

〈研究発表〉

下水再利用のための凝集・膜処理によるウイルス除去に関する検討

西田 佳記¹⁾, 李 善太¹⁾, 山下 尚之¹⁾, 田中 宏明¹⁾

小林 憲太郎²⁾, 鈴木 啓伸²⁾, 高畠 寛生²⁾, 田中 祐之²⁾

¹⁾ 京都大学大学院 工学研究科 (〒520-0811 大津市由美浜 1-2, E-mail: nishida@biwa.eqc.kyoto-u.ac.jp)

²⁾ 東レ株式会社 (〒520-0842 大津市園山 1-1-1, E-mail: Kentaro_Kobayashi@nts.toray.co.jp)

概要

凝集処理と限外ろ過膜処理を組み合わせた下水再生処理を想定し、運転条件とウイルス除去性能の関係を調べた。凝集剤の注入濃度や膜ろ過流束、膜の性状によるウイルス除去率の違いをジャーテストやパイロットプラントでのスパイクテストにより評価した。実験結果から凝集剤が高くなるにつれ、凝集処理及び膜処理でのウイルス除去率が向上したことが分かった。一方、膜ろ過流束によるウイルス除去率の変化は見られなかった。また、UF 単独処理の場合、ファウリングの進行に伴い、UF でのウイルス除去率の上昇が確認された。

キーワード： 下水再生水、ウイルス、限外ろ過(UF)膜、凝集、PAC

1. はじめに

近年、水資源の安定的な確保や環境保護に対する意識の高まりから下水再生水の利用が注目されている。下水再生水の利点として、豊富で安定した水資源であるほかに水処理に掛かるエネルギーの低減なども挙げられる。これは、水洗用水などの利用用途では必ずしも上水と同程度の水質を必要とせず、浄水処理と比べて簡易な処理で済むためである。

一方、下水再生水は下水由来であり、糞便由来の病原性微生物の存在が懸念される。そのため、下水再生水の衛生学的安全性の確保が必要であり、利用用途に応じて細菌、原虫、ウイルスなどの病原性微生物を適切に除去・不活化しなければならない。我が国においては 2005 年に「下水処理水の再利用水質基準等マニュアル」¹⁾が策定され、大腸菌数に関する再生水基準が設けられている。一方、ウイルスは我が国の再生水基準には含まれていないものの、細菌類や原虫類と比べて数 10~100 nm とサイズが小さく、物理的な除去が困難とされており、厳密な管理が必要である。

膜処理は副生成物を生成しない点や高い分離性能から、ウイルスの有用な除去方法の一つとして期待されている。最も孔径の大きな MF 膜でもその孔径は 1 μm 以下であり、ウイルス以外の病原性微生物の細菌類や原虫類をほぼ完全に除去できる。一方、膜には孔径分布が存在し、特にサイズの小さいウイルスでは想定 of 除去効果が得られない可能性がある。そこで、膜処理

の前段に凝集処理を行い、ウイルス粒子の粒径を大きくすることにより、除去性能が高まることが知られている²⁾。また、凝集処理はウイルス粒子と同様に他の懸濁粒子のサイズも大きくするため、孔内部への物質の侵入が軽減し、ファウリングの抑制に有効であるとされている。ファウリングの進行は原水水質などの要因の他に、凝集剤の注入濃度や膜ろ過流束 (Flux) などの膜処理プロセスの運転条件に左右される。そこで、本研究では下水再生水の利用用途に応じて適切なウイルス除去が可能な処理プロセスの構築という目的の下、膜処理プロセスの運転条件とこれに対するウイルス除去性能の関係を明らかにすることを目指した。

2. 実験方法

2.1 ウイルス

本研究では、モデルウイルスとして大腸菌ファージ MS2 (NBRC 20012)を培養し、凝集・膜処理のウイルス除去性能評価に用いた。MS2 の培養は、*E. coli* K12F+(A/A) (NBRC 13965)を宿主菌として LB 培地中で行った。MS2 は一本鎖の RNA ウイルスであり、大きさは約 23nm、構造は正二十面体と A 型肝炎ウイルスやポリオウイルスなどの腸管系ウイルスと大きさ・構造が似ている。凝集処理において感染能を持つ MS2 が除去されることが報告されている³⁾。Matsui *et al.*⁴⁾は凝集処理における感染能の低下は凝集フロックに強く吸着するためであるとしている。

