

感染症の予防および感染症の患者に対する医療に関する法律, 1999.4.1 施行

実稼働している浄水場の原水およびろ過水における
原虫の出現濃度分布に関する調査

分担研究者 平田 強、金子光美
研究協力者 森田重光

分担研究報告書

実稼動している浄水場の原水およびろ過水における原虫の 出現濃度分布に関する調査

分担研究者	平田 強	麻布大学環境保健学部 教授
分担研究者	金子 光美	摂南大学工学部 教授
研究協力者	森田 重光	麻布大学環境保健学部 講師

研究要旨

実稼動している浄水場において、原水およびろ過水中の *Cryptosporidium parvum* オーシストおよび *Giardia lamblia* シストを定量し、両原虫の出現濃度分布および浄水処理による除去率を調査した。その結果、調査した原水 9 試料のすべてから *C. parvum* オーシストが検出され（陽性率 100%）、陽性試料の確定 *C. parvum* オーシスト濃度の幾何平均値は 550 個/1,000 L（範囲 110~1,700 個/1,000 L）であった。また、*G. lamblia* シストは 1 試料を除いた 8 試料から検出され（陽性率 89%）、陽性試料の確定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 110 個/1,000 L（範囲 31~600 個/1,000 L）であった。浄水中からも両原虫が検出され、*C. parvum* オーシストは 18 試料中 12 試料（陽性率 67%）が陽性で、陽性試料の確定 *C. parvum* オーシスト濃度の幾何平均値は 3.0 個/1,000 L（範囲 0.7~190 個/1,000 L）であった。また、*G. lamblia* シストは *C. parvum* オーシストより陽性率が低く、3 試料から検出された（陽性率 17%）。濃度は確定 *C. parvum* オーシストよりやや低く、陽性試料の確定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 0.4 個/1,000 L（範囲 0.3~0.5 個/1,000 L）であった。これらの結果から算出した浄水処理による除去率は、確定 *C. parvum* オーシストで $2.37 \log_{10}$ 以上となり、確定 *G. lamblia* シストでは $2.31 \log_{10}$ 以上となった。クリプトスポリジウム症およびジアルジア症の年間感染リスクをろ過水中原虫濃度から試算した結果、*C. parvum* オーシストでは $10^{-3.3}/\text{year}$ 、*G. lamblia* シストでは $10^{-5.3}/\text{year}$ となった。

A 研究目的

わが国における浄水処理の主流は急速砂ろ過法であり、この方法では、凝集沈殿と急速砂ろ過による物理的除去と塩素消毒による化学的不活化という 2 段階のバリエーで病原微生物を除去・不活化している。しかし、*C. parvum* オーシストや *G. lamblia* シストは周囲が強固な殻で覆われているため、塩素に著しい耐性を示し、特にクリプトスポリジウムは浄水処理の濃度レベルと接触時間ではほとんど不活化されないと考えられている（Hirata *et al.*, 2000）。したがって、水道水を原因とするクリプトスポリジウム症およびジアルジア症の発生の防御は、2 段階のバリエーのうち、凝集沈殿と急速砂ろ過による物理的除去の成否に大きく依存する。

急速砂ろ過法で *C. parvum* オーストや *G. lamblia* シストがどの程度確実に除去できるかは、原虫による感染リスクを考える上で必要不可欠であるが、アメリカやカナダで研究されているものの、わが国では Hashimoto *et al* (2002) の調査結果しかなく、それ以外には情報がないとい
ってよい。

そこで、本研究では実稼動している浄水場において、原水およびろ過水中の *C. parvum* オーストおよび *G. lamblia* シストを定量し、両原虫の出現濃度分布および浄水処理による除去率を調査するとともに、得られた値を基に、いくつかの仮定の下で、年間感染リスクを試算した。

B 方法

1 調査対象

国内の浄水場を対象として、2001年3月から2001年11月まで月1回の頻度で計9回の調査を行った。この浄水場は、浄水用として3系統の沈殿池および2系統のろ過池を有し、急速砂ろ過法で処理を行っている。凝集剤には再生バンドを使用している。

2 原虫試験

2.1 試料の採水および濃縮

大量の試料の濃縮に適した酢酸セルロース製外圧型中空糸 UF 膜モジュール(中空糸内径 0.8 mm, 外径 1.3 mm, 分画分子量 150,000, ダイセン・メンブレン・システムズ(株)製)を用いて採水した。原水は、小型中空糸 UF 膜モジュール(膜面積 0.3 m²)で着水井からローラーポンプで加圧して 50 L ろ過し、浄水は 2 系統あるろ過池からそれぞれの配水池へ送水される途中のサンプラー管に大型中空糸 UF 膜モジュール(膜面積 1.4 m²)を接続して 2,000~3,000 L ろ過した。

2.2 中空糸 UF 膜モジュールからの *C. parvum* および *G. lamblia* の誘出

試料をろ過した中空糸 UF 膜モジュールを研究室へ持ち帰り、*C. parvum* オーストおよび *G. lamblia* シストの誘出を行った。小型モジュールには超純水を 100 mL, 大型モジュールには 200 mL を加え、手で 5 分間振盪し、その洗液をそれぞれ遠沈管(200 mL)に集めた。その後、U.S.EPA 1622 に記されたカプセルフィルター用の誘出液を小型モジュールには 50 mL, 大型モジュールには 100 mL を加え、再び手で 5 分間振盪し、その洗液を前述の遠沈管にそれぞれ集めた。最後に超純水で再度洗浄してからすべての洗液を遠沈管に集めて遠心分離(1,050×g, 15分)し、*C. parvum* および *G. lamblia* を沈渣に集めた。

2.3 ショ糖浮遊法

2.2 で得られた沈渣を 0.5 mL 以下になるように遠沈管(50 mL)に分取し、PBS (T+) (界面活性剤加リン酸緩衝生理食塩水, Tween 80 添加, Sigma Antifoam A 添加)で 20 mL にして、タッチミキサーで良く攪拌した。攪拌後、比重 1.10 の Percoll ショ糖溶液をシリンジとシリコンチューブを用いて下層から界面を乱さないように注入し、遠心分離(1,050×g, 15分)した。上清を別の遠沈管に回収し、PBS (T+) で 50 mL にしたのち再び遠心分離(1,050×g, 15分)し、上清を除去した。更に PBS (T-) (リン酸緩衝生理食塩水, Tween 80 無添加, Sigma Antifoam A 無添加)で 50 mL にしたのち遠心分離(1,050×g, 15分)し、上清を除去した。

2.4 蛍光抗体法

セルロースアセテート製メンブランフィルター(孔径 3.0 μm, 直径 25mm, ADVANTEC 製)を PBS (T-) , 1%BSA (ウシ血清アルブミン) , 0.1%NGS (正常ヤギ血清) で洗浄した後、

シヨ糖浮遊法で選択分離した試料をろ過し、再び PBS (T-), 1%BSA, 0.1%NGS でフィルターを洗浄した。その後、フィルターに1次抗体(HYDOROFUOR COMBO, Strategic Diagnostics 社製)を滴下して25分間反応させ、PBS (T-), 1%BSA, 0.1%NGS で洗浄した後、1次抗体と同様の操作で2次抗体を25分間反応させた。そして染色後のフィルターをエタノール/グリセリン溶液で脱水し、2%DABCO/グリセリンでスライドガラスとカバーガラスの間に封入したものをプレパラートとした。

