

### 3. 都市排水設備

2000年に、上海市において、Huangqu川上流の水道水源を排水から保護するため、上海Minhang排水処理施設でUV消毒の利用が開始された。

Minhangの施設は、50,000m<sup>3</sup>/dayの排水を処理することができ、中国製のUV装置を使用している。そのUV消毒システムは、最初に排出される水路に建設された。設計上の重要なポイントは、70%のUV照射率であり、懸濁物質(SS)を30mg/L以下又は同等、BOD<sub>5</sub>を30mg/L以下又は同等にすることである。

Minhangの消毒システムは、1本当り65Wの低圧UVランプ300本から構成されている。

下記の表1に都市排水処理に、近年導入されたUV消毒システムを示す。

Table 1

Municipal wastewater treatment adopting UV disinfection system in recent year  
(Arranged in chronology of installation)

Name of plant	Capacity (10 <sup>4</sup> m <sup>3</sup> /day)	Installation year	Equipment provider
Shek Wu Hui plant, Hong Kong	24	1999	Trojan
Minhang plant, Shanghai	5	2000	Newland
Beipei plant, Chongqing	5	2002	Wedeco
Foshan No.2 plant	12	2002	Trojan
Xincheng plant, Wuxi	2.5	2002	Trojan
Changqiao plant, Shanghai	2.2	2003	Trojan
Huanxing plant, Nanjing	3	2003	Newland
Jiananhe plant, Chengdu	10	2003	Wedeco
Lijiao plant, Guangzhou	20	2003	Trojan
Longgang plant, Shenzhen	4	2003	Trojan
Longhua plant, Shanghai	10.5	2003	Trojan
Meicun plant, Wuxi	3	2003	Newland
Shahe plant, Chengdu	10	2003	Wedeco
Shongjiang plant, Shanghai	8	2003	Wedeco
Suzhou Xinqu plant	3	2003	Trojan
Xifang plant, Guangzhou	26	2003	Trojan
Haian plant, Zhejiang	2	2004	Trojan
Jading plant, Shanghai	5	2004	Trojan
Qige plant, Hangzhou	60	2004	Trojan
Yiwu plant, Zhejiang	7	2004	Trojan

#### 4. 統計値と解析

得られた情報によれば、少なくとも 20 の UV 消毒システムが導入されているか又は、2004 年末までには、導入される計画であり、その他の施設では評価又は設計の段階であるとのことである。

Fig 1 に各種の UV 消毒装置メーカーの市場の割合を示しており、中国では排水処理での UV 消毒が急速の成長している。およそ 100 ヶ所の排水処理施設が 2005 年までに UV 消毒を選択すると予想されている。

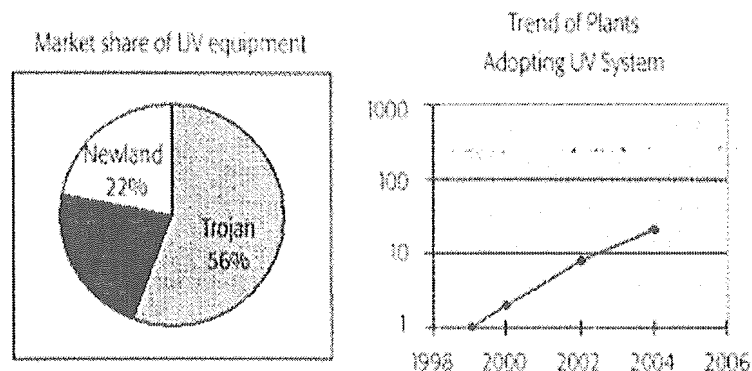
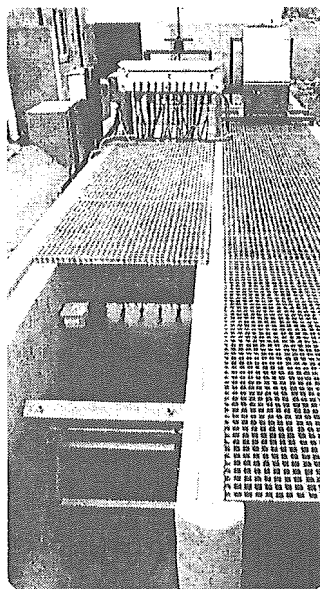


Figure 1 Market share of manufactures of UV equipment supplying Chinese wastewater projects, and the growth trend in the use of UV disinfection at wastewater treatment plants



Installation treating 30,000m<sup>3</sup>/day at Changqiao wastewater treatment plant, Shanghai, China (courtesy Trojan UV)

## 5. 問題点と討議

中国以外の国では、UV の製造には、独立した第三者機関の、確認や証明された実施要項が必要である。これらの実施要綱（協定）では、実際の UV 照射量を、信頼できる生物試験機関または信頼できる独立した第三者機関の管理に基づき決定している。

様々な UV 技術や UV 消毒システムの性能、規模、コストが、実際の UV 照射量に基づいて公正に比較される。しかし、現在の中国には、UV 消毒システムの独立した第三者機関による確認や証明を行うための十分な知識と経験を有する専門的な制度がない。

## 6. 調整機能の高度化

中国では人口が増加し、飲料水水源が排水中の有機物や病原体により汚染されている。生命を維持していくためには、塩素処理により引き起こされる有害な消毒副生成物の量を削減し、排水処理施設からの病原生物の流出を最小にするための新しい調整や基準の導入が必要である。

## 7. 促進技術の高度化

中国の UV 技術に対する知識や理解は 1970 年代から 1980 年代のものである。

## 8. その他の応用

中国では、UV 消毒は、現在は主に都市の排水処理や病院の排水処理に利用されている。

## 9. 文献

Chenciao,wang Xiangdong,Application of UV technology in wastewater treatment.

Chongqing Environmental Science,2001,233:p49-51

Fu Wenhua.O3/UV in swimming water treatment International forum of water disinfection technology 2003,Beijing,2003,9:p145-148

Wu Tining.Training efficient degradation bacteria in pulp water with UV inducement.Chinese water and wastewater,2003,19 11:p16-18

Yang Shunan.Research into UV disinfection effect in a clear water tank.Int'l forum of water disinfection technology in 2003,Beijing,2003,9:p156-158.

Zhang Minyi. Research into UV disinfection in hospital wastewater treatment. Internatinal forum of water disinfection technology in 2003. Beijing,2003,9:p118-121.