2.2 サンプル処理

懸濁物質に吸着したウイルスの分離に加え、測定を阻害する細菌類の除去のために、測定試料は孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルター（セルロース混合エステル, Advantec）で吸引ろ過し、膜面残渣とろ液に分けて分析を行った。膜面残渣中のファージはビーフエキス（ $\text{pH}9.5$, $3\% \text{w/v}$ ）で誘出し、濃度を測定した。膜面残渣中のファージはフロック態ファージとして定義した。また、ろ液中のファージは浮遊態と定義し、直接分析に供した。ファージ濃度は、Table 1 に示した培地組成の重層寒天培地法⁵⁾により PFU(Plaque Forming Unit)/mL として測定した。

Table 1: Composition of the culture media

| | 上層培地 | 下層培地 |
|-------------------------------------|--------------|------|
| | g/1L-Milli-Q | |
| LB Broth | 20 | 20 |
| Bacto Agar | 8 | 11 |
| CaCl ₂ ·H ₂ O | 1 | 1 |

2.3 ジャーテストによる凝集処理実験

凝集処理におけるウイルスの挙動を調べるため、滋賀県内 A 下水処理場二次処理水を用いてジャーテストを実施した。ジャーテストでは、Fig. 1 に示した手順に従い、ポリ塩化アルミニウム（以下、PAC）による凝集沈殿を行った。ファージ濃度に関しては、ファージ添加後・急速攪拌後・緩速攪拌後の試料、整置後の上清および沈殿物において測定した。本研究では、整置後の上清と沈殿物の境界は底部から体積の 20% の位置とした。また、ラインミキサーによる凝集も想定し、急速攪拌後 10 s 後においても採水した。

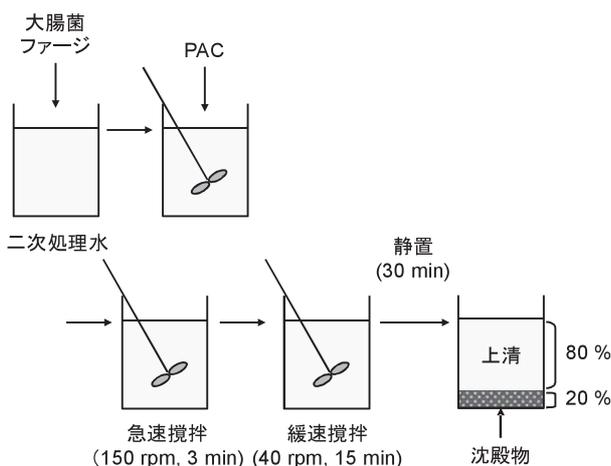


Fig. 1: Outline of coagulation-sedimentation

凝集処理において、ウイルスは凝集フロックに取り込まれるなどしてそのサイズが大きくなる。また、凝集フロックへの吸着による感染能の低下やウイルス同士の凝集による見かけ上の濃度低下が生じる可能性が

ある。そこで、ジャーテストによる凝集処理実験では、凝集処理におけるウイルスの挙動を把握し、膜処理への影響を評価するため、PAC の注入濃度 (0, 20, 50 mg/L) や凝集時間によるファージ濃度やフロック態ファージの割合の変化を調べ、凝集効果を評価した。

2.3 パイロットプラントにおける膜処理実験

滋賀県内 A 下水処理場内に Fig. 2 に示すパイロットプラントを設置し、UF 膜モジュールを用いたウイルス除去実験を実施した。使用した UF 膜は公称孔径 $0.01 \mu\text{m}$ 、公称分画分子量 150 kDa のポリフッ化ビニリデンの UF 膜（東レ株式会社製）である。この実験では、PAC 注入濃度や Flux などの運転条件によるウイルス除去性能の変化を調べた。また、連続運転に伴う膜処理プロセスの運転性能およびウイルス除去性能の変化も評価した。

