

東京大学大学院工学系都市工学専攻 ○大瀧雅寛

同上 大垣真一郎

同上 唐澤祥嗣

東京都立衛生研究所水質科 矢野一好

麻布大学環境保健学部 平田強

1.はじめに

近年、浄水処理に膜分離技術を導入すべく研究開発が進められている。現在、高度処理MAC21 (Membrane Aqua Century 21) において、プラント規模の浄水処理実験が行われている。このプラントには膜処理プロセスが3系列ある。本件給はウイルス指標として可能性が高いと考えられている野生の大腸菌ファージの膜処理プロセスにおける挙動を約6カ月間にわたって調査したものである。

野生の大腸菌ファージは、宿主菌としてE.coli K12 (A/λ) F⁺ とE.coli Cを用いて測定した。対象とした試料は、膜処理プロセスに供給される原水 (千葉県江戸川河川水) と各系列の膜濃縮排水、膜ろ過水である。各膜処理プロセスは、前段膜 (MF or UF) と後段膜 (NF) から構成されているが、今回は主に前段膜に焦点を絞って調査を行った。

MF膜処理プロセスにおいては、E.coli K12 (A/λ) F⁺ を宿主とするファージ (以後E.coli K12ファージと呼ぶ。これはRNA、DNAの両方のファージである) の除去率は40~99%となったのに対し、E.coli Cを宿主とするファージ (以後E.coli Cファージと呼ぶ、これはDNAファージである) では73~100%といずれの場合もE.coli K12ファージよりも除去率が高かった。また、UF膜処理プロセスにおいては、いずれのファージも除去率はほぼ100%に達していた。また、膜供給水中の濃度と膜濃縮排水中のファージ濃度を比較した結果、膜モジュールにおいてファージは、そのほとんどが懸濁物質中に吸着されており、排水溶液中にはあまり濃縮されていないことがわかった。測定法において懸濁質からのファージの抽出方法が100%ではないが、マスパランスを考えると、懸濁質中でファージが不活化していることも考えられる。

2.膜処理プラントについて

高度処理MAC21実験プラントは、千葉県の北千葉取水場内に位置し、膜処理プロセスが3系列運転されている。それぞれをMF-1、MF-2、UFプロセスと呼ぶことにする。各プロセスの処理流量はそれぞれ順に、13、25、23 m³/dである。前段膜としてMF-1プロセスは日本ミリポア社製α-アルミナ膜円柱モノリス型、公称孔径0.2 μmのMF膜を用いている。MF-2プロセスは三菱レイヨン製親水化ポリエチレン膜中空糸型、公称孔径0.1 μmのMF膜を用いている。UFプロセスは旭化成工業製ポリアクリロニトリル膜中空糸型、分画分子量13,000のUF膜を用いている。回収率はそれぞれ、MF-1が98%、MF-2とUFが90%に設定されている。

3.試料のサンプリングについて

上記の各プロセスは膜の洗浄の際、次亜塩素酸ナトリウムを用いている。そこで、微生物濃度測定のため採水日の前日に次亜塩素酸ナトリウムの注入をストップしておき、膜濃縮排水ならびに膜ろ過水の採水を行うことにした。膜供給水と膜濃縮排水は毎週採水を行い、膜ろ過水の採水は毎月行った。

4.ファージの測定法

ファージの濃度は、宿主菌としてE.coli K12 (A/λ) F⁺ とE.coli Cを用いて測定した。E.coli K12 (A/λ) F⁺ を宿主とするファージ (以下、E.coli K12 ファージ) は、RNA,DNAファージであり、E.coli Cを宿主とするファージ (以下、E.coli K12 Cファージ) はDNAファージであることがわかっている。このうち、E.coli K12 ファージは毎週測定を行い、E.coli C ファージはほぼ一月毎に測定を行った。

膜供給水 (江戸川の河川水) と膜濃縮水については、0.45 μmフィルターを用いて、懸濁物質とろ液に分離して、別々にファージ濃度を測定した。懸濁物質は3%ビーフエキスを液を用いてファージを抽出し、抽出液を二層寒天法で測定した。

ろ液はファージ濃度が低く、1mL中の濃度を測定する二層寒天法では正確な測定ができない。そこで、grabow(1986)らの100mL法を改良した方法を用いて測定を行った。これは、二層寒天法で用いている上層寒天培地と同じ組成で、濃度を2倍にした寒天培地100mLに試料100mLを混合させ、ただちに宿主菌を投入した後、複数のプレートに蒔くという方法であり、理論的には検出限界は1PFU/100mLとなる。膜ろ過水は0.45 μmフィルターろ過を行わず、そのまま100mL測定法を用いてファージ濃度を測定した。