2.5 計数

作製したプレパラートをノルマルスキー微分干渉装置付き落射蛍光顕微鏡 (BX60, オリンパス光学工業製) で観察し、以下に示した判定基準で *C. parvum* オーシストおよび *G. lamblia* シストを判定・計数した。

1) *C. parvum* オーシスト

推定試験; 1,000 倍の蛍光像で以下の (1) ~ (4) すべての特徴が観察されるものを推定 *C. parvum* オーシストと判定した。

- (1) FITC による青リンゴ色の蛍光が観察されること
- (2) 直径が 4~6 μm であること
- (3) 輪郭が強く染色された楕円形 (あるいはひしゃげた紙風船様) であること
- (4) 内部に赤もしくはオレンジなどの蛍光像が観察されないこと

確定試験; 1,000 倍の蛍光像またはノルマルスキー微分干渉で次の (1) または (2) のいずれかが確認され、かつ (3) が確認されるものを確定 *C. parvum* オーシストとして判定した。

- (1) スポロゾイトが確認されること
- (2) 縫合線が確認されること
- (3) *C. parvum* オーシストとは明らかに異なる構造が確認されないこと

2) *G. lamblia* シスト

推定試験; 1,000 倍の蛍光像で以下の (1) ~ (3) すべての特徴が確認されるものを推定 *G. lamblia* シストと判定した。

- (1) FITC による青リンゴ色の蛍光が確認されること
- (2) 長径が 9~15 μm であること
- (3) 輪郭が強く染色される楕円形で、その染色像が *G. lamblia* に特徴的であること

確定試験; 1,000 倍の染色像または微分干渉像で次の (1) および (2) の両方の特徴が観察されるものを確定 *G. lamblia* シストと判定した。

- (1) 核, 軸糸, 中央小体のいずれかが確認されること
- (2) *G. lamblia* シストと明らかに異なる構造が確認されないこと

C 結果および考察

1 原水の原虫濃度

原水の *C. parvum* オーシストおよび *G. lamblia* シストの濃度を表 1 に、また、累積出現頻度を図 1~4 に示す。累積出現頻度から *C. parvum* オーシストの出現濃度分布はほぼ対数正規分布であることが明らかとなった。*C. parvum* オーシストは調査した原水 9 試料のすべてから検出された (陽性率 100%)。陽性試料の推定 *C. parvum* オーシスト濃度の幾何平均値は 850 個/1,000 L (範囲 190~4,700 個/1,000 L), 確定 *C. parvum* オーシストは 550 個/1,000 L (範囲 110~1,700

個/1,000 L) であった。*G. lamblia* シストも原水中から検出され、推定 *G. lamblia* シストは調査した 9 試料すべてから検出された (陽性率 100%)。また、確定 *G. lamblia* シストは 1 試料を除いた 8 試料から検出された (陽性率 89%)。陽性試料の推定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 230 個/1,000 L (範囲 43~2,100 個/1,000 L), 確定 *G. lamblia* シストは 110 個/1,000 L (範囲 31~600 個/1,000 L) であった。

2 浄水の原虫濃度

浄水の *C. parvum* オーシストおよび *G. lamblia* シストの濃度を表 2 に、また累積出現頻度を図 1~4 に示した。推定 *C. parvum* オーシストは 18 試料中 14 試料から検出され (陽性率 78%), 確定 *C. parvum* オーシストは 12 試料から検出された (陽性率 67%)。陽性試料の推定 *C. parvum* オーシストの幾何平均値は、3.0 個/1,000 L (範囲 0.3~200 個/1,000 L), 確定 *C. parvum* オーシストは 3.0 個/1,000 L (範囲 0.7~190 個/1,000 L) であった。*G. lamblia* シストは *C. parvum* オーシストより陽性率が低く、18 試料のうち推定 *G. lamblia* シストが 3 試料から検出され (陽性率 17%), 確定 *G. lamblia* シストは 3 試料から検出された (陽性率 17%)。濃度も *C. parvum* オーシストよりやや低く、陽性試料の推定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 0.7 個/1,000 L (範囲 0.3~1.4 個/1,000 L), 確定 *G. lamblia* シストは 0.4 個/1,000 L (範囲 0.3~0.5 個/1,000 L) であった。

3 浄水処理による原虫の除去性

浄水処理における *C. parvum* オーシスト濃度と *G. lamblia* シスト濃度から算出した除去率の累積出現頻度を図 5~8 に示す。本調査では、原水、浄水において両原虫が不検出の場合、試験水量当たり原虫 1 個を検出したものと仮定して両原虫の除去率を算出した。

浄水処理による *C. parvum* オーシスト除去率の幾何平均値は、推定 *C. parvum* オーシストで 2.54 \log_{10} 以上、確定 *C. parvum* オーシストで 2.37 \log_{10} 以上となった。また、*G. lamblia* シスト除去率の幾何平均値は、推定 *G. lamblia* シストで 2.67 \log_{10} 以上、確定 *G. lamblia* シストで 2.31 \log_{10} 以上となった。

4 原虫感染リスク

クリプトスポリジウム症およびジアルジア症の危険性について本調査の結果から試算し、表 6 に示した。感染の用量反応モデルとして、(1) 式を使った。

$$P=1-\exp(-\gamma C) \dots (1)$$

このとき、 P は 1 日あたりの感染確率を示し、 C は 1 日あたりの原虫摂取量を示している。原虫摂取量は累積出現頻度の 50% 値と 95% 値から求めた。 γ は用量反応パラメータであり、*C. parvum* オーシストでは 0.00467 (Haas *et al.*, 1996) を、*G. lamblia* シストでは 0.0199 (Rose *et al.*, 1991) を用いた。(1) で求められた P より年間リスクを (2) 式を用いて算出した。

$$\text{年間のリスク} = 1 - (1 - P)^{365} \dots (2)$$

この感染リスクを算出するに当たって、次の 4 つの仮定を立てた。

- (1) 検出された原虫はすべてヒトへの感染性を有する
- (2) ヒトの免疫については考慮しない

(3)*C. parvum* オーシストは通常の浄水場の塩素消毒（残留塩素 1.0 mg/L, 最低限確保されている滞留時間 1 時間, CT 値 60 mg・min/L）では不活化されない（Hirata *et al.*, 2000）

(4)*G. lamblia* シストは塩素によって 1 log₁₀ 不活化される（金子, 1992）

(5)非加熱の水道水の摂取量を 0.2 L/day（矢野ら, 2000）

(6)中空糸 UF 膜による原虫の回収率が 50%

これらの仮定に基づき算出した年間感染リスクは, *C. parvum* オーシストでは 10^{-3.3}/year と U.S.EPA が提唱する 10⁻⁴/year を満たさなかったが, *G. lamblia* シストでは 10^{-5.3}/year と 10⁻⁴/year を満たす値となった。

