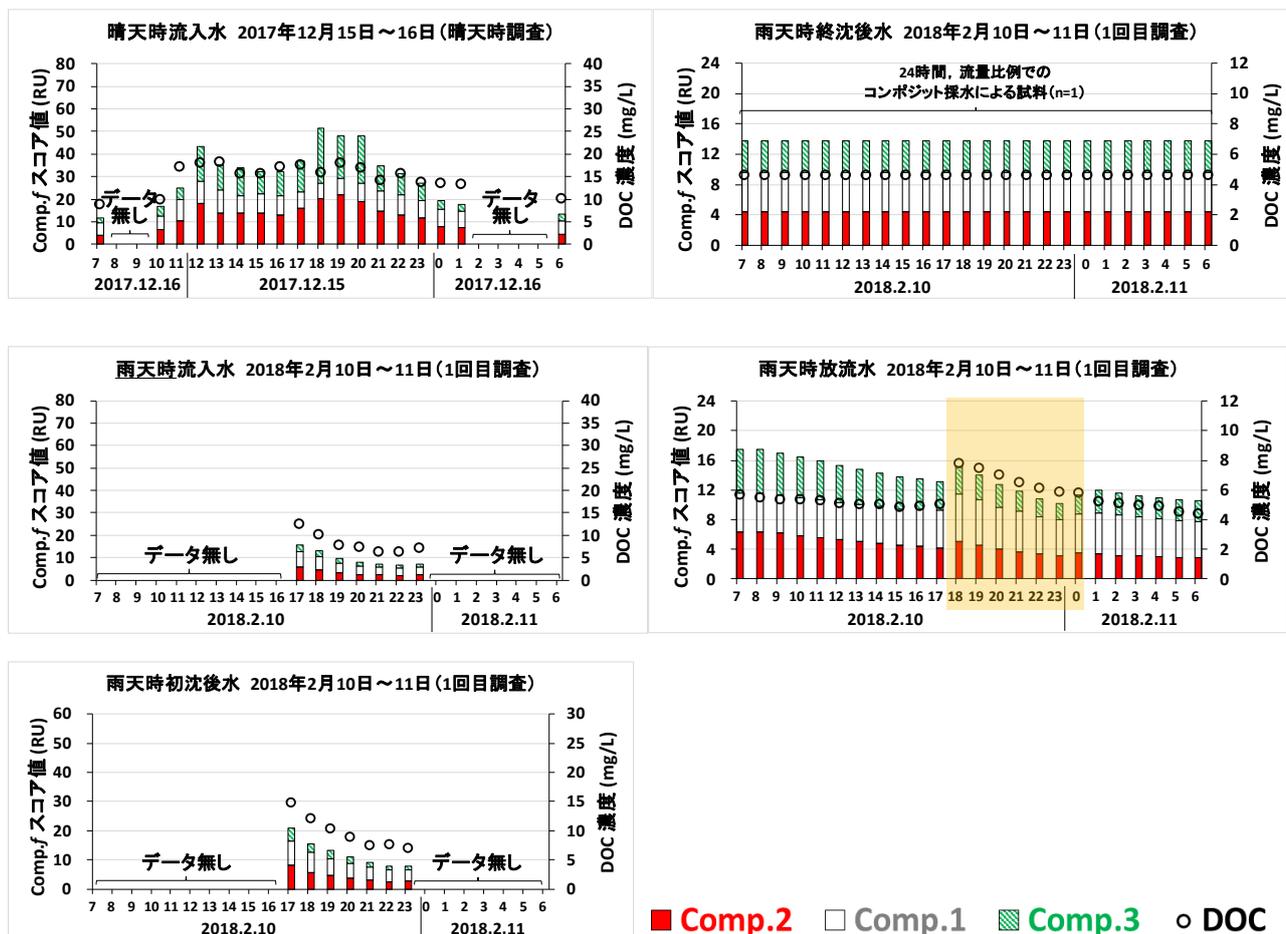


図 6-7 B 下水処理場での 1 回目調査 (総降雨量 19.5 mm) における主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f と DOC 濃度の経時変化. 左上より晴天時流入水, 雨天時流入水及び雨天時初沈後水, 右上より雨天時終沈後水及び雨天時放流水の順に示す. 晴天時流入水については 1 回目調査と同時刻になるようプロットした. 雨天時放流水におけるハイライトは簡易処理発生時間帯.

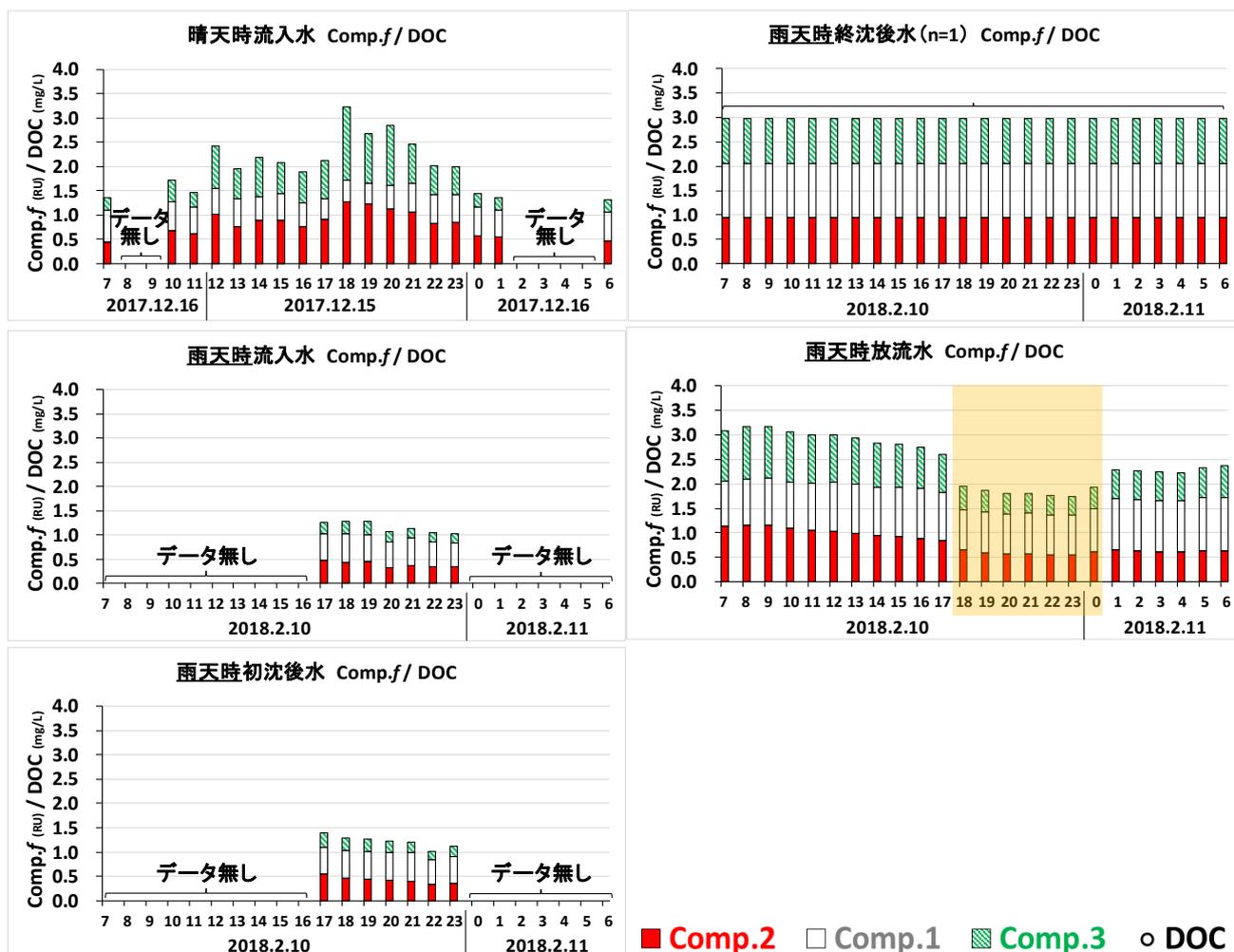


図 6-8 B 処理場での 1 回目調査における DOC 濃度に対する主成分スコア値  $Comp.f$  ( $f=1,2,3$ ) の比率の経時変化. 左上より晴天時流入水, 雨天時流入水及び雨天時初沈後水, 右上より雨天時終沈後水及び雨天時放流水の順に示す. 晴天時流入水については 1 回目調査と同時刻になるようプロットした. 雨天時放流水におけるハイライトは簡易処理の時間帯.

図 6-8 の DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率について, 雨天時流入水は晴天時流入水より相対的に低い結果となった. これは, 雨天時流入水中に  $Comp.1$ ,  $Comp.2$  及び  $Comp.3$  以外の DOM も存在していたことを示しており, 蛍光性を有しない面源由来の DOM である可能性が考えられる. Stedmon and Markager による淡水・海水・下水処理放流水 1,276 試料での解析結果では, Ex: <250 nm, Em: 448 nm 付近に, 森林または農地に由来する FDOM のピーク主成分 (No.1) が推定された (Stedmon and Markager, 2005). また, Ex: 325 nm, Em: 428 nm 付近及び Ex: <250 nm (320 nm), Em: 400 nm 付近には農地由来らしき FDOM のピーク主成分 (No.5,6) が推定された (Stedmon and Markager, 2005). よって, 本研究で示唆された蛍光性を有しない面源由来の DOM は, 森林または農地の土壌よりは, むしろ都市域における路面, 屋根面及び下水管内の堆積物に由来している可能性が考えられる. また,  $Comp.1$ ,  $Comp.2$  及び  $Comp.3$  以外の DOM が雨天時初沈後水にも存在し, 2018 年 2 月 10 日 18:00 以降の雨天時放流水中 DOC 濃度が 7.8 mg/L 程度まで上昇し, さらに DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率を下げる結果となった. これは, 雨天時流入水中に存在する  $Comp.1$ ,  $Comp.2$  及び  $Comp.3$  以外の DOM が, 簡易処理放流により生物

処理されないままバイパスしたため、雨天時放流水中にも Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 以外の DOM が存在していたことを示しており、雨天時流入水に特有の都市域における路面、屋根面及び下水管内の堆積物に由来する DOM である可能性が考えられる。

3 つのピーク主成分の全体に占める各ピーク主成分の相対的な存在割合を示す指標として、Lu *et al.*を参考に式(6-1)に従い%Comp.f (f=1,2,3) を算出 (Lu *et al.*, 2013) した。

$$\%Comp.f = \frac{Comp.f \times 100}{Comp.1 + Comp.2 + Comp.3} \quad (6-1)$$

1 回目調査における雨天時初沈後水及び雨天時放流水に関する、式(6-1)に従い算出された各ピーク主成分の相対的な存在割合 (%Comp.1, %Comp.2 及び%Comp.3) の経時変化を、図 6-9 に示す。各ピーク主成分の比率を見ると、雨天時初沈後水、雨天時放流水ともに%Comp.2 が図 6-7 における DOC 濃度と類似の減少傾向を示し、特に雨天時放流水では、DOC 濃度のピークが現れる 2 月 10 日 18:00 に%Comp.2 の微小な増加がみられた。これは、晴天時流入水に相対的に多く含まれる FDOM のうち、簡易処理水の雨

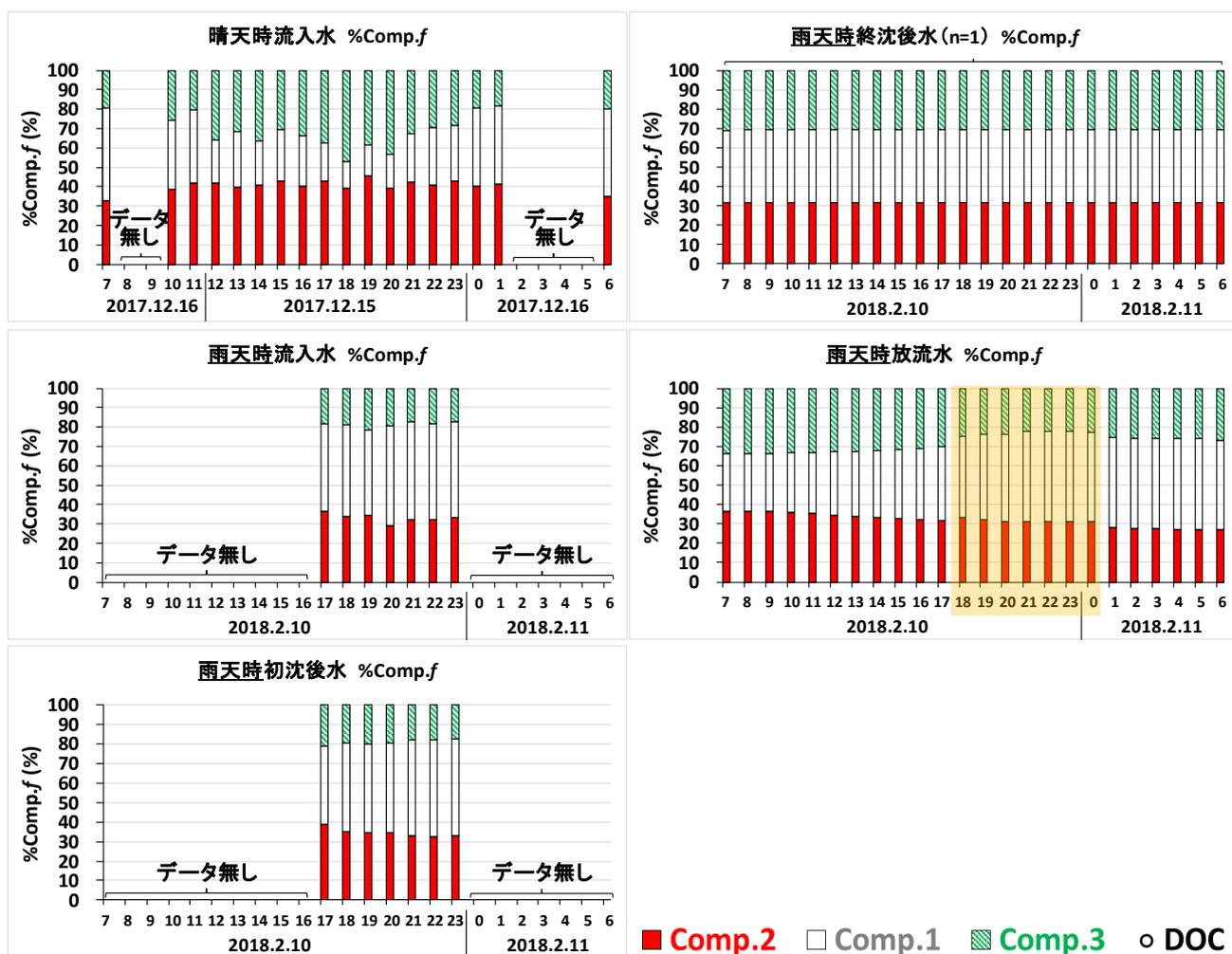


図 6-9 1 回目調査における各ピーク主成分の相対的な存在割合%Comp.f (f=1,2,3) の経時変化. 左上より晴天時流入水, 雨天時流入水及び雨天時初沈後水, 右上より雨天時終沈後水及び雨天時放流水の順に示す. 晴天時流入水については 1 回目調査と同時刻になるようプロットした. 雨天時放流水におけるハイライトは簡易処理の時間帯.

天時放流水質へ与える影響の最も大きいものは Comp.2 である可能性があることを示している。したがって、簡易処理放流による雨天時放流水質の悪化を監視するうえで、簡易指標として Comp.2 が有力であると考えられる。

### 6.2.3.3 B 下水処理場での降雨時における下水処理放流水，河川水中 FDOM の存在実態

2,3 回目調査（総降雨量 15.5 mm, 18.0 mm）における雨天時放流水，晴天時放流水（予備調査）及び雨天時河川水の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f と DOC 濃度の経時変化を，図 6-10 に示す。また，2,3 回目調査における雨天時放流水及び雨天時河川水の DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率，各ピーク主成分の相対的な存在割合の経時変化を，図 6-11 に示す。

図 6-10 上段左図の 2 回目調査において簡易処理の発生した 2018 年 3 月 1 日 2:00 以降，雨天時放流水中 DOC 濃度が上昇し，3:00 に 9.4 mg/L 程度まで達した。図 6-11 上段左図に示す通り DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率は，3 月 1 日 2:00 以降で下がる結果となった。これは，1 回目調査と同様，Comp.1,

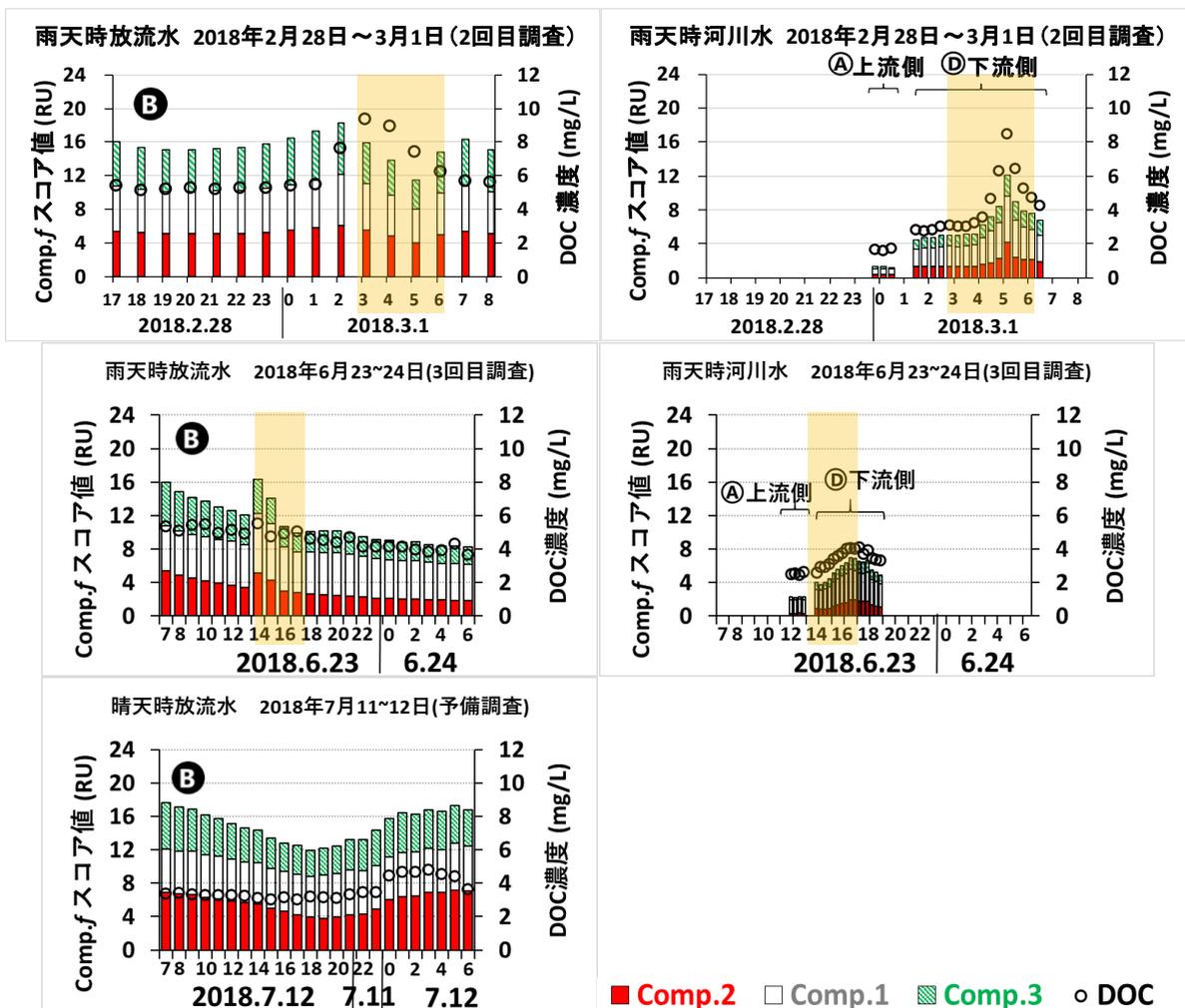


図 6-10 2,3 回目調査（総降雨量 15.5 mm, 18.0 mm）における DOC 濃度に対する主成分スコア値の比率の経時変化。左上より雨天時放流水（2 回目調査），雨天時放流水（3 回目調査）及び晴天時放流水，右上より雨天時河川水（2 回目調査）及び雨天時河川水（3 回目調査）の順に示す。晴天時放流水については 3 回目調査と同時刻になるようプロットした。ハイライトは簡易処理の時間帯。

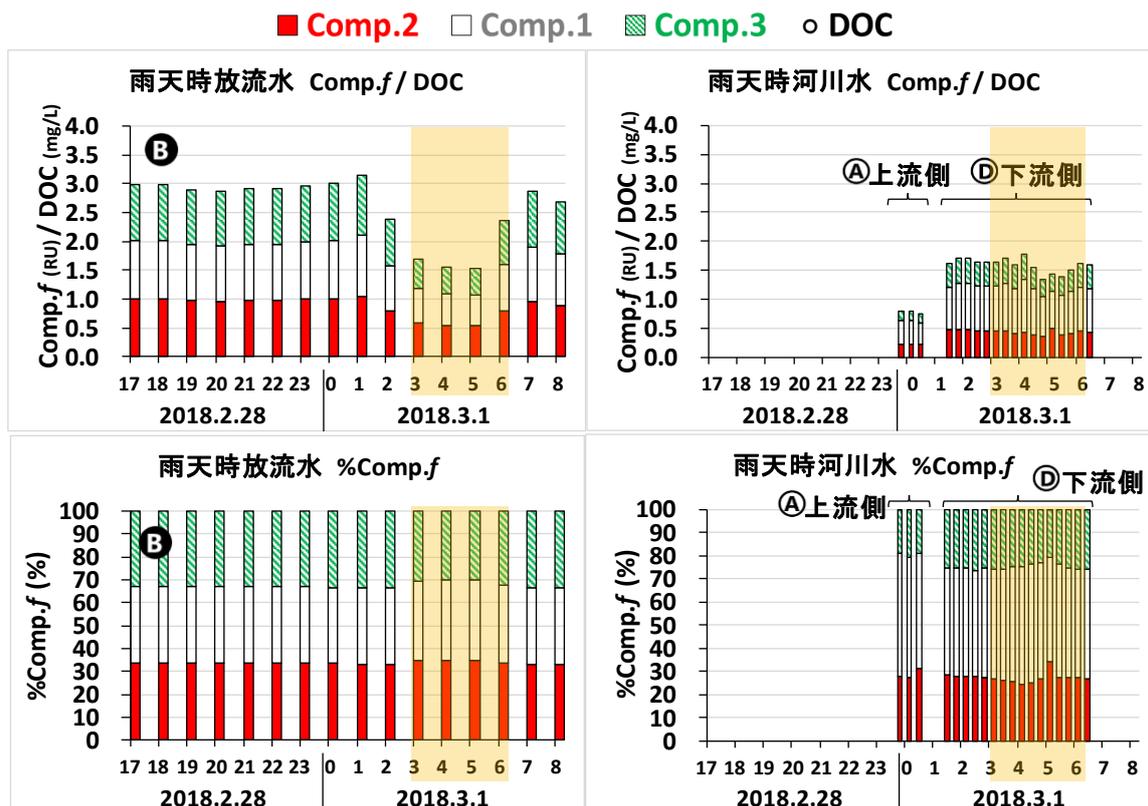


図 6-11 2 回目調査における DOC 濃度に対する主成分スコア値 Comp.f (f = 1,2,3) の比率, 各ピーク主成分の相対的な存在割合 %Comp.f (f = 1,2,3) の経時変化. 左段が雨天時放流水, 右段が雨天時河川水. 上から, Comp.f/DOC, %Comp.f. ハイライトは簡易処理の時間帯.