5.測定結果と考察

半年間の測定の結果、膜供給水中に存在する野生ファージ濃度はE.coli K12 ファージで200～2500 [PFU/100mL]、E.coli C ファージで130～220 [PFU/100mL]であった。

図1～3は各プロセスにおけるファージの除去率を示している。除去率は次式によって定義される値である。

$$R = \left(1 - \frac{N_p}{N_0}\right) \times 100$$

R : 除去率[%]

N_p : 膜ろ過水中ファージ濃度[PFU/100mL]

N₀ : 膜供給水中ファージ濃度[PFU/100mL]

MF-1においては、E.coli K12 ファージの除去率が40～99%と大きく変動しているのに対し、E.coli C ファージの場合は98～100%と高い除去率で安定している。MF-2はE.coli K12 ファージの除去率がMF-1の場合より高く88～99%であった。E.coli C ファージについては99～100%とMF-1と同様高い除去率で安定している。UFにおいては、E.coli K12 ファージとE.coli C ファージどちらの場合もほぼ100%の除去率を達成している。

大腸菌ファージの大きさは核酸の種類で決まり、一般にDNAファージはRNAファージよりもサイズが大きい。そのためE.coli C ファージの除去率がE.coli K12 ファージの除去率よりも高くなったと考えられる。高橋ら(1994)によれば、実験室においてE.coli K12 ファージとE.coli C ファージを用いて膜による除去率を調べた結果、同様にE.coli C ファージの除去率が高いことが確かめられている。本調査の結果は、この結果をプラント規模の膜処理プロセスにおいて実証したことになる。また、これらの結果より、膜のウイルス除去特性を大腸菌ファージで評価する場合には、宿主菌としてDNA,RNAファージの両者を検出するE.coli K12 を用いる方が安全側の評価になると考えられる。

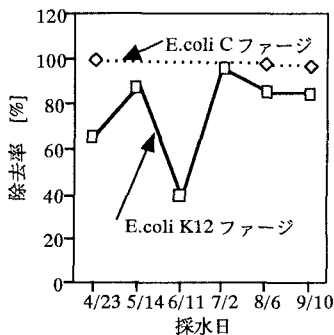


図1 ファージの除去率
(MF-1系)

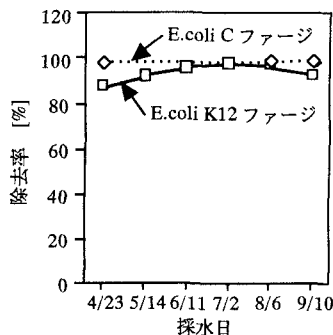


図2 ファージの除去率
(MF-2系)

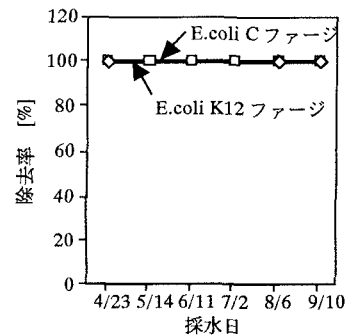


図3 ファージの除去率
(UF系)

図4～6は各測定日の原水中の大腸菌群数と各系列の膜濃縮排水中の大腸菌群数をプロットしたものである。破線は各プロセスで設定されている回収率から算定した理論濃縮率を示しているが、これらの図に示されているように、大腸菌群数はほぼ理論どおりに濃縮されていることがわかる。

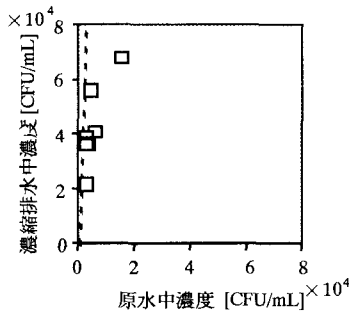


図4 大腸菌群の濃縮
(MF-1系)

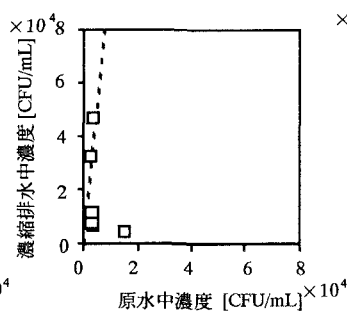


図5 大腸菌群の濃縮
(MF-2系)

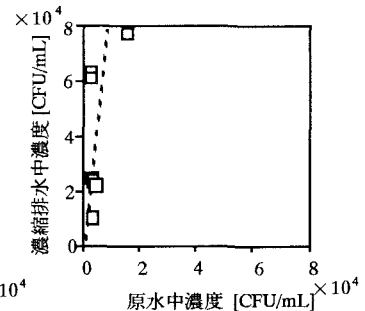


図6 大腸菌群の濃縮
(UF系)