D 結論

実稼働の浄水場において *C. parvum* オーシスト, *G. lamblia* シストの原水および浄水中の濃度を調査し, 除去性を評価した結果, 以下の知見が得られた。

(1)原水中の確定 *C. parvum* オーシスト濃度の幾何平均値は 550 個/1,000 L, 確定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 110 個/1,000 L であった。

(2)浄水中の確定 *C. parvum* オーシスト濃度の幾何平均値は 3.0 個/1,000 L, 確定 *G. lamblia* シスト濃度の幾何平均値は 0.4 個/1,000 L であった。

(3)浄水処理による両原虫の除去は, 確定 *C. parvum* オーシストで 2.37 log₁₀ 以上, 確定 *G. lamblia* シストで 2.31 log₁₀ 以上と推定された。

(4)非加熱水道水の摂取量を 0.2 L/day, 検出されたオーシスト及びシストはいずれもヒト感染性ありと仮定して感染リスクを試算すると, *C. parvum* オーシストでは 10^{-3.3}/year となり U.S.EPA が提唱する 10⁻⁴/year を若干下回ったが, *G. lamblia* シストでは 10^{-5.3}/year となり 10⁻⁴/year を十分満たす値となった。

参考文献

Haas, C. N., Crockett, C. S., Rose, J. B., Gerba, C. P. and Fazil, A. H., (1996) ; Assessing the risk posed by oocysts in drinking water, *Journal of Science Water Works Association*, 88, 131-36

Hashimoto A, Kunikane S and Hirata T (2002) Prevalence of *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts in the drinking water supply in Japan, *Water Research* 36(3), 519-526

Hirata, T., Chikuma, D., Shimura, A., Hashimoto, A., Motoyama, N., Takahashi, K., Moniwa, T., Kaneko, M., Saito, A. and Maebe, S. (2000) ; Effects of ozonation and chlorination on viability and infectivity of *Cryptosporidium parvum* oocysts, *Water Science and Technology*, 41(7), 39-6

金子 光美 監訳 (1992) ; 水系感染症ジアルジア, 環境水におけるクリプトスポリジウムの存在とその制御, 飲料水の微生物学, 259-302, 技報堂出版

Rose, J. B. and Gerba, C. P. (1991) ; Use of risk assessment for development of microbial standards, *Water Science and Technology*, 24, 29-34

U.S.EPA (1996) ; The Surface Water Treatment Rule

矢野 好一, 保坂 三継, 大瀧 雅寛, 田中 愛, 伊予 亨, 土佐 光司, 市川 久浩 (2000) ; 飲用水量について—アンケート調査の結果から—, 第3回 日本水環境学会シンポジウム講演集, 159-160

表1 原水のクリプトスポリジウムオーシストおよびジアルジアシスト濃度

	クリプトスポリジウムオーシスト		ジアルジアシスト	
	推定	確定	推定	確定
幾何平均値(個/1,000L)※	850	550	230	100
陽性試料の幾何平均値(個/1,000L)	850	550	230	110
陽性試料の範囲(個/1,000L)	190~4,700	110~1,700	43~2100	31~600
陽性試料数/試料数	9/9	9/9	9/9	8/9
陽性率(%)	100	100	100	89

※陰性試料については、試験水量から換算して検出限界より求めた。

表2 浄水のクリプトスポリジウムオーシストおよびジアルジアシスト濃度

	クリプトスポリジウムオーシスト		ジアルジアシスト	
	推定	確定	推定	確定
幾何平均値(個/1,000L)※	1.8	1.4	0.5	0.4
陽性試料の幾何平均値(個/1,000L)	3.0	3.0	0.7	0.4
陽性試料の範囲(個/1,000L)	0.3~200	0.7~190	0.3~1.4	0.3~0.5
陽性試料数/試料数	14/18	12/18	3/18	3/18
陽性率(%)	78	67	17	17