Comp.2 及び Comp.3 以外の DOM も雨天時放流水中に多く存在していたことを示しており, 蛍光性を有しない雨天時流入水特有の都市域の路面, 屋根面及び下水管内の堆積物に由来する DOM である可能性が考えられる. 一方, 図 6-10 中段左図の 3 回目調査において簡易処理の発生した 2018 年 6 月 23 日 14:00 以降, 雨天時放流水中 Comp.f スコア値が上昇し, 特に Comp.2 は 14:00 に 5.2 RU 程度まで達した. 図 6-10 下段左図に示す晴天時放流水質の経時変化と同時刻と比較すると, 簡易処理開始すぐに Comp.2 が急激に増加する結果となった. これは, 1 回目調査と異なり, 特に Comp.2 の FDOM も雨天時放流水中, 特にファーストフラッシュに多く存在していたことを示しており, 時間帯により都市域の路面, 屋根面及び下水管内の堆積物に FDOM も存在している可能性が考えられる.

一方, 図 6-10 上段右図の 2 回目調査, 図 6-10 中段右図の 3 回目調査ともに, Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の FDOM が, B 下水処理場放流口の上流側 (地点 A) より下流側 (地点 D) の雨天時河川水に多く存在した. また, 2 回目調査の 3 月 1 日 4:20 以降, 下流側 (地点 D) の雨天時河川水中 DOC 濃度, Comp.2 スコア値が上昇し, 5:00 にそれぞれ 8.5 mg/L 程度, 4.4 RU 程度まで達した. さらに, 3 回目調査の 6 月 23 日 15:20 以降, 下流側 (地点 D) の雨天時河川水中 DOC 濃度, Comp.2 スコア値が上昇し, 16:40 にそれぞれ 4.0 mg/L 程度, 1.9 RU 程度まで達した. よって DOC 濃度の変化は主成分スコア値, 特に Comp.2 スコア値の変化で概ね説明できる結果となった. これは, 上流側 (地点 A) の雨天時河川水の主成分スコア値が雨天時放流水の主成分スコア値より低いため, 下流側 (地点 D) では雨天時放流水の影響が大きく現れたことを示しており, 晴天時流入水由来の FDOM が B 下水処理場放流口から 2 時間程度で

流下してきた可能性が考えられる。

図 6-11 下段に示す 2 回目調査における雨天時放流水及び雨天時河川水の%Comp.1, %Comp.2 及び%Comp.3 について, 特に雨天時河川水では, 下流側(地点 D)の雨天時河川水の%Comp.2 が 3 月 1 日 5:00 に現れる DOC 濃度のピークとよく一致する結果となった。これは, 晴天時流入水に相対的に多く含まれる FDOM のうち, 簡易処理放流水の下流側の雨天時河川水質へ与え得る影響の最も大きかったものは Comp.2 であることを示している。したがって, 簡易処理放流等による雨天時河川水質の悪化を監視するうえで, 簡易指標として Comp.2 が有力であると考えられる。

2, 3 回目調査における降雨強度, B 下水処理場放流量及び河川流量の経時変化を, 図 6-12 に示す。図 6-12 左側の 2 回目調査における雨天時における河川流量の上下流での収支については, 下流側(地点 D)における 3 月 1 日 5:00 での流量が, 上流側(地点 A)及び D 下水処理場における 3:00 での流量の総和より 1.4 倍程度高い結果となった。この結果は, 下水処理放流量が非降雨時の 21:00 に比べ降雨により 4:00 で 3.4 倍程度に増加する B 下水処理場以外にも, 雨天時特有の桂川への DOM 負荷源が存在することを示しており, B 下水処理場下流の地点 C 付近で合流する鴨川に沿って位置している合流式下水道の雨水吐口である可能性が考えられる。図 6-10 右側の 3 回目調査においても類似の結果となり, B 下水処理場以外にも雨天時特有の桂川への DOM 負荷源が存在し, それは雨水吐口の可能性が考えられる。

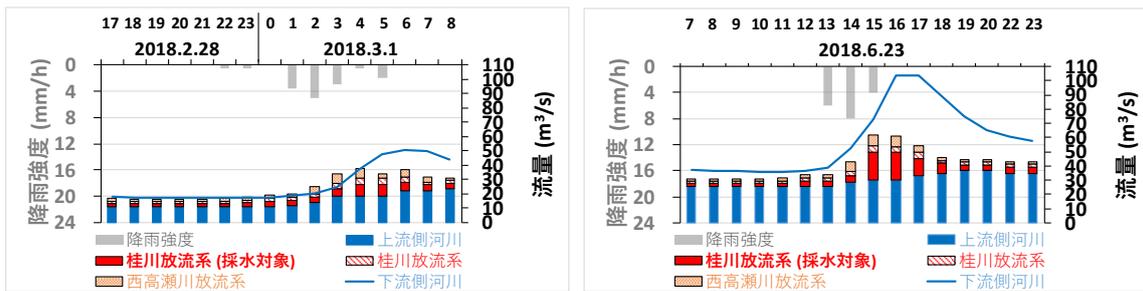


図 6-12 2, 3 回目調査における B 下水処理場放流量及び河川流量の経時変化。左図が 2 回目調査, 右図が 3 回目調査。

#### 6.2.3.4 河川水への雨天時下水(簡易処理水)混入の評価判定

本調査における桂川河川水に対し, 6.2.2.5 (1) に示した簡易放流水の流下時間を考慮した宮前橋での 5 つの簡易処理水混入指標の候補 ((a) FDOM (タンパク質様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOM (タンパク質様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度)) による, 簡易処理放流リスクの評価精度を, 絶対値と時間変化量の相対値で検証した。簡易処理水混入指標の候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 6-13 に, 検証結果を表 6-1 に示す。検証については, 6.2.2.5 (2) に示した簡易処理発生を見逃し False Negative (FN) となるデータ数を 0, 1, 2, 4, 5, 6 となるよう 6 通りのシナリオを設定し, シナリオ毎で検証結果を示す。

図 6-13 の指標候補 (a)~(e) と下水混入率の関係を以下に述べる。下水混入率は最大 30 %であった。(a) では Comp.2 スコア値が 1.06 RU, (b) では Comp.f スコア値が 4.88 RU, (c) では DOC 濃度が 3.16 mg/L, (d) では Comp.2 スコア値/DOC 濃度が 0.321 RU/(mg/L), (e) では Comp.f スコア値/DOC 濃度が 1.32 RU/(mg/L)より大きい範囲において, 下水混入率が基準値 0 %を超過した。よって (a)~(e) に係るリスク判定基準として, それぞれ 1.06 RU, 4.88 RU, 3.16 mg/L, 0.321 RU/(mg/L), 1.32 RU/(mg/L)を設定した。

一方、表 6-1 の検証結果について以下に述べる。まず、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する FN となるデータ数 0 のシナリオにおいて、(b) 及び (c) では他と比べて False Positive (FP) となるデータ数がともに 6 と少なくなることで適合率はいずれも 0.85 と高くなり、結果的に F 値がいずれも 0.92 と比較的高くなった。次に、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の、FN となるデータ数 1 のシナリオにおいても、(b) 及び (c) では他と比べて False Positive (FP) となるデータ数がともに 5 と少なくなることで適合率はいずれも 0.87 と高くなり、結果的に F 値がいずれも 0.92 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 2 のシナリオにおいて、(b) では他と比べて FP となるデータ数が 4 と少なくなることで適合率は 0.89 と高くなり、結果的に F 値が 0.91 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 4 のシナリオにおいても、(b) では他と比べて FP となるデータ数が 3 と少なくなることで適合率は 0.91 と高くなり、結果的に F 値が 0.90 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 5 のシナリオにおいて、(a) 及び (b) では他と比べて FP となるデータ数が 3 と少なくなることで適合率は 0.91 と高くなり、結果的に F 値が 0.88 と比較的高くなった。最後に、FN となるデータ数 6 のシナリオにおいて、(a)、(b) 及び (c) では他と比べて FP となるデータ数が 3 と少なくなることで適合率は 0.90 と高くなり、結果的に F 値が 0.86 と比較的高くなった。

以上により、簡易処理発生を確実に判定する FN となるデータ数 0, 1 (再現率 1.00, 0.87) の条件下では、(b)FDOM (全蛍光成分), (c)DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が最も高いが、特に適合率や F 値に関し(b)FDOM (全蛍光成分), (c)DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて

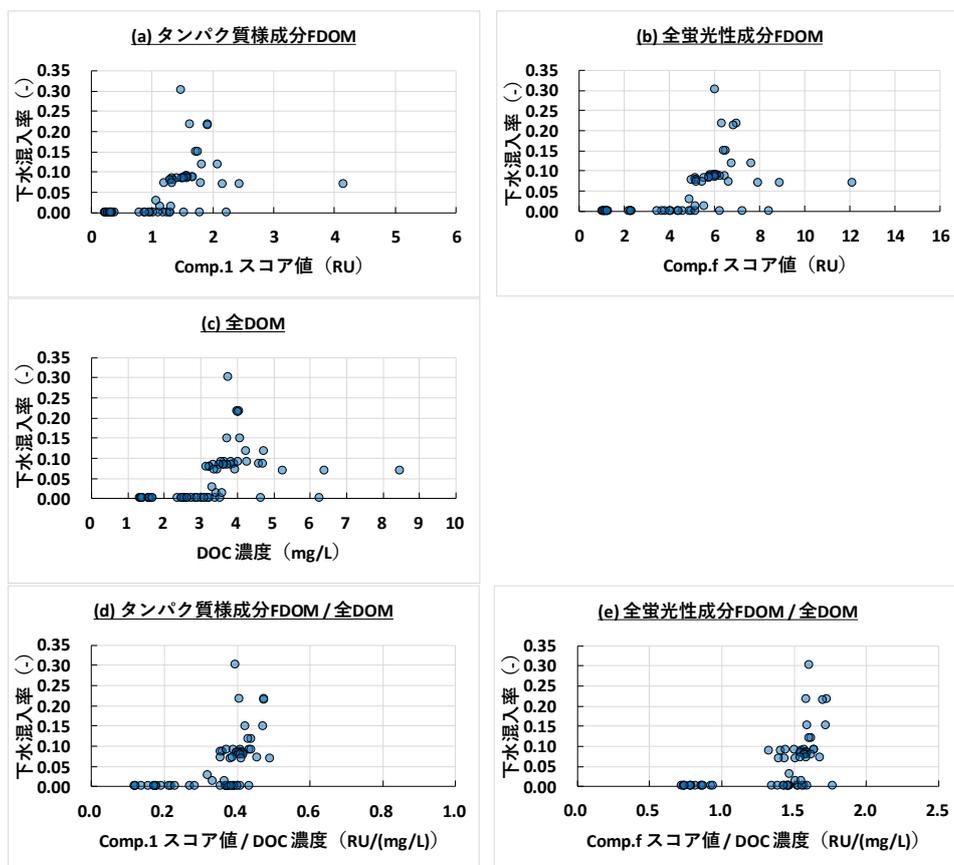


図 6-13 桂川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の判断基準である下水混入率の関係 (n = 61)。

表 6-1 桂川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果. 上より FN となるデータ数 0, 1, 2, 4, 5, 6 のシナリオ (n = 61).

項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.06 RU	> 4.88 RU	> 3.16 mg/L	> 0.321 RU/(mg/L)	> 1.32 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 34	34	34	34	34
	FN	0	0	0	0	0
	= 0.0 のデータ数	FP 8	6	6	12	14
	TN	19	21	21	15	13
正解率: (TP+TN)/全データ		0.87	0.90	0.90	0.80	0.77
適合率: TP/(TP+FP)		0.81	0.85	0.85	0.74	0.71
再現率: TP/(TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.89	0.92	0.92	0.85	0.83
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.14 RU	> 4.97 RU	> 3.22 mg/L	> 0.333 RU/(mg/L)	> 1.39 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 33	33	33	33	33
	FN	1	1	1	1	1
	= 0.0 のデータ数	FP 7	5	5	12	12
	TN	20	22	22	15	15
正解率: (TP+TN)/全データ		0.87	0.90	0.90	0.79	0.79
適合率: TP/(TP+FP)		0.83	0.87	0.87	0.73	0.73
再現率: TP/(TP+FN)		0.97	0.97	0.97	0.97	0.97
F値		0.89	0.92	0.92	0.84	0.84
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.20 RU	> 5.14 RU	> 3.24 mg/L	> 0.355 RU/(mg/L)	> 1.40 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 32	32	32	32	32
	FN	2	2	2	2	2
	= 0.0 のデータ数	FP 6	4	5	12	12
	TN	21	23	22	15	15
正解率: (TP+TN)/全データ		0.87	0.90	0.89	0.77	0.77
適合率: TP/(TP+FP)		0.84	0.89	0.86	0.73	0.73
再現率: TP/(TP+FN)		0.94	0.94	0.94	0.94	0.94
F値		0.89	0.91	0.90	0.82	0.82
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.30 RU	> 5.17 RU	> 3.34 mg/L	> 0.360 RU/(mg/L)	> 1.436 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 30	30	30	30	30
	FN	4	4	4	4	4
	= 0.0 のデータ数	FP 5	3	4	11	10
	TN	22	24	23	16	17
正解率: (TP+TN)/全データ		0.85	0.89	0.87	0.75	0.77
適合率: TP/(TP+FP)		0.86	0.91	0.88	0.73	0.75
再現率: TP/(TP+FN)		0.88	0.88	0.88	0.88	0.88
F値		0.87	0.90	0.88	0.80	0.81
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.33131 RU	> 5.21 RU	> 3.38 mg/L	> 0.366 RU/(mg/L)	> 1.46 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 29	29	29	29	29
	FN	5	5	5	5	5
	= 0.0 のデータ数	FP 3	3	4	11	8
	TN	24	24	23	16	19
正解率: (TP+TN)/全データ		0.87	0.87	0.85	0.74	0.79
適合率: TP/(TP+FP)		0.91	0.91	0.88	0.73	0.78
再現率: TP/(TP+FN)		0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
F値		0.88	0.88	0.87	0.78	0.82
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.1スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.1スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 1.33134 RU	> 5.22 RU	> 3.43 mg/L	> 0.372 RU/(mg/L)	> 1.50 RU/(mg/L)
下水混入率	> 0.0 のデータ数	TP 28	28	28	28	28
	FN	6	6	6	6	6
	= 0.0 のデータ数	FP 3	3	3	9	6
	TN	24	24	24	18	21
正解率: (TP+TN)/全データ		0.85	0.85	0.85	0.75	0.80
適合率: TP/(TP+FP)		0.90	0.90	0.90	0.76	0.82
再現率: TP/(TP+FN)		0.82	0.82	0.82	0.82	0.82
F値		0.86	0.86	0.86	0.79	0.82

最も高くなることが示唆された. また下水混入率の基準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 2, 4 (再現率 0.94, 0.88) の条件下では, (b) FDOM (全蛍光成分) の絶対値の適用可能性が最も高いが, 適合率や F 値に関しさらなる改善の余地があることが示唆された. また下水混入率の基準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 5 (再現率 0.85) の条件下では, (a) FDOM (タンパク質様成分), (b) FDOM (全蛍光成分) の絶対値の適用可能性が比較的高いが, 適合率や F 値に関しさらなる改善の余地がある

ことが示唆された。さらに下水混入率の基準値超過の判定漏れを示す FN となるデータ数 6 (再現率 0.82) の条件下では、(a) FDOM (タンパク質様成分)、(b) FDOM (全蛍光成分)、(c) DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に適合率や F 値に関しさらなる改善の余地があることが示唆された。

本調査のうち 6.2.2.5 (1) で仮定した、簡易処理放流発生 の判断基準と簡易放流水の流下時間を考慮し、宮前橋で C 下水処理場の簡易処理水の到達を捉えた可能性のある 2, 3 回目調査に関して述べる。桂川河川水に対する簡易処理水混入指標 (a)~(e) の時間変化量 (20 分間での変化量) と河川水に対する簡易処理放流水量の混入率との関係を図 6-14 に示す。また、その結果をもとに簡易処理放流水の混入指標 (a)~(e) がどの程度正しく判定できているのかを表 6-2 に、6.2.2.5 (1) に示した簡易処理発生を見逃し FN となるデータ数 0 となる設定での結果を示す。図 6-14 の指標候補 (a)~(e) の時間変化量と下水混入率の関係について以下に述べる。下水混入率は最大 7% であった。(a) では Comp.2 スコア値の時間変化量が 0.259 RU/20 min, (b) では Comp.f スコア値の時間変化量が 0.727 RU/20 min, (c) では DOC 濃度の時間変化量が 0.317 (mg/L)/20 min, (d) では Comp.2 スコア値 / DOC 濃度の時間変化量が 0.0492 {RU/(mg/L)}/20 min, (e) では Comp.f スコア値 / DOC 濃度の時間変化量が 0.0799 {RU/(mg/L)}/20 min より小さい範囲において、下水混入率が基準値 0% を超過した。このことから (a)~(e) に係るリスク判定基準として、それぞれ 0.259 RU/20 min, 0.727 RU/20 min, 0.317 (mg/L)/20 min, 0.0492 {RU/(mg/L)}/20 min, 0.0799 {RU/(mg/L)}/20 min を設定した。一方、表 6-3 の検証結果については、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する FN となるデータ数 0 となるシナリオのみを示す。(a), (d) では他と比べて FP となるデータ数がそれぞれ 1, 0 とな

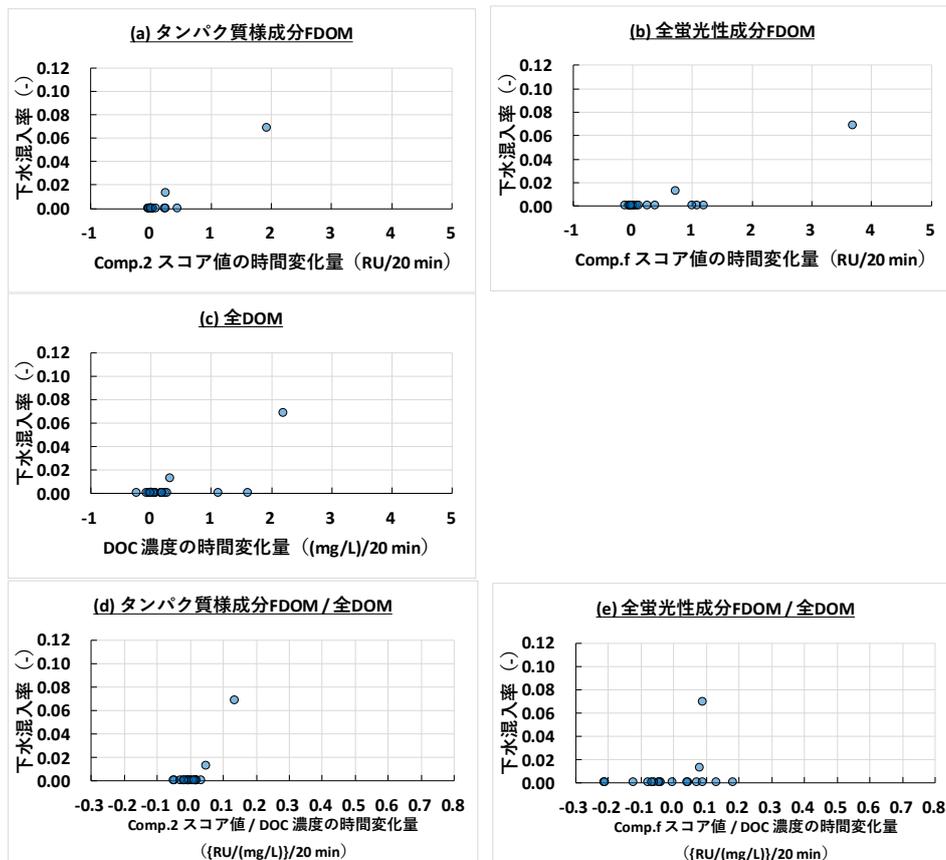


図 6-14 2, 3 回目調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生 の管理基準である下水混入率の関係 (n = 18)。

表 6-2 2,3 回目調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果 (n = 18).

項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.2スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.2スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> 0.259 RU/20 min	> 0.727 RU/20 min	> 0.317 (mg/L)/20 min	> 0.0492 RU/(mg/L)/20 min	> 0.0799 RU/(mg/L)/20 min
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 2	2	2	2	2
	= 0.0 のデータ数	FN 0	0	0	0	0
		FP 1	3	2	0	3
	TN 15	13	14	16	13	
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.94	0.83	0.89	1.00	0.83
適合率: TP / (TP+FP)		0.67	0.40	0.50	1.00	0.40
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.80	0.57	0.67	1.00	0.57

ることで適合率はそれぞれ 0.67, 1.00 と高くなり、結果的に F 値がそれぞれ 0.80, 1.00 と高くなった。これにより、簡易処理発生を確実に判定する FN となるデータ数 0 (再現率 1.00) の条件下では、(a) FDOM (タンパク質様成分)、(d) FDOM/DOM (タンパク質様成分/DOC 濃度) の時間変化量の相対値の適用可能性が高くなることが示唆された。

### 6.2.3.5 降雨時における下水処理放流水、河川水中の衛生微生物の存在実態

2018 年 2, 3 月の B 下水処理場と桂川での雨天時調査 (2 回目調査) における、雨天時放流水、雨天時河川水の GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の検出濃度、ならびに Comp.2 のスコア値の経時変化を、図 6-15 に示す。図 6-15 右側の簡易処理放流前の 2018 年 2 月 28 日 23:40 の上流側河川 (地点 A) と、明るる 3 月 1 日 1:20 の下流側河川 (地点 D) において、以下のとおり述べる。まず、GI-NoV については、上流地点 A で N.D. (Copies/L)、下流地点 D で約 2.9 log (Copies/L) となり、下水処理場放流口の上下流で増加した。次に、GII-NoV については、上流地点 A で約 2.2 log (Copies/L)、下流地点 D で約 3.7 log (Copies/L) となり、下水処理場放流口の上下流で増加した。最後に、PMMoV については、上流地点 A で約 6.0 log (Copies/L)、下流地点 D で約 6.4 log (Copies/L) となり、下水処理場放流口の上下流で増加した。以上に示した増加を、Comp.2 の約 0.39 RU から約 1.3 RU への増加で、おおむね説明できる結果となった。

また、図 6-15 左側の簡易処理放流前の 3 月 1 日 2:00 の雨天時放流水 (地点 B) と、簡易処理放流直後の 3 月 1 日 3:00 の雨天時放流水 (地点 B) において、以下のとおり述べる。まず、GI-NoV については、簡易処理放流前で約 2.9 log (Copies/L)、簡易処理放流直後で約 3.8 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。次に、GII-NoV については、簡易処理放流前で約 4.1 log (Copies/L)、簡易処理放流直後で約 4.4 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。最後に、PMMoV については、簡易処理放流前で約 6.7 log (Copies/L)、簡易処理放流直後で約 7.2 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。以上に示した増加を、Comp.2 の約 6.1 RU から約 5.5 RU への減少で、説明できない結果となった。その理由として、6.2.3.3 で述べた蛍光性を有しない雨天時流入水特有の都市域の路面、屋根面及び下水管内の堆積物に由来する DOM が GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV と関係している可能性が考えられる。

さらに、図 6-15 右側の簡易処理放流前の 3 月 1 日 1:20 の下流側河川 (地点 D) と、簡易処理放流後の 3 月 1 日 5:00 の下流側河川 (地点 D) において、以下のとおり述べる。まず、GI-NoV については、簡易処理放流前で約 2.9 log (Copies/L)、簡易処理放流後で約 4.3 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。次に、GII-NoV については、簡易処理放流前で約 3.7 log (Copies/L)、簡易処理放流後で約 4.7 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。最後に、PMMoV については、簡易処理放流前で約 6.4 log (Copies/L)、簡易処理放流後で約 7.4 log (Copies/L) となり、簡易処理放流の前後で増加した。以

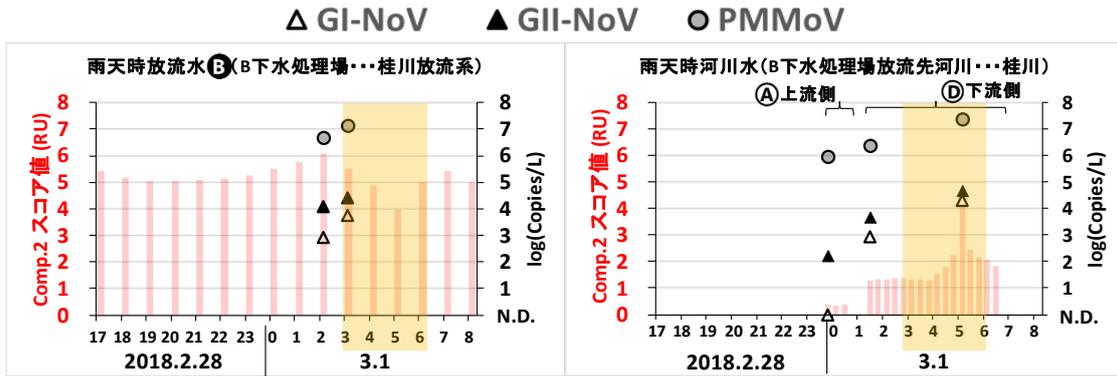


図 6-15 2018 年 2, 3 月の B 下水処理場と桂川での雨天時調査 (2 回目調査) における下水処理放流水, 河川水の GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV の検出濃度, ならびに Comp.2 スコア値の経時変化. ハイライトは簡易処理の時間帯.