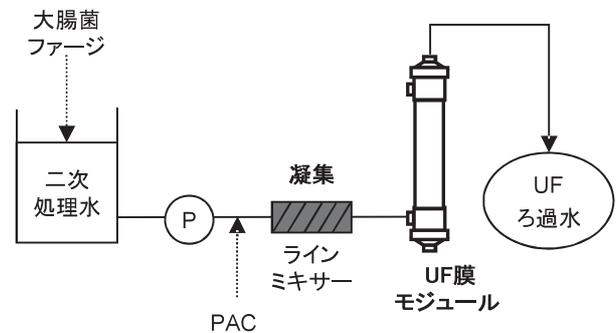


Fig. 2: Outline of pilot plant

3. 結果および考察

3.1 ジャーテストでの凝集処理実験

凝集によるフロック態 MS2 の割合の変化は大きかった。凝集前の原水中でのフロック態の割合は 0.8% であり、ほぼ全ての MS2 が浮遊態として存在していた。これに対し、PAC 20 mg/L による凝集開始 10 s 後には 95% 以上がフロック態となっており、PAC を注入すると瞬時にフロック態へ移行したことが分かった。一方、凝集時間の延長によるフロック態の割合の増加は見られなかった。

また、Fig. 3 に凝集沈殿における MS2 濃度の推移を PAC 注入濃度ごとに示す。この結果から、PAC 注入濃度が高くなるにつれ、MS2 の除去率が高くなっていることが分かった。PAC 注入濃度 20 mg/L では、凝集沈殿全体での除去率は 0.46 log であったのに対し、50 mg/L の場合は 1.36 log であり、そのうち 0.76 log は整置によるものであった。静置によるウイルス除去の原因としては、静置中に感染力が低下したことや吸着したフロックと共に沈降したことが考えられる。このうち沈降による対数除去率 (LRV_s) を式 1 に基づき算

定すると、50 mg/L の注入濃度の場合、約 0.40 log となり、静置での除去の半分は沈降によるものであることが分かった。式 1 において C_{su} , C_{se} はそれぞれ上清中、沈殿物中の濃度であり、右辺の対数内の分母は静置後の試料 1 L 全体の濃度を表している。

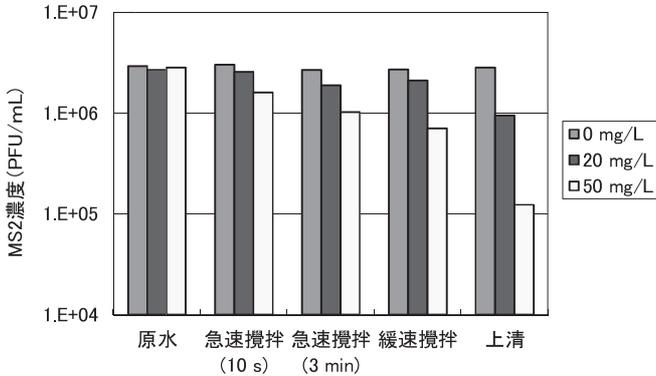


Fig. 3: MS2 concentration changes in coagulation-sedimentation

$$LRV_s = -\log\left(\frac{C_{su}}{0.8 \times C_{su} + 0.2 \times C_{se}}\right) \quad \text{式 1}$$

3.2 パイロットプラントでのウイルス除去実験

3.2.1 膜処理の運転条件とウイルス除去率

Fig. 4, 5 にそれぞれ PAC 注入濃度 0, 20 mg/L の場合の Flux の違いによる UF での MS2 除去率の変化を示す。No.1~3 はそれぞれ実験日を表す。これらの結果から、同じ実験日のスパイクテストでは、Flux に関わらず UF による MS2 除去率はほぼ一定であることが示された。そのため、ウイルス除去という観点では、高 Flux での運転が可能であるということとなる。また、PAC 注入濃度 20 mg/L の場合の UF による MS2 除去率は、凝集を行わなかった場合と比べて平均で約 2.4 log 高くなった。このことから、凝集により MS2 粒子が大きくなり、UF 膜で捕捉されやすくなったことが示された。