Zhangxin. UV disinfection in wastewater treatment. Chinese water and wastewater,2002,299

**UV 照射による *MICROCYSTIS AERUGINOSA* の直接及び間接的不活性**  
**DIRECT AND INDIRECT INACTIVATION OF *MICROCYSTIS***  
***AERUGINOSA* BY UV-RADIATION**

MD ZAMIR BIN ALAM<sup>1\*<sup>M</sup></sup>, MASAHIRO OTAKI<sup>2<sup>M</sup></sup>, HIROAKI FURUMAI<sup>1<sup>M</sup></sup> and SHINICHIRO  
 OHGAKI<sup>1<sup>M</sup></sup>

**概要**

湖沼・貯水池の藻類大増殖は膜の目詰まり、異臭味、消毒副生成物及び毒素の生成の原因である。藻類の増殖を抑えるための様々な試みが現在なされているが、成功例は限られている。ある水道事業では殺藻剤（硫酸銅）の定期的散布による殺藻を行っているが、ターゲットとなる藻類のみでなくその他の多くの生物を殺してしまうなど大きな影響を与えるため、硫酸銅の使用について懸念されている。

本論文では、*Microcystis aeruginosa* をサンプルとして用い、藻類の大増殖を防止する UV 放射線の適正範囲について調べた。以下に実験結果を列記する

- ・ *M. aeruginosa* における UV 放射能致死量は  $75\text{mWscm}^{-2}$  であった。
- ・ UV-投与量が  $37\text{mWscm}^{-2}$  と低い時では 7 日間 *M. aeruginosa* の増殖が示唆されなかった。
- ・ UV 放射が細胞の比重を増加させ、微生物の懸濁能力に影響を与えることが示唆された。
- ・  $75\text{mWscm}^{-2}$  UV-投与量の 3 日後、ほぼ全微生物が培養管の底に沈下したが、UV 放射されていない微生物は懸濁していた。
- ・ 藻類の細胞外生成物に対して UV 放射は顕著な残留効果が認められ、藻類増殖防止に貢献できる。
- ・ 残留効果は、UV-投与量に依存して、7 日間続くことができる。
- ・ UV 放射は  $\mu\text{M}$  レベルの  $\text{H}_2\text{O}_2$  を生成するが、 $\mu\text{M}$  レベルの  $\text{H}_2\text{O}_2$  自体では本論文で示唆された残留効果は期待できない。

**1. はじめに**

藻類の存在は水道水原水の浄水処理法に重大な影響を与える。藻類は異臭味(Hargesheimer and Watson, 1996), 膜の目詰まり, 消毒副生成物の生成(Graham et al., 1997, Hoehn et al., 1990) 及び毒素生成の原因である。従って, 水源における藻類増殖防止は近年大きな課題となっている。藻類増殖防止の最も効果的な方法は水域に放流される栄養塩の削減である(Ryding and Rast, 1989)。しかしながら湖沼・貯水池では, 湖底に栄養塩が蓄積され, 内部負荷が高いため, 栄養塩放流の制御のみでは季節変動による藻類大増殖防止には不十分である(Horne and Goldman, 1994)。これらのことから, 湖沼・貯水池の中で行う藻類増殖防止計画が現在取り組まれている。

深層曝気, 人工成層破壊(Saito and Ariga, 1994a, b, Simmons, 1997), 生態系操作(DeMaeseneer et al., 1998, Liukkonen et al., 1997), 沈水植物及び沈水植物から抽出された生物活性物質の採用(Nakai et al., 1996)等は藻類増殖防止対策の一つである。いくつかの水道事業では殺藻剤(硫酸銅)の定期的散布による殺藻を行うが, ターゲットとなる藻類のみならず他の多くの生物を殺してしまう。さらに, 大増殖藻類の突然死滅し, 腐食する結果, 酸素欠乏し, 異臭及び毒素の発生や, 湖底への銅の蓄積などの問題から, 硫酸銅の使用が懸念されている。

硫酸銅に代わる方法として, 日本のいくつかの富栄養湖では, UV-ランプを装備しているボートを使用し, 藻類の大増殖を防止している。奥多摩湖では藻類を除去するため浮動太陽電池式ポンプを使用している。従って, 小湖沼での藻類大増殖防止方法として浮動太陽電池式 UV 装置の使用が考えられる。UV 放射を使用することにより有害化学物質の添加が不要である。さらに, 腐植物質が豊富な水の UV-放射が持続的な残留効果を生むということが報告されている(Hassen and Donk, 1994)。この残留効果は藻類に有害であることが示唆された(Gjessing and Källqvist, 1991)。UV-放射は  $H_2O_2$  を生産し, 残留効果に重要な役割を果たすと考えられる(Lund and Hongve, 1994)。

本論文では, *Microcystis aeruginosa* を用いて藻類の大増殖を防止する UV 放射線の適正範囲について評価を行った。*M. aeruginosa* は季節的藻類大増殖と連結しているため採用した。本論文の目的は, ①藻類の増殖及び生存への UV-放射効果, ②藻類に対する UV-放射の間接的影響, ③UV-放射の残留効果を発生させることにおける  $H_2O_2$  の役割。以上の3点について調べる。

## 2. 手法

### 2-1 藻類の培養

国立環境研究所(NIES)より浮遊性藍藻である *Microcystis aeruginosa* の純粋培養を入手し, CT 培地(JWWA, 1993)で培養を行った。PH はピシン緩衝(N, N-2bis(2-hydroxymethyl) glycine,  $C_6H_{13}NO_4$ )で 9.0 に調整した。培地は培養システム内で照明及び湿度制御し, 25°C に保温し, 蛍光灯(FL20SW-B, GE/Hitachi)を使用し 16 時間光(1500lux) / 8 時間暗の自動サイクルで培養した。

### 2-2 UV-放射線の直接効果

サンプルは加熱滅菌培地を使用し最初濃度が  $10^5 \text{ cells ml}^{-1}$  になるよう培養を行った。UV-放射線の直接効果を評価するため, シャーレーに 40ml のサンプル(水深=0.67cm)を入れ, 30 秒~2 分間 UV-放射(254nm)した。サンプルの表面での UV-放射光度は  $1 \sim 1.5 \text{ mW cm}^{-2}$  であった。低圧水銀灯を 1 ランプ(National Co. Ltd., GL-10, 10W)及び 2 ランプ(Toshiba Corp., GL-20, 20W 各ランプ)を使用し放射した。UV 線量計算は Beer-Lambert 法で算出した。UV-放射後, サンプルは 60ml パイレックス管に入れ培養システム(1500lux 光度, 25°C, 16 時間光/8 時間暗サイクル)で培養を行った。細胞の生育は, haemocytometer を用いて位相差顕微鏡で細胞数を計

測した。損傷の無い細胞のみ計測し、損傷している細胞は消滅とみなした。各実験を三回行った。

### 2-3 UV-放射による藻類の沈下

UV 直射実験により、UV が直射された細胞は 60ml の培養管の底に沈降する傾向が認められた。光が照射された範囲において細胞の効果的な不活性化が認められたことから、更に詳細にこの現象に関する調査を行った。はじめに沈降量を測定し、次に細胞を添加した培養管を固定し、上澄み液をサンプルとしてその細胞の濃度を測定した。その他の培養管については全体混合しサンプルとした。この二つの濃度を比較することにより、全体の沈降量を求めた。

更に高さ、底面積の大きい容器を用い同様の実験を行った。これは沈降の様子、及び沈降速度を調べるために行った。UV 放射したサンプルを、高さ 24cm のシリンダーにいれ、培養条件を以下のようにし、実験を行った。

- ・ 温度 25℃
  - ・ UV 照射サイクル：UV ON16 時間 OFF8 時間を繰り返す。
- 0, 6, 12, 18cm の高さからサンプルを採取し、顕微鏡により観察した。  
また遠心分離機を使用し比重を測定した。