上に示した増加を, Comp.2 の約 1.3 RU から約 4.2 RU への増加で, おおむね説明できる結果となった.

したがって, Comp.2 スコア値を連続測定することで, 簡易処理放流の有無にかかわらず, 雨天時河川水中の GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV 検出濃度の 10 倍程度の増加を質的に常時監視できる可能性が考えられる.

2018 年 2, 3 月の B 下水処理場と桂川での雨天時調査 (2 回目調査) における, 雨天時放流水, 雨天時河川水の GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH の検出濃度, ならびに Comp.2 のスコア値の経時変化を, 図 6-16 に示す. 簡易処理放流前の 2018 年 2 月 28 日 23:40 の上流側河川 (地点 A) と, 明るる 3 月 1 日 1:20 の下流側河川 (地点 D) において, 以下のとおり述べる. まず, GI-FPH については, 上流地点 A で約 4.6 log (Copies/L), 下流地点 D で約 4.3 log (Copies/L) となり, 下水処理場放流口の上下流で減少した. 次に, GII-FPH については, 上流地点 A で約 4.0 log (Copies/L), 下流地点 D で約 4.9 log (Copies/L) となり, 下水処理場放流口の上下流で増加した. 最後に, GIII-FPH については, 上流地点 A で N.D. (Copies/L), 下流地点 D で N.D. (Copies/L) となり, 下水処理場放流口の上下流とも検出されなかった. 以上に示した増加を, Comp.2 の約 0.39 RU から約 1.3 RU への増加で, GII-FPH についてはおおむね説明でき, 他は説明できない結果となった. その理由として, 第 3 章に示したとおり, GI-FPH 及び GII-FPH が上流側河川水中に高い濃度で検出されること (3.8.1.2 参照), 処理水中にも比較的高い濃度で検出されること, GIII-FPH の検出率が比較的に低いことが考えられる.

また, 簡易処理放流前の 3 月 1 日 2:00 の雨天時放流水 (地点 B) と, 簡易処理放流直後の 3 月 1 日 3:00 の雨天時放流水 (地点 B) において, 以下のとおり述べる. まず, GI-FPH については, 簡易処理放流前で約 3.8 log (Copies/L), 簡易処理放流直後で約 5.0 log (Copies/L) となり, 簡易処理放流の前後で増加した. 次に, GII-FPH については, 簡易処理放流前で約 5.2 log (Copies/L), 簡易処理放流直後で約 5.7 log (Copies/L) となり, 簡易処理放流の前後で増加した. 最後に, GIII-FPH については, 簡易処理放流前で N.D. (Copies/L), 簡易処理放流直後で約 2.3 log (Copies/L) となり, 簡易処理放流の前後で増加した. 以上に示した増加を, Comp.2 の約 6.1 RU から約 5.5 RU への減少で, 説明できない結果となった. その理由として, その理由として, GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH と同様, 6.2.3.3 で述べた蛍光性を有しない雨天時流入水特有の都市域の路面, 屋根面及び下水管内の堆積物に由来する DOM が GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV と関係している可能性が考えられる.

さらに、簡易処理放流前の3月1日1:20の下流側河川（地点D）と、簡易処理放流後の3月1日5:00の下流側河川（地点D）において、以下のとおり述べる。まず、GI-FPHについては、簡易処理放流前で約4.3 log (Copies/L)、簡易処理放流後で約5.1 log (Copies/L)となり、簡易処理放流の前後で増加した。次に、GII-FPHについては、簡易処理放流前で約4.9 log (Copies/L)、簡易処理放流後で約6.0 log (Copies/L)となり、簡易処理放流の前後で増加した。最後に、GIII-FPHについては、簡易処理放流前でN.D. (Copies/L)、簡易処理放流後で約3.7 log (Copies/L)となり、簡易処理放流の前後で増加した。以上に示した増加を、Comp.2の約1.3 RUから約4.2 RUへの増加で、おおむね説明できる結果となった。したがって、Comp.2スコア値を連続測定することで、簡易処理放流による雨天時河川水中のGI-FPH、GII-FPH及びGIII-FPHの検出濃度の増加を質的に常時監視できる可能性が考えられる。本調査では、簡易処理放流前後の下流での検出濃度の増加倍率は、GI-FPH、GII-FPHは10倍程度、GIII-FPHは10,000倍程度であった。

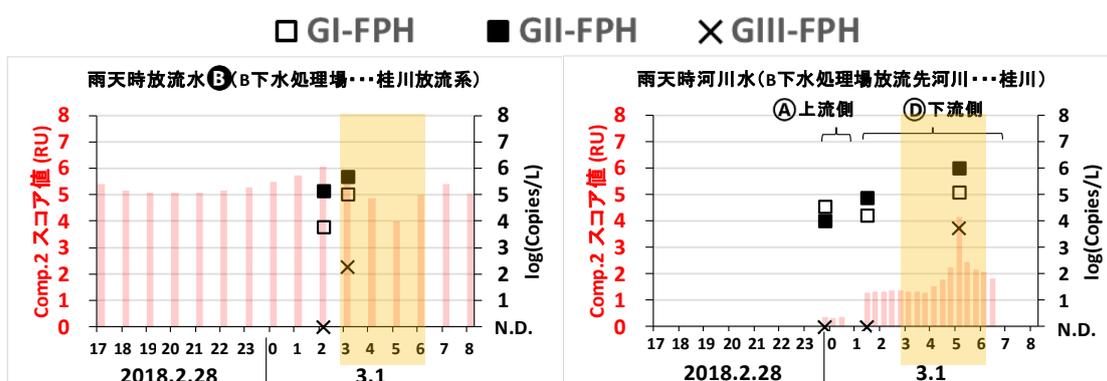


図 6-16 2018年2,3月のB下水処理場と桂川での雨天時調査（2回目調査）における下水処理放流水、河川水のGI-FPH、GII-FPH及びGIII-FPHの検出濃度、ならびにComp.2スコア値の経時変化。ハイライトは簡易処理の時間帯。

### 6.3 下水処理放流水混入率が低い河川（瀬田川）での調査

#### 6.3.1 調査概要

本調査の全体の流れを以下に述べる。まず琵琶湖南湖（南湖）への放流量が最も大きい分流式の下水処理場に注目した。まずは、第2章2.2.2, 2.2.4で詳述した分流式下水道における不明水によるSSOの問題を踏まえ、下水処理場及び放流先の南湖から流出する瀬田川河川水での雨天時実態を把握する（6.3.4.2参照）。次に、台風時における瀬田川河川水中FDOMの存在実態を把握し、SSOの影響による主成分スコア値の変化を捉える（6.3.4.3参照）。次に、台風時における瀬田川河川水中の衛生微生物の存在実態を把握し、SSOの影響による検出濃度の変化を捉える（6.3.4.4参照）。次に、簡易処理水の南湖への混入、瀬田川河川地点への流達に対し、FDOMの混入指標としての有効性を検討するため、晴天時・雨天時で放流水、放流先河川水に着目して、FDOMの存在実態を把握するとともに、SSOの影響による主成分スコア値の変化を捉える（6.3.4.5, 6.3.4.6参照）。最後に、第2章2.2.6.2(5)で紹介した西田らによる事例（西田ら, 2019）を参考に、放流先河川水への簡易処理水混入の検知指標として、DOM, FDOMの有効性を検討する（6.3.4.7参照）。なお衛生微生物は、第3章の測定対象のうち指標候補微生物のGI, GII, GIII-FPH（Wolf *et al.*, 2008）とPMMoV（Zhang *et al.*, 2005）である。

### 6.3.2 調査対象の琵琶湖・淀川水系における南湖・瀬田川流域の概要

琵琶湖は、湖面積・貯水量において日本最大の湖であり、近畿圏の水道水源としてだけではなく、水産業、農業、工業用水及びリクレーション利用等、利水上の重要な役割を担っている。琵琶湖には、大小合わせて約 460（水資源機構, 2007）の河川を通じて流入し、湖内の水と混ざり合いながら南端の湖尻に位置する主に瀬田川から流出する。南湖は、琵琶湖の最狭部の琵琶湖大橋より南側、琵琶湖湖尻の瀬田川より北側の地域を指す（藤井ら, 1984）。北湖と比べて、南湖の湖面積、容積は小さいが、琵琶湖で唯一の湖水流出河川である瀬田川がある。南湖では、水深が深い北湖（水資源機構, 2007）と異なり、成層構造を示すことは少なく（藤井ら, 1984）、南湖内の水の流れは主に北湖からの流入と瀬田川への流出により北から南へ流れる恒流に支配されるが、恒流以外に反時計まわりの環流がしばしば観察される（岩佐ら, 1977）。一方、南湖のまわりにはほぼ一様に河川が流入しており、この水量は、北湖からの流入水量の 1 割程度となっている（宗宮ら, 1983）。このような南湖の地形・流況は、南湖の水質分布に強く影響を及ぼしている（藤井ら, 1984）。

瀬田川は、天ヶ瀬ダムを経て京都府宇治市からは宇治川と名を変えて京都盆地を南西へ流れ、木津川・桂川と合流し、淀川本川となって大阪平野を西南に流れ、大阪湾に注いでいる（原, 1984）。その一方で、琵琶湖は滋賀県の水利用に資するだけでなく、近畿圏 1,300 万人の水がめであるとともに、近畿周辺地域における治水面でも重要な水域となっている。そのため、琵琶湖からの放流量の調節は、上流域と下流域の住民の対立を解消するうえで重要（琵琶湖・淀川水質保全機構, 2011）であり、瀬田川洗堰の放流量調節によって、淀川本川は他の河川と比べて洪水時の流量が小さく渇水時の流量が大きい、流況の安定した河川となっている（喜多, 1984）。



図 6-17 本調査における下水処理場放流口の位置と採水地点等。

本調査における下水処理場放流口の位置と採水地点等を、図 6-17（滋賀県, 2013; 大津市, 2018）に示す。南湖に直接的に処理水を放流している下水処理場は、A 下水処理場、B 下水処理場及び C 下水処理場（図 6-17, 黒丸印）がある。B 下水処理場の処理区は、一部が合流式下水道で雨水吐口（図 6-17 上段, 白丸印）が B 処理区の南湖沿岸に約 10 箇所位置しているが、第 2 章 2.2.5.1 で詳述した国土交通省の指示する合流式改善対策事業は 2015 年度に完了している。また、B 下水処理場放流口及び雨水吐口の下流側には浄水場の取水口があり、C 下水処理場の放流口はその取水口に影響しないように、できるだけ湖尻近くに設置されている。

琵琶湖の水質は、下水道整備や排水規制等でこれまでの BOD や SS, リンなどの水質汚濁指標については、大幅な改善がみられているが、下水処理放流水, 浄化槽及び工場からの排水には、病原微生物, 微量化学物質が含まれていることが知られており（田中ら, 2016）, 水利用や生物保全の視点から依然課題が残る可能性がある。特に、病原微生物については、下流の水道水源として、あるいは水質改善に伴うリクリエーション利用の視点からも、現状把握と評価が重要となりつつあるが、大腸菌群数以外の視点からの知見は十分ではない。

### 6.3.3 調査方法

#### 6.3.3.1 採水地点

南湖へ放流する A, B, C 下水処理場の概要を表 6-3（大津市, 2018; 滋賀県, 2016）に示す。また、本調査で注目した分流式の C 下水処理場における採水地点を図 6-18 に示す。A, B 及び C 下水処理場の中で、C 下水処理場は他の下水処理場に比べ処理能力が大きく、また放流位置が瀬田川への流出部に最も近くなるよう計画、運用されている。このため、雨天時において、C 下水処理場（図 6-17, C）の放流水（図 6-18）と、放流地点の約 2.6 km 下流の瀬田川の唐橋地点（図 6-17, 地点 D）の表層水を採水した。地点 D の流心水質自動監視所での濁度（単位：度）のデータは、河川管理者である国土交通省近畿地方整備局琵琶湖河川事務所より提供を受けた。地点 D のさらに約 3.9 km 下流の瀬田川洗堰（図 6-17, 地点 E）における流量（単位：m<sup>3</sup>/s）のデータも、河川管理者より提供を受けた。C 処理区の降雨強度データは、C 下水処理場放流口より東方向へ約 0.5 km に位置する大津气象台（34.992N, 135.912E）のものである。

表 6-3 本調査における下水処理場の概要。

下水処理場	処理方式	日最大下水量 (m <sup>3</sup> /d)	備考
<b>A</b>	分流式	52,500	H26年度未現在
<b>B</b>	合流式・分流式	50,760	H26年度年平均
<b>C</b>	分流式	268,500	H26年度未現在



図 6-18 本調査で注目した分流式の C 下水処理場における採水地点。

### 6.3.3.2 採水日と採水方法

2017年8月7日～8日（1回目台風時調査）、2017年9月17日～18日（2回目台風時調査）及び2017年10月22日～23日（3回目台風時調査）に台風時調査を実施した。台風時調査では、河川地点Dのみで採水を行った。1時間につき1回1,000 mL程度のスポット採水を、自動採水器6712型（ISCO社製）を用いて、24時間の連続採水を行った。

2018年9月30日～10月1日に雨天時調査、2019年3月8日～3月9日に晴天時調査を実施した。雨天時調査及び晴天時調査では、C下水処理場と河川地点Dの両方で採水を行った。1時間につき1回1,000 mL程度のスポット採水を、自動採水器6712型（ISCO社製）を用いて24時間の連続採水を行った。

採水した試料のうちDOM、FDOMの分析に供するものは、約50 mLをポリプロピレン製遠沈管に収集し保冷したまま実験室に持ち帰った。試料を公称粒子径0.7 μmのガラス繊維ろ紙GF/F（Whatman社製）でろ過後、ろ液を5℃の冷蔵庫で保存した。なお、ろ紙からのDOM、FDOMの溶出を考慮し、あらかじめ約50 mLの超純水で通水し、通水後のろ紙からのDOM、FDOMのろ液への溶出がみられないことを確認した。また、衛生微生物の分析に供するものは、約2,000 mLをポリエチレン製サンプリングバッグに収集し保冷したまま実験室に持ち帰り、未ろ過のまま5℃の冷蔵庫で保存した。

実施した調査は表6-4に示すような5回に加え、2019年2月28日～3月1日の少降雨時、さらに第5章5.3.2.2で詳述した2019年10月12～13日の雨天時に予備調査を実施した。台風時調査では、雨天時の下水処理放流量と放流先河川水中のDOM、FDOM及び衛生微生物指標の関係を調べた。一方、晴天時調査では、下水処理放流水中DOM、FDOMと放流先河川水中DOM、FDOMの動態を調査した。また雨天時調査では、雨天時の下水処理放流水中DOM、FDOMと放流先河川水中DOM、FDOMの関係を調べた。

表 6-4 本調査における日程と調査対象項目。

調査名	晴天時調査		台風時調査		
	非降雨	中降雨	少降雨 (2回目)	大降雨 (1回目)	豪雨 (3回目)
降雨類型					
採水期間	2019.3.8 20:00 ～3.9 19:00	2018.9.30 13:00 ～10.1 12:00	2017.9.17 21:00 ～9.18 20:00	2017.8.7 16:00 ～8.8 15:00	2017.10.22 14:00 ～10.23 13:00
河川地点Dでの連続採水	○	○	○	○	○
C下水処理場での連続採水	○	○			
衛生微生物の分析			○	○	○

### 6.3.3.3 分析方法

#### (1) DOM及びFDOM

第4章4.2.2と同様、DOM指標のDOC濃度の測定には燃焼式全有機炭素分析装置TOC-300V（Mitsubishi社製）を用い、FDOMのEEM測定（2.4.3.1参照）には分光蛍光強度計Aqualog（Horiba社製）を用いた。

#### (2) 衛生微生物

本調査では、試料水中のGI, GII, GIII-FPH（Wolf *et al.*, 2008）及びPMMoV（Zhang *et al.*, 2006）を、一次・二次の濃縮操作に供したのち、定量PCR法により測定した。一次濃縮液・二次濃縮・定量PCR法による遺伝子検出（Hata *et al.*, 2011）の条件は第3章の実態調査と同様で第3章3.5.2の通りである。

#### 6.3.3.4 解析方法

6.2.2.4 と同様、第 2 章 2.4.3.2 で詳述した PARAFAC により、対象水の EEM 上の重なり合う各ピーク群（主成分）を推定することで分離し、FDOM の主成分を定量的に評価した。PARAFAC には、対象水の全試料の EEM スペクトルを対象として、Solo (EIGENVECTOR 社製) という解析ソフトを用いた。

本調査の C 下水処理場（分流式）における対象水としては、5.2.2.4 で述べた試料と同様のものを用いた。内訳は、5.2.2.4 で述べた通り、初沈後水 (n=19)、終沈後水 (n=20)、放流水 (n=99) 及び放流先河川水 (n=278) で、総数 416 である。

#### 6.3.3.5 瀬田川河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価

##### (1) 簡易処理水混入指標

第 5 章 5.3.2.5 と同様、瀬田川で簡易処理放流リスクの評価のため、いくつかの指標を用いて簡易処理発生を判定できるか検証した。簡易処理水混入指標の候補については、6.2.2.5 と同様、(a) FDOM (タンパク質様成分)、(b) FDOM (全蛍光成分)、(c) DOM (DOC 濃度)、(d) FDOM/DOM (タンパク質様成分/DOC 濃度)、(e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) を対象とした。(a)~(e) の各指標候補について、唐橋で採水した時刻を、C 処理場の簡易処理水の唐橋地点への流下到達が想定される時刻として注目した評価も行った。

本調査における河川水への簡易処理水混合の管理基準は、瀬田川洗堰での放流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) に対する簡易処理水量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) の割合である下水混入率とした。簡易処理放流発生を見逃さない基準値として 0% を設定した。一方、簡易処理水混入指標の候補(a)~(e) で設定したリスク判定基準は安全側を考慮し、下水混入率が基準値 0% を超過した時点での各指標候補の絶対値の最小値を設定した (6.3.4.7 で詳述)。

なお、C 下水処理場における簡易処理放流発生の管理基準と、桂川における地点 D の唐橋での簡易処理水混入指標の候補との時差については、各調査期間の瀬田川洗堰での放流量 (6.3.4.2 参照) の最大値を用いて仮定を試みた。具体的には、C 下水処理場放流口と唐橋地点のおおよその中間地点である南湖の湖尻を瀬田川起点とし、河川管理者より提供を受けた瀬田川流下時間表に示された瀬田川起点から唐橋地点までの流下時間を参照した。瀬田川起点~唐橋地点間の約 1.0 km の区間に対し、豊水時 (洗堰放流量  $755 \text{ m}^3/\text{s}$ )、渇水時 (洗堰放流量  $46 \text{ m}^3/\text{s}$ ) での流下時間がそれぞれ 1.16 h, 2.32 h との試算結果を参考に、C 下水処理場放流口から唐橋地点までのおおよその流下到達時間を 2~5 h の範囲で推定した。本調査の場合、台風時調査 (1, 2, 3 回目) でそれぞれ 2 h, 5 h, 2 h, 晴天時調査と雨天時調査でそれぞれ 4 h, 2 h と仮定した。なお、2019 年 2 月 28 日~3 月 1 日の少降雨時、10 月 12~13 日の雨天時に実施した予備調査では、それぞれ 4 h, 5 h と仮定した。

##### (2) 評価精度の検証方法

第 5 章 5.3.2.5 (2) と同様、5 つの指標による簡易処理水量の河川水量に対する混入率を、指標の値ごとに大小関係を比較し、評価精度を検証した。

#### 6.3.4 調査結果及び考察

##### 6.3.4.1 C 下水処理場の下水、下水処理水及び瀬田川河川水中の FDOM の主成分推定

図 6-19 に、EEM-PARAFAC で得られた C 下水処理場（分流式）における総数 416 の EEM データセッ

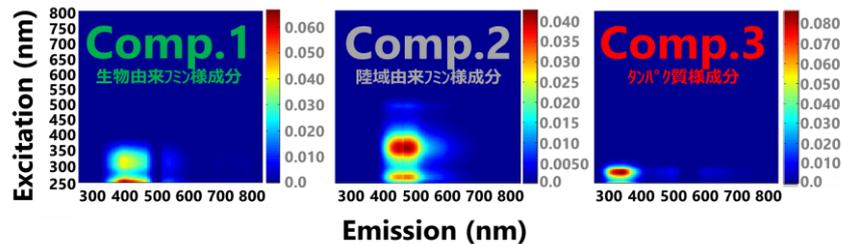


図 6-19 C 下水処理場（分流式）及び瀬田川河川水における総数 416 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分のスペクトル。段彩法表記の数字は、励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の積を示す。

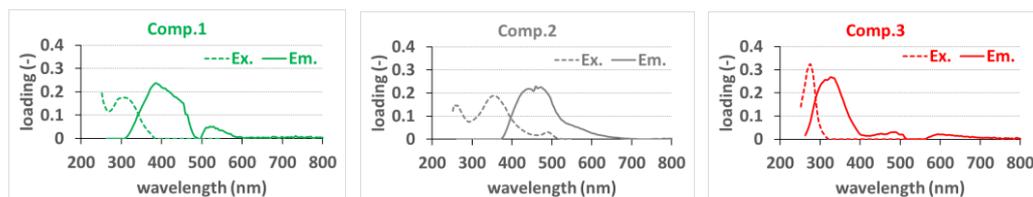


図 6-20 C 下水処理場（分流式）及び瀬田川河川水における総数 416 の EEM データセットから分離された 3 つのピーク主成分の励起及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布。

トに共通して存在するピークの主成分のスペクトルを分離した結果を示す。また、分離された各ピーク主成分の励起スペクトル及び蛍光スペクトルの負荷量 (loading) の分布を、図 6-20 に示す。EEM-PARAFAC で得られた C 下水処理場（分流式）における総数 416 の EEM データセットには、3 つのピーク主成分 (Comp.1, Comp.2 及び Comp.3) が共通して存在していた。Comp.1 (Ex: 239, 305 nm, Em: 385 nm) は生物由来フミン様成分、Comp.2 (Ex: 254, 356 nm, Em: 459 nm) は陸域由来フミン様成分、Comp.3 (Ex: 275 nm, Em: 326 nm) はタンパク質様成分と類似したピークスペクトルを有すると報告されている (Stedmon and Markager, 2005; Yamashita *et al.*, 2010; Lu *et al.*, 2013)。なお、第 2 章 2.4.3.4 で述べた生活雑排水起源である可能性が示唆されている下水由来成分 (Cory and Kaplan, 2012) は、本調査の解析から分離されなかった。Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の全ピークスペクトルに対する寄与率は、それぞれ 32 %, 26 %, 24 %であった。