※陰性試料については、試験水量から換算して検出限界より求めた。

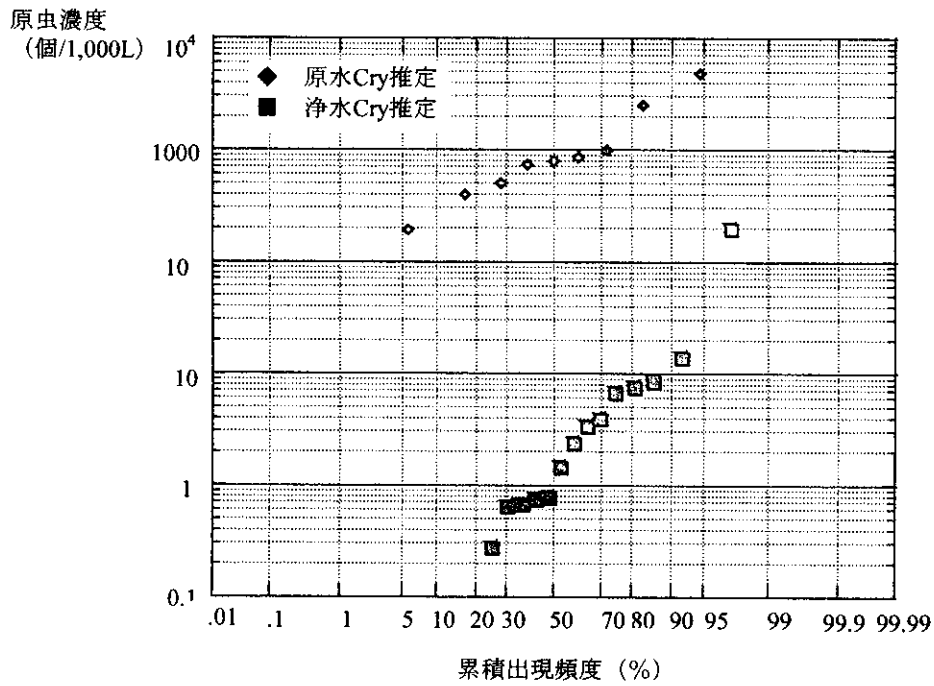


図1 原水および浄水中の推定クリプトスポリジウムオーシスト濃度の累積出現頻度

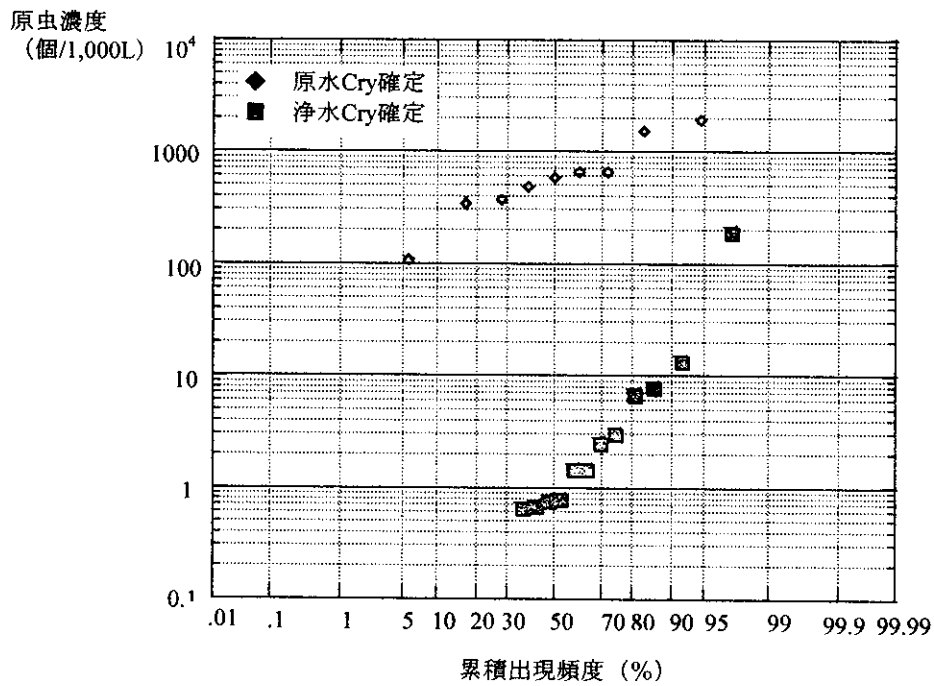


図2 原水および浄水中の確定クリプトスポリジウムオーシスト濃度の累積出現頻度

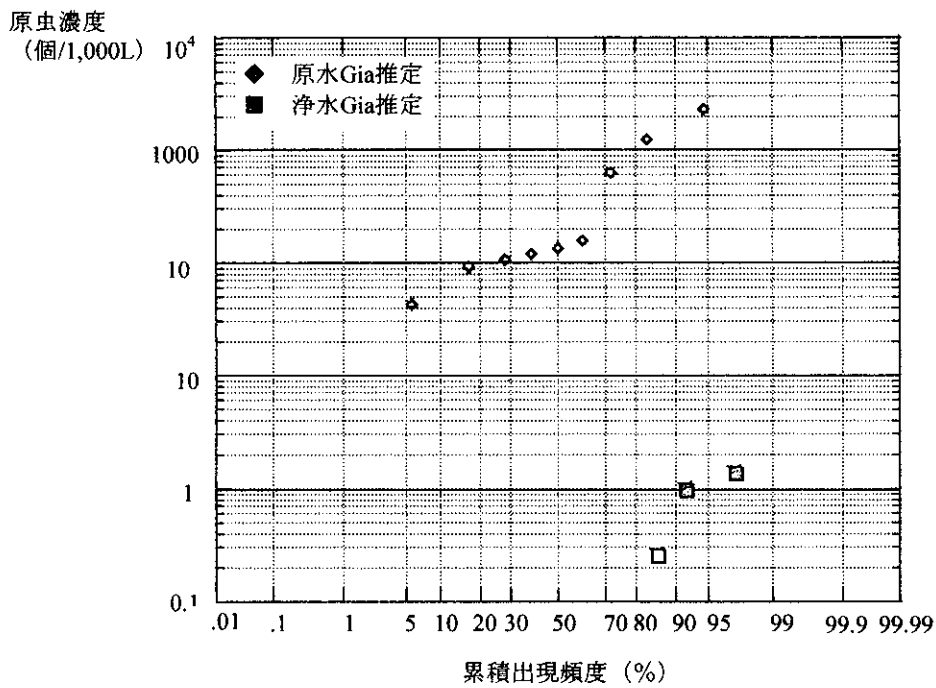


図3 原水および浄水中の推定ジアルジアシスト濃度の累積出現頻度

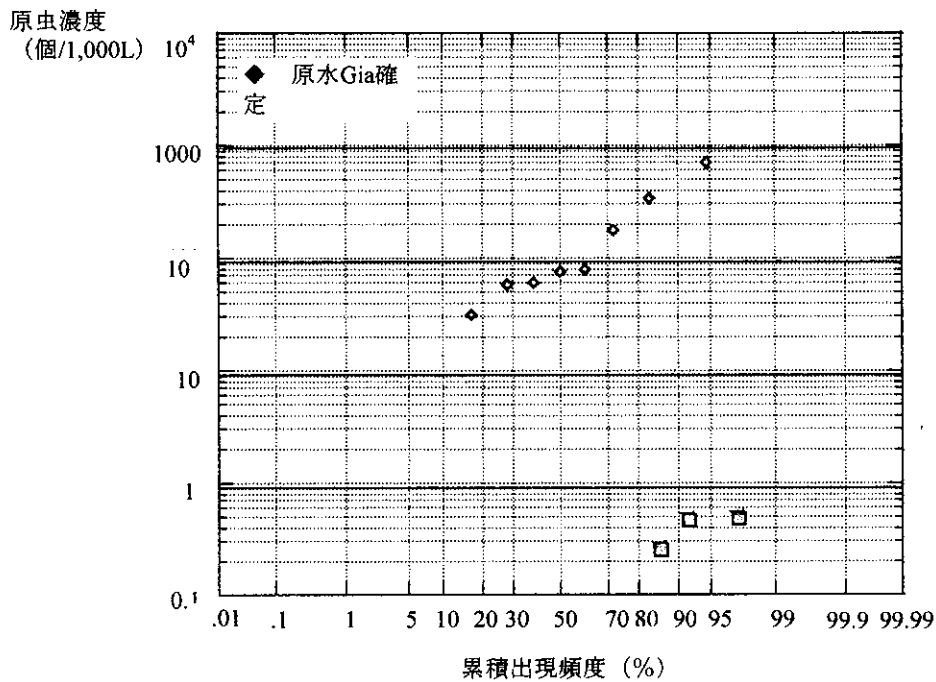


図4 原水および浄水中の確定ジアルジアシスト濃度の累積出現頻度

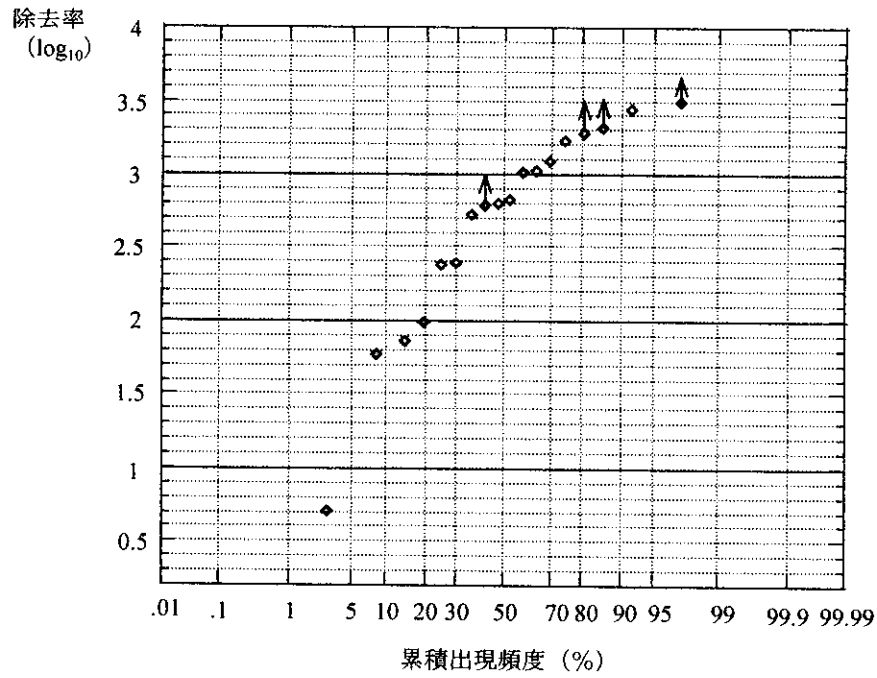


図5 浄水処理における推定クリプトスポリジウムオーシスト除去率の累積出現頻度
 ↑：検出されなかったものについては試験水量当たり1個として除去率を算出した。

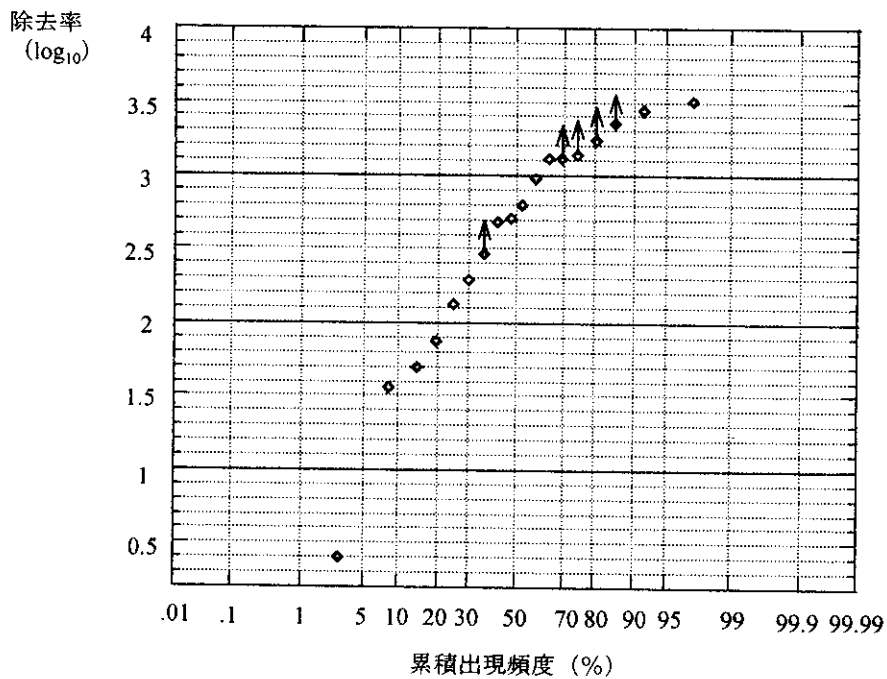


図6 浄水処理における確定クリプトスポリジウムオーシスト除去率の累積出現頻度
 ↑：検出されなかったものについては試験水量当たり1個として除去率を算出した。

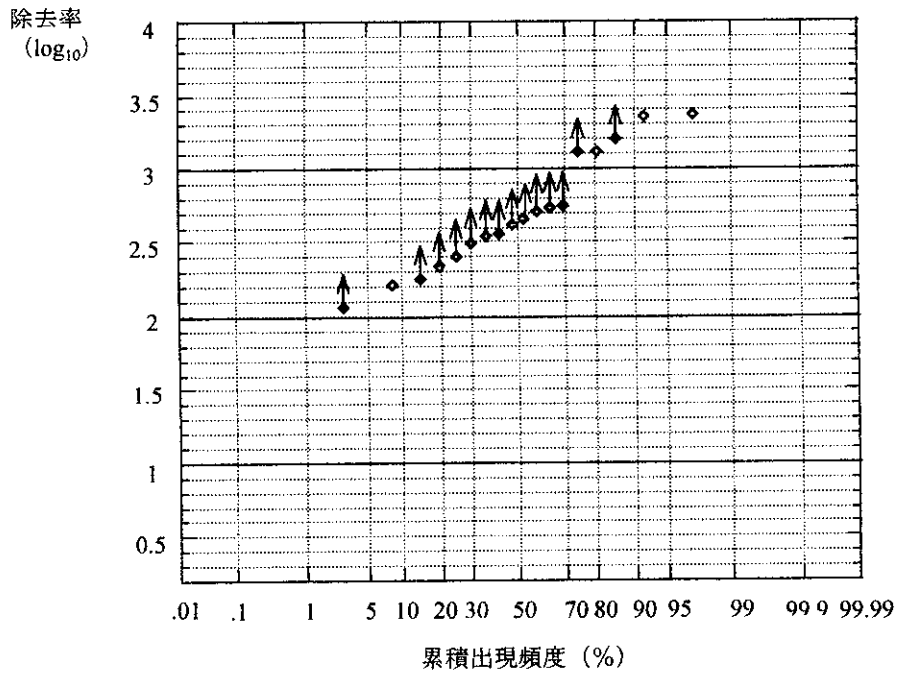


図7 浄水処理における推定ジアルジアシスト除去率の累積出現頻度
 ↑ : 検出されなかったものについては試験水量当たり1個として除去率を算出した。

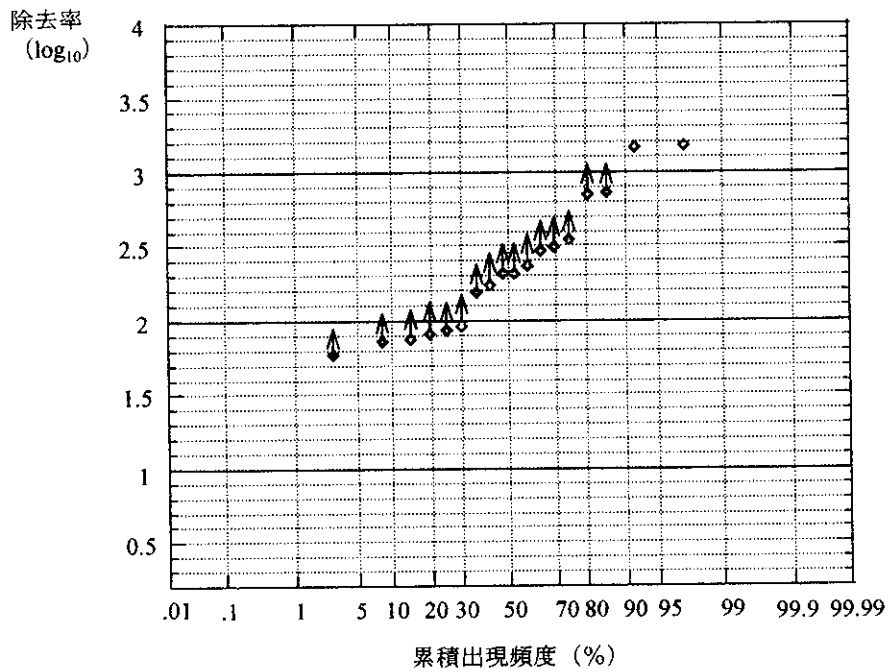


図8 浄水処理における確定ジアルジアシスト除去率の累積出現頻度
 ↑ : 検出されなかったものについては試験水量当たり1個として除去率を算出した。

大孔径膜の原虫除去特性の検討

分担研究者 平田 強
研究協力者 森田重光

分担研究報告書：大孔径膜の原虫除去特性の検討

分担研究者 平田 強 麻布大学環境保健学部 教授
研究協力者 森田 重光 麻布大学環境保健学部 講師

研究要旨

清浄な原水や急速砂ろ過水からの原虫の除去に大孔径膜が利用できるかどうかを検討するために、既存の大孔径膜（A膜）と、より大孔径の孔が少なくなるように工夫して試作した3種類の大孔径膜（B、C、D膜）の計4種類の中空糸膜について、その孔径分布とクリプトスポリジウムオーシスト除去性を評価した。膜の標準粒子排除分布から、孔径分布はA、B、C、Dの順に小孔径側に少しずつシフトとされていたが、90%cut-off 径はいずれも 2.0～2.2 μm のきわめて狭い範囲にあったが、90%cut-off 径近傍の径の標準粒子の除去率は膜により大きく異なった。