### UV 照射の間接効果

UV 照射の間接効果の評価を図 1 で示す方法で行った。

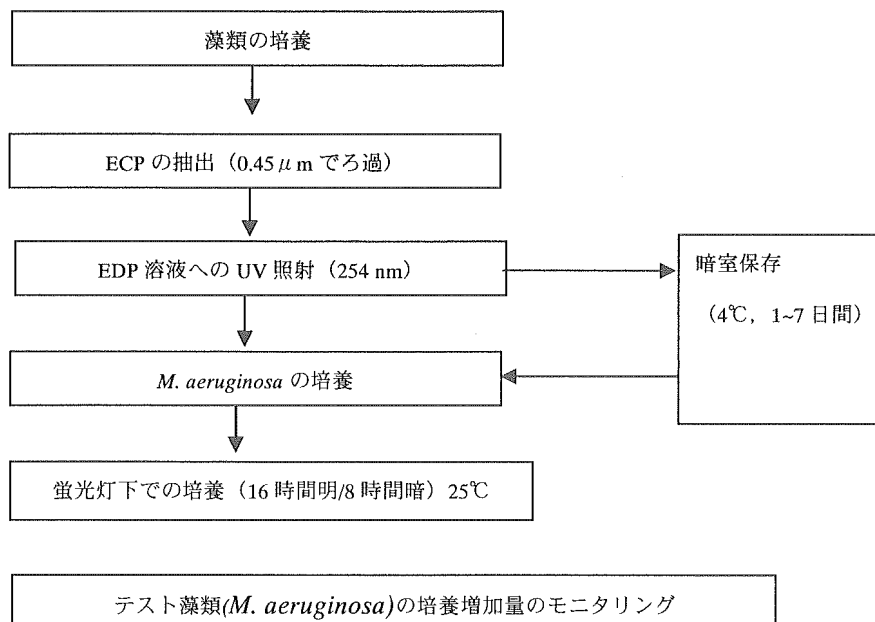


図 1. UV 照射の間接効果の評価

### 残留効果発生における H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の役割

UV の照射により様々な酸化副生成物が生じるが、これらの毒性と残留性についての情報は少ない。このうち過酸化水素のみ残留性が長いことがわかっているため濃度を測定した。

### UV 照射による過酸化水素発生量の測定

UV 照射により発生する過酸化水素の濃度は、inverse fluorometric method( Holm et al, . 1987) により測定した。

### UV 照射による残留効果

過酸化水素の残留性を測定するため、UV 照射したサンプルをねじ込み蓋ガラス管に保存した(暗所, 4℃)。過酸化水素濃度は定期的に測定した。

## **3. 結果と考察**

### **3-1 UV 照射の直接効果**

*M.aeruginosa* に対する UV 直接照射の効果を投与量 3 種類 (37, 75, 150 mWscm<sup>-2</sup>) ごとに調査した結果を図-2 に示す。照射直後はどのサンプルにも変化は認められなかった。しかし投与 24 時間を経過し、照射しているサンプルと、照射していないサンプルに大きな変化が認められた。そして 3 日後には細胞の密度は UV を照射していないサンプルに比べ 25%以下となった。

照射 3 日後、UV150 mWscm<sup>-2</sup> を照射したセルの緑色が徐々に消え始め、7 日後には全てのセルが消えるまたは細胞壁が壊れてしまった。37, 75mWscm<sup>-2</sup> を照射した細胞は生存していたが、セルの密度変化は培養中において認められなかった。UV 照射されていないサンプルでは密度が 54 x 10<sup>3</sup> から 1039 x 10<sup>3</sup> に増え、顕微鏡で観察した結果、分解も認められなかった。UV 照射により細胞内の生殖機能をつかさどる DNA がダメージを受けていると考えられる。

密度に関しては 37 mWscm<sup>-2</sup>, 75 mWscm<sup>-2</sup> の間には大きな違いが認められなかったが、75 mWscm<sup>-2</sup> で照射したものは全て沈降し、35 mWscm<sup>-2</sup> では懸濁し完全に沈降しなかった。この現象は、沈降した細胞は死滅したと考えられるため湖沼において重要な結果であると考えられる。

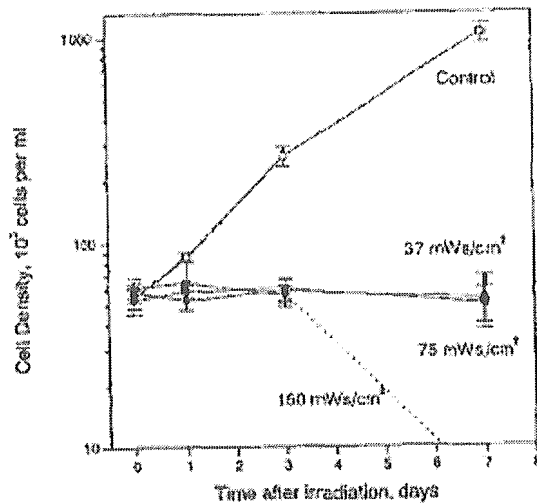


図2 *M.aeruginosa* に対する UV 直接照射の効果。細胞の培養は 60ml のパイレックス管で行った。縦棒は標準偏差, 点線は死細胞を示す。

### 3-2 UV 照射による細胞の沈降

Table 1. に示すように, 75, 150 mWscm<sup>-2</sup> の照射量において 50%以上の細胞が沈降した。3 日後には 90%が沈降した。しかし 37 mWscm<sup>-2</sup> では 1 日目では沈降は少なかったが, 3 日後では 90%沈降が認められた。7 日後には微量の細胞が懸濁していたが, 75 mWscm<sup>-2</sup> では全て沈降した。この沈降の様子を調べるため, 同様の実験を更に長いシリンダーで調査したところ 37 mWscm<sup>-2</sup> の照射において懸濁した細胞が多くなった。

Table 1. UV 照射による藻類の沈降

UV 照射量	細胞の密度 (10 <sup>3</sup> cells ml <sup>-1</sup> )					
	1 日目		3 日目		7 日目	
	沈降	懸濁	沈降	懸濁	沈降	懸濁
Blank	0	88	0	263	0	1214
37	10	48	53	6	50	5
75	32	20	57	1	38	0
150	27	36	53	2	0	0

懸濁していた細胞はカラムの中で均等に存在していたが, 密度の違いは認められなかった。この結果を Table 2. に示す。この理由として, 細胞の沈降速度が遅いためサンプリングの際に沈降状態に影響を与えたと思われる。また, 大きいシリンダー内で温度差が生じたことも原因の一つであると考えられる。

Table 2. UV 照射, 1 日後のシリンダー内での沈降水量

UV 照射量	細胞の密度 (10 <sup>3</sup> cells ml <sup>-1</sup> )			
	0 cm	6 cm	12 cm	18 cm
Blank	84	99	92	101
37	59	56	67	62
75	52	56	63	65
150	59	62	58	59



しかし、長いシリンダーにおける  $75 \text{ mW/cm}^2$  での投与量のサンプルでは7日後に全ての細胞が死んだ (図 3)。これは、シリンダーが長く、沈降速度が遅いため、UV 照射により生成される毒素に触れる時間が長くなるためである。