Stedmon and Markager による淡水・海水・下水処理放流水 1,276 試料での解析結果では、Ex: <250 nm, Em: 448 nm 付近に、下水中に存在せず森林あるいは農地に由来する FDOM のピーク主成分が推定された (Stedmon and Markager, 2005)。また、Ex: 325 nm, Em: 428 nm 付近及び Ex: <250 nm (320 nm), Em: 400 nm 付近には農地由来らしき FDOM のピーク主成分が推定された。さらに増田によると、本研究における琵琶湖流域では、琵琶湖総合開発事業完了後の土地利用面積の割合が、森林 52.4 %, 水田 17.1 %, 畑 0.6 %, 果樹園 0.1 %, その他の樹木園 0.3 %と、GIS データの解析により算出された (増田, 2000)。したがって、本研究における EEM-PARAFAC では、森林あるいは農地由来の FDOM が、Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 から十分に成分分離されなかった可能性が考えられる。理由として、適用試料の総数 (n = 416) が少なく、内訳が初沈後水 (n = 19), 終沈後水 (n = 20), 放流水 (n = 99) 及び放流先河川水 (n = 278) であり、採水地点が偏っていることが推察される。このため、下水処理放流水の影響を受けない雨水排水の時系列試料の EEM を多数追加し、再解析することにより、森林あるいは農地由来の FDOM が成分分離できる可能性があると考えられる。

### 6.3.4.2 調査期間における瀬田川・C 下水処理場の雨天時実態

台風時調査の各調査期間中の C 処理区の降雨強度（気象庁, 2018）及び C 下水処理場の放流水量の経時変化、並びに瀬田川洗堰流量及び C 下水処理場放流量/瀬田川洗堰流量の比の経時変化を、図 6-21 に示す。図 6-21 左側の総降雨量 10 mm の少降雨時では、上段より最大降雨強度が 4.0 mm/h となった。また、放流量は 2.8~3.5 m<sup>3</sup>/s で推移した。下段より洗堰流量は 15 m<sup>3</sup>/s で安定し、放流量/洗堰流量比は 0.19~0.23 で推移した。しかし、下水処理場では簡易処理放流は発生しなかった。図 6-21 中側の総降雨量 64 mm の大降雨時では、上段より最大降雨強度が 11 mm/h となった。また、放流量は 3.7~8.1 m<sup>3</sup>/s で推移した。2017 年 8 月 7 日 22:00~8 月 8 日 5:00 の時間帯で簡易処理放流が発生した。下段より洗堰流量は 8 月 7 日 0:00 まで 200 m<sup>3</sup>/s で安定したが同 12:00 以降急激に増加し、同 15:00 に 700 m<sup>3</sup>/s に達した。これは、琵琶湖の水位上昇による洗堰の全開放流によるものと考えられる。放流量/洗堰流量比は 0.005~0.04 で推移した。このことは、大降雨時において瀬田川流量に対する C 下水処理場の放流量の割合は約 4% に過ぎず、流量は C 下水処理場より上流の琵琶湖からの流量が下水処理放流水よりも大きいことを示している。図 6-21 右側の総降雨量 177 mm の豪雨時では、上段より最大降雨強度が 14 mm/h となった。また、放流量は 8.7~9.5 m<sup>3</sup>/s で推移した。また先行する降雨の影響を受けていたため、この下水処理場では採水前から簡易処理放流が継続して発生しており、採水期間の全時間帯で簡易処理放流が発生していた。したがってこの 2 回の降雨では琵琶湖南湖から瀬田川の流量流出が起こっており、特に 64 mm の降雨の後半では、洗堰からの大幅な放流増加がみられた。しかし 177 mm の降雨では、下段より洗堰流量は 2017 年 10 月 22 日 22:00 まで 200 m<sup>3</sup>/s で安定していたが、同 23:00 以降急激に減少し、10 月 23 日 2:00 に 0 m<sup>3</sup>/s になった。これは、下流河川の水位上昇による洗堰の全閉によるものである。放流量/洗堰流量比

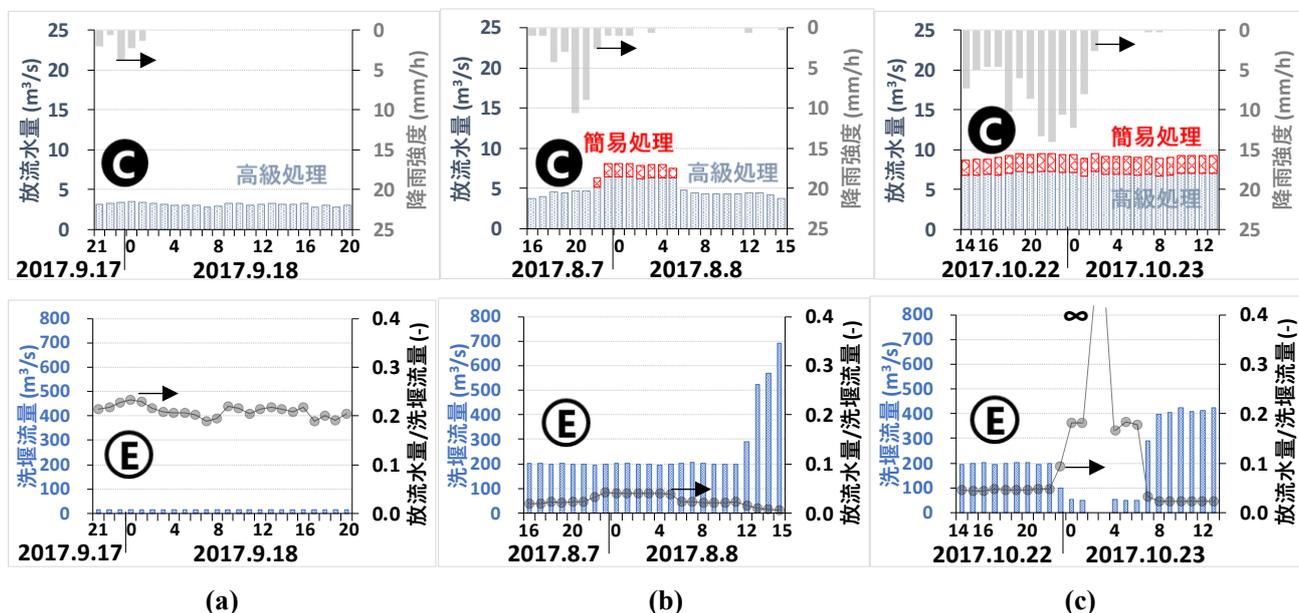


図 6-21 台風時調査における C 処理区降雨強度（気象庁, 2018）及び C 下水処理場放流水量の経時変化、並びに河川地点 E の洗堰流量及び放流量/洗堰流量比の経時変化。(a) 2 回目台風時調査（総降雨量 10 mm の少降雨時）、(b) 1 回目台風時調査（総降雨量 64 mm の大降雨時）、(c) 3 回目台風時調査（総降雨量 177 mm の豪雨時）。上図の矢印は降雨強度のバーの目盛軸が右縦軸であること、下図の矢印は放流量/洗堰流量比のプロットの目盛軸が右縦軸であることを示す。

は洗堰の全閉操作にともない、0.02~0.2 で大きく上昇した。このことは、南湖から瀬田川へ湖水の流出が降雨当初は起こっていたが、降雨の中間段階では堰操作により放流量の減少により、瀬田川流量の大幅な減少と滞留が生じたと推定される。降雨後期には、堰操作により急激に瀬田川流量が増加したと推察される。豪雨時において唐橋地点の瀬田川流量に対する C 下水処理場の放流量の割合は、約 20%と 64 mm の大降雨よりも C 下水処理場の放流水の影響をより強く受けたと考えられる。また瀬田川洗堰の全閉時には、唐橋地点での瀬田川流量がなく、唐橋地点に近い C 下水処理場からの放流水の影響が大きくなったと考えられる。

晴天時調査・雨天時調査の各調査期間中における C 処理区の降雨強度（気象庁,2019）及び C 下水処理場の放流量の経時変化、並びに瀬田川洗堰流量及び C 下水処理場放流量/瀬田川洗堰流量の比の経時変化を、図 6-22 に示す。図 6-22 左側の非降雨時では、上段より最大降雨強度が 0.0 mm/h となった。また、放流量は 2.6~3.2 m<sup>3</sup>/s で推移した。下段より洗堰流量は 40 m<sup>3</sup>/s で安定し、放流量/洗堰流量比は 0.07~0.09 で推移した。図 6-22 右側の中降雨時では、上段より最大降雨強度が 6.3 mm/h となった。また、放流量は 3.4~6.5 m<sup>3</sup>/s で推移した。2018 年 9 月 30 日 23:00~10 月 1 日 4:00 の時間帯で簡易処理放流が発生した。下段より洗堰流量は 2018 年 10 月 1 日 10:00 まで 300 m<sup>3</sup>/s で安定したが同 11:00 以降急激に増加し、同 12:00 に 640 m<sup>3</sup>/s に達した。これは、琵琶湖の水位上昇による洗堰のゲート操作によるものと考えられる。放流量/洗堰流量比は 0.007~0.02 で推移した。このことは、洗堰操作を絞らない 28 mm の中降雨時においては、瀬田川流量に対する C 下水処理場の放流量の割合が約 2%に過ぎず、C 下水処理場より上流の琵琶湖の流量が下水処理放流水よりもかなり大きいと考えられる。

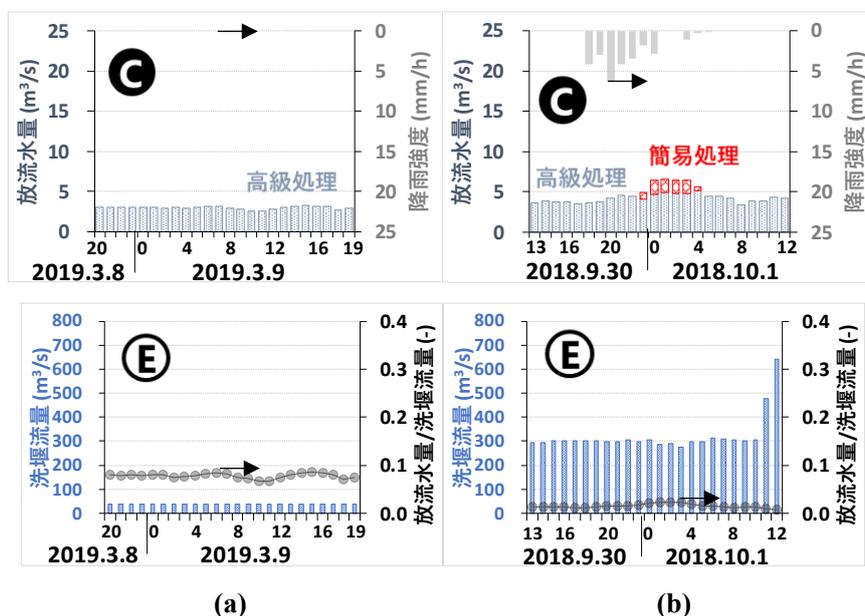


図 6-22 晴天時調査・雨天時調査における C 処理区降雨強度（気象庁,2019）及び C 下水処理場放流量の経時変化、並びに河川地点 E の洗堰流量及び C 下水処理場放流量/瀬田川洗堰流量の比の経時変化。(a) 晴天時調査（総降雨量 0.0 mm の非降雨時）、(b) 雨天時調査（総降雨量 28 mm の中降雨時）。上図の矢印は降雨強度のバーの目盛軸が右縦軸であること、下図の矢印は放流量/洗堰流量比のプロットの目盛軸が右縦軸であることを示す。

#### 6.3.4.3 台風時における河川水中 FDOM の存在実態

台風時調査における河川水の主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び Lu *et al.*を参考にして FDOM の構成割合 (Lu *et al.*, 2013) を表す%Comp.f (f = 1, 2, 3) の経時変化を, 図 6-23 に示す. Comp.f/DOC 比は, FDOM の増減が, 同一の汚濁負荷源によるものか, 異なる汚濁負荷源が存在するか等を判断するために算出した. 本調査では, 第 4 章, 第 5 章と同様, 便宜的に主成分スコア値 Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 を同じ重みで積み上げた指標 (山口ら, 2018; 山口ら, 2019) として, FDOM 全成分を図示した.

まず, 図 6-21 の左側に示したように C 下水処理場の簡易処理放流は発生しなかった, 図 6-23 左側の 2 回目台風時調査 (総降雨量 10 mm の少降雨時) の河川水について述べる. DOC は 2.7~3.0 mg/L 程度, Comp.f は 1.9~2.4 RU 程度で推移した. 対して, Comp.f/DOC 比は 0.68~0.83 RU/(mg/L)程度, %Comp.3 は 0.18~0.22 程度と算出された. FDOM と DOM に大きな経時変化が見られなかった. このことは降雨にかかわらず, 雨天時の処理不十分な下水が河川水へ混入していなかったためと考えられる.

次に, 図 6-21 の中側に示したように C 下水処理場の簡易処理放流が 8 時間発生した, 図 6-23 中側の 1 回目台風時調査 (総降雨量 64 mm の大降雨時) の河川水について述べる. DOC は 2.7~4.0 mg/L 程度, Comp.f は 1.6~4.9 RU 程度で推移した. 対して, Comp.f/DOC 比は 0.60~1.2 RU/(mg/L)程度, %Comp.3 は 0.17~0.78 程度と算出された. 特に, 2017 年 8 月 8 日 3:00 に, DOC は 4.0 mg/L, Comp.f は 4.9 RU へ急に増加し, その後低下した. 対して, Comp.3/DOC 比も 0.95 RU/(mg/L), %Comp.3 も 0.78 とその時刻に急に増大し, その後低下した. また, Comp.f/DOC 比も 1.2 RU/(mg/L)とその時刻に急に増大し, その後低下した. 前項 6.3.4.2 で述べたように 64 mm の大降雨時において, C 下水処理場放流量より琵琶湖からの流量は大きい, 森林, 農地など流域に由来する FDOM が琵琶湖水にいつの時点でどの程度影響を及ぼしているかは不明である. 琵琶湖流域の森林, 農地から湖水に流入する多くの地点よりも C 下水処理場の放流点の方が唐橋地点に近い, C 下水処理場の放流水の方が, 早期に唐橋地点での水質変化に影響を及ぼすと考えられ, 1 時間に 1 回の採水間隔でも Comp.3 及び Comp.f により混入を把握できた可能性がある. しかし, 今後, 雨天時に琵琶湖流入河川を採取し, その試料を含めて PARAFAC 解析し, 唐橋地点の河川水から森林, 農地などの流域由来の FDOM 成分が検出されないか, 検出される場合にはその流達する時期がいつなのか, さらに本調査で得られた知見に普遍性があるのかを議論する必要があると考えられる.

瀬田川の川幅は, 南湖の湖尻で約 250 m, 河川地点 D で約 200 m と非常に大きく, 流況によっては左岸側・流心側・右岸側で河川水質が異なる事例が報告されている (堀ら, 1962). 本調査のように下水処理放流水の混入割合が低い (片山ら, 2017; 白坂, 2017) 水域においても, 図 6-21 の中下段に示したように瀬田川洗堰の放流量が 200 m<sup>3</sup>/s 程度と大きい場合, C 下水処理場の放流水が放流先水域で均一に拡散せず, 筋状に流下して河川地点 D へ達した可能性が考えられる. 本調査における河川地点 D の採水地点は瀬田川の流心であるため, 今後は, 瀬田川流量が C 下水処理場の簡易処理放流水と瀬田川河川水の混合の程度に及ぼす影響を検討する予定である. また, 本研究では A 下水処理場, B 下水処理場での雨水浸入による簡易処理放流水発生に伴う SSO や B 処理区合流式下水道の雨天時越流水 (CSO) が発生していた可能性があるが, 本検討での排水量に含まれていないため, 本調査の対象としていない A, B 処理区の寄与も, 今後検討する予定である.

最後に, 図 6-21 の右側に示したように C 下水処理場の簡易処理放流が 24 時間以上連続的に発生し,

採水を始める前から継続していた、図 6-23 右側の 3 回目台風時調査（総降雨量 177 mm の豪雨時）の河川水について述べる。DOC は 2.7~3.0 mg/L 程度、Comp.f は 1.7~3.3 RU 程度で推移した。対して、Comp.f/DOC 比は 0.61~1.1 RU/(mg/L) 程度、%Comp.3 は 0.16~0.23 程度と算出された。特に、2017 年 10 月 23 日 2:00 以降に Comp.f 及び Comp.f/DOC 比が徐々に増加し、同 12:00 に Comp.f は 3.3 RU、Comp.f/DOC 比は 1.1 RU/(mg/L) に達した。対して、Comp.3/DOC 比は 0.17 RU/(mg/L)、%Comp.3 は 0.16 と大きくは変化していない。これは、6.3.4.2 で述べたように 177 mm の豪雨時において、洗堰操作により琵琶湖放流量が絞られたため、C 下水処理場放流量が約 20% にまで上昇し、さらに、図 6-18 の右下段に示したように瀬田川洗堰が 8 時間程度放流量が大きく絞られた。簡易処理放流の影響として Comp.3 では増加がみられていないが、これは簡易処理放流が調査開始前から継続しているため、変化が見られなかったと考えられる。しかし、Comp.f では増加が見られた理由は本調査では明らかにならなかったため、先行した降雨により上流の琵琶湖流域からの FDOM がどの程度寄与しているのか、また A, B, C 下水処理場の簡易処理放流や CSO がどの程度寄与しているのかについて今後の検討が必要である。

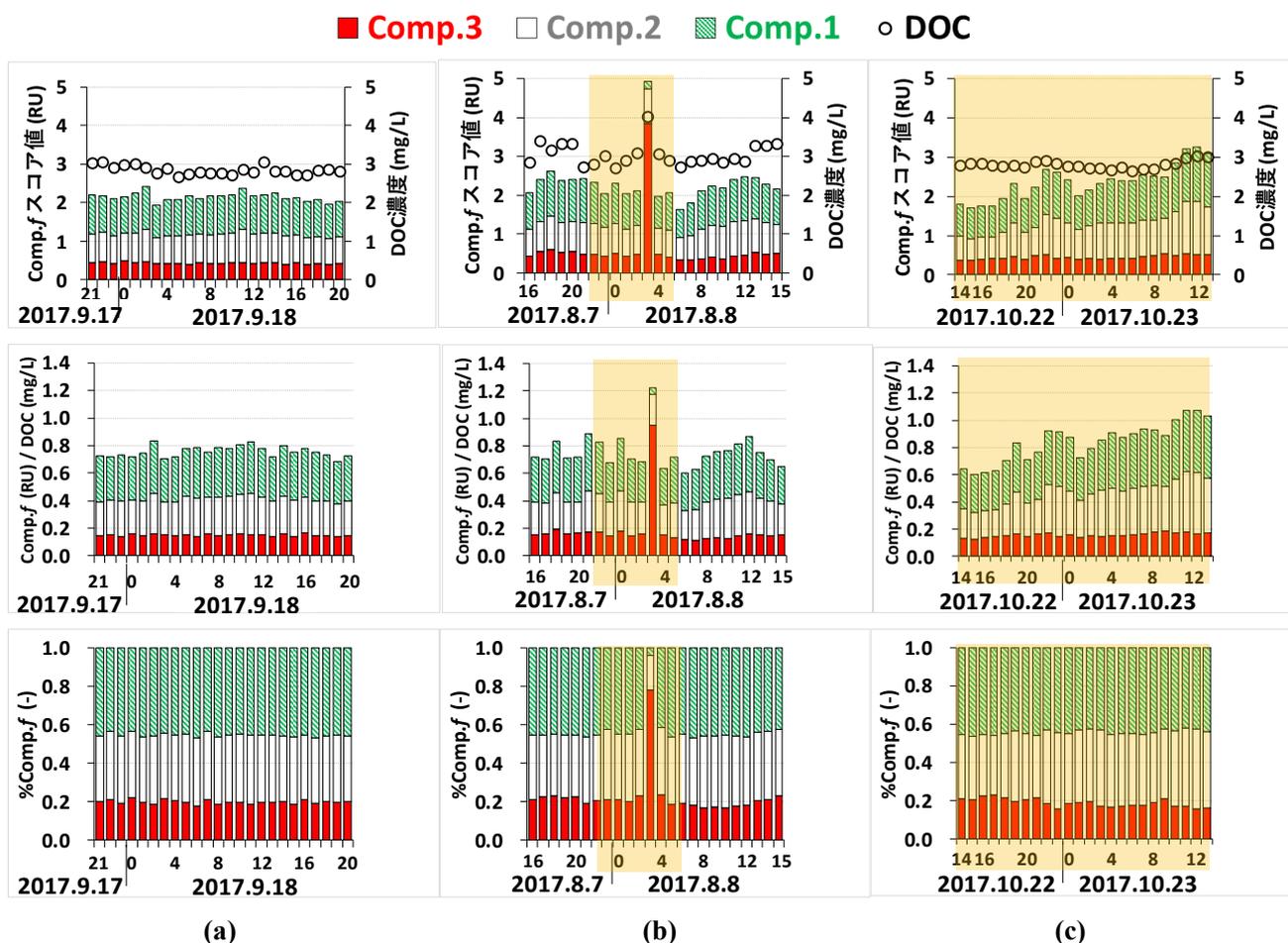


図 6-23 台風時調査における地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す %Comp.f の経時変化。(a) 2 回目台風時調査（総降雨量 10 mm の少降雨時）、(b) 1 回目台風時調査（総降雨量 64 mm の大降雨時、C 下水処理場の簡易処理放流が 8 時間発生）、(c) 3 回目台風時調査（総降雨量 177 mm の豪雨時、簡易処理放流が 24 時間以上発生）。ハイライトは簡易処理の時間帯を表す。

### 6.3.4.4 台風時における河川水中の衛生微生物の存在実態

台風時調査における河川水の GI, GII, GIII-FPH 及び PMMoV の検出濃度、並びに濁度の経時変化を図 6-24 に示す。

まず、C 下水処理場の簡易処理放流が発生しなかった、図 6-24 左側の 2 回目台風時調査（総降雨量 10 mm の少降雨時）の河川水について、GI-FPH は  $4.1 \times 10^4 \sim 2.1 \times 10^5$  Copies/L 程度、GII-FPH は  $1.8 \times 10^4 \sim 4.8 \times 10^4$  Copies/L 程度、GIII-FPH は不検出、PMMoV は  $1.9 \times 10^4 \sim 4.8 \times 10^4$  Copies/L 程度で推移した。対して、濁度は 6~10 度程度であった。衛生微生物・濁度ともに大きな経時変化が見られなかった理由として、少雨時であり、簡易処理放流が発生していなかったためと考えられる。

次に、C 下水処理場の簡易処理放流が 8 時間発生した、図 6-24 中側の 1 回目台風時調査（総降雨量 64 mm の大降雨時）の河川水について、GI-FPH は  $2.5 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^5$  Copies/L 程度、GII-FPH は不検出~ $9.0 \times 10^4$  Copies/L 程度、GIII-FPH は不検出、PMMoV は  $2.5 \times 10^3 \sim 3.4 \times 10^4$  Copies/L 程度で推移した。対して、濁度は 15~53 度程度であった。特に、放流量の増加及び簡易処理放流の発生にともない GII-FPH 及び PMMoV は増加傾向で、2017 年 8 月 8 日 3:00 にピークとなり、それぞれ  $9.0 \times 10^4$ ,  $3.4 \times 10^4$  Copies/L に達した。これは、6.3.4.2 で述べたように 64 mm の大降雨時において、瀬田川流量に対する C 下水処理場の高級処理放流水及び簡易処理放流水の流量の割合が約 4 %に過ぎないものの、筋状に流下して河川地点 D へ達したか、SSO による A 下水処理場や B 下水処理からの簡易処理放流、あるいは合流式下水道吐口での CSO が寄与していたことが考えられる。また、濁度は、洗堰の放流量が急増し始めた、同 13:00 以降で急に増加傾向になり同 14:00 にピークとなり、53 度に達した。堰操作に伴う放流量の増加により、南湖に堆積した粒子の巻き上げなどにより、濁度が上昇したのもと思われ、衛生微生物は簡易処理放流の減少と流量増大による希釈により低下したと思われる。このように濁質は、衛生微生物や前項 6.3.4.3 で述べた FDOM, DOM とは異なる挙動をした。