一方、図7～9は各測定日の原水中のE.coli K12ファージ濃度と各系列の膜濃縮排水中のファージ濃度をプロットしたものである。破線は設定されている回収率から算定した理論濃縮率を示し、実線は濃縮されていない場合（原水濃度＝濃縮排水中濃度）を示している。これを見ると各系列とも懸濁物質に吸着されていないファージ濃度（溶液中濃度）は理論値ほどは濃縮されず、ほぼ原水濃度と等しい関係があることがわかる。これにより濃縮排水溶液中のファージ濃度は、原水と同レベルにあり、濃縮されているはずのファージは懸濁物質中に存在していると考えられる。

また、懸濁物質から抽出したファージ量を加えた場合でも、理論濃縮率より低くなっている。これは、この抽出法では抽出率が100%に達しないためであると考えられるが、懸濁物質中で不活化している可能性も否めない。いずれにせよ、ウイルスに関する安全性を考えれば、濃縮排水中の懸濁物質の処理に留意する必要がある。

6.まとめ

(1)MF-1とMF-2プロセスにおいてはE.coli CファージよりもE.coli K12ファージの除去率が高く、これは、DNAファージのサイズがRNAファージよりも大きいことによると考えられる。また、実プラント規模の各処理において、この現象が実証された。

(2)UFプロセスにおいては、どちらのファージも除去率がほぼ100%になり、ウイルス阻止の安全性が高いことがわかった。

(3)膜のウイルス除去特性を大腸菌ファージで評価する場合には、宿主菌としてDNA、RNAファージの両者を検出するE.coli K12を用いる方が安全側の評価になると考えられる。

(4)膜モジュール内で濃縮するファージは、そのほとんどが懸濁物質中に存在しており、ウイルスの安全性を考えれば、濃縮排水中の懸濁物質の処理に留意する必要がある。

参考文献

1)W.O.K. Grabow and P. Coubrough, Practical direct plaque assay for coliphages in 100-ml samples of drinking water, Applied and Environmental Microbiology, Sept., pp.430-433, 1986.

2)高橋克夫ら「中空糸精密ろ過膜による大腸菌ファージ及び従属栄養細菌の除去特性」水道協会雑誌、第715号、4月号、1994。

謝辞

採水の際に多大なご協力をいただいた（社）水道浄水プロセス協会に感謝いたします。

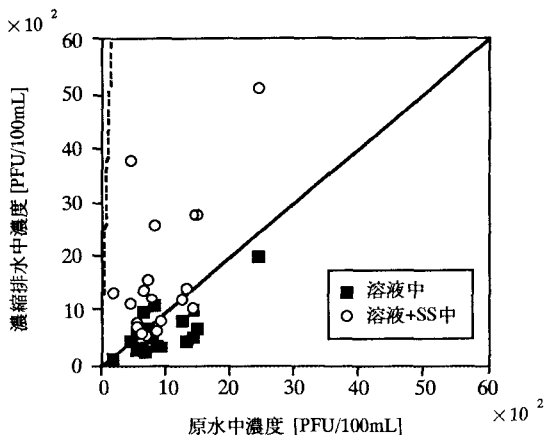


図7 ファージの濃縮
(MF-1系)

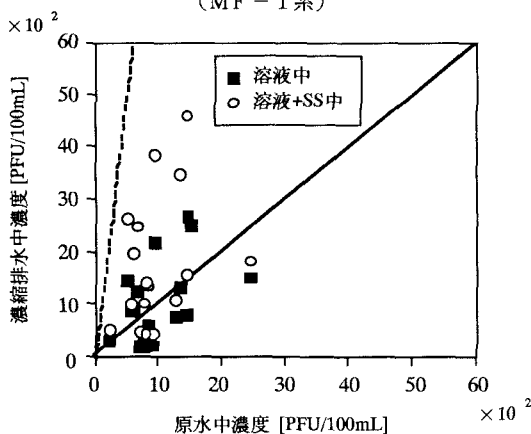


図8 ファージの濃縮
(MF-2系)

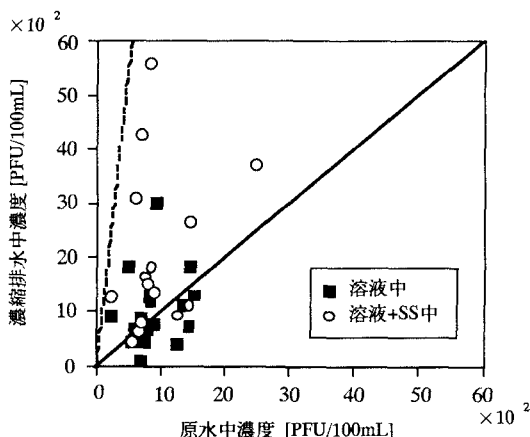


図9 ファージの濃縮
(UF系)