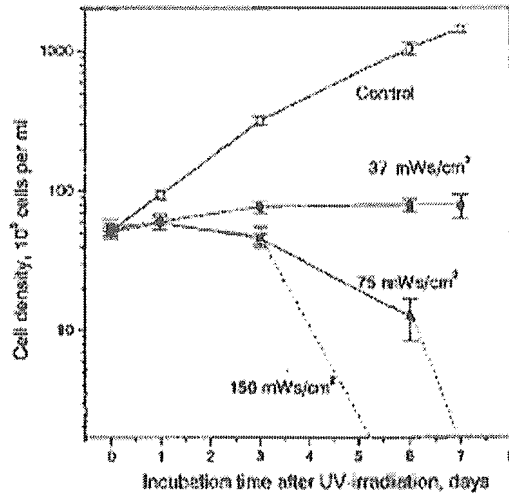


図 3 *M. aeruginosa* に対する UV 直接照射の効果。細胞の培養はガラスシリンダーで行った。縦棒は標準偏差、点線は死細胞を示す。

### 3-3 UV 照射後の比重分布

*M. aeruginosa* は水中で、自らの細胞の比重を変化させることで移動する。UV 照射後の藻類の比重を測定することにより UV 照射による比重の変化を測定した。細胞のサイズを一定と仮定し、分子量測定器により測定した。測定結果を図 4 に示す。

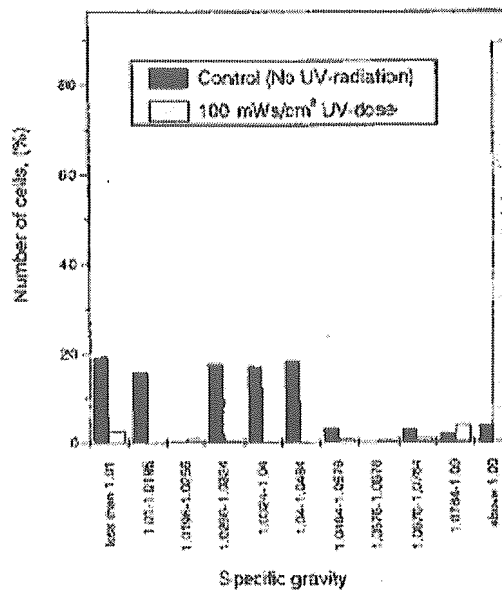


図 4 UV 照射有り無しでの藻類比重

UV 照射されていない *M. aeruginosa* の 19.3% は比重が 1.01 以下であり, 88.6% は 1.0484 以下であった。3.5% は 1.09 以上であった。しかし UV 照射した細胞の比重分布は全く異なる結果となった。UV 照射の 3 日後,  $100 \text{ mWscm}^{-2}$  の照射を受けた細胞の 89.2% の比重は 1.09 以上であった。2.7% の細胞は 1.01 以下であった。以上のことから今回の実験では UV 照射した細胞は比重が大きくなることが示された。

このメカニズムについてはまだはっきりしていないが, 藻類の細胞内に含まれるガスを含む組織膜が壊れることにより, 沈降が起こることが一つの可能性として考えられている。もう一つの可能性としては細胞の DNA にダメージを与えることにより細胞が分離できなくなり, でんぷんのような物質を生成し重みとなって, 沈降を引き起こすということが考えられている(Hoek et al., 1995)。

### 3-4 UV 照射の間接影響

ECP を含むサンプルを UV 照射した結果を図 5, 6 に示す。図 5 に *M. aeruginosa* の時間ごとの成長量を示す。ECP に  $150 \text{ mWscm}^{-2}$  を照射しても細胞増殖には影響を与えなかった。しかし,  $382 \text{ mWscm}^{-2}$  では細胞は死滅した。図 6 に UV 照射後, 更に細胞を添加し, 残留効果を調べた結果を示す。3 日後に生成に影響は認められなかった。しかし  $800 \text{ mWscm}^{-2}$  の濃度では残留効果は 7 日間続いた。従って残留効果は, UV 照射量に依存することがわかった。

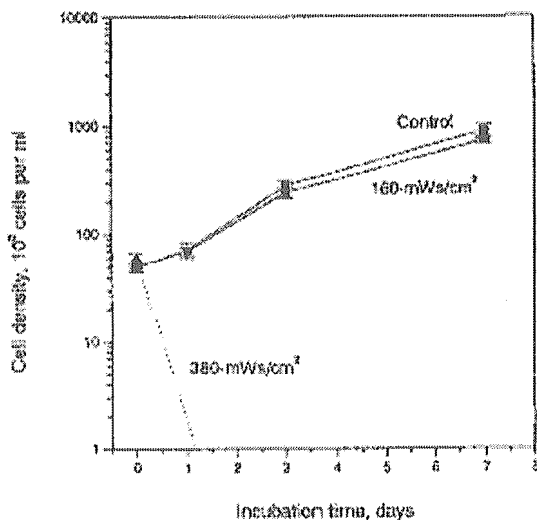


図 5 UV 照射が *M. aeruginosa* の成長量に与える間接影響

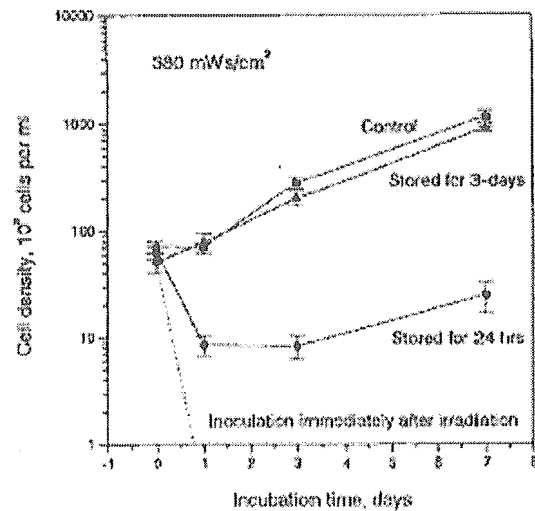


図 6 UV 照射の残留効果。UV 照射 ( $380 \text{ mWscm}^{-2}$ ) 後サンプルは暗所  $4^\circ\text{C}$  で保存された。縦棒は標準偏差, 点線は死細胞を示す。

### 3-5 過酸化水素と残留効果

UV 照射による過酸化水素の生成と残留性

過酸化水素と UV 照射には相関性が認められる。200 mWscm<sup>-2</sup> の UV 照射量は、0.54 μM の過酸化水素の生成し、過酸化水素の発生量と UV 照射量は比例関係にある。この結果について図 7 に示す。過酸化水素は mM レベルで細胞に毒性を示す(Palenik et al, .1991)ことがわかっている。

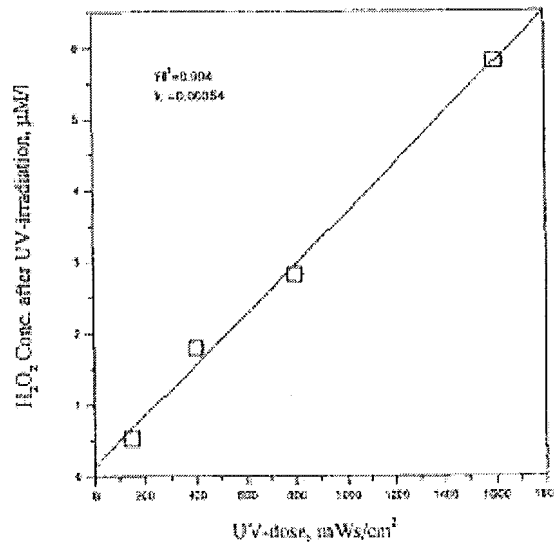


図 7 UV 照射による過酸化水素の生成

図 8 に示すように、UV 照射により生成された過酸化水素は水の中での残留性が長いことがわかる。UV 照射に生成された過酸化水素の一次崩壊（暗所、4℃で保存）では、半減期が 7 日であった。すなわち、過酸化水素自身では残留効果を長期間示すことは困難であるが、強力な酸化能力をもつ物質を生成する可能性が考えられる。過酸化水素が Fe<sup>2+</sup>と反応し、強力な OH ラジカルを生成する。これが酸化を引き起こし、残留効果を持続させる(Gjessing and Kallqvist, 1991)。

