

II-539

大きさの異なる2つのファージを用いた精密ろ過膜の除去特性の評価

木更津高専 正員 高橋 克夫
 東京大学工学部 正員 大垣眞一郎
 埼玉大学工学部 正員 藤田 賢二
 横浜国大工学部 正員 神子 直之
 東京大学工学部 正員 浦瀬 太郎

1. はじめに 精密濾過膜でウイルスの大きさの粒子をある程度除去できる。本研究は、濾過開始直後や膜洗浄直後等の水質的に非定常時におけるコロイド粒子の挙動をウイルス除去性から検討した。

2. 供試膜と実験条件

表-1 実験条件

供試膜 使用した膜は、ポリエチレン製外圧式中空糸精密濾過膜（三菱レイヨン（株）製）で膜分画径は $0.1\mu\text{m}$ と $0.03\mu\text{m}$ である。公称膜面積は 0.42m^2 、中空糸は外径 $400\mu\text{m}$ 、内径 $270\mu\text{m}$ である。濾過は全量濾過方式で行った。

実験条件 用いた大腸菌ファージは大きさの異なるQ β （粒子径約 25nm ）とT4（頭部 $65\times 95\text{nm}$ 、尾部 $25\times 110\text{nm}$ ）である。人工原水は、 $0.1\mu\text{m}$ 膜透過水道水（残留塩素は中和）にファージを添加し、T4は 10^6PFU/mL 、Q β は 10^7PFU/mL に調製した。ファージは液体培地と共に添加されるため、原水中に約 $7\sim 10\text{Cmg/L}$ のTOC成分を含む。膜の目詰まり成分としてこの培地と細菌が含まれる。表-1に実験条件を示す。

実験	膜	洗浄	膜差圧 (kPa)	流速 (m/h)	ファージ
A-1	新膜	なし	3.9~143	0.029~0.01	Q β
A-2	古膜	なし	145~158	0.016~0.008	T4
A-3	古膜	なし	34~137	0.029~0.008	Q β
A-4	古膜	なし	17	0.026	T4
A-5	古膜	なし	59	0.098	T4
A-6	古膜	なし	17	0.024	Q β
A-7	古膜	あり	18 → 5.9	0.029 → 0.006	T4
A-8	古膜	なし	11 ~ 62	0.028 ~ 0.028	Q β
B-1	新膜	なし	41	0.029	Q β
B-2	古膜	なし	48	0.029	Q β
B-3	古膜	なし	7.8→120→9.8	0.005→0.077→0.006	Q β
C-1	古膜	なし	5.8→98→5.8	0.005→0.146→0.006	T4
C-2	古膜	なし			

実験Aは膜分画径 $0.1\mu\text{m}$ を使用した実験で、A-1で使用した膜を繰り返し用いた。繰り返し使用時には、膜を水道水で洗浄した。A-1はQ β を濾過し、A-2はA-1終了時にT4を濾過した。A-3、A-4は原水にQ β とT4を同時に添加して濾過した実験である。A-8は膜差圧 18kPa で1時間濾過後、1分間空気洗浄（空気量約 25NL/min ）を行う工程を3サイクル行い、4サイクル目に膜差圧を 5.9kPa に低下した。実験Bは膜分画径 $0.03\mu\text{m}$ 膜の濾過実験で、B-1で使用した膜を繰り返し使用した。実験Cは膜分画径 $0.1\mu\text{m}$ で膜差圧を変化させた実験である。膜差圧は低圧から高圧そして低圧へと変化させた。差圧変化時には濾過を停止する。A-1、B-1は間欠実験で行った。表-1の膜差圧と流速の値は実験開始時と終了時の値を示した。また、A-1、A-2、A-3、A-4は既報¹⁾の実験である。

ウイルスの阻止率を表す指標として対数阻止係数 Φ ²⁾を用いた。 Φ は、 $\Phi=\log_{10}(C_0/C_p)$ で表される。ここで、 C_0 は原水ウイルス濃度、 C_p は濾過水ウイルス濃度である。たとえば、 $\Phi=1$ 、 2 でそれぞれ除去率90、99%に対応する。

3. 実験結果と考察

実験A 膜分画径 $0.1\mu\text{m}$ の結果を図-1に示す。新膜でQ β を濾過したA-1では濾過初期のQ β の流出はなく、 Φ は6.以上であった。その後、1.1程度まで低下し、再び2.3程度まで増加する。A-2（T4を濾過）は $\Phi=4.8$ 程度でA-1の実験終了時で、サイズの大きなT4は小さいQ β よりも Φ が2.5以上大きな値を示した。古膜でQ β を濾過するとA-3、A-7に示すように、A-1とは異なり、濾過開始時からQ β の流出がみられた。T4の除去率は濾過開始と共に急激に増加するが（A-4）、Q β はある濾過水量までは大きな変化はみれない（A-3）。A-5、A-6から、T4は濾過初期に小さく、膜差圧 17kPa で濾過水量 2L/m^2 までの間に Φ は2.2~3.2まで変化し、 59kPa では濾過水量 2.9L/m^2 までの間に1.5~3.1となり、濾過初期におけるT4除去率は大きく変化する。また、膜差圧が大きい方（A-6）が小さい方（A-5）よりも初期の除去率が低くなる傾向を示した。Q β の濾過実験（A-7）では $\Phi=0.48$ （除去率67.5%）から0.27（除去率47%）まで低下し、濾過初期の除去率の変化はT4とは異なり、初め高く、徐々に低下する。いま、初期に除去率高く、以後低下する場合には、吸着とあるい作用で、また反対に初期が低く以後除去率が高くなる場合には、主にふるい作用によって粒子の除去が行われると考える。すると、膜分画径に近い