最後に、C 下水処理場の簡易処理放流が 24 時間以上発生していた、図 6-24 右側の 3 回目台風時調査（総降雨量 177 mm の豪雨時）の河川水について、GI-FPH は  $1.4 \times 10^4 \sim 1.7 \times 10^6$  Copies/L 程度、GII-FPH は  $2.0 \times 10^4 \sim 1.8 \times 10^6$  Copies/L 程度、GIII-FPH は不検出、PMMoV は  $1.4 \times 10^4 \sim 2.2 \times 10^5$  Copies/L 程度で推移した。

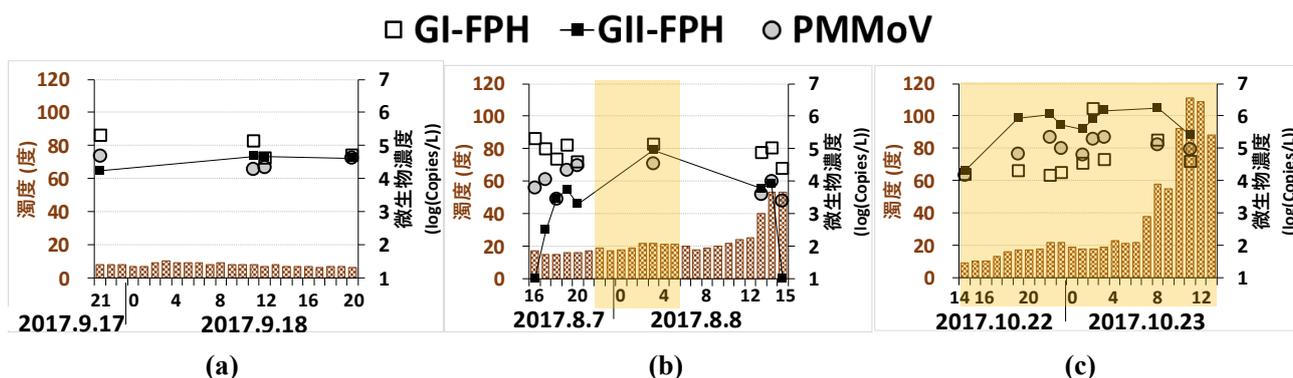


図 6-24 台風時調査における地点 D 河川水の GI, GII, GIII-FPH 及び PMMoV の検出濃度、並びに濁度の経時変化。(a) 2 回目台風時調査（総降雨量 10 mm の少降雨時）、(b) 1 回目台風時調査（総降雨量 64 mm の大降雨時、C 下水処理場の簡易処理放流が 8 時間発生）、(c) 3 回目台風時調査（総降雨量 177 mm の豪雨時、簡易処理放流が 24 時間以上発生）。ハイライトは簡易処理放流の時間帯を表す。GIII-FPH は全試料不検出。

対して、濁度は 9~111 度程度であった。特に、放流量の増加及び簡易処理放流の発生にともない GI-FPH, GII-FPH 及び PMMoV は増加傾向で、それぞれ 2017 年 10 月 23 日 2:00, 同 8:00, 10 月 22 日 22:00 にピークとなり、それぞれ  $1.7 \times 10^6$ ,  $1.8 \times 10^6$ ,  $1.4 \times 10^4$  Copies/L に達した。C 下水処理場の放流量は、唐橋地点流量の 20 %程度を占め、さらに処理不十分な下水が河川水へ混入していたが、洗堰の放流量が絞られ、その影響が大きくなったため高濃度の値となったと考えられる。また、濁度は、洗堰の放流が再開され、放流量が増加し始めた 10 月 23 日 7:00 以降で急に増加傾向になり、同 11:00 にピークとなり、111 度に達した。これは洗堰の放流量の増大にともなう南湖に堆積した濁質の巻き上げによる増加と考えられる。また、洗堰全開に伴う、瀬田川流量の増加に伴い、C 下水処理場から簡易処理放流は継続しているにもかかわらず、瀬田川の衛生微生物濃度は低下している。このように瀬田川に含まれる濁質は、衛生微生物や前項 6.3.4.3 で述べた FDOM, DOM と由来が異なるため、異なる挙動をしたと考えられる。

### 6.3.4.5 晴天時における下水処理放流水・河川水中 FDOM の存在実態

C 下水処理場の簡易処理放流が発生しなかった晴天時調査（総降雨量 0.0 mm）における、放流水・河

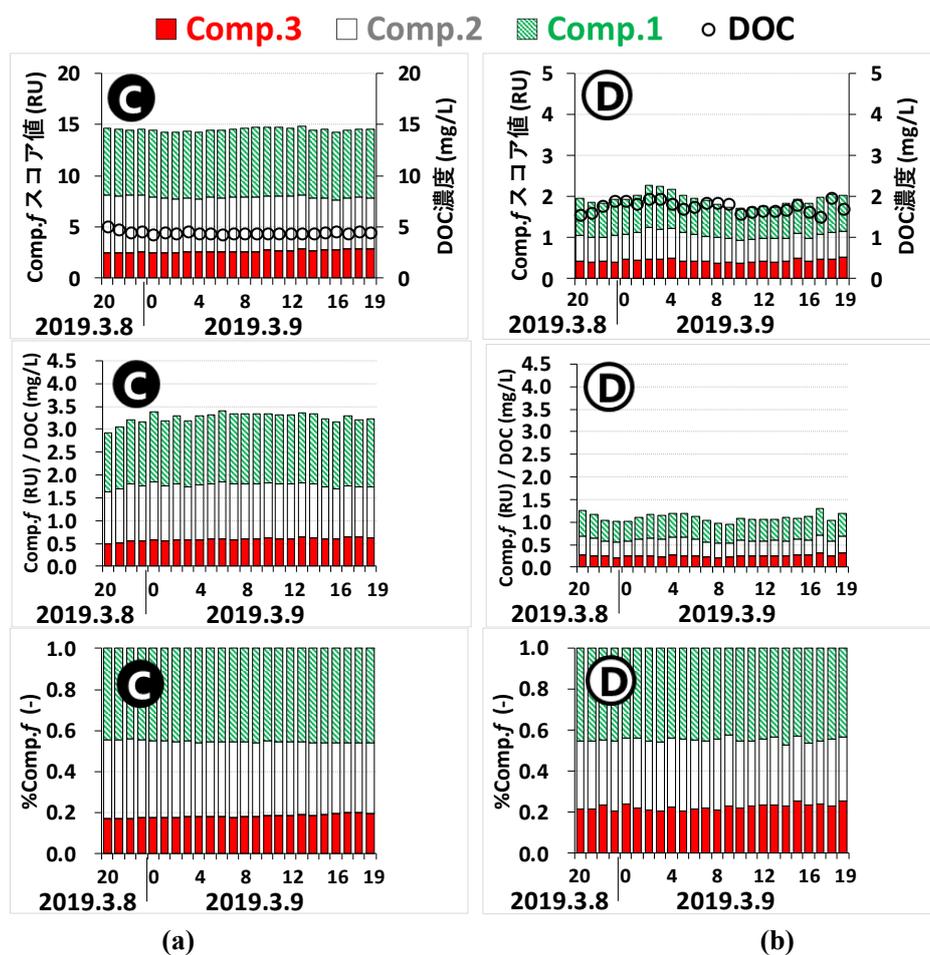


図 6-25 晴天時調査（総降雨量 0.0 mm の非降雨時，C 下水処理場の簡易処理放流が発生せず）における C 下水処理場放流水・地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す %Comp.f の経時変化。(a) 放流水, (b) 河川水。

川水の Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比, 及び%Comp.f (f=1,2,3) の経時変化を, 図 6-25 に示す.

図 6-25 左側の放流水について, DOC は 4.3~5.0 mg/L 程度, Comp.f は 14~15 RU 程度で推移した. 対して, Comp.f/DOC 比は 2.9~3.4 RU/(mg/L)程度, %Comp.3 は 0.17~0.20 程度と算出された. 雨天時の処理不十分な下水が放流水へ混入していなかったため, FDOM, DOM に大きな変化が見られなかった. 一方, 図 6-25 右側の河川水について, DOC は 1.5~2.0 mg/L 程度, Comp.f は 1.7~2.3 RU 程度で推移した. 対して, Comp.f/DOC 比は 0.95~1.3 RU/(mg/L)程度, %Comp.3 は 0.21~0.26 程度と算出された. 雨天時の処理不十分な下水が放流水へ混入していなかったため, 当然 FDOM, DOM に大きな変化が見られなかった.

### 6.3.4.6 雨天時における下水処理放流水・河川水中 FDOM の存在実態

C 下水処理場の簡易処理放流が 6 時間発生した雨天時調査 (総降雨量 28 mm の中降雨時) における, 放流水・河川水の Comp.f, DOC 濃度, Comp.f/DOC 比, 及び%Comp.f (f=1,2,3) の経時変化を, 図 6-26 に示す.

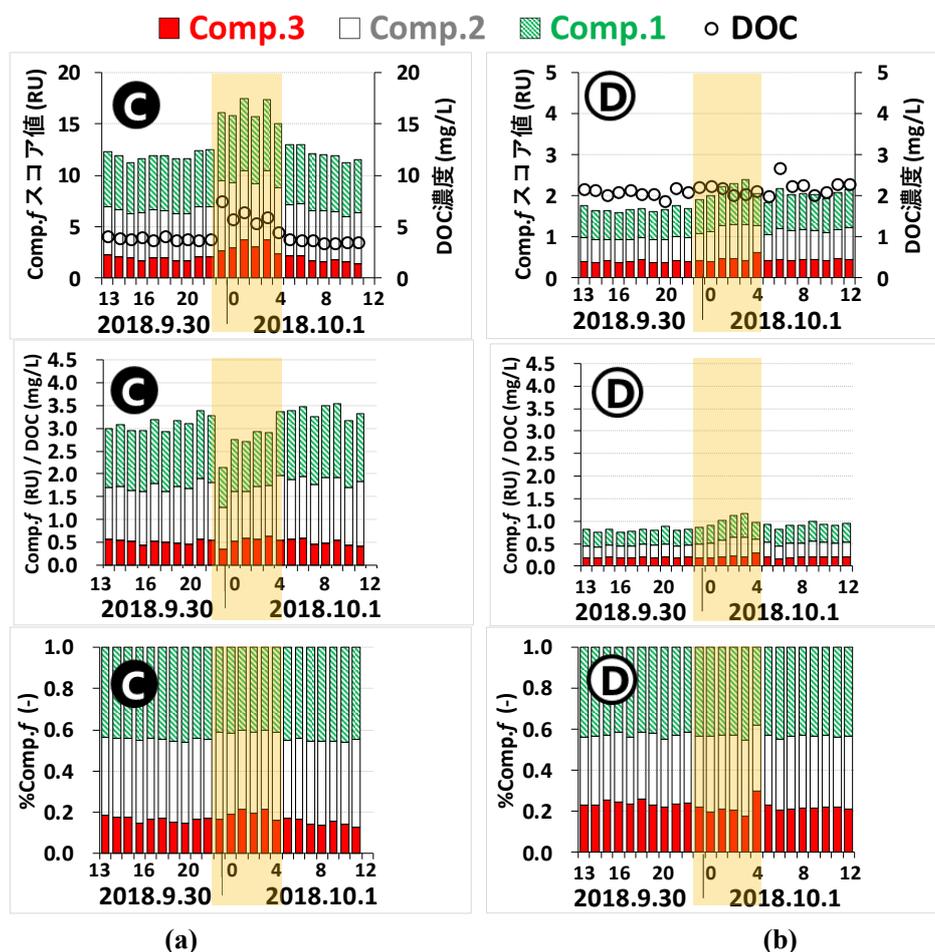


図 6-26 雨天時調査 (総降雨量 28 mm の中降雨時, C 下水処理場の簡易処理放流が 6 時間発生) における C 下水処理場放流水・地点 D 河川水の Comp.1, Comp.2 及び Comp.3 の合計値 Comp.f, DOC 濃度, FDOM と DOM の比を表す Comp.f/DOC 比, 及び FDOM の構成割合を表す%Comp.f の経時変化. (a) 放流水, (b) 河川水. ハイライトは簡易処理の時間帯を表す. 2018 年 10 月 1 日 12:00 における放流水のデータは欠測.

図 6-26 左側の放流水について、DOC は簡易処理等発生終了後、徐々に DOC は低下し、3.5 mg/L となった。対して、Comp.f は簡易処理等発生時の 2018 年 9 月 30 日 23:00 に 16 RU となったのち、10 月 1 日 4:00 まで 15~18 RU で推移した。簡易処理終了後、急に Comp.f は低下し、簡易処理水により DOC は約 2.0 倍、Comp.f は約 1.3 倍に増加した。DOC と Comp.f の変化を比較すると、ピークになる直前と直後の時刻の 9 月 30 日 23:00、翌 0:00 に Comp.f/DOC が 3.3 RU/(mg/L) から 2.1 RU/(mg/L) へ急に減少した。簡易処理放流前の時間帯（9 月 30 日 13:00~22:00）では %Comp.3 が晴天時と比べ下がっており、簡易処理放流直後（同 23:00）では %Comp.3 がやや減少し、その後（10 月 1 日 0:00~1:00）急に増加している。これは、晴天時と比べた %Comp.3 の低下は、雨天時の高級処理（生物処理）による %Comp.2（陸域由来フミン様成分）の増加の可能性が考えられる。また、%Comp.3 の減少は、降雨初期に流出する下水の有機汚濁が高濃度となるファーストフラッシュ由来の Comp.2（陸域由来フミン様成分）及び非蛍光性 DOM が混入した可能性が考えられる（山口ら, 2018）。さらに、その後の %Comp.3 の急な増加は、汚水由来の Comp.3（タンパク質様成分）混入の可能性が考えられる。

図 6-26 右側の河川水について、DOC は 1.9~2.7 mg/L 程度、Comp.f は 1.6~2.4 RU 程度で推移した。対して、Comp.f/DOC 比は 0.76~1.2 RU/(mg/L) 程度、%Comp.3 は 0.18~0.30 程度と算出された。特に、2018 年 10 月 1 日 6:00 に DOC は 2.7 mg/L へ急に増加した。また、2018 年 9 月 30 日 23:00 以降に Comp.f 及び Comp.f/DOC 比が徐々に増加し、10 月 1 日 3:00 に Comp.f は 2.4 RU、Comp.f/DOC 比は 1.2 RU/(mg/L) へ達した。対して、Comp.3/DOC 比は 0.21 RU/(mg/L) と算出された。さらに、同 4:00 に Comp.f 及び Comp.f/DOC 比が急に減少し、Comp.f は 2.1 RU、Comp.f/DOC 比は 0.97 RU/(mg/L) となった。対して、%Comp.3 は 0.30 へ急に増加した。Comp.f や Comp.f/DOC が増加する時間帯（10 月 1 日 0:00~3:00）では %Comp.3 が増加前の時間帯（9 月 30 日 13:00~23:00）と比べ下がっており、Comp.f や Comp.f/DOC が急に減少する時刻（10 月 1 日 4:00）では %Comp.3 が急に増加し、その後急に減少している。Comp.f や Comp.f/DOC の増加前と比べて 10 月 1 日 0:00~3:00 に %Comp.3 が低下するのは、降雨により流域から大量に放出された森林あるいは農地由来の FDOM とともに、雨天時の高級処理（生物処理）による %Comp.2（陸域由来フミン様成分）の増加の可能性が考えられる。また、10 月 1 日 4:00 における Comp.f や Comp.f/DOC の急な減少はファーストフラッシュ由来の非蛍光性 DOM 混入の可能性が考えられる（山口ら, 2018）。さらに、同時刻における %Comp.3 の急な増加は、図 6-19 の右下段に示したように瀬田川洗堰の放流量が 300 m<sup>3</sup>/s 程度と大きい場合、瀬田川流量に対する C 下水処理場の高級処理放流水及び簡易処理放流水の流量の割合は約 2% に過ぎないものの、C 下水処理場の放流水が放流先水域で均一に拡散せず、筋状に流下して河川地点 D へ達した可能性や A, B, C 下水処理場の簡易処理放流や CSO の発生の寄与が考えられる。

#### 6.3.4.7 河川水への雨天時下水（簡易処理水）混入の評価精度の検証結果

本調査における瀬田川河川水に対し、6.3.3.5 (1) に示した簡易処理放流水の流下時間を考慮した唐橋での 5 つの簡易処理水混入指標の候補 ((a) FDOM (タンパク質様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOC (タンパク質様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOC (全蛍光成分/DOC 濃度)) による、簡易処理放流リスクの評価精度を、絶対値と時間変化量の相対値で検証した。簡易処理水混入指標の候補 (a)~(e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 6-27 に、検証結果を表 6-5 に示す。検証については、6.2.2.5 (2) に示した簡易処理発生を見逃し False Negative (FN) となるデータ数を 0, 1, 2, 4, 5, 6 となるよう 6 通りのシナリオを設定し、シナリオ毎で検証結果を示す。

図 6-27 の指標候補 (a) ~ (e) と下水混入率の関係を以下に述べる。下水混入率は最大 11 %であった。(a) では Comp.2 スコア値が 0.257 RU, (b) では Comp.f スコア値が 1.63 RU, (c) では DOC 濃度が 1.99 mg/L, (d) では Comp.2 スコア値/DOC 濃度が 0.104 RU/(mg/L), (e) では Comp.f スコア値/DOC 濃度が 0.570 RU/(mg/L)より大きい範囲において、下水混入率が基準値 0 %を超過した。よって (a) ~ (e) に係るリスク判定基準として、それぞれ 0.257 RU, 1.63 RU, 1.99 mg/L, 0.104 RU/(mg/L), 0.570 RU/(mg/L)を設定した。

一方、表 6-5 の検証結果について以下に述べる。まず、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する FN となるデータ数 0 のシナリオにおいて、(c) では他と比べて False Positive (FP) となるデータ数が 111 と少なくなることで適合率はいずれも 0.35 と高くなり、結果的に F 値がいずれも 0.52 と比較的高くなった。次に、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の、FN となるデータ数 1 のシナリオにおいても、(c) では他と比べて False Positive (FP) となるデータ数が 110 と少なくなることで適合率はいずれも 0.35 と高くなり、結果的に F 値がいずれも 0.52 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 3 のシナリオにおいても、(c) では他と比べて FP となるデータ数が 104 と少なくなることで適合率は 0.35 と高くなり、結果的に F 値が 0.52 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 4 のシナリオにおいても、(c) では他と比べて FP となるデータ数が 103 と少なくなることで適合率は 0.35 と高くなり、結果的に F 値が 0.51 と比較的高くなった。次に、FN となるデータ数 5 のシナリオにおいても、(c) では他と比べて FP となるデータ数が 96 と少なくなることで適合率は 0.36 と高くなり、結果的に F 値が 0.52 と比較的高く

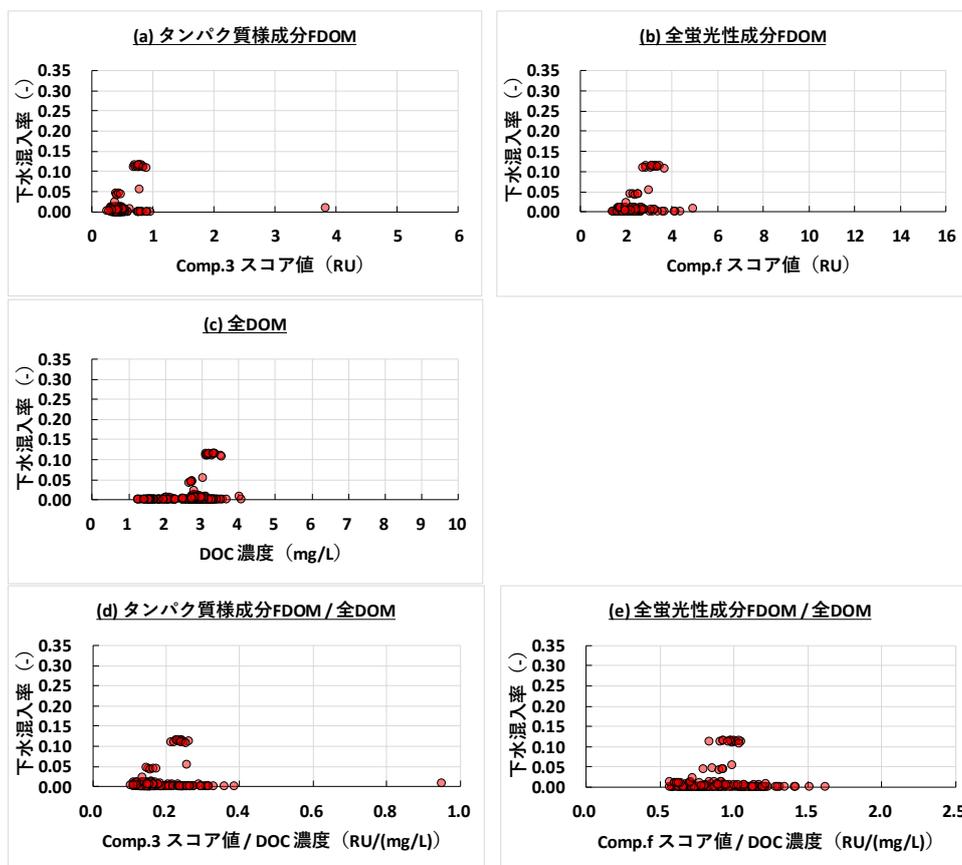


図 6-27 瀬田川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n = 212)。

表 6-5 瀬田川河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a) ~ (e) の絶対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果. 上より FN となるデータ数 0, 1, 3, 4, 5, 6 のシナリオ (n = 212).