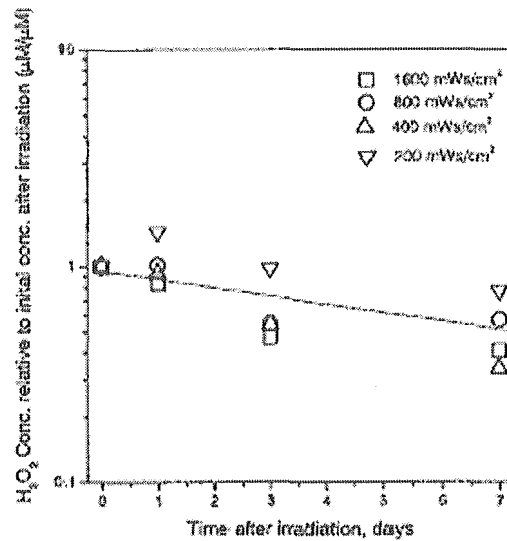


図8 UV照射により生成された過酸化水素の残留性。UV照射後サンプルは暗所4℃で保存された。UV照射800mWscm<sup>-2</sup>で最良適合線が得られた。

自然の湖沼においては、UV照射から生成される過酸化水素は有機物によりさらに早く消費されてしまうが、半減期は1~8時間である(Lund and Hongve, 1994)。このことから、UV照射による実際の湖沼においても過酸化水素の効果が期待される。

#### 4. 結論

この研究により示されたことを以下に示す。

- UV照射により小さい湖沼で起こる季節的な藻類の大増殖を抑制することが可能である。
- 藻類の大増殖が起こる季節の直前に、比較的弱いUV照射(37 mWscm<sup>-2</sup>)を行うことで、藻類の大増殖を抑制することが可能である。
- 藻類のECPへのUV照射には残留効果がある。
- 残留期間と残留効果は、UV照射量と相関性がある。
- UV照射により藻類を沈降させる。
- UV照射は過酸化水素をμMレベルで生成する。このレベルでは十分な毒素はないが、藻類の増殖は制御できる。
- 多くの富栄養化湖沼ではフミン質が多いため過酸化水素生成量と残留効果増加する。

**生物膜から剥離した従属栄養細菌に対する UV ランプの消毒効果**  
**Disinfection effectiveness of ultraviolet (UV) light for heterotrophic bacteria**  
**leaving biologically active filters**

Alexander A. Mofidi and Karl G. Linden

〈要旨〉

生物膜処理は、オゾン処理過程により生成する生物分解性有機物の上昇レベルを下げることで知られているが、一方で高濃度の従属栄養細菌が継続的に膜から放出される。生物膜から剥離した微生物に対する消毒方法は、配水水質の品質を保つために必要である。カリフォルニアの表流水を処理するオゾン/生物膜プラントからの流出水において自然的に発生する従属栄養細菌の様々な消毒方法の効果性について比較した。UV ランプ（低圧及び中圧ランプ）を用いてベンチスケールの試験を実験室内で行い、その結果を塩素及びクロラミンによる消毒効果と比較した。低圧及び中圧 UV ランプにおける消毒効果は類似していた ( $K=0.47\text{cm}^2\text{mJ}^{-1}$ )。生物膜から流出する微生物濃度を配水前に継続的に  $10\text{CFUml}^{-1}$  (CFU:1ml 当り生成コロニー数) 以下に減少させるには、遊離塩素との 1 分間の接触かモノクロラミンとの 60 分間の接触（いずれも  $2.5\text{mg}\text{l}^{-1}$ , pH=8,  $20^\circ\text{C}$ ) が必要であり、UV ではいずれの UV ランプにおいても  $15\text{mJcm}^{-2}$  の照射量に相当することが本研究でわかった。UV 処理後の微生物再増殖能を評価するため、サンプルを  $20^\circ\text{C}$  の暗所で培養し、配水システム中の輸送/貯蔵に似せた。消毒の残留効果がないため、 $60\text{mJcm}^{-2}$  及び  $140\text{mJcm}^{-2}$  の UV により処理された微生物は、それぞれ 3 日間及び 7 日間のうちに、処理されない生物膜の流出水レベルまで再増殖することが可能であった。 $20\text{mJcm}^{-2}$  の UV ランプ及び  $2.5\text{mg}\text{l}^{-1}$  のクロラミンにより処理されたサンプルは、7 日間まで微生物濃度が  $10\text{CFUml}^{-1}$  未満に保たれた。ベンチスケールの実験結果の妥当性を調べるため、フルスケールの UV 処理装置（浄水量 3 百万ガロン/日： $0.13\text{m}^3\text{s}^{-1}$ ）を運転し、8 ヶ月にわたって大規模処理プラントにおける生物膜流出水を処理した。生物膜流出水の微生物を長期間にわたってベンチスケール処理において可能であった水準と同等なレベルまで制御するため、継続的に UV 処理を観察し。しかしながら、研究の終わりに向かうにつれ、UV 処理装置から流出する微生物数は  $10^2\text{CFUml}^{-1}$  を超えるレベルまで増加した。残留塩素  $2.5\text{mg}\text{l}^{-1}$  のクロラミン（遊離塩素との接触はなし）を UV 反応槽の下流にある滞留時間 60 分の浄水池に添加したところ、浄水池の流出水において  $10\text{CFUml}^{-1}$  以下の微生物濃度が保たれた。これらの結果に基づくと、生物膜法流出水の微生物を UV を用いて制御し、残留性のある消毒剤（例えばクロラミン）を用いて配水中で低い微生物レベルに保つことが薦められる。

キーワード：微生物，クロラミン，塩素，消毒，従属栄養，紫外線 (UV) ランプ

## 1 背景

塩素消毒における副生成物の飲用水基準が次第に厳格になってきたために、米国の飲料水供給施設は第一の消毒剤としてオゾンを導入することを考えている。オゾン処理を経たのち、生物学的に活性な膜によって、配水システム中に到達する前にオゾンにより生成された生物分解性有機物 (BOM) を少なくすることで生物学的な安定性を得ることが可能である (Rittman & Snoeyink 1984)。生物膜は、従来の処理法の下流側に、生物学的安定性を与えると共に分子除去を行うのに典型的に用いられる (Urfer et al. 1997)。