A、B、C、Dのどの膜も 3.2 μm の標準粒子を完全に排除したが、4.5 μm の大きさのオーシストは少量ではあるがどの膜からもリークし、標準粒子を除去する能力の高い膜ほどオーシスト除去も高い傾向があった。より大きな孔の最も少ないと考えられるD膜で7 log を超えるきわめて高いオーシスト除去能力が認められた。

A はじめに

急速砂ろ過法のクリプトスポリジウムオーシストの除去能は高々3log 程度であり、原水の原虫汚染レベルが高い場合はろ過水に漏出したオーシストの健康影響が懸念される。消毒のみで給水している浄水施設の原水（伏流水や浅井戸水）からもクリプトスポリジウムやジアルジアなどの病原性原虫が検出されることがある。このため、有効な原虫対策技術が求められている。水中の粒子を物理的に除去する方法としては膜ろ過法があるが、クリプトスポリジウム対策用の付加的な施設としては費用の点では難がある。こういった清浄な原水や急速砂ろ過水で原虫汚染問題以外に特に問題のない水からの原虫除去に、従来の膜に比べて孔径の大きい大孔径中空糸精密ろ過膜（大孔径膜）の利用が考えられる。この膜は公称孔径（90%cut-off）が2 μm 近傍であるため低い膜間差圧でろ過が可能であり、しかも膜の孔径が適切であれば原虫サイズの粒子の除去に優れることが期待される。そこで既存の大孔径中空糸精密ろ過膜（A膜）のクリプトスポリジウム除去能を予備的に評価した。しかし、必ずしも十分な除去成績とはならなかったことから、公称孔径を越える径の孔が極力少なくなるように膜の製造方法を一部改良して孔径分布の異なる3種の中空糸膜を製造し、そのクリプトスポリジウムオーシスト除去能力を評価した。

B 方法

1 大孔径膜

既存の大孔径膜1種類（A膜）と、新たに試作した新大孔径膜3種類（B、C、D膜）の計4種類を評価対象とした。新大孔径膜は、B、C、Dの順に、より大孔径の孔が少なくなるように膜製造方法に工夫を加えて試作したものである。なお、材質はいずれも親水化ポリスルホンで、中空糸内径は0.75mm、外径は1.25mmである。

2 孔径分布の測定

膜の孔径分布は、内径 0.75 mm、外形 1.25 mm、有効長 200 mm の中空糸 20 本をステンレス製モジュールケース（φ10 mm×200 mm、容積：15.7 cm³）に装着した超小型ろ過装置を用いて測定した。この装置の有効膜ろ過面積は 0.0157 m² である。

粒子には市販の 5 種類の標準微粒子を用いた（表 1）。標準微粒子の選定に当たっては、測定値の信頼性を損ねないように、粒子径の CV 値（標準偏差／平均粒径）ができる限り小さいものを選んだ。