項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.257 RU	> 1.63 RU	> 1.99 mg/L	> 0.104 RU/(mg/L)	> 0.570 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 60	60	60	60	60
	= 0.0 のデータ数	FN 0	0	0	0	0
		FP 152	145	111	152	152
		TN 0	7	41	0	0
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.28	0.32	0.48	0.28	0.28
適合率: TP / (TP+FP)		0.28	0.29	0.35	0.28	0.28
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.44	0.45	0.52	0.44	0.44
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.285 RU	> 1.64 RU	> 2.01 mg/L	> 0.112 RU/(mg/L)	> 0.601 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 59	59	59	59	59
	= 0.0 のデータ数	FN 1	1	1	1	1
		FP 152	144	110	152	147
		TN 0	8	42	0	5
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.28	0.32	0.48	0.28	0.30
適合率: TP / (TP+FP)		0.28	0.29	0.35	0.28	0.29
再現率: TP / (TP+FN)		0.98	0.98	0.98	0.98	0.98
F値		0.44	0.45	0.52	0.44	0.44
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.318 RU	> 1.74 RU	> 2.12 mg/L	> 0.114 RU/(mg/L)	> 0.612 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 57	57	57	57	57
	= 0.0 のデータ数	FN 3	3	3	3	3
		FP 151	132	104	151	147
		TN 1	20	48	1	5
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.27	0.36	0.50	0.27	0.29
適合率: TP / (TP+FP)		0.27	0.30	0.35	0.27	0.28
再現率: TP / (TP+FN)		0.95	0.95	0.95	0.95	0.95
F値		0.43	0.46	0.52	0.43	0.43
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.322 RU	> 1.747 RU	> 2.19 mg/L	> 0.116 RU/(mg/L)	> 0.622 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 56	56	56	56	56
	= 0.0 のデータ数	FN 4	4	4	4	4
		FP 151	132	103	151	147
		TN 1	20	49	1	5
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.27	0.36	0.50	0.27	0.29
適合率: TP / (TP+FP)		0.27	0.30	0.35	0.27	0.28
再現率: TP / (TP+FN)		0.93	0.93	0.93	0.93	0.93
F値		0.42	0.45	0.51	0.42	0.43
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.330 RU	> 1.75 RU	> 2.45 mg/L	> 0.121 RU/(mg/L)	> 0.627 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 55	55	55	55	55
	= 0.0 のデータ数	FN 5	5	5	5	5
		FP 151	131	96	151	146
		TN 1	21	56	1	6
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.26	0.36	0.52	0.26	0.29
適合率: TP / (TP+FP)		0.27	0.30	0.36	0.27	0.27
再現率: TP / (TP+FN)		0.92	0.92	0.92	0.92	0.92
F値		0.41	0.45	0.52	0.41	0.42
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
<b>簡易処理水混入の判定基準</b>		> 0.348 RU	> 1.79 RU	> 2.49 mg/L	> 0.1213 RU/(mg/L)	> 0.6276 RU/(mg/L)
下水 混入 率	> 0.0 のデータ数	TP 54	54	54	54	54
	= 0.0 のデータ数	FN 6	6	6	6	6
		FP 147	121	94	151	145
		TN 5	31	58	1	7
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.28	0.40	0.53	0.26	0.29
適合率: TP / (TP+FP)		0.27	0.31	0.36	0.26	0.27
再現率: TP / (TP+FN)		0.90	0.90	0.90	0.90	0.90
F値		0.41	0.46	0.52	0.41	0.42

なった. 最後に, FN となるデータ数 6 のシナリオにおいても, (c) では他と比べて FP となるデータ数が 94 と少なくなることで適合率は 0.36 と高くなり, 結果的に F 値が 0.52 と比較的高くなった.

以上により, 簡易処理発生を確実に判定する FN となるデータ数 0, 1, 3, 4, 5, 6 (再現率 1.00, 0.98, 0.95, 0.93, 0.92) の条件下では, (c) DOM (DOC 濃度) の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高いが, 適合率や F 値に関しさらなる改善の余地があることが示唆された. なお, 6.2.3.4 で詳述した桂川河

川水の場合と比べて、(c) DOM (DOC 濃度) の絶対値をはじめとするすべての簡易処理水混入指標の候補に対し、簡易処理放流リスクの評価精度が著しく劣ることも示された。

本調査のうち 6.3.3.5 (1) で仮定した、簡易処理放流発生の管理基準と唐橋での簡易処理水混入指標の候補との時差を考慮し、唐橋で C 下水処理場の簡易処理水の到達を捉えた可能性のある台風時調査 (2 回目調査)、雨天時調査、雨天時予備調査等に関して、以下に述べる。桂川河川水に対する簡易処理水混入指標の候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係を図 6-28 に、検証結果を表 6-6 に示す。検証については、6.3.3.5 (1) に示した簡易処理発生を見逃し FN となるデータ数 0 となるシナリオと、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の、FN となるデータ数 1 のシナリオを設定し、検証結果を示す。図 6-28 の指標候補 (a)~(e) の時間変化量と下水混入率の関係について以下に述べる。下水混入率は最大 11% であった。(a) では Comp.2 スコア値の時間変化量が  $-0.0746$  RU/h, (b) では Comp.f スコア値の時間変化量が  $-0.390$  RU/h, (c) では DOC 濃度の時間変化量が  $-0.324$  (mg/L)/h, (d) では Comp.2 スコア値 / DOC 濃度の時間変化量が  $-0.0377$  {RU/(mg/L)}/h, (e) では Comp.f スコア値 / DOC 濃度の時間変化量が  $-0.205$  {RU/(mg/L)}/h より小さい範囲において、下水混入率が基準値 0% を超過した。このことから (a)~(e) に係るリスク判定基準として、それぞれ  $-0.0746$  RU/h,  $-0.390$  RU/h,  $-0.324$  (mg/L)/h,  $-0.0377$  {RU/(mg/L)}/h,  $-0.205$  {RU/(mg/L)}/h を設定した。一方、表 6-6 の検証結果については、FN となるデータ数 0, 1 となるシナリオのみを示す。(a)~(e) のいずれも FP となるデータ数がそれ

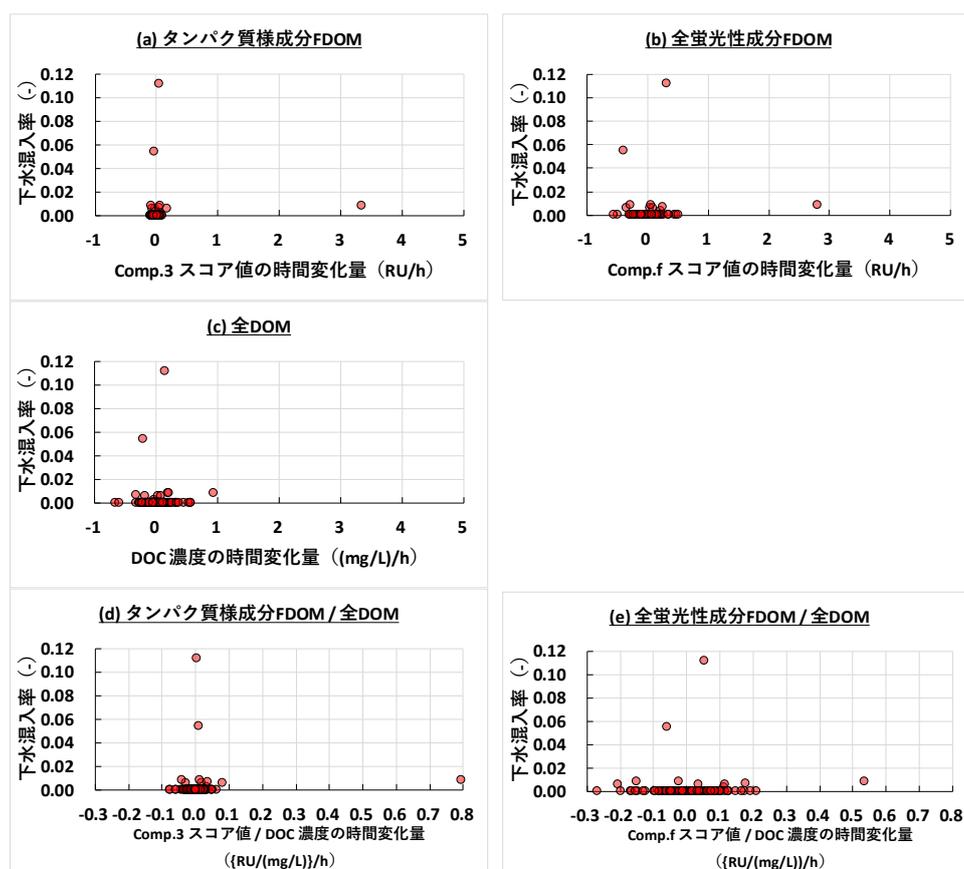


図 6-28 台風時調査 (2 回目調査)、雨天時調査、雨天時予備調査における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値と簡易処理発生の管理基準である下水混入率の関係 (n = 125)。

表 6-6 台風時調査 (2 回目調査), 雨天時調査, 雨天時予備調査等における桂川の河川水に対する簡易処理水混入指標候補 (a)~(e) の時間変化量の相対値を用いた簡易処理放流リスクの評価精度の検証結果 (n = 125).

項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> -0.0746 RU/h	> -0.390 RU/h	> -0.324 (mg/L)/h	> -0.0377 {RU/(mg/L)}/h	> -0.205 {RU/(mg/L)}/h
下 水 混 入 率	> 0.0 のデータ数	TP 10	10	10	10	10
	= 0.0 のデータ数	FN 0	0	0	0	0
		FP 111	113	113	110	114
	TN 4	2	2	5	1	
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.11	0.10	0.10	0.12	0.09
適合率: TP / (TP+FP)		0.08	0.08	0.08	0.08	0.08
再現率: TP / (TP+FN)		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
F値		0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
項目		(a) FDOM (タンパク質様成分) = Comp.3スコア値	(b) FDOM (全蛍光性成分) = Comp.fスコア値	(c) DOM (全溶存態有機物) = DOC濃度	(d) FDOM/DOM = Comp.3スコア値/DOC濃度	(e) FDOM/DOM = Comp.fスコア値/DOC濃度
簡易処理水混入の判定基準		> -0.0497 RU/h	> -0.390 RU/h	> -0.207 (mg/L)/h	> -0.0268 {RU/(mg/L)}/h	> -0.148 {RU/(mg/L)}/h
下 水 混 入 率	> 0.0 のデータ数	TP 9	9	9	9	9
	= 0.0 のデータ数	FN 1	1	1	1	1
		FP 101	113	103	105	110
	TN 14	2	12	10	5	
正解率: (TP+TN) / 全データ		0.18	0.09	0.17	0.15	0.11
適合率: TP / (TP+FP)		0.08	0.07	0.08	0.08	0.08
再現率: TP / (TP+FN)		0.90	0.90	0.90	0.90	0.90
F値		0.15	0.14	0.15	0.15	0.14

ぞれ 111, 113, 113, 110, 114 となることで適合率はいずれも 0.08 とかなり低くなり, 結果的に F 値がいずれも 0.15 と低くなった. また, FN となるデータ数 1 のシナリオにおいても, (a)~(e) のいずれも FP となるデータ数がそれぞれ 101, 113, 103, 105, 110 となることで適合率は 0.07~0.08 とかなり低くなり, 結果的に F 値が 0.14~0.15 と低くなった. これにより, 簡易処理発生を確実に判定する FN となるデータ数 0 (再現率 1.00) や 1 (再現率 0.90) の条件下では, (a) FDOM (タンパク質様成分), (b) FDOM (全蛍光成分), (c) DOM (DOC 濃度), (d) FDOM/DOM (タンパク質様成分/DOC 濃度), (e) FDOM/DOM (全蛍光成分/DOC 濃度) の時間変化量の相対値の適用可能性が極めて低いことが示唆された.

#### 6.4 第 6 章のまとめ

本章の検証調査では, 下水処理放流水混入率が高い桂川河川水で, 降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を桂川河川・B 下水処理場調査により示し, FDOM の桂川河川水への簡易処理水混入指標性を調べた. また, 下水処理放流水混入率が低い南湖から流出する瀬田川河川水で, 降雨時における FDOM・衛生微生物の水質変化特性を瀬田川河川・C 下水処理場調査により示し, FDOM の河川水への簡易処理水混入の検知指標としての有効性を調べた. 結果を以下にまとめる.

- (1) 桂川下流域への放流量が最も大きい, 第 3 章で対象とした合流式の B 下水処理場に注目し, 雨天時下水のうち流入水, 初沈後水, 終沈後水, 放流水に着目して, FDOM の水質変化特性を確認した. 結果より, 本調査においては簡易処理放流による雨天時放流水質の悪化を監視するうえで, タンパク質様成分が有力であることが示唆された (6.2.3.2 参照). また, 放流先の桂川河川水に着目して FDOM の水質変化特性を確認した. 結果より, 本調査においては簡易処理放流等による雨天時河川水質の悪化を監視するうえで, タンパク質様成分が有力であることが示唆された (6.2.3.3 参照).
- (2) B 下水処理場の放流先水域の桂川に対して簡易処理放流水の発生の検出に用いることができる, 簡易処理水混入指標の選定を目的に, DOC, FDOM の指標による簡易処理放流水の発生の判定を検討

した。その結果、簡易処理放流の発生を見逃さず、確実に判定する条件下や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 1, 6 の条件下では、全蛍光成分、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に簡易処理発生を確実に判定する条件下では、適合率や F 値に関し全蛍光成分、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることが示唆された (6.2.3.4 参照)。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下では、タンパク質様成分、タンパク質様成分/DOC 濃度の時間変化量の相対値の適用可能性が高くなることが示唆された (6.2.3.4 参照)。

- (3) B 下水処理場の雨天時下水のうち放流水、放流先の桂川河川水に着目して、衛生微生物の存在実態を検討した。結果より、雨天時河川水中のタンパク質様成分を連続測定することで、B 下水処理場の簡易処理放流の前後で、雨天時河川水中の GI-NoV, GII-NoV 及び PMMoV 検出濃度の 10 倍程度の増加を質的に常時監視できる可能性が示唆された (6.2.3.5 参照)。また、雨天時河川水中の GI-FPH, GII-FPH 及び GIII-FPH 検出濃度のそれぞれ 10, 10, >10,000 倍程度の増加を質的に常時監視できる可能性が示唆された (6.2.3.5 参照)。
- (4) 南湖への放流量が最も大きい分流式の C 下水処理場に注目し、C 下水処理場及び放流先の南湖から流出する瀬田川河川水での雨天時実態を調べた。結果より、大降雨時 (総降雨量 64 mm)、豪雨時 (総降雨量 177 mm) 及び中降雨時 (総降雨量 28 mm) において、瀬田川流量に対する C 下水処理場の放流水量の割合が、それぞれ 4%, 20%, 2% 程度であり、豪雨時には洗堰が 8 時間にわたり全閉されたため、唐橋地点で流量がほとんど観測されなくなり、C 下水処理場放流水が大きな影響を及ぼすことが示唆された (6.3.4.2 参照)。
- (5) 台風時における瀬田川河川水中の FDOM の存在実態を把握し、SSO の影響による主成分スコア値の変化を捉えることを試みた。結果より、総降雨量 64 mm の場合、タンパク質様成分が C 下水処理場での簡易処理放流の発生直後に増大し、大降雨時に処理不十分な下水の河川水への混入が、タンパク質様成分により検出できる可能性が示唆された (6.3.4.3 参照)。また、簡易処理放流が調査前から継続して発生していた総降雨量 177 mm の豪雨の場合、タンパク質様成分では、急激な増加がとらえられず、むしろ全 FDOM 成分が逡増することが示唆された (6.3.4.3 参照)。
- (6) 台風時における瀬田川河川水中の衛生微生物の存在実態を把握し、SSO の影響による検出濃度の変化を捉えることを試みた。結果、C 下水処理場で簡易処理放流が発生しなかった総降雨量 10 mm の少降雨の場合、河川での衛生微生物の顕著な変化は見られなかった。一方、C 下水処理場で簡易処理放流が発生した総降雨量 64 mm の大降雨の場合、衛生微生物のうち GII-FPH 及び PMMoV は増加し、総降雨量 177 mm の豪雨の場合、GI-FPH, GII-FPH 及び PMMoV の全てが一時大きく増加した。微生物濃度が増加した時期は、簡易処理放流及び洗堰の放流量の変化によって影響することが分かった。また洗堰を全開すると濁質が急激に増加することがわかったが、濁度の変化は衛生微生物や FDOM, DOM の濃度変化と異なり、両者は由来が異なることが示唆された (6.3.4.4 参照)。
- (7) C 下水処理場の放流先の南湖から流出する瀬田川河川に対して簡易処理放流水の流達リスクの評価

に用いる、瀬田川河川水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM, FDOM の指標による簡易処理放流水の流達リスク評価精度を検証した。結果より、簡易処理発生を見逃さない条件下や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 1, 3, 4, 5, 6 の条件下では、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が比較的高かったが、DOC 濃度の絶対値をはじめとするすべての簡易処理水混入指標の候補に対し、簡易処理放流リスクの評価精度が著しく劣ることが示唆された (6.3.4.7 参照)。また、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の条件下では、すべての簡易処理水混入指標の候補に対し、時間変化量の相対値の適用可能性が極めて低いことが示唆された (6.3.4.7 参照)。

- (8) 瀬田川河川・C 下水処理場調査における EEM-PARAFAC では、森林あるいは農地由来の FDOM が分離されなかったが、降雨時間経過とともに琵琶湖流域から琵琶湖出口の唐橋地点にも流達することが考えられるため、今後、琵琶湖流入河川などの時系列試料の EEM を追加し、再解析することにより、より汎用性のある下水混入指標を検討する予定である。また本調査において、洗堰放流量と C 下水処理場の放流水の混合状況がどのように変化するかを明らかにする必要がある。さらに、本研究で考慮していない雨天時の他下水処理場からの簡易処理放流による SSO や CSO の影響を、今後検討する必要がある (6.3.4.1 参照)。

以上のように、本章の検証調査では、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される指標としての利用性が、実際の河川水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを明らかにした (目的 3-2)。特に、下水処理放流水混入率が高い桂川の場合にタンパク質様成分で下水混入実験の結果を適用することができ、河川水への簡易処理放流水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があり、その時間変化は簡易処理放流リスク評価へ適用可能であった。しかし、下水処理放流水混入率が低い瀬田川の場合に下水混入実験の結果を適用することができず、かつ簡易処理放流リスク評価へ適用不可能であった。

一方で、FDOM 指標の存在量と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論しなかったため、タンパク質様成分 FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲を明らかにすることができなかった。今後は、桂川・瀬田川の両方で DOM, FDOM 及び衛生微生物の雨天時データの蓄積が必要と考えられる。

#### 参考文献

- Cohen, E., Levy G. J. and Borisover, M.: Fluorescent Components of Organic Matter in Wastewater: Efficacy and Selectivity of the Water Treatment, *Water Research*, Vol. 55, pp 323-334, 2014.
- Cory, R. M., and Kaplan, R. A.: Biological lability of streamwater fluorescent dissolved organic matter, *Limnol. Oceanogr.*, Vol. 57, No. 5, pp 1347-1360, 2012.
- Hata, A., Katayama, H., Kitajima, M., Visvanathan, C., Nol, C. and Furumai, H.: Validation of Internal Controls for Extraction and Amplification of Nucleic Acids from Enteric Viruses in Water Samples, *Applied and*

*Environmental Microbiology*, Vol. 77, No. 13, pp 4336-4343, 2011.

● **Katayama, H., Shimasaki, A. and Ohgaki, S.:** Development of a Virus Concentration Method and Its Application to Detection of Enterovirus and Norwalk Virus from Coastal Seawater, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 68, No. 3, pp 1033-1039, 2002.

● **Komatsu, K., Imai, A. and Kawasaki, N.:** Comparison between humic-like peaks in excitation-emission matrix spectra and resin-fractionated humic substances in aquatic environments, *Limnology*, Vol. 20, No. 1, pp 109-120, 2019.

● **Lu, Y., Bauer, J. E., Canuel, E. A., Yamashita, Y. and Chambers, R. M.:** Photochemical and Microbial Alteration of Dissolved Organic Matter in Temperate Headwater Streams Associated with Different Land Use, *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, Vol. 118, No. 2, pp 566-580, 2013.

● **Mooijman, K. A., Bahar, M., Muniesa, M. and Havelaar, A. H.:** Optimisation of ISO 10705-1 on Enumeration of F-Specific Bacteriophages, *Journal of Virological Methods*, Vol. 103, No. 2, pp 129-136, 2002.

● **Rochelle-Newall, E. J. and Fisher, T. R.:** Production of chromophoric dissolved organic matter fluorescence in marine and estuarine environments: an investigation into the role of phytoplankton, *Marine Chemistry*, Vol. 77, No. 1, pp 7-21, 2002.

● **Stedmon, C. A. and Markager, S.:** Resolving the Variability in Dissolved Organic Matter Fluorescence in a Temperate Estuary and its Catchment Using PARAFAC Analysis, *Limnology and Oceanography*, Vol. 50, No. 2, pp 686-697, 2005.

● **Wolf, S., Hewitt, J., Rivera-Aban, M. and Greening, G. E.:** Detection and Characterization of F+ RNA bacteriophages in water and shellfish: application of a multiplex real-time reverse transcription PCR, *Journal of Virological Method*, Vol. 149, No. 1, pp 123-128, 2008.

● **Yamashita, Y., Scinto, L. J., Maie, N., and Jaffé, R.:** Dissolved Organic Matter Characteristics Across a Subtropical Wetland's Landscape: Application of Optical Properties in the Assessment of Environmental Dynamics, *Ecosystems*, Vol. 13, No. 7, pp 1006-1019, 2010.

● **Zhang, T., Breitbart, M., Lee, W. H., Run, J. Q., Wei, C. L., Soh, S. W. L., Hibberd, M. L., Liu, E. T., Rohwer, F. and Ruan, Y. J.:** RNA Viral Community in Human Feces: Prevalence of Plant Pathogenic Viruses, *PLoS Biology*, Vol. 4, No. 1, e3, 2006.

○ 岩佐義朗, 磯久礼志, 村田直人: 琵琶湖南湖の水理学的特徴, 土木学会第 32 回年次学術講演会講演概要集, Vol. II, pp 471-472, 1977.

○ 大津市企業局: 大津市の汚水処理 HP, <http://www.city.otsu.lg.jp/soshiki/080/1902/g/1460359066269.html>, 2018.

○ 片山浩之, 栗栖太, 小熊久美子, 井上健太郎, 田中宏明, 山下尚之, 井原賢, 花本征也, 端昭彦, 李善太, 佐野大輔, 原本英司ほか: 水系感染微生物による水環境汚染の把握と微生物起源解析の活用に関する研究, 環境省, 平成 28 年度環境研究総合推進費委託業務報告書, No. 5-1603, 2017.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2018 年 10 月 28 日, 2018.

○ 気象庁: 過去の気象データ検索, 公式 HP, <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>, 最終閲覧日: 2019 年 3 月 28 日, 2019.