生物膜からは常に従属栄養細菌が発生する (LeChavallier et al. 1991)。高濃度の従属栄養細菌が直接的に公衆衛生上のリスクを意味するわけではないが、これらの迷惑生物は水の品質を低下させることがあり (Wolfe et al. 1990)、人間の病原体により危険にさらされることがあるということを示す (Geldreich et al. 1972)。配水システムにおいて水質を維持するには、生物膜により処理された水は後段の消毒ステップを要する (Servais et al. 1991)。オゾンは BOM の生成を注意深く考慮せずに、また結果生じる従属栄養細菌を制御する能力を持たずに、生物膜の下流に適用すべきではない (Wolfe et al. 1989)。従属栄養細菌の制御のための遊離塩素やクロラミンの消毒効果を評価した研究では、塩素においては、より確実に即効性のある制御が行えている (Wolfe et al. 1985; Pernitsky et al. 1995)。従って、オゾン-生物膜を行う施設では、クロラミンが後続する塩素の段階を最適化することで、従属栄養細菌の十分な制御や生物学的に安定的な飲料水が得られることがわかっている。

紫外線は、生物膜から自然的に発生する従属栄養細菌と病原性原生動物の両方を制御することがある (Modifi et al. 2001, 2002)。紫外線は、消毒に用いられる場合、飲料水の BOM を変えることとはなく、(Linden et al. 1998; Shaw et al. 2000; Liu et al. 2002)

飲料水において制限されている DBPs を生成することはない (Stewart et al. 1993; Malley et al. 1995)。紫外線を水に適用することで消毒残留物が直接測定されることはないが、Lund to Hongve (1994) は紫外線は微生物の成長を遅くするという微生物に対する長期的効果をもつことがあると提案している。この発見は、DBPs を減らすために遊離塩素との接触を減らしたいという事業者の強い希望と結びついて、紫外線消毒にとって生物膜の後段に対し適用されるための評価を保証するものである。

## 2 試料と方法

本研究では、ベンチスケールでの、紫外線の従属栄養細菌の消毒能力を特徴付けるために、平行ビーム試験のプロトコルを利用した。微生物は、オゾン処理したカリフォルニアの表流水を通した生物膜からの流出水において自然発生している。ベンチスケール試験を行い、紫外線、遊離塩素、及びクロラミンの消毒効果を評価した。コントロールされた実験室の条件の元で消毒物質の一時的な強さを理解するため、消毒後、微生物の再増殖能を評価した。

ベンチスケールの結果の効果性を実際に適用するため、一日処理水量 3 百万ガロン ( $0.13\text{m}^3\text{s}^{-1}$ )

のフルスケールの表流水処理プラントをベンチスケール実験から得られたデータを元にしたガイドラインをもとに運転した。運転管理データ及び水質データを施設から収集し、紫外線の導入を考えている他の施設のためのガイダンスとした。

## 2.1 ベンチスケールの消毒プロトコル

表1は本研究におけるベンチスケール及びフルスケールの水質特性をまとめたものである。従属栄養細菌の実験のため、試料水は大規模処理膜の流出水から採取した(上表参照)。消毒試験は、本論文で簡単に述べ、他論文にて述べられている(Modifi et al. 2001)とおり、据え置き型の、低圧または中圧のUVランプによる平行光線装置で行った。継続的に攪拌し、10-mlの微生物群に10, 20, 50インチ(25, 50, 127cm)の距離からUVランプを照射した。照射距離(ゆえにUV強度)は単一の矯正された放射計による受容測定限度の範囲を維持するよう調整した。殺菌用UVランプの暴露量は、ペトリ皿の表面にわたって放射の中央値を比例配分し、BoltonとLinden(2003)によって適用されたように、Morowitz(1950)が基となったBeer-Lambert則に従って、微生物群の紫外線吸収を補間することで計算した。中圧UVランプから発する殺菌用紫外線のスペクトルは分光計により測定し、DNA吸収スペクトルにより平均放射量を計算した。UV暴露量は放射 $[mW/cm^2]$ 及び時間 $[s]$ の積として記録され、単位は $[mJ/cm^2]$ となる。

塩素/クロラミンの実験は、塩素(次亜塩素酸ナトリウム溶液)を同時に加え(予備作成)、または固定した時間間隔でアンモニア(塩化アンモニウム溶液)を塩素要求量0の250mlの琥珀ガラス瓶に入れたサンプル200mlに加えて行った。水は、実験を行う前に遊離塩素及びクロラミン要求量の両方について試験した。これらの予備的要求量試験は、目標とする遊離塩素あるいは結合塩素残留量を達成するのに必要な暴露量の確立を考慮に入れたものである。

クロラミンは硝酸アンモニウムと遊離残留塩素を4:1の重量割合で混合して作成した。塩素/アンモニアをサンプルに加えた後、均一にするため1分間反転させたり振ったりして完全に混合させた。

パラメータ	ベンチスケール (全てのデータ)	フルスケール 第1段階 (CRW/SPWブレンド)	フルスケール 第2段階 (SPW)	フルスケール 第3段階 (CRW/SPWブレンド)	単位
日数	-	0-134	134-169	169-247	日
アルカリ度	NA	114-128	85-86	105-113	mg <sup>l</sup> <sup>-1</sup> as CaCO <sub>3</sub>
AOC (同化有機炭素)					
浄水場流入水	NA		171	109 NA	μg <sup>l</sup> <sup>-1</sup>
ろ過池流入水	NA		300	471 NA	μg <sup>l</sup> <sup>-1</sup>
生物膜流出水	NA		180	261 NA	μg <sup>l</sup> <sup>-1</sup>
生物膜AOC除去率	NA		40	45 -	%
硬度	180-250	222-266	114-115	208-231	mg <sup>l</sup> <sup>-1</sup> as CaCO <sub>3</sub>
従属栄養微生物					
生物膜流出水		9,600±3,300**	11,000±5,800**	12,000±7,800**	CFUml <sup>-1</sup>
UV処理流出水	*	2.0-75	16-110	6.0-210	CFUml <sup>-1</sup>
UV, クロラミン処理後浄水池流出水	*	1.0-1.6	1.0-4.0	5.0-10	CFUml <sup>-1</sup>
塩素, クロラミン処理後浄水池流出水	*	1.0-1.9	1.0-1.0	0.1-3.0	CFUml <sup>-1</sup>
??	NA	28±9**	99±1**	37±4**	%
施設流入水水温	NA	10.4-19.3	19.2-23.5	22.0-25.3	℃
比UV吸光度 (SUVA)					
施設流入水	NA	1.1-2.2	2.6-2.8	1.6-1.9	lmg <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>
総有機炭素					
施設流入水	NA	3.4±0.2**	3.8±0.1**	3.0±0.2**	mg <sup>l</sup> <sup>-1</sup>
生物膜流出水	NA	2.7±0.1**	2.8±0.3**	2.2±0.2**	mg <sup>l</sup> <sup>-1</sup>
濁度					
生物膜流出水	0.07-0.13	0.05-0.12	0.07-0.19	0.01-0.12	ntu
254nmUV吸光度					
施設流入水	NA	0.038-0.08	0.099-0.10	0.047-0.06	cm <sup>-1</sup>
生物膜流出水	0.04-0.02	0.02-0.04	0.34-0.06	0.023-0.03	cm <sup>-1</sup>
254nmUV透過性					
施設流入水	NA	84-92	79-80	87-90	%cm <sup>-1</sup>
生物膜流出水	91-96	92-95	88-92	93-95	%cm <sup>-1</sup>