測定方法は以下のとおりである。

標準微粒子を精製水 100 mL に 10⁶～10⁷ 個/mL になるように添加し、その全量を膜間差圧 10 kPa 以下でろ過した。ろ過水はろ過開始直後から 20 mL ずつ分けて採取した。原水の粒子濃度は市販の標準粒子のカタログデータと希釈率から算出した。ろ過水の粒子濃度は、2.3、2.9、3.2 μm 粒子については 0.22 μm メンブレンフィルターでろ過して走査型電子顕微鏡により観察して計数した粒子数から算出、1.2、2.0 μm 粒子については分光光度計を用いた比濁法により算出した。除去能は、ろ過水 20 mL 試料の中で除去能の最も小さい値を採用した。

3 オーシスト除去能

実験装置には、超小型ステンレス製モジュールケースに大孔径膜の中空糸（内径 0.75 mm、外径 1.25 mm、有効長 100 mm）を 10 本装着したのものを用いた（有効膜ろ過面積 0.0039 m²/モジュール）。これに、孔径 0.22 μm メンブレンフィルターでろ過した水道水 400 mL に 10⁷～10⁸ 個の *Cryptosporidium parvum* HNJ-1 株オーシストを添加したものを原水とし、ダイヤフラムポンプを用いて定流量全量ろ過方式で通水した。膜ろ過速度は約 5 m/d とした。通水時間は 30 分で、その間逆洗なしの連続通水とした。原水 pH は 7.8、水温は 21～24℃であった。また、送水ポンプによって生じる脈動の影響を極力排除するために、膜の一次側にアキュムレーターを設置した。ろ過水は全量を採取し、オーシストは試料全量について計数した。

C 結果及び考察

1 孔径分布

孔径分布の測定に使用した標準粒子の諸元を表 1 に示す。

表 1 供試標準微粒子

平均粒径(μm)	1.2	2.0	3.2	2.3	2.9
CV 値(%)	6.6	6.6	7.0	<5	<5
メーカー	東振化学			DUKE	
品番	PM-3KV	PM-4KV	PM-5KV	G-0220	G-0300
材質	架橋ポリメタクリル酸メチル			ポリスチレン	

これらの標準粒子を使用して得た A 膜の測定結果を表 2 に、B、C、D 膜の測定結果を表 3 に示す。また、4 種類の大孔径膜の粒子除去率を図 1 にまとめて示す。

表 2 既存の大孔径膜（A 膜）の孔径分布測定結果

粒径 (μm)	1.2	2.0	2.3	2.9	3.2
原水(個/L)	5.6×10 ⁶	2.0×10 ⁶	1.6×10 ⁷	1.6×10 ⁷	4.9×10 ⁸
ろ過水(個/L)	5.4×10 ⁶	1.5×10 ⁶	1.2×10 ⁴	6.8×10 ³	0
除去率 (%)	4.1	25.0	99.925	99.958	100