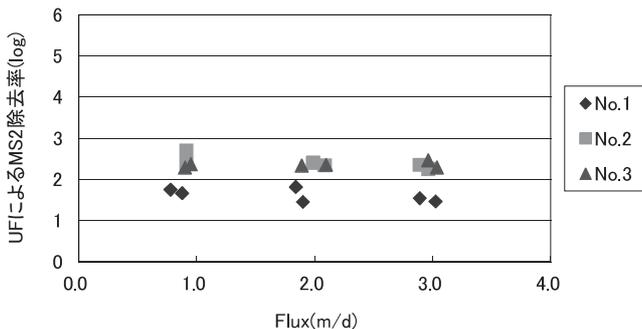


Fig. 4: MS2 removal by UF without coagulation

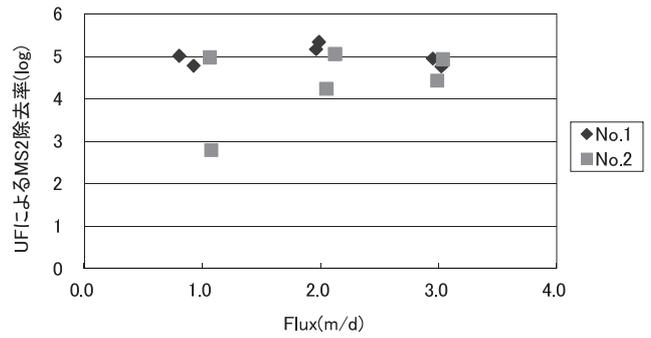


Fig. 5: MS2 removal by UF with coagulation (PAC 20 mg/L)

3.2.2 膜処理の運転条件と運転性能

膜処理において除去性能とともに重要となるのが運転性能である。運転性能は膜ろ過の継続に伴うファウリングにより低下し、一定の Flux での運転の場合は膜間差圧 (TMP: Transmembrane Pressure)が上昇し、運転コストの上昇につながる。Flux を上げると、時間あたりに流れる水量が大きくなるため、ファウリングは進行する。

そこで、3.2.1 の結果から 1.0~3.0 m/d の間で Flux を高めても MS2 除去率は変わらなかったため、高 Flux である 3.0 m/d で約 2 週間の連続運転を行い TMP の上昇を調べた。また、ファウリングの進行が早い場合を想定し、膜処理の前段に凝集処理を行わなかった。連続運転中の TMP の推移を Fig. 6 に示す。約 2 週間の連続運転では、降雨による TMP の一時的上昇はあるものの TMP の上昇は小さく、安定的に運転可能であることが分かった。

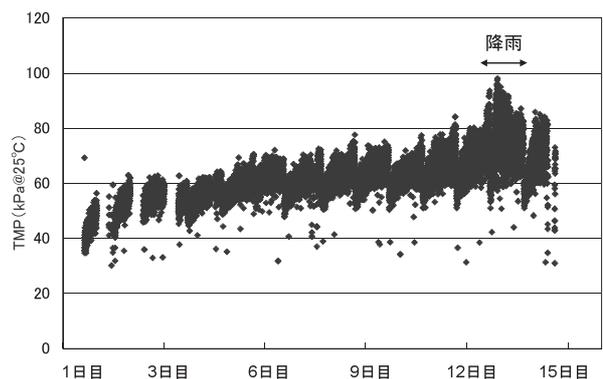


Fig. 6: TMP changes during 2 weeks of continuous operation

3.2.3 膜の性状とウイルス除去率

膜処理では、ファウリングの進行に伴い、ウイルスの除去性能に変化が生じる可能性がある。そこで、ファウリングの進行の程度としてろ過抵抗を用い、ろ過抵抗とウイルス除去率を評価した (Fig. 7, 8)。このろ過抵抗 $R(m^{-1})$ は式 2 に基づき J: Flux (m/d)と P: TMP