NA=未測定

個々のデータは一つの測定値を表す。

\*データは表2及び図3~図5に示す。

\*\*平均±標準偏差

†水温はUV照射時には測定しなかった。しかしながら、サンプルはUV照射前に氷の上で4℃に保たれた。

‡254nmUV光透過性は吸収値から計算した。

## 2.2 微生物学的評価

従属栄養細菌は、膜によるろ過と標準法に従った R2A 媒体を三重にした媒体上における培養により分析した。このプレート計数法により、R2A 媒体上で成長できる全ての好気性微生物を数えることが可能になり、CFUml<sup>-1</sup> 単位で結果を得ることができる。

同化性有機炭素 (AOC) は生物膜性能の基準として評価した。評価技術は修正した標準法を用いたものを含む。

## 2.3 培養プロトコル

培養のためのサンプル量を十分に7日間以上にわたり供給するため、3~6×10-ml の、従属栄養細菌を含む、生物膜流出水への平行ビーム照射を行った。これらのサンプルは無菌の50mlの遠心分離チューブに結合され、実験室内に移動し、実験室キャビネット中の暗所に置かれた無菌培養皿 (ガラスでカバーされたペトリ皿) に移された。これにより大きく組み合わせた UV 処理サンプルにより、従属栄養細菌及び残留クロラミンの連続的なサンプリング (3日及び7日) が可能となった。培養の陽性対照実験は、UV 処理をしない生物膜流出水、及び無菌化したカートリッジ式膜流出水に無菌化していない膜流出水を添加したものから構成される (初期微生物濃度は



10CFUml<sup>-1</sup>以下である)。カートリッジろ過（使い捨てで無菌化したナイロンのろ過システム）は使用前に UV 処理された有機物を含まない実験室水（Milli-Q 水）で 3 回洗浄した。添加した対照実験資料は、ベンチスケール培養実験において従属栄養細菌の再増殖能のベースラインをする試みの中で使用した。陰性対照実験は上記で述べたろ過過程を用いた無菌化した生物膜流出水からなる。UV 暴露後及び培養開始前には、いくつかのサンプルは前もって作成されたクロラミンに暴露させた。上記のクロラミン暴露過程は残留クロラミンが 2.5mg l<sup>-1</sup> となるよう使い、培養開始時には利用できる遊離塩素は全くないようにした。

## 2.4 フルスケールの処理プラント

### 2.4.1 運転方法と水質

図 1 に示した大型施設は、研究のみの目的で運転され、飲料水の製造は要求されていない。本研究のため、この施設は表流水処理規則（USEPA1989）に定められたガイドラインに従い、特に消毒製の保証及び流出水濁度の要求事項を満たすよう運転した。施設は既にオゾン処理装置を備えており（別記した接触装置の上あるいは下での接触時間 13 分）、後段に従来の濁度除去装置（アンラサイト及び砂の二重ろ材式ろ過法）を生物膜と共に備えている。生物膜による BOM の除去は、AOC の除去を測定することによりおよそ 90 日ごとに監視された。表 1 で報告したように、施設はカリフォルニア州水利水（SPW）及びコロラド川表流水（CRW）の混合水を処理しており、SPW のみを処理する短い期間がある。これらの原水間の重要な相違点は硬度、アルカリ度、及び反応性のある自然の有機物にみられる。比 UV 吸光度が高いことは疎水性の高い有機物質の割合が高いことを示す。本研究の間、施設を 3mgd (0.13m<sup>3</sup>s<sup>-1</sup>) で運転し、1.1±0.3mg l<sup>-1</sup>（平均±標準偏差）のオゾン暴露を与え、5.1±0.01galmin<sup>-1</sup>ft<sup>-2</sup> (2.6±0.2m<sup>3</sup>day<sup>-1</sup>m<sup>-2</sup>) のろ過速度とした。処理プラントの上流での塩素あるいはクロラミンの添加はなかった。急速攪拌過程において微粒子の除去を拡大するために化学物質を加えている（4.4±1.3mg l<sup>-1</sup> の塩化鉄、0.9±0.2mg l<sup>-1</sup> のカチオンポリマー）。計算したオゾン消毒のジアルジア及びウィルスに対する効果性は研究期間にわたってそれぞれ 1.3±0.1 及び 2.6±1.2log<sub>10</sub> の不活化保証が得られた。表 1 に示す AOC データは、膜は生物学的に機能していたことが示される。

ろ過池の下流では、直径 24 インチ (61cm) の円管、中圧 UV 反応槽を図 2 に示すように運転した。この反応槽はろ過池の逆洗浄時（およそ 30 分間隔）には自動的に閉じられ、ろ過池が本運転を開始する数分前に再び処理を始めるよう制御されている。ろ過池の逆洗浄の間、UV 反応槽は流れが止まった UV 処理された水で満たされる。ろ過池が正常に動く前に UV 反応槽を再始動することで、中圧 UV ランプの紫外線出力が最大に達し、反応槽がろ過水の流れが戻る前にオーバーヒートしなくなる。試験の間、UV 反応槽は 0.10±0.03kWh1,000<sup>-1</sup>gal<sup>-1</sup> (26±8kWhm<sup>-3</sup>) のエネルギー消費率で運転した。反応槽のサイクルがろ過池の逆洗浄の要求事項を満たすために、反応槽ランプは各段階ごとに平均 1.7 日-1 始動した。

フルスケールの処理プラントに続き、処理水を傍系として、図1に示した二つの特徴的な、パイロットスケールの、閉じられた水槽システムに導いた。これらのシステムは直径1インチ(2.5cm)、316-Lのステンレススチールのパイプを用い、調整タンクを用い、消費者に水が配られる前のフルスケール処理施設の下流側において起こるであろう貯蔵状態を仮想した。