表3 新大孔径膜B, C, Dの孔径分布測定結果

粒径 (μm)		1.2	2.0	2.3	2.9	3.2
原水 (個/L)		5.6×10^6	2.0×10^6	1.6×10^7	1.6×10^7	4.9×10^8
B膜ろ過水	微粒子数 (個/L)	5.0×10^6	1.0×10^6	9.3×10^3	2.2×10^3	0
	除去率 (%)	10.8	50.0	99.947	99.986	100
C膜ろ過水	微粒子数 (個/L)	4.8×10^6	5.6×10^5	1.8×10^3	1.2×10^2	0
	除去率 (%)	14.0	72.0	99.990	99.999	100
D膜ろ過水	微粒子数 (個/L)	3.5×10^6	2.0×10^5	3.8×10^2	9.0×10^0	0
	除去率 (%)	36.3	90.1	99.998	>99.999	100

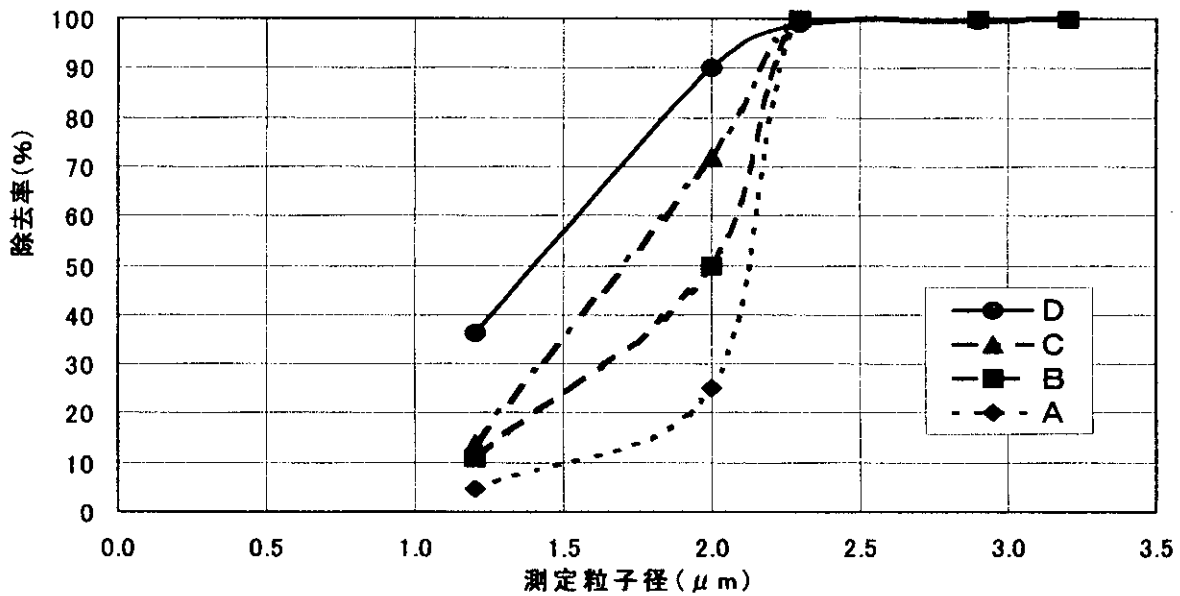


図1 各大孔径膜の標準粒子除去率分布

A~D膜のいずれも3.2 μm 標準粒子は 10^8 個/Lと極めて高濃度であってもすべて完全に除去されたが、2.9 μm 以下の標準粒子はろ過水に漏出した。除去率は膜と標準粒子径によって異なり、2.9 μm 標準粒子の除去率はA膜99.958% (3.4 log), B膜99.986% (3.9 log), C膜99.999% (5.0 log), D膜>99.999% (>5.0 log), 2.3 μm 標準粒子ではA膜99.925% (3.1 log), B膜99.947% (3.3 log), C膜99.990% (4.0 log), D膜99.998% (4.7 log), 2.0 μm 標準粒子ではA膜25%, B膜50%, C膜72%, D膜90%となった。また、1.2 μm 標準粒子の除去率はD膜で36.3%、B膜ではわずか10.8%にすぎなかった。

これらの結果から、90%cut-off径は、既存の大孔径膜(A膜)では2.2 μm 程度、試作した新大孔径膜のD膜でちょうど2.0 μm 、B、C膜では2.0 μm よりも大きいもののB膜でも2.1 μm 程度と推測される。また、A、B、C、D膜の4種類とも90%cut-off径に大きな差異は認められず、2.9 μm 及び2.3 μm 粒子の除去率はどの膜でも99.9%以上と極めて高かったが、2.0 μm 標準粒子は、99.9%以上阻止された2.3 μm 標準粒子径よりもわずか15%小さい径に過ぎないにもかかわらず除去率は大きく低下し、しかも除去率の値も膜によって相当異なった。このことは、孔径分布形状が膜によって異なり、A、B、C、Dの順に、製造方法を改良して製作した膜が、その目的に見合った、孔径分布の大孔径側がシャープなものになっているものと判断される。

2 クリプトスポリジウムオーシストの除去

既存の大孔径膜（A膜）のクリプトスポリジウムオーシストの除去成績を表4に、新たに試作したB, C, D膜の除去成績を表5に示す。

表4 既存大孔径A膜のクリプトスポリジウム除去成績

原水 (個)	3.6×10^7	2.0×10^8	2.3×10^8
ろ過水 (個)	625	1,942	3,400
除去率 (log)	4.8	5.0	4.8

表5 新大孔径B, C, D膜のクリプトスポリジウム除去成績

B膜	原水 (個)	3.8×10^7	9.0×10^8	9.8×10^8
	ろ過水 (個)	45	21	17
	除去率 (log)	5.9	6.6	6.8
C膜	原水 (個)	1.2×10^7	1.1×10^8	1.1×10^8
	ろ過水 (個)	4	14	19
	除去率 (log)	6.5	6.9	6.7
D膜	原水 (個)	1.2×10^7	1.2×10^7	1.4×10^8
	ろ過水 (個)	1	0	0
	除去率 (log)	7.1	>7.1	>8.1

既存の大孔径膜であるA膜では最大孔径が $3.2\mu\text{m}$ 以下にもかかわらず、オーシスト除去率は 5 log 程度にとどまった。これに対して、より大孔径の孔の生成を極力押さえた試作大孔径膜のB, C, D膜では、生成を抑えたものほど（B, C, Dの順に）オーシスト除去成績が向上し、より大孔径の孔が最も少ないと推察されるD膜では7logを超える除去が達成された。

そこでD膜についてのみ、原水の容量を 1,200 mL とし、 $10^3 \sim 10^8$ 個の精製オーシストを添加して90分間の連続ろ過を行い、より詳細なクリプトスポリジウム除去試験を行った。ろ過水は10分毎に全量採取し、オーシストは試料全量について計数した。結果を表6に示す。