- 喜多理: 淀川下流の水道の水源としての琵琶湖, 水質汚濁研究, Vol. 7, No. 5, pp 274-277, 1984.
- 京都市上下水道局: 平成 29 年度版公共下水道統計年報, 2017.
- 小松一弘, 今井章雄, 松重一夫, 奈良郁子, 川崎伸之: 三次元励起蛍光スペクトル法による霞ヶ浦湖水及び流域水中 DOM の特性評価, 水環境学会誌, Vol. 31, No. 5, pp 261- 267, 2008.
- 滋賀県: 滋賀県の流域下水道計画 HP,  
<https://www.pref.shiga.lg.jp/ryuikigesui/gesuidou/103408.html>, 2013.
- 滋賀県琵琶湖環境部: 平成 27 年度滋賀県の下水道事業, p 9, 18, 2016.
- 清水芳久 (第 3 章執筆担当), 田中宏明, 田中祐之, 加藤康弘, 高島英二郎, 鈴木穰, 水野忠雄, 田中周平: 水環境中 NOM の抽出および分析方法の確立 (第 3 章), JST CREST 「21 世紀型都市水循環系の構築のための水再生技術の開発と評価」に関する報告書, 戦略的創造研究推進事業 CREST, 研究領域「持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム」, 2015.
- 白坂勇也: 琵琶湖南湖におけるウイルス汚染の実態把握およびウイルス汚染指標の検討, 京都大学大学院工学研究科修士論文, 2017.
- 杉下寛樹: 水環境中における医薬品類の動態と濃度予測に関する研究, 京都大学修士学位論文, 2009.
- 宗宮功, 小野芳朗: 琵琶湖南湖の汚濁負荷量の評価, 環境技術, Vol. 13, No. 7, pp 523-527, 1984.
- 田中宏明, 山下尚之, 花本征也, 端昭彦, 白坂勇也, 山口武志: 淀川水系中流域における病原微生物と指標微生物の動態の比較, 公益財団法人 河川財団, 河川整備基金助成事業, No. 27-1211-015, 2016.
- 西田佳記, 圓佛伊智朗, 西田光希, 松葉祐亮, 田中宏明: 放流汚濁負荷を低減する雨天時下水処理運転管理に向けた汚泥流出リスク予測手法の検証, 学会誌「EICA」, Vol. 24, No. 2-3, pp 14-21, 2019.
- 原良平: 琵琶湖水の利用の現状と推移, 水質汚濁研究, Vol. 7, No. 5, pp 265-269, 1984.
- 琵琶湖・淀川水質保全機構: BYQ 水環境レポート平成 22 年度, 2011.
- 藤井滋穂, 宗宮功: 琵琶湖南湖における水質の現況と動向, 環境技術, Vol. 12, No. 9, pp 566-574, 1983.
- 堀太郎, 板坂修, 橋本剛: セタシジミ (*Corbicula sandai*) の生息に及ぼす瀬田川 (滋賀県) 底質の影響について (Ⅲ), 滋賀大学学芸学部紀要, Vol. 12, pp 15-19, 1962.
- 増田貴則: GIS を活用した流域環境情報の統合化とその現象解析・計画論への適用に関する研究 - 琵琶湖流域を対象として, 京都大学博士学位論文, 2000.
- 水資源機構: 琵琶湖開発総合管理所 HP,  
[https://www.water.go.jp/kansai/biwako/html/about\\_biwa/ab\\_biwa\\_01.html](https://www.water.go.jp/kansai/biwako/html/about_biwa/ab_biwa_01.html), 2007.
- 山口武志, 山下尚之, 田中宏明: EEM-PARAFAC による河川水中の溶存態有機物の動態へ及ぼす雨天時都市下水の影響検討, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 74, No. 7, pp III\_275-III\_284, 2018.
- 山口武志, 山下尚之, 田村太一, 田中宏明: 琵琶湖流出河川水中の溶存態有機物と衛生微生物の動態へ及ぼす雨天時下水の影響調査, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 75, No. 7, pp III\_185-III\_198, 2019.
- 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

## 第7章 結論

### 7.1 本研究で得られた成果

本研究により、以下のことが明らかとなった。

#### 7.1.1 第2章の成果

第2章の文献調査では、まず、下水道における雨天時下水の問題や、国内外での対応を要約した。次に、下水道由来と考えられる衛生微生物の汚染状況に関する知見を整理した。次に、重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知する必要性について論述した。最後に、下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入を迅速に検知する簡易指標候補としての蛍光性溶存態有機物 (FDOM) について論述した。これらの文献調査により、残されている課題について整理することで、本研究の位置づけを明らかにした。

まず、合流式下水道越流水 (CSO) と分流式下水道越流水 (SSO) に関する事例を要約した。また、合流式下水道改善のための取り組みを要約したうえで、今後、重要影響水域において主に病原微生物の除去を行う処理が必要であることを示した。さらに、分流式下水道においても SSO の発生が問題視されており、この対応も今後求められることも示した。

次に下水処理放流水の影響下にある環境水中の水系感染症のウイルスの存在実態を要約した。特に、淀川水系桂川における環境水・下水処理放流水試料からの衛生微生物検出の非降雨時調査事例を詳述した。また、指標微生物を監視することで水質管理を行っていることを踏まえ、現状の指標微生物及び指標候補微生物を用いた水質管理の取り組みを要約した。結果、桂川下流域の下水処理場放流口の下流側河川水中の微生物濃度について、大腸菌 (*E. coli*) や大腸菌群 (TC) は上流側河川水からの微生物汚染が、大腸菌ファージや水系感染症のノロウイルス (NoV) は下水処理場放流口からの影響が強いと推察された。また大腸菌ファージは、ヒト以外の動物糞便からも排出される点や、水環境中で増殖する可能性がある点から、ウイルス汚染指標としての有効性に疑義が持たれていることを示した。そのため、近年ではヒトに感染するウイルスそのものをウイルス汚染指標として用いることが議論されていることを示した。

次に、重要影響水域で雨天時下水の混入を迅速に検知し、放流先へ早期警報 (early warning) できる指標の必要性を示すために、取排水システムが交錯する水道水源での非計画的な事実上の間接的飲用再利用 (*de facto potable reuse*)、リクレーション用途の再利用について要約した。水道水源としての河川水の中には、上流側でかなりの数の下水処理放流に影響されているものがあることや、これらの水域はリクレーション用途に供される場合もあることを示した。雨天時下水の実態調査事例から、河川水への雨天時下水混入により生物化学的酸素要求量 (BOD) と TC がともに増加していることを示した。衛生微生物と有機物に直接的な関係は不明であるが、下水に由来する衛生微生物と有機物の処理レベルの差は、それぞれ、特性を持っているかもしれない。仮に特性を持つ場合、下水処理場及び雨水吐から放流される雨天時下水や放流先の河川水に対し、水中の有機物を適切に監視することにより、微生物汚染の状況も、ある程度までは把握できる可能性があることを示した。重要影響水域や流域の下水道で、雨天時下水の混入を迅速に検知するための知見が不足していることを指摘した。雨水吐での雨天時越流水に対しては濁度、分流汚水への不明水の影響に対しては電気伝導度 (EC) の連続測定が有効であるが、受水域側においては下水道以外の汚濁負荷源が存在し得るため、多様な水の混合による環境水に対し、雨天時下水混

入を濁度・ECにより検知できない。

そこで、溶存態有機物（DOM）が雨天時下水の検知指標となり得る、という仮説を立てた。高級処理水中 DOM を推定した事例により、連続的で、迅速に、複数の DOM 成分を検出できる蛍光分析により検出できる FDOM が、高濃度の衛生微生物が存在する CSO・SSO に対し、高級処理水及び河川水への混入を迅速に検知する簡易指標候補としての可能性を持つことを示した。

最後に FDOM の分析法として蛍光分析を活用した 3 次元励起・蛍光マトリクス（EEM）測定と多変量解析の一つの平行因子解析（PARAFAC）からなる EEM-PARAFAC 法について、蛍光分析の原理から 3 次元蛍光分光測定による EEM 分析、得られた EEM スペクトルの解析手法としての PARAFAC に至るまで要約した。また EEM 分析及び EEM-PARAFAC 法を適用した、最近の研究の動向を要約した。結果、EEM の解釈に際し、従来のピークピッキングによる成分推定には限界があることを示した。また、EEM の解析性能を大幅に向上させた EEM-PARAFAC 法を適用することで、非降雨時における下水処理水の放流先河川への混入により、河川水中の FDOM であるフミン様成分などが卓越することを示した。しかし報告事例は少なく、特に EEM-PARAFAC 法を適用した FDOM の迅速かつ連続的な検出により、雨天時下水を水環境中で検出した事例は、ほとんど確認されなかった。下水中の FDOM のうちタンパク質様成分が生物処理により大きく減少した事例から、タンパク質様成分は高級処理水への簡易処理水混入や河川水への簡易処理水混入を迅速かつ連続的に検知できる指標となる可能性を持つことを明らかにした。

これらの文献調査により、下水道からの都市排水による重要影響水域の衛生学的安全性に対して、「指標微生物の測定による病原微生物の存在実態の解明」という視点でアプローチした研究が多いなか、「都市排水の簡易指標化による雨天時下水混入の迅速かつ連続的な把握」という工学的視点からアプローチする研究は、これまで例がないと考えられた。また汚水中の点源汚濁負荷だけではなく、雨水排水中の面源汚濁負荷に対し、異なる処理レベルから FDOM の指標性を検討する研究事例はみられなかった。このような非定常の都市排水全般が与える、下流での水利用にかかる病原微生物リスクが上昇する時間帯を監視により捉えることは、水利用の安全性を考慮した場合に有用性が高いと考えられた。さらに本研究の成果は、水道水源中の有機物等により消毒副生成物（DBPs）が生成する可能性が出てくるため、浄水場における DBPs 前駆物質の一部を示している可能性がある特異的な FDOM 成分についての有用な知見を提供する、応用性が高いものと考えられた。

以上の文献調査の成果により、衛生学的安全性に悪影響を及ぼす雨天時下水に対し、EEM-PARAFAC 法を適用し特異的な FDOM のタンパク質様成分の存在量を推定することで、下水処理放流水及び河川水への雨天時下水混入の簡易指標化を行うことの意義と重要性を示し、本研究の位置づけを明らかにした。

### 7.1.2 第 3 章の成果

第 3 章の実態調査では、桂川水系において、下流域にある都市の排水を受け入れる合流式下水道のうち処理能力が最も大きい下水処理場を対象とした。下水処理放流水及び放流先上下流の河川水に含まれる衛生微生物の非降雨時での存在実態を検出濃度で示した先行研究（第 2 章 2.3.2.2 参照）を引用し、下水処理放流水及び河川水に含まれる衛生微生物の降雨時での存在実態を、検出濃度と流量を考慮した負荷量により示すとともに、非降雨時と比較して降雨による微生物負荷量の上昇の程度を検討した。

RT-qPCRによる病原微生物のGI, GII各遺伝子群のNoV (GI, GII-NoV), 指標候補微生物のトウガラシ微斑ウイルス (PMMoV)の検出濃度について, 降雨による下水処理場からの簡易処理水により下水処理放流水中の病原微生物濃度や, 指標候補微生物濃度は増大し, 河川での濃度増加に影響を及ぼすことを示した. GI, GII-NoV, PMMoVの負荷量について, 簡易処理放流水により病原微生物, 指標候補微生物の負荷量は増大し, 河川での負荷量上昇に影響を及ぼすが, それ以上にこの区間では別の負荷源により大きく負荷量が上昇していることを示した. 特に病原微生物のGII-NoV負荷量は, この区間の上流からの負荷源が元々大きいことも示した. 培養法による指標微生物*E. coli*, TC, 指標候補微生物のF特異RNA大腸菌ファージ (FPH)の負荷量について, 降雨による下水処理場の簡易処理放流水により指標・指標候補とも微生物負荷量は増大し, 河川での負荷量上昇に影響を及ぼしているが, それ以上にこの区間では別の負荷源により大きく負荷量が上昇していることを示した.

先行研究の非降雨時調査の結果から, 下水処理場では*E. coli*及びTCを減少させ, 河川下流に水質改善効果を持つが, 病原ウイルスやその指標候補ウイルスは, むしろ下水処理放流水の寄与が大きく, その項目に関して河川水質は悪化することを示した. 降雨時調査の結果からは, 降雨により, 病原ウイルスやその指標候補ウイルスはもちろん, *E. coli*, TCも下水処理場の寄与が大きく, 河川水質は悪化することを示した. ただし, その増加に寄与する負荷は, 上流での河川の負荷量と比べて, 同等以上の場合もあるが, 比較的小さい場合もある. 前者では, 下水処理場の放流負荷の改善が大きく効果を持つが, 後者の場合は上流負荷の削減も並行して行うことも重要であることを示している. 一方, 下水処理場からの排出負荷量が, 河川の下流での上昇に大きく寄与している場合もあるが, その負荷量だけでは十分説明できない場合も見られた. この場合は, 河川の上下流地点の区間で, 下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があることを示している. その原因を把握する必要性があることを示した.

以上の実態調査の成果により, 桂川下流域に位置する合流式の下水処理場において, 雨天時下水 (簡易処理水) が高級処理水に混入することで, 下水処理放流水中の病原ウイルス負荷量の増大を引き起こすことを示した. また, このような簡易処理放流水による放流先の桂川河川水への衛生学的影響が, 指標微生物や指標候補ウイルスの負荷量増大で説明できることを示した. これらにより, 簡易処理放流水及び放流先河川水に含まれる衛生微生物の存在実態の変化を, 検出濃度, 下水処理放流量及び河川流量を考慮して明らかにした (目的1).

特にGI, GII-NoV, FPH, FPHの各遺伝子群FRNAPHs (GII-FPH), PMMoV, *E. coli*及びTCのように, 下水処理場からの排出負荷量が河川の下流での上昇に大きく寄与しているが, いずれも下水処理場からの排出負荷量だけでは十分説明できなかつた. これにより, 河川の上下流地点の区間で下水処理場以外に大きく流入する汚濁源があり, 鴨川などに沿って位置する雨水吐からの雨天時越流水である可能性を示した. 特にGII-NoVについては, 河川の上流からの負荷源が元々大きいことも示した.

### 7.1.3 第4章の成果

第4章の基礎実験では, 模擬的な雨天時下水の生物処理・凝集処理によるFDOMの水質変化特性を, 生物処理実験・凝集処理実験により検討した. また, 高級処理水への模擬的な簡易処理水混入や, 河川水への模擬的な簡易処理放流水混入によるFDOMの水質変化特性を, 下水混入実験により検討した.

まず、生物処理実験により各代表ピークで蛍光強度の減少率と経過時間を比較した。結果、FDOMのうちタンパク質様成分が、時間経過で最も大きく減少した。よって、経過時間が最長 8 hr の生物処理を受けることによる水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることを示した。次に、凝集処理実験により各代表ピークで蛍光強度の減少率と無機凝集剤のポリ塩化アルミニウム (PACl) 添加濃度を比較した。結果、FDOM のうちタンパク質様成分及び陸域由来フミン様成分が、PACl 添加濃度にともない比較的大きく減少し、特に陸域由来フミン様成分が最も大きく減少した。よって、PACl 添加濃度が最大 500 mg/L の凝集処理を受けることによる水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうち陸域由来フミン様成分が有力であることを示した。最後に、下水混入実験により各代表ピークで蛍光強度の増加率と下水混入率を比較した。結果、FDOM のうちタンパク質様成分が、下水混入で最も大きく増加した。よって、雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることを示した。

以上の各種基礎実験の成果により、高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、水の再利用の視点から衛生微生物の存在を示唆する指標として注目されている溶存態有機炭素 (DOC) に対し、EEM 測定で得られた励起・蛍光スペクトルのピークピッキングによる下水中 FDOM の蛍光強度データを活用することにより、FDOM のうち特にタンパク質様成分、陸域由来フミン様成分の利用性を明らかにした (目的 2)。すなわち、雨天時下水の生物処理・凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として FDOM のうち、それぞれタンパク質様成分・陸域由来フミン様成分が有力であることを示した。また、高級処理水への雨天時下水混入による水質変化に対し、水質レベル推定の簡易指標として FDOM のうちタンパク質様成分が有力であることも示した。

#### 7.1.4 第 5 章の成果

第 5 章の検証調査では、3 箇所の下水処理場を対象に EEM-PARAFAC 法を適用した。雨天時下水の生物処理・凝集処理による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を現地調査により検討した。また、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM・衛生微生物の水質変化特性を現地調査により検討し、FDOM の高級処理水への簡易処理水混入指標性を調べた。

合流式の A 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち流入水に着目して、FDOM と下水道管理者より入手した BOD、化学的酸素要求量 (COD)、浮遊物質量 (SS) 等の水質項目との比較をおこなった。結果より、本調査では降雨の影響下でファーストフラッシュは流入水中 FDOM の動態に変化を与えず、降雨より汚水量増加の影響下で、特に生活雑排水量の増加はタンパク質様成分 FDOM のうちクロシン様成分の動態に影響を与え、一方し尿の水量の増加はタンパク質様成分 FDOM のうちトリプトファン様成分の動態に影響を与えることを示した。また、降雨の影響下でファーストフラッシュは初沈後水中 FDOM の動態に変化を与え、面源負荷や管内堆積物などのうち最初沈殿池で除去されない汚濁物に由来し、これらの汚濁物には蛍光性を有しない DOM も多く含まれていることを示した。雨天時下水の生物処理による FDOM の水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の低減状況と最初沈殿池及び活性汚泥法の水理的滞留時間 (HRT) との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、第 4 章の生物処理実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパ

ク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることを示した。

分流式の B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水の生物処理による DOM や FDOM の構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理では EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることを示した。雨天時下水の生物処理による TC、*E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC、*E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であり、特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことを示した。

分流式・合流式の C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち流入水に着目して、晴天時と雨天時で DOM や FDOM の動態比較をおこなった。結果より、雨天時の流入水中の DOM に占める FDOM の割合が晴天時と比べて大きくなり、面源負荷の陸域由来フミン様成分や管内堆積物中のトリプトファン様成分が含まれることによる可能性があることを示した。雨天時下水の生物処理による DOM や各 FDOM 構成成分の低減性と活性汚泥法の HRT との関連を調べ、HRT と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の生物処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A・B 下水処理場と異なり、C 下水処理場における実際の雨天時下水の生物処理においても EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることを示した。雨天時下水の生物処理による各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、FDOM のうちタンパク質様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC、*E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であること、特に、TC 及び *E. coli* に対するトリプトファン様成分の指標性、FPH に対するチロシン様成分の指標性が高いことを示した。

分流式・合流式の C 下水処理場の凝集処理系において、雨天時下水の凝集処理による DOM や各 FDOM 成分の除去率と PACl 添加との関連を調べ、PACl 添加濃度と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、第 4 章の凝集処理実験で明らかにしたピークピッキングによる陸域由来フミン様成分の凝集処理を受けることによる雨天時下水の水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、C 下水処理場における実際の雨天時下水の凝集処理において EEM-PARAFAC 法で得られた陸域由来フミン様成分により適用可能であることを示した。雨天時下水の凝集処理による各衛生微生物の除去率と HRT との関連を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、FDOM のうち陸域由来フミン様成分の簡易的な衛生指標としての適用範囲については、本調査で対象とした衛生微生物 TC、*E. coli* 及び FPH のいずれも適用可能であり、*E. coli* では陸域由来フミン様成分、FPH ではチロシン様成分がより有力であることを示した。

合流式の A 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡

易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と簡易処理水の混入率（下水混入率）との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、第 4 章の下水混入実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、A 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることを示した。放流先水域側に対して簡易処理放流リスクの評価に用いる、高級処理水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM、FDOM の指標による簡易処理放流リスク評価精度を検証した。結果より、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 6 の条件下では、トリプトファン様成分/DOC 濃度比、全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に適合率や F 値に関し全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることを示した。また、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下では、トリプトファン様成分の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることを示した。高級処理水への簡易処理水混入による TC、*E. coli* 及び FPH の各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、高級処理水への簡易処理水混入の場合、*E. coli* 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM より DOM の存在量である DOC 濃度はふさわしいこと、TC 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM はふさわしくないが、DOC 濃度はふさわしいことを示した。

分流式の B 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒後の下水処理放流水及び簡易処理放流水に着目して、高級処理水への簡易処理水混入による FDOM の水質変化特性として、DOM や FDOM を構成する複数成分の増大状況と下水混入率との関連を調べ、下水混入率と DOC 濃度及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、B 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用可能であることを示した。放流先水域側に対して簡易処理放流リスクの評価に用いる、高級処理水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM、FDOM の指標による簡易処理放流リスク評価精度を検証した。結果として、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 4、6 の条件下では、DOC 濃度、トリプトファン様成分/DOC 濃度比、全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に判定漏れデータ数 4 の条件下では、適合率や F 値に関し DOC 濃度の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることを示した。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下では、全蛍光成分、DOC 濃度の時間変化量の相対値の適用可能性が最も高くなることを示した。高級処理水への簡易処理水混入による各衛生微生物の検出濃度の変化特性を調べ、衛生微生物濃度と DOM 及び FDOM の蛍光強度の相関性を検討した。結果より、高級処理水への簡易処理水混入の場合、TC、*E. coli* 及び FPH 濃度の水質変換過程が推察される簡易的な衛生指標として FDOM のうちトリプトファン質様成分はふさわしいことを示した。

分流式・合流式の C 下水処理場の生物処理系において、雨天時下水のうち塩素消毒前の簡易処理放流水（消毒前水）に着目して、生物反応槽及び最終沈殿池をバイパスする初沈後水（バイパス水）と、混入前の終沈後水（高級処理水）と併せて、同時刻で DOM や FDOM の動態比較をおこなった。結果より、ピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標

としての利用性が、C 下水処理場における実際の高級処理水への簡易処理水混入においては EEM-PARAFAC 法で得られたトリプトファン様成分により適用不可能であることを示した。雨天時下水のうち簡易処理放流水に着目して、バイパス水と高級処理水と併せて、同時刻で衛生微生物の動態比較をおこなった。結果より、簡易処理の初期～中期では、バイパス水の混入による高級処理水中濃度から消毒前水中濃度への増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分とは関係がほとんどないことを示した。また、簡易処理の中期～終期では、バイパス水の混入による高級処理水中濃度から消毒前水中濃度への増加は、バイパス水中 FDOM のうちトリプトファン様成分と関係している可能性を示した。

以上の検証調査の結果により、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによる FDOM 成分の雨天時下水処理や雨天時下水混入による水質変換過程が推察される簡易指標としての利用性が、実際の雨天時下水処理や高級処理水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを、タンパク質様成分をトリプトファン様成分とチロシン様成分に分離して明らかにした（目的 3-1）。また、FDOM 指標の濃度と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論することで、FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲も明らかにした。

特に実際の雨天時下水処理では、生物処理系の場合においてトリプトファン様成分で生物処理実験の結果を適用することができ生物処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示し、凝集処理系の場合において陸域由来フミン様成分で凝集処理実験の結果を適用することができ凝集処理による水質変換過程が推察される簡易指標として示した。高級処理水への簡易処理水混入では、分流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができ高級処理水への簡易処理水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があること、全蛍光成分の時間変化の相対値は簡易処理発生を見逃さない条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることを示した。また、合流式の場合にトリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用することができなかったが、その時間変化の相対値は簡易処理発生を見逃さない条件下での簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることを示した。また、分流式・合流式の場合も、トリプトファン様成分で下水混入実験の結果を適用できなかった。さらに、簡易的な衛生指標としての適用範囲については、分流式では生物処理・混入のいずれもトリプトファン様成分が適用可能であり、分流式・合流式では生物処理に対しトリプトファン様成分・チロシン様成分ともに適用可能で、凝集処理に対し陸域由来フミン様成分が適用可能であることを示した。

#### 7.1.5 第 6 章の成果

第 6 章の検証調査では、桂川・瀬田川を対象に EEM-PARAFAC 法を適用した。下水処理放流水混入率が高い桂川で、降雨時の FDOM・衛生微生物の水質変化特性を河川、第 3 章で対象とした下水処理場の調査で示し、FDOM の桂川河川水への簡易処理水混入の検知指標としての有効性を調べた。また、混入率が低い南湖から流出する瀬田川で、降雨時の FDOM・衛生微生物の水質変化特性を河川、流域の下水処理場の調査で示し、FDOM の瀬田川河川水への簡易処理水混入の検知指標としての有効性を調べた。

桂川下流域への放流量が最も大きい、第 3 章で対象とした合流式の下水処理場に注目し、雨天時下水のうち流入水、初沈後水、終沈後水、放流水に着目して、FDOM の水質変化特性を確認した。結果より、本調査においては簡易処理放流による雨天時放流水質の悪化を監視するうえで、タンパク質様成分が有

力であることを示した。また、放流先の桂川河川水に着目して FDOM の水質変化特性を確認した。結果より、本調査においては簡易処理放流等による雨天時河川水質の悪化を監視するうえで、タンパク質様成分が有力であることを示した。

放流先水域の桂川に対して簡易処理放流水の発生の検出に用いることができる、簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOC、FDOM の指標による簡易処理放流水の発生の判定を検討した。結果より、簡易処理放流の発生を見逃さず、確実に判定する条件下や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 1、6 の条件下では、全蛍光成分、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が比較的高く、特に簡易処理発生を見逃さない条件下では、適合率や F 値に関し全蛍光成分、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が全シナリオを通じて最も高くなることを示した。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下では、タンパク質様成分、タンパク質様成分/DOC 濃度の時間変化量の相対値の適用可能性が高くなることを示した。

雨天時下水のうち放流水、放流先の桂川河川水に着目して、衛生微生物の存在実態を検討した。結果より、雨天時河川水中のタンパク質様成分を連続測定することで、この合流式下水処理場の簡易処理放流の前後で、雨天時河川水中の GI-NoV、GII-NoV 及び PMMoV 検出濃度の 10 倍程度の増加を質的に常時監視できる可能性を示した。また、雨天時河川水中の GI-FPH、GII-FPH 及び GIII-FPH 検出濃度のそれぞれ 10、10、>10,000 倍程度の増加を質的に常時監視できる可能性を示した。