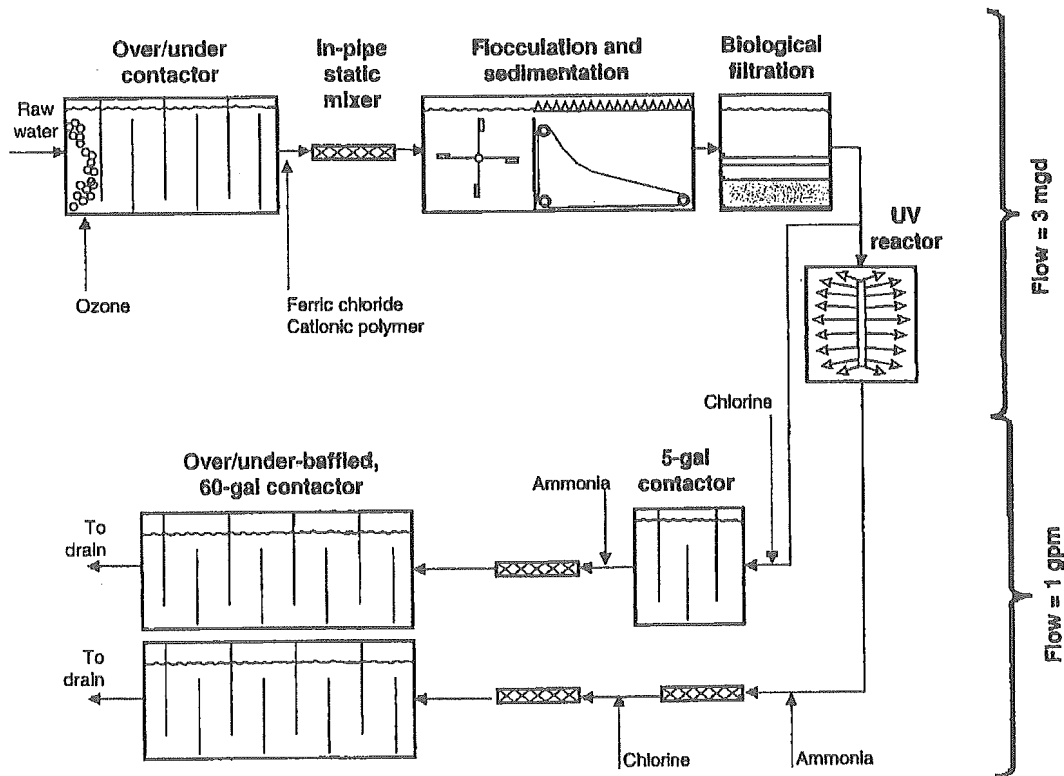


図1 メトロポリタン（カリフォルニア，ラ・ベルヌ）で使用されているフルスケール調査施設の処理プロセス

この第一のシステムは水を直接生物膜（UV処理前）から  $1\text{galmin}^{-1}$  ( $3.81\text{min}^{-1}$ ) の速度で導かれ、 $2.5\text{mg l}^{-1}$  の（次亜塩素酸ナトリウムを 5-gal(19-l)調整タンクの前に）遊離残留塩素に対し5分の理論的接触時間を与えられ、次に  $2.5\text{mg l}^{-1}$  のクロラミン（60-gal(227-l)調整タンクの前で遊離塩素に対するアンモニア性窒素を重量比 4:1）に対し60分の理論的接触時間を与えた。クロラミンは有機物を含まない実験室水から製造された塩化アンモニウム水溶液を加えることで作成し、硝化を避けるため滅菌したポリプロピレン製タンク中で毎週新たに混合した。二番目のシステムでは、大型UV反応槽の流出水から水 ( $1\text{galmin}^{-1}$  ( $3.81\text{min}^{-1}$ )) を引いた。この水はクロラミンを  $2.5\text{mg l}^{-1}$  の残留量を確保するよう与えられた（アンモニア水溶液は遊離塩素の注入より前に注入した）。二番目の系からのクロラミン添加された水は60galの調整槽を經由して送られた。消毒物質が残留していないサンプリングタップの場所（例えば生物膜流出部やUV反応槽の直後）は、 $10,000\text{mg l}^{-1}$  の塩素溶液により毎週洗浄された。

#### 2.4.2 フルスケール UV 反応槽の投与特性

図2では、組み込まれた UV 反応槽と、MS-2 (雄-特異的) コリファージを用いた生物学的投与反応の確認のための施設構成を示している。反応槽は、4つの4kW ランプから構成されており、定常状態のろ過の運転状態 (流量  $3\text{mgd}(8\text{m}^3\text{s}^{-1})$ ) において MS-2 コリファージを用いて、以下の条件において確認されている;  $96.8 \pm 1.0\% \text{cm}^{-1}$  の透視度, 濁度  $0.07 \pm 0.01 \text{ntu}$ , 温度  $14.1 \pm 1.3^\circ\text{C}$ ,  $\text{pH} 7.9 \pm 0.1$  単位, 硬度  $210 \pm 35 \text{ml}^{-1}$  ( $\text{CaCO}_3$  として)。この確認の結果から、用いるランプの数を変えることによる低圧の反応槽中での等しい投与量が得られる。この低圧におけるランプの使用初期における等しい投与量は、4つのランプを運転する場合  $58 \text{mJmc}^{-2}$  と計算された。

#### 2.4.3 統計学的分析

本研究の間に集められた微生物のデータに対し、Kennedy と Neville(1986)が述べているように、スチューデントの t 検定を行った。この分析は、ペアになっていない2サンプルの試験を手段に用い、二つのサンプルのセットにおいて観察されるデータが同じ集団に属するという帰無仮説を仮定したものである。サンプルの収集は「ペア」方式で行わないため、ペアの t 検定は行っていない。検定は 99%信頼区間で行った。

### 3 結果

#### 3.1 従属栄養細菌に対するベンチスケールでの消毒及び滞留の影響

##### 3.1.1 遊離塩素及びクロラミン

表2 従属栄養微生物の中圧及び低圧のUV殺菌光による光化学反応速度定数の算出に用いたデータ

ランプ種類	UV投与量 (mJ cm <sup>-2</sup> )	$\lambda_n$ [N/N <sub>0</sub> ] (cm <sup>2</sup> mJ <sup>-1</sup> )
低圧*	0	0.12
	0	-0.08
	0	-0.10
	0	-0.08
	0	0.04
	0	-0.11
	5.1	-1.86
	5.5	-2.32
	5.7	-2.07
	9.8	-5.27
	10.9	-5.95
	11.3	-5.60
	14.8	-6.53
	16.3	-7.54
	16.5	-7.95
中圧**	0	-0.08
	0	0.09
	0	-0.07
	0	-0.09
	0	-0.02
	0	0.02
	5.4	-3.41
	5.5	-2.45
	5.6	-2.61
	10.5	-5.30
	10.7	-6.68
	11.3	-5.41
	15.8	-6.17
	16.2	-8.33
	16.3	-7.26

試験結果は濃度順に示しているが実際の実験の順序は異なる

\*1次反応モデルとした結果： $\ln [N/N_0] = -0.48 \text{Deq.}$

\*\*1次反応モデルとした結果： $\ln [N/N_0] = -0.47 \text{Deq.}$

3つの塩素/クロラミンの試験結果を表3に示した。塩素/クロラミンの $2.6 \pm 0.1 \text{mg l}^{-1}$  (平均±標準偏差)の投与後の残留従属栄養細菌密度の中央値を様々な接触時間に対して示した。61分のクロラミン接触 ( $4.3 \log_{10}$ の不活化)は従属栄養細菌に対し1分の塩素接触と同等であった。しかし、1分のクロラミン接触による従属栄養細菌の不活化は $2.2 \log_{10}$ しかなかった。

##### 3.1.2 UV光

図4は低圧及び中圧光のUVランプの $17 \text{mJ cm}^{-2}$ までの投与における従属栄養細菌の反応である。データの直線的な減少傾向が中圧ランプ、低圧ランプにおいてそれぞれR<sup>2</sup>が0.96, 0.98で得られた。この式を用いると、 $1, 2, 3 \log_{10}$ の従属栄養細菌の不活化は $5, 10, 15 \text{mJ cm}^{-2}$ の投与により得られた。

様々な種類の微生物がR2Aプレート計数法により検出されるため、この検定は多くの異なった従属栄養細菌の存在を検出し、全く異なったUVの量-反応関係を示すと仮定できる。しかしながら、減少直線の直線的かつ強い相関は、総じて、従属栄養細菌の量-反応関係は模擬的に1次の消毒率により特徴づけられる。光化学反応の反応定数はChick-Watsonの消毒速度モデルの適用を用いて二つのランプに対し計算されている (Blatchley 1997; Wright & Lawryshyn 2000)。