表6 D膜のクリプトスポリジウム除去成績

原水オーシスト量 (oocysts)	上段:ろ過水オーシスト数(oocysts)/下段:ろ過水量(mL)										流速(m/d)	除去率(log ₁₀)
	0-10分	10-20分	20-30分	30-40分	40-50分	50-60分	60-70分	70-80分	80-90分	計		
2.6×10^3	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5.0	>3.4
	151	142	136	132	132	130	130	128	128	1209		
2.6×10^4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5.1	>4.4
	146	140	140	140	138	138	138	136	136	1252		
2.7×10^5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5.1	>5.4
	140	136	138	138	137	137	138	138	138	1240		
2.8×10^6	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	5.1	>6.4
	141	136	138	130	128	127	128	125	122	1175		
2.6×10^8	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4.7	>6.4
	152	128	128	128	125	124	123	124	122	1154		
2.9×10^7	0	0	0	3	2	0	0	0	0	5	5.1	6.8
	144	142	140	140	137	136	134	135	130	1238		
3.0×10^7	0	0	0	0	0	0	0	1	0	1	5.2	7.5
	142	144	142	142	140	140	138	137	136	1261		
2.8×10^7	0	0	0	0	0	0	1	0	0	1	5.0	7.5
	142	136	136	136	134	134	132	132	132	1214		
3.3×10^6	0	0	0	0	1	2	4	4	2	13	4.8	7.4
	130	128	128	124	126	130	128	128	128	1150		
3.4×10^9	0	0	0	0	0	2	2	2	1	7	5.1	7.7
	141	140	140	140	139	138	136	136	136	1246		
2.5×10^8	0	0	0	0	3	0	0	0	2	5	5.0	7.7
	144	142	141	138	136	132	131	129	126	1219		

原水へのオーシスト添加量が 10^6 個以下では、オーシストは 1 個も漏出しなかった ($>6 \log$ 除去)。原水濃度が 10^6 個を超えると、ろ過時間が 30 分以降に極少量のオーシストがろ過水中に漏出するようになったが、除去率は極めて高く、一例が $6.8 \log$ で、それ以外は $7.4 \log$ 以上であった。このように、中空糸大孔径D膜は、精密ろ過膜としては $90\% \text{cut-off}$ 径が $2.0 \mu\text{m}$ と大きいにもかかわらず、公称孔径 $0.2 \mu\text{m}$ の中空糸精密ろ過膜の除去能力である $7 \log$ (平田強ほか, 1997) とほぼ同等レベルの高いオーシスト除去能を示しており、American National Standard/NSF International Standard の Drinking water treatment units-Health effects (ANS/USF 53-2001) に定められている「クリプトスポリジウムオーシストを $50,000$ 個/L もしくは $3.00 \pm 0.15 \mu\text{m}$ ポリスチレン粒子 $50,000$ 個/L を用いて、 99.95% 以上の除去率があること」をも十分に満足している。

膜ろ過法は、従来の急速ろ過法、緩速ろ過法に比べて水中の微細な懸濁粒子を除去する能力が極めて高く、微生物感染症の集団発生防止に大きく貢献できる、公衆衛生対策上極めて優れた浄水技術である。また、従来型の浄水システムと十分比肩しうる費用で設置が可能とされており、浄水システム更新の際の最も有力な選択肢の一つである。しかしながら、原水の水質が極めて良好な水源を有する水道や、既存の処理システムで良好な処理成績が達成されていて、原虫類汚染以外に問題を抱えていない水道にとっては、既存の膜ろ過施設は、費用の点で難があることは否めない。そこで、大孔径膜のクリプトスポリジウム除去性能を評価したところ、より大孔径側の孔の生成を極力抑制した方法で製造したD膜は、クリプトスポリジウムオーシストを $6.8 \sim 7.7 \log$ の高率で除去する能力を有していた。このクリプトスポリジウム除去能力はクリプトスポリジウムにより高濃度に汚染された原水であっても十分に安全な水道水とすることができるレベルにあり、大孔径D膜はクリプトスポリジウム対策に十分利用できる判断される。

D 研究発表

Hirata T, Morita S, Takizawa H, Jimbo Y and Komatsu K (2002) Micron-Pore Membrane Filtration system for Removing Protozoa from Water at lowest Trans-Membrane Pressure. Proceedings of IWA World Water Congress (Melbourne, Australia)

参考文献

American National Standard/NSF International Standard (2001) Drinking water treatment units-Health effects (ANS/USF 53-2001) , p.8

平田 強、大垣眞一郎、矢野一好 (1997)、膜ろ過法のクリプトスポリジウム除去性能評価実験、第1回浄水技術セミナーテキスト、(財)水道技術研究センター、pp.4-11

分担研究報告書 1 2

クリプトスポリジウムの除去指標としての藻類の検討

分担研究者 眞柄泰基、国包章一
研究協力者 秋葉道宏、金 漢承

水道水のクリプトスポリジウム等による汚染に係わる健康リスク評価及び管理に関する研究

クリプトスポリジウムの除去指標として藻類の検討

分担研究者	眞柄 泰基	北海道大学大学院工学研究科	教 授
主任研究者	国包 章一	国立公衆衛生院水道工学部	部 長
研究協力者	秋葉 道宏	国立公衆衛生院水道工学部	主任研究官
研究協力者	金 漢承	国立公衆衛生院水道工学部	特別研究員

研究要旨：クリプトスポリジウム（以下 *C. parvum*）除去の代替指標として着目した緑藻類 *Scenedesmus quadricauda*（以下 *S. quadricauda*）の有効性を検討するために、原水中の *C. parvum* 注入濃度を 500~5000 oocysts/mL に変化させた条件下で凝集・ろ過実験を行い、前年度行った *S. quadricauda* を用いた実験結果と比較検討した。

原水濃度変化によるろ過水濃度の変化は、両者ともに原水濃度が高くなるほどそれに比例してろ過水濃度も高くなる傾向が見られた。同じ原水濃度における両者のろ過水濃度をろ過時間ごとに比べると平均的に *C. parvum* よりは *S. quadricauda* の方が 10% 位高く、両者間の相関関係は良好 ($R^2 > 0.90$) であった。清澄期における両者の除去率は 2.0~2.5 の範囲であり、同じ原水濃度での除去率における両者間の差はほとんど見られなかった。また、全ろ過時間にわたって、除去率の挙動は原水濃度変化に関係なくほぼ類似していた。ろ層に捕捉された *C. parvum* および *S. quadricauda* の数はろ層の上部で一番多く下部に行くほど少なくなった。なお、原水濃度の増加に比例して捕捉された数も増加していた。以上の結果より、原水濃度変化しても *C. parvum* と *S. quadricauda* のろ過挙動が非常に類似していることから、凝集・ろ過における *C. parvum* 除去の代替指標として検討を行った緑藻類 *S. quadricauda* の有効性が認められた。

A. 研究目的

水道水源のクリプトスポリジウムによる汚染が問題となっている中で、浄水施設の除去性能を的確に把握することはクリプトスポリジウムのリスク評価を行う上で最も重要な課題である。水道原水における濁度の上昇やクリプトスポリジウムの大量混入とともに、不十分な浄水処理などが水道を介した集団感染の主な原因とされていることから、原水条件変動に対するクリプトスポリジウムの除去挙動を調べることがもっとも重要であろう。しかし、クリプトスポリジウムの検出に時間と費用、熟練された技術が要求されることから、浄水場において迅速にクリプトスポリジウムのろ過挙動を調べるのは用意ではない。そこで、本研究ではクリプトスポリジウム除去の代替指標として緑藻類 *Scenedesmus*