大きさのウイルス（T4）は濾過初期から、主に、膜のふりい作用で除去され、また小さなQβは吸着とふりい作用で除去されるものと推測される。古膜のQβ除去率（A-7）は90%以下であるのに対し、新膜では $\Phi=6.7$ （除去率99.99998%、A-1）で、新膜の吸着能は古膜と比較して非常に大きい。実験A-8からT4の除去率は、空気洗浄後に低く、その後急激に増加している。空気洗浄によって剥離される目詰まり物質はT4の大きさの粒子除去に大きな影響を与えることが分かる。

実験B 膜分画径 $0.03\mu\text{m}$ でQβを濾過した結果を図-2に示す。新膜（B-1）ではA-1と同様の除去率の変化を示した。濾過初期は $\Phi=6.8$ 程度でファージの流出はなかった。また、 Φ の最小値は3.4程度であった。B-2、B-3の古膜でも初め除去率が高く以後、濾過水量約 $30\text{L}/\text{m}^2$ の時点において $\Phi=3$ 程度まで低下した。このことから、 $0.03\mu\text{m}$ の古膜は、Qβをふりい作用で $\Phi=3$ （除去率99.9%）程度まで除去し、濾過初期には、このふりい効果に吸着作用が加わり除去率がさらに大きくなると推測される。

実験C 図-3に膜差圧とファージ流出濃度の関係を示す。図は高压から低压時の変化のみを示した。膜差圧が低压から高压に変化した場合には、QβとT4ともファージの流出濃度の変化はみられなかった。しかし、高压から低压に変えて濾過を行うと、それまでよりも高い濃度のファージの流出が起った。特に、C-1（Qβ）では原水濃度（ $1.8\times 10^7\text{PFU}/\text{mL}$ ）より高い濃度の流出であった。C-2（T4）では高压時の濾過水 1mL 中に数個であったものが、低压になると最高 $820\text{PFU}/\text{mL}$ のT4ファージの流出があった。差圧が低くなることで高压時に比較して細孔分布が大きい側にシフトしたことが原因として考えられる。

4. まとめ

膜分画径 0.1 と $0.03\mu\text{m}$ の精密濾過膜によるQβ、T4の濾過実験から以下のことが分かった。

- （1）膜分画径より小さいQβのサイズのコロイド粒子は、膜とコロイド粒子の吸着作用のため、濾過初期に高い除去率を示す。この吸着能は新膜で大きく、古膜では小さい。
- （2）膜分画径より大きいT4のサイズのコロイド粒子は、主にふりい作用で除去される。
- （3） $0.1\mu\text{m}$ 膜（古膜）において濾過中に膜差圧を低下すると、Qβ、T4とも一時的な高濃度の流出が起り、膜に捕捉されていたコロイド粒子が再び流出することが示唆された。

5. 参考文献

- 1) 高橋、大垣、藤田、神子（1994）、「バクテリオファージを指標とした精密濾過膜の除去特性」土木学会第49回年次学術講演会第2部（B）、pp1004-1005.
- 2) 浦瀬、山本、大垣、神子（1994）、「限外ろ過膜・低压逆浸透膜のウイルス阻止性能」環境工学研究論文集・第31巻、pp171-180.

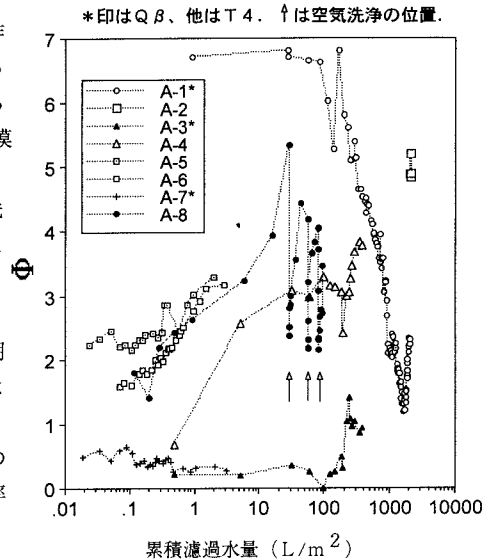


図-1 膜分画径 $0.1\mu\text{m}$ の対数阻止係数

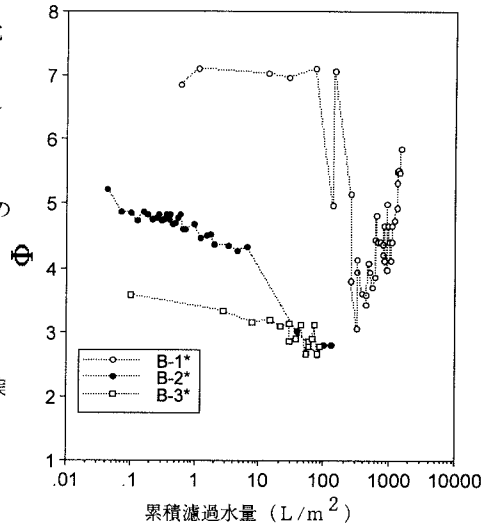


図-2 膜分画径 $0.03\mu\text{m}$ の対数阻止係数

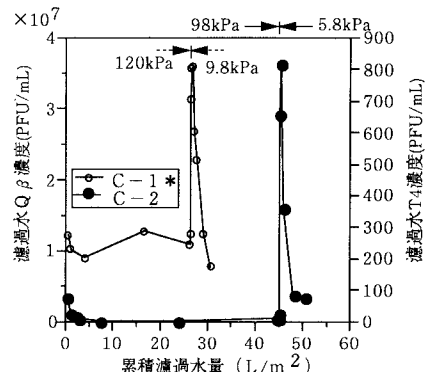


図-3 膜差圧と $0.1\mu\text{m}$ 膜濾過水濃度の変化