(kPa)、 μ : 粘度(kPa/d) から求められ、本研究で用いた処理プロセスのような一定流量運転の場合、ファウリングが進行すると、TMP が上昇し、その分ろ過抵抗の値も大きくなる。

$$R = \frac{P}{\mu \cdot J} \quad \text{式 2}$$

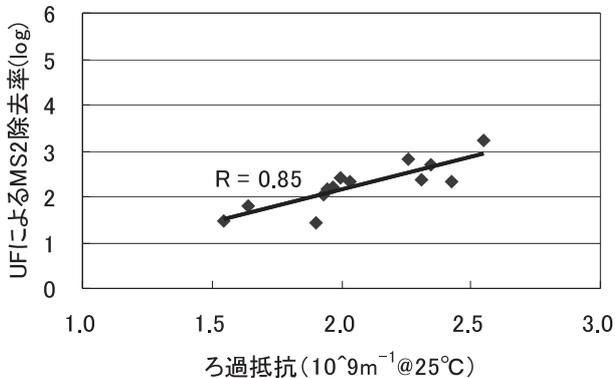


Fig. 7: MS2 removal by UF without coagulation in response to filtration resistance

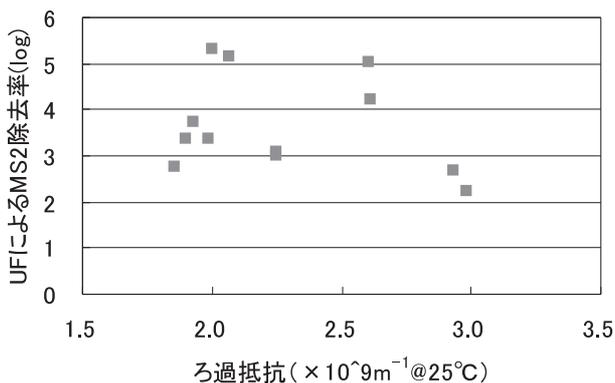


Fig. 8: MS2 removal by UF with coagulation (PAC 20 mg/L) in response to filtration resistance

これらの結果から UF のみの処理の場合、ろ過抵抗と UF による MS2 除去率との間に 0.85 と強い相関が得られ、ファウリングが進むにつれ、UF でのウイルス除去率が向上したことが分かった。これは、UF 膜の孔径によるふるい作用では除去できなかった MS2 が孔の閉塞などのファウリングの影響により除去されるようになったと考えられる。一方で、凝集と UF を組み合わせた場合、ろ過抵抗との間に強い相関は得られなかった。これは、凝集によるウイルス粒子の成長効果が大きく、孔の閉塞などに関わらずウイルス粒子が除去されたため、ろ過抵抗と UF によるウイルス除去率との間で相関が得られなかったと考えられる。

4. まとめ

本研究で得られた知見をまとめる。

<ジャーテストによる凝集処理実験>

- ・凝集処理によりフロック態 MS2 の割合は 90 % 以上まで増加した。
- ・PAC 注入濃度が高くなるにつれ、凝集処理による感染能を持つウイルスの除去率は高くなった。

<パイロットプラントでのウイルス除去実験>

- ・UF による除去率は、Flux に関わらずほぼ一定であった。
- ・3.0 m/d の高 Flux および凝集処理なしの条件において、約 2 週間安定的な運転を達成した。
- ・UF の前段に凝集を組み合わせることにより、UF でのウイルス除去性能が向上した。
- ・ファウリングの指標としてろ過抵抗を用いた場合、凝集なしではウイルス除去率との強い正の相関がみられた。一方、PAC 20 mg/L で凝集処理を行った場合、ろ過抵抗とウイルス除去率との間に相関は見られなかった。

参考文献

- 1) 国土交通省・国土技術政策総合研究所: 下水処理水の再利用水基準等のマニュアル (2005)
- 2) L. Fiksdal and T. Leiknes: The effect of coagulation with MF/UF membrane filtration for the removal of virus in drinking water, *Journal of membrane science*, Vol. 279, pp.364-371(2006)
- 3) N Shirasaki, T. Matsushita, Y. Matsui, T. Urasaki and K. Ohno: Comparison of behaviors of two surrogates for pathogenic waterborne viruses, bacteriophages Q β and MS2, during the aluminum coagulation process, *Water Research*, Vol.43, pp.605-612(2009).
- 4) Y. Matsui, T. Matsushita, Satoru Sakuma, Tahakito Gojo, T. Mamiya, H. Suzuoki and T. Inoue: Virus inactivation in aluminum and polyaluminum coagulation, *Environmental Science Technology*, Vol.37, pp.5175-5180(2003).
- 5) 大瀧雅寛: 大腸菌ファージ測定法, 東大都市工版