南湖への放流量が最も大きい分流式の下水処理場に注目し、この下水処理場及び放流先の南湖から流出する瀬田川河川水での雨天時実態を調べた。結果より、大降雨時（総降雨量 64 mm）、豪雨時（総降雨量 177 mm）及び中降雨時（総降雨量 28 mm）において、瀬田川流量に対する C 下水処理場の放流水量の割合が、それぞれ 4%、20%、2%程度で、豪雨時には洗堰が 8 時間にわたり全閉されたため、唐橋地点で流量がほとんど観測されなくなり、この分流式下水処理場放流水が大きな影響を及ぼすことを示した。

台風時における瀬田川河川水中の FDOM の存在実態を把握し、SSO の影響による主成分スコア値の変化を捉えることを試みた。結果より、総降雨量 64 mm の場合、タンパク質様成分がこの下水処理場での簡易処理放流の発生直後に増大し、大降雨時に処理不十分な下水の河川水への混入が、タンパク質様成分により検出できる可能性を示した。また、簡易処理放流が調査前から継続して発生していた総降雨量 177 mm の豪雨の場合、タンパク質様成分では、急激な増加がとらえられず、むしろ全 FDOM 成分が逡増することを示した。

台風時における瀬田川河川水中の衛生微生物の存在実態を把握し、SSO の影響による検出濃度の変化を捉えることを試みた。結果より、この下水処理場で簡易処理放流が発生しなかった総降雨量 10 mm の少降雨の場合、河川での衛生微生物の顕著な変化は見られなかった。一方、この下水処理場で簡易処理放流が発生した総降雨量 64 mm の大降雨の場合、衛生微生物のうち GII-FPH 及び PMMoV は増加し、総降雨量 177 mm の豪雨の場合、GI-FPH、GII-FPH 及び PMMoV の全てが一時大きく増加した。衛生微生物濃度が増加した時期は、簡易処理放流及び洗堰の放流量の変化によって影響することが分かった。また洗堰を全開すると濁度が急激に増加することが明らかになったが、濁度の変化は衛生微生物や FDOM、DOM の濃度変化と異なり、両者は由来が異なることを示した。

この下水処理場の放流先の南湖から流出する瀬田川河川に対して簡易処理放流水の流達リスクの評価に用いる、瀬田川河川水への簡易処理水混入指標の選定を目的に、DOM、FDOM の指標による簡易処理放流水の流達リスク評価精度を検証した。結果より、簡易処理発生を見逃さず、確実に判定する条件下

や、下水混入率の基準値超過の判定漏れデータ数 1, 3, 4, 5, 6 の条件下では、DOC 濃度の絶対値の適用可能性が比較的高かったが、DOC 濃度の絶対値をはじめとするすべての簡易処理水混入指標の候補に対し、簡易処理放流リスクの評価精度が著しく劣ることを示した。また、簡易処理発生を確実に判定する条件下、下水混入率の基準値超過の判定漏れが 1 回の条件下では、すべての簡易処理水混入指標の候補に対し、時間変化量の相対値の適用可能性が極めて低いことを示した。

瀬田川河川、流域の下水処理場調査における EEM-PARAFAC では、森林あるいは農地由来の FDOM が分離されなかったが、降雨時間経過とともに琵琶湖流域から琵琶湖出口の唐橋地点にも流達することが考えられるため、今後、琵琶湖流入河川などの時系列試料の EEM を追加し再解析することにより、より汎用性のある下水混入指標を検討する予定である。また本調査において、洗堰放流量と C 下水処理場の放流水の混合状況がどのように変化するかを明らかにする必要がある。さらに、本研究で考慮していない雨天時の他下水処理場からの簡易処理放流による SSO や CSO の影響を、今後検討する必要がある。

以上の検証調査の成果により、雨天時下水の水質変換過程に関し、第 4 章の基礎実験で明らかにしたピークピッキングによるタンパク質様成分の雨天時下水混入による水質変換過程が推察される指標としての利用性が、実際の河川水への簡易処理水混入において EEM-PARAFAC 法により適用可能かどうかを明らかにした（目的 3-2）。特に、下水処理放流水混入率が高い桂川の場合にタンパク質様成分で下水混入実験の結果を適用することができ、河川水への簡易処理放流水混入において水質変換過程が推察される簡易指標として検知性があること、その時間変化は簡易処理放流リスク評価へ適用可能であることを示した。しかし、下水処理放流水混入率が低い瀬田川の場合に下水混入実験の結果を適用することができず、かつ簡易処理放流リスク評価へ適用不可能であった。

一方、FDOM 指標の存在量と微生物指標の濃度の相関性の有無を議論しなかったため、タンパク質様成分 FDOM の簡易的な衛生指標としての適用範囲を明らかにすることができなかった。今後は、桂川・瀬田川の両方で DOM, FDOM 及び衛生微生物の雨天時データの蓄積が必要である。

## 7.2 本研究成果の活用と今後の課題

前節で詳述した本研究の成果により、特に第 3 章の実態調査では水処理放流水及び河川水中の衛生微生物の動態に与える雨天時下水の影響を明らかにした（目的 1）。また第 4 章の基礎実験では高濃度の衛生微生物が存在する雨天時下水の水質変換過程が推察される指標として、DOC に対する FDOM の利用性を明らかにした（目的 2）。さらに、第 5, 6 章の検証調査では下水処理放流水及び河川水に対し、雨天時下水による FDOM の動態を検討し、FDOM の高級処理水及び河川水への雨天時下水混入を正しく検知できるかを明らかにした（目的 3）。平成 17 年に国土交通省河川環境課から発表された「今後の河川水質管理の指標について（案）」は、河川を BOD だけでなく、人と河川のふれあいや生態系への関心など多様な視点で河川を捉えて評価できるようにしたものである。設定以来 10 年が過ぎ、「人と河川の豊かなふれあいの確保」や「利用しやすい水質の確保」の視点からの見直しが必要で、*de facto potable reuse* やリクレーション用途の観点から、FDOM 等に注目した本研究成果の、水域への雨天時下水混入の *early warning* への活用が期待される（図 9-1）。しかし、後述のとおりタンパク質様成分 FDOM の雨天時下水混入指標としての限界性も以下の通り明らかにした。

まず、本研究で対象とした合流式の下水処理場においては、タンパク質様成分のうちトリプトファン様

成分 FDOM は高級処理水への簡易処理水混入指標として不適であることが分かった。このような場合、本研究では全蛍光成分/DOC 濃度比の絶対値を簡易処理水混入指標とすることにより、この下水処理場での簡易処理放流リスクを適切に判定できることを示したが、この比に影響を与える非蛍光性 DOM について、さらなる解明が必要である。また、簡易処理発生を見逃さない条件下では、トリプトファン様成分の時間変化量の相対値を簡易処理水混入指標とすることにより、この下水処理場での簡易処理放流リスクを、より適切に判定できることを示したが、今後はさらなるデータの蓄積が必要である。

次に、本研究で対象とした南湖から流出する瀬田川河川水においては、下水処理放流水の混入率が低いため、タンパク質様成分 FDOM は河川水への雨天時下水混入指標として不適であり、本研究における他の 4 つの雨天時下水混入指標候補でも、下水処理放流水の混入率が高い桂川河川水と比べ簡易処理放流リスクの評価精度が著しく劣ることが分かった。この水域において雨天時下水を的確に検知するために、森林あるいは農地由来の FDOM を分離できるよう EEM-PARAFAC のデータセットを改善し、より汎用性のある下水混入指標を精査することが必要である。

最後に、本研究で注目したタンパク質様成分について、下水処理場における高級処理水への簡易処理水混入指標の観点で、トリプトファン様成分とチロシン様成分のそれぞれで衛生指標としての適用範囲を示したのに対し、放流先河川水への簡易処理水混入指標の観点では検討せず衛生指標としての適用範囲を明らかにすることができなかった。今後は、桂川・瀬田川の河川水への簡易処理水混入による衛生微生物の検出濃度の変化特性を詳細に調べ、衛生微生物濃度と EEM-PARAFAC 法による FDOM の蛍光強度の相関性を検討し、下水処理場と同様に衛生指標としての適用範囲を解明することが必要である。

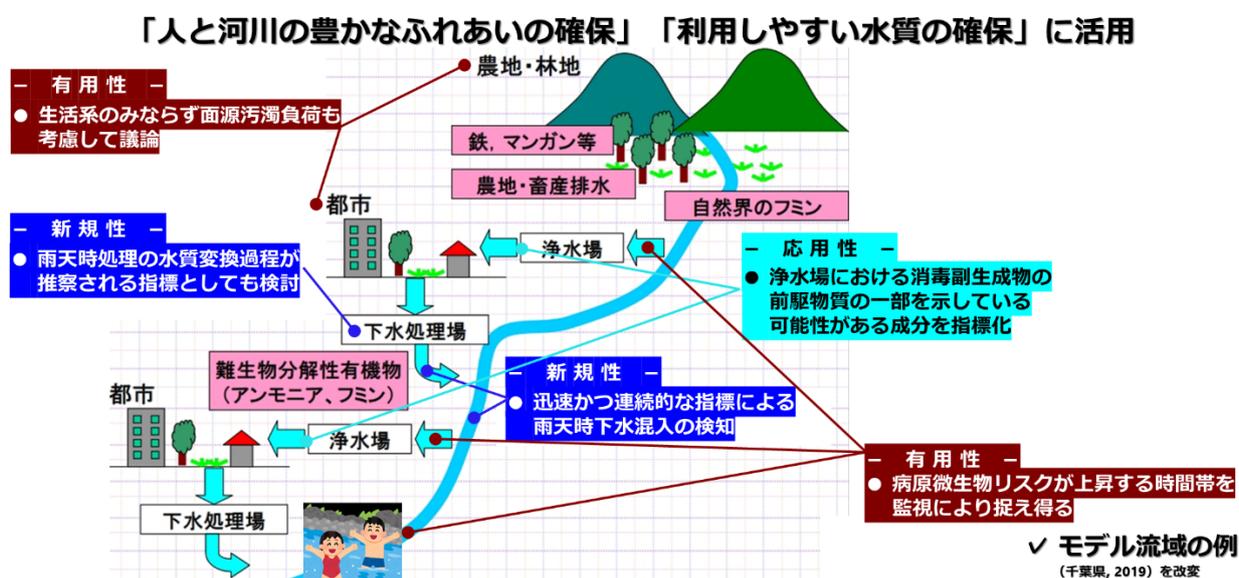


図 7-1 本研究の意義からみた研究成果活用のイメージ (千葉県, 2019)。

## 参考文献

○ 千葉県水道部計画課おいしい水づくり推進班: 第 3 回おいしい水づくり計画策定懇話会会議録 (平成 18 年 7 月 27 日), 千葉県営水道, 2019.

## 謝 辞

本研究は、筆者が本務の建設コンサルタントとして従事していた某業務を通じて、水質事故対策としての水質監視技術について調べていた際に独立行政法人土木研究所水循環研究グループの田中宏明上席研究員（当時）の存在感に圧倒されたことや、宏明先生が筆者と同部門（上下水道・建設・総合技術監理）の技術士であったことをきっかけに、手探りの状態で始まりました。その後、平成25年4月から平成26年3月、また平成26年10月から平成28年3月の期間、京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻に研究生として在籍し、日立製作所との共同研究報告書や、環境省の環境研究総合推進費、河川財団の河川整備基金の助成研究報告書の執筆等への取り組みを通じて、本研究計画が策定されました。この足掛け9年の長期に亘る本研究の計画策定、遂行及び取りまとめに当たっては、多くの方々のご尽力を得ました。

まず、本研究を進めるにあたり常日頃よりご指導とご鞭撻をいただきました。現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環境質予見分野教授の田中宏明博士に、厚く御礼申し上げます。毎日ご多忙であるにもかかわらず、要所所所的確なコメントとアドバイスによる熱量のこもったご指導をいただき、筆者自身も成長することができたと実感しております。筆者へのご指導のみならず、他の学生さんへのご指導内容からサブゼミ開始時のご報告内容に至るまで一時たりとも見逃し聞き逃すことが勿体ないくらい、研究面のみならず教育者・技術者としての指導面でも深く学ぶことができました。まことにありがとうございました。また、本博士論文の副査をしていただいた同センター環境質管理分野教授の清水芳久博士にも、非常に貴重なご意見やアドバイスをいただき、大変お世話になりました。特に、平成30年度の土木学会環境工学研究フォーラムにおける土木学会論文集G（環境）の査読付き原著論文の発表での総合討議や、平成28年度開講の「都市環境工学特別セミナーA,B」の発表会の際に、それぞれの研究において今後の発展につながる貴重なコメントなど色々なアドバイスをいただきました。とりわけ前者のコメントとして、「雨天時下水の受水域側の衛生微生物動態について、今後の議論を楽しみにしています」とのエールをいただき、本論文の第6章6.2.3.5, 6.3.4.4に反映させることができましたこと、心から深謝致します。また、同センター環境質予見分野講師（当時、現愛媛大学大学院農学研究科生物環境学専攻・地域環境工学コース教授）の山下尚之博士には、研究の計画・遂行の細部にわたり丁寧にご指導いただきました。調査及び実験の計画策定に関する部分をはじめ、平成30年度、令和元年度の土木学会論文集G（環境）の査読付き原著論文の提出後において査読委員の先生からの質問に対する回答にかかる的確かつ親身な御助言や、初めて研究代表者として取り組んだフソウ技術開発振興基金の平成29年度助成研究にかかる心強いサポートなど、様々な部分に関しまして、本当に多くのことを学ぶことができました。深い感謝の意を表します。また、本博士論文の副査をしていただいた同センター環境質予見分野講師の中田典秀博士には、社会人特別選抜の博士後期課程の大学院生としてセンターに頻りに往訪できない筆者に対しまして、きめ細かいサポートによりセンターでの生活を支えていただきました。特に、自動採水器内試料の長時間保冷に関して悩んでいた際には、冷媒として小型のプレートタイプ保冷機を氷嚢の代わりに入れる事をご提案いただき、併せて保冷機とともに備えるべき小型の温度データロガーをお借りすることもでき、活用には至らなかったですがとても助かりました。真冬の夜中に桂川・淀川の吹き曝しの中、10箇所以上の地点にて2人で黙々と行った採水作業がとても印象的でした。まことにありがとうございました。また、同センター環境質予見分野特定助教の井原賢博士には、平成30年度における毎月の下水処理場調査での採水を、お忙しい中にもかかわらず実施していただくとともに、

河川財団の平成 29 年度河川整備基金助成事業においては研究代表者として、主担当者だった筆者へ親身にご対応いただきました。令和元年度の環境衛生工学研究の査読付き原著論文の提出後において査読委員の先生からの質問に対する回答にかかる的確なご助言もいただき、本当にありがとうございました。また、同センター環境質管理分野准教授の松田知成博士には、平成 30 年度開講の「環境微量分析演習」におきまして、とても実践的で理解しやすい授業をしていただきました。履修した学生たちの自主性を重んじた貴重な講義をありがとうございました。また、同センター環境質予見分野准教授の西村文武博士には、平成 30 年度の土木学会環境工学研究フォーラムにおける土木学会論文集 G（環境）の査読付き原著論文の発表での質疑応答の際に、雨天時における生物反応槽のオペレーションに関する HRT 以外での相違点について議論を交わすことができました。本論文の公聴会後にも、今後の研究活動につながる有意義な対話をすることができました。感謝申し上げます。また、同センター環境質予見分野初代助教（現京都大学大学院地球環境学堂地球親和技術学廊環境調和型産業論分野准教授）の田中周平博士には、第 40・41 回京都大学環境衛生工学研究会シンポジウムでのハイブリッドセッションや懇親会で色々とお声掛けをいただきました。また、令和 2 年 3 月発行の環境衛生工学研究の査読付き原著論文の出版に際し、色々ときめ細かいご対応をしていただき、とても助かりました。周平先生、本当にありがとうございました。さらに、京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻環境デザイン工学講座准教授の大下和徹博士には、令和 2 年度開講の「都市環境工学 ORT」における単位認定申請の事前確認等の手続きや、第 40 回京都大学環境衛生工学研究会シンポジウムでの優秀ポスター賞受賞に際し、色々ときめ細かいご対応をしていただき、おかげさまでスムーズ物事を進めることができました。まことにありがとうございました。もちろん、センターのスタッフ、ポスドクの皆様にも大変お世話になりました。常日頃よりセンターを裏から表から、まさに確固たる屋台骨として支えていただいている服部一美様・西尾好未様には、筆者がセンターに正式にお世話になる前から現在に至るまで、日常の色々なことに対しまして大変お世話になりました。深謝申し上げます。当時ポスドクでお世話になった端昭彦博士（現富山県立大学工学部講師）、同門の先達である花本征也博士（現金沢大学環境保全センター講師）・李善太博士（現八戸工業高等専門学校環境都市・建築デザインコース助教）・竹内悠博士（現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環境質予見分野助教）や同期の本間亮介様をはじめ、恐れながらここにお名前を挙げる事が出来なかったセンター在学・卒業・修了の方々にも大変お世話になりました。

当然のことながら、センター以外の関係者の皆様にも大変お世話になりました。京都市上下水道局（技術監理室水質管理センター水質第 1 課の小倉様(当時)、同水質第 2 課の片岡課長(当時)・勢川課長・浅沼係長(当時)・三吉係長・今川係長(当時)・恒吉係長・井澤係長、施設課課長補佐の織田様、管理課の木下係長(当時)、計画課の宮原係長(当時)、総務課の樹下課長(当時)、蹴上浄水場の小田場長(当時)・課長補佐の澤野井様(当時)、松ヶ崎浄水場の黒川場長(当時)、新山科浄水場の井上場長(当時)、エヌケーエスの中川様)、滋賀県琵琶湖環境部下水道課（田本課長・坂様(当時)・樋上様(当時)、南部流域下水道事務所の千代様(当時)・山田様(当時)・林様(当時)・中村様(当時)・谷口様(当時)・藤森様、日本メンテナンスエンジニアリングの安岡管理技術者(当時)・奥出総括責任者・竹尾課長(当時)・佐内課長、淡海環境保全財団の大橋様)、大津市企業局（水再生センターの諸道副所長(当時)・知原様）、国土交通省近畿地方整備局琵琶湖河川事務所（塚原所長(当時)・水草所長(当時)・北野副所長(当時)、河川環境課の後藤課長(当時)、同課水質調査係の古賀係長(当時)・高木係長、管理課調整係の井戸係長(当時)、木瀬保全対策官(当時)、近畿地域づくりセンターの馬杉マネージャー・前田様、水質調査船湖水守の卯田様(当時)、同淀川河川事務所（調

査課企画係の井筒係長，河川環境課の日下課長，同課水質調査係の岡田係長），同淀川ダム統合管理事務所管理課（餅原課長(当時)），堀場テクノサービス（橋本様・北川様），堀場アドバンスドテクノ（川口佳彦博士・小島様・甲斐様），日科機バイオス（竹田様），和研薬（坂田様）の皆様は，感謝申し上げます。また，研究資金の調達にあたり，旭硝子財団（給付奨学生採用により 3,600 千円），フソウ技術開発振興基金（研究代表者として 1,000 千円，ご担当の一番ヶ瀬宏之様，山田登志夫博士（技術士（上下水道－下水道）），小暮香奈実様），JASSO（特に優れた業績による第一種奨学金 4,392 千円の全額返還免除）をはじめ，様々な機関より援助を受けました。おかげさまで捻出された時間で研究に没頭することができ，社会人大学院生として充実した貴重な日々となりました。まことにありがとうございました。さらに，日本ダクタイトル鉄管協会顧問の出口勝徳様（元京都市上下水道局技術長），JFE エンジニアリング顧問の安達伸光技術士（上下水道－上水道及び工業用水道）（元大阪広域水道企業団水質管理センター所長），水 ing 大阪支店担当部長の土居通治技術士（上下水道・総合技術監理）（元京都市上下水道局技術監理室長）などには，第 40・41 回京都大学環境衛生工学研究会シンポジウムでのハイブリッドセッションや懇親会で貴重なご意見を賜り，研究対象の琵琶湖・淀川流域の水利用の実情をより深く知ることができました。本論文の公聴会にご多忙中お越しいただき，激励も賜りました。深く感謝申し上げます。最後に，元東京都下水道局施設管理部長の中里卓治技術士（上下水道－下水道）には，東日本大震災の被災下水処理場調査や，海水浄化作戦・油断快適下水道など都の取組みに関し貴重な情報提供いただき，深謝申し上げます。

このように謝辞を執筆していると，やはり，多くの方々の支えによって 46 歳までやってこられたことを実感できますし，受けたご恩を決して忘れてはいけなないと存じます。今後も変わらず意を一にして，心を専らにすべく，プロの教育者・技術者としての理想を目指しつつも，多様な価値観の方々と交流し，良い影響を与え合い，受け合いながら日々生きていこうと考えております。一貫して巡り逢いに大変恵まれているのですが，やはり，最も感謝すべきところは，かけがえのない家族をはじめ身近な方々の存在であります。まず，ずっと変わらず支え，励ましてくれた妻の美智子と娘の美悠子，義理の上村家のご両親はもちろん，天国で見守ってくれている母親や，同じ建設業・建設コンサルタント業の世界で競合他社の経営者として奮闘している父親に心から深謝の意を表します。また，建設業・建設コンサルタント業の世界へ導き続けてくれた弊社代表取締役の川本祥史博士（技術士（建設－土質及び基礎）），元上司の西川武夫博士（技術士（建設－鋼構造及びコンクリート）），村本嘉雄博士（京都大学防災研究所第 22 代所長，京都大学名誉教授），谷川康信博士，左海晃志教育学修士（一級建築士），重山徳浩様（一級建築士設計事務所重山建築研究室），元指導技術士の大阪水道工業会研究所取締役技術本部長（当時）の今田憲夫技術士（上下水道－上水道及び工業用水道）など，これまでのキャリアを支えていただいた皆様に深謝申し上げます。さらに，学部時代・博士前期課程時代に指導教授・指導准教授（当時，助教授）・助教（当時，助手）・指導大学院生・ラボスタッフとして環境衛生工学の世界へ導き続けていただいた山口大学名誉教授の中西弘博士，大阪工業大学名誉教授の石川宗孝博士，大阪工業大学工学部環境工学科教授の笠原伸介博士，同准教授の古崎康哲博士（技術士（上下水道－下水道）），日本水工設計大阪支社下水道課長の篠原元技術士（上下水道－下水道），梶工業代表取締役の梶智裕様，クボタメンブレン営業課長の太田一成様など，上下水道分野に関わるきっかけとなった皆様に深謝申し上げます。最後に，工学を越境した生活科学分野でご支援いただいた松尾章子博士をはじめ松尾家の皆様，出講先の大阪市立大学大学院生活科学研究科居住環境学講座教授の渡部嗣道博士へ深謝の気持ちを述べ，本論文の謝辞と致します。

2021 年 2 月 山口 武志

# 審査付き論文目録

## 第5章 5.3 終沈後水（高級処理水）への雨天時下水（簡易処理水）混入の検証調査

・令和2年3月発行

○ 山口武志, 山下尚之, 林東範, 井原賢, 田中宏明: 雨天時の都市下水中の衛生微生物と溶存態有機物の動態比較, 環境衛生工学研究, Vol. 34, No. 1, pp 12-20, 2020.

## 第6章 6.2 下水処理放流水混入率が高い河川（桂川）での調査

・平成30年12月発行

○ 山口武志, 山下尚之, 田中宏明: EEM-PARAFACによる河川水中の溶存態有機物の動態へ及ぼす雨天時都市下水の影響検討, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 74, No. 7, pp III\_275-III\_284, 2018.

## 第6章 6.3 下水処理放流水混入率が低い河川（瀬田川）での調査

・令和元年12月発行

○ 山口武志, 山下尚之, 田村太一, 田中宏明: 琵琶湖流出河川水中の溶存態有機物と衛生微生物の動態へ及ぼす雨天時下水の影響調査, 土木学会論文集 G(環境), Vol. 75, No. 7, pp III\_185-III\_198, 2019.

他の公表の方法・時期は未定