アルミニウム系凝集剤の高塩基度化によるウイルスの効果的除去

北海道大学大学院　正会員　○白崎伸隆，佐藤翔太，大芝淳，松下拓，松井佳彦

1. はじめに

水処理用凝集剤であるポリ塩化アルミニウム（PACl）は，従来から最も一般的で需要量の多い硫酸バンドに比べ，懸濁質や溶解性有機物の処理性が高く，最適 pH 範囲が広い，また，水温の影響を受け難く，凝集剤添加濃度の節減が可能であること等から，日本の浄水処理場においても広く用いられている．PACl を用いた凝集沈澱処理においては，水系感染症を引き起こす病原性ウイルスの処理性評価もなされており，最適 pH 条件下では効果的な除去が期待できる．しかしながら，近年の富栄養化に伴う水道水源の pH 上昇により，従来の PACl（塩基度 50%）では最適 pH 条件下での処理が困難な状況が生じてきている．このような弱アルカリ性の原水においては，ウイルスの処理性も著しく低下することが知られているため，水道水を媒体とする水系感染症制御の観点からも，広範な pH 領域の原水に対応可能な新たな凝集剤の開発が求められている．

その一方で，従来の PACl よりも塩基度を高めた高塩基度 PACl（塩基度 70%）が開発されつつあり，弱アルカリ性の原水においても，従来 PACl に比べ懸濁質や溶解性有機物の処理性が高く，また，処理水中の残留アルミニウム濃度を低減できることが報告されている[1]．しかしながら，ウイルスの処理性に関する知見は全く得られていないのが現状である．

そこで，本研究では，塩基度の異なる PACl を用いた凝集沈澱処理を行い，PACl の塩基度の差異がウイルスの処理性に与える影響を評価した．また，ウイルスの処理性に影響を与えるアルミニウム種の形態について，フェロン法および ^{27}Al-NMR 法を用いることにより議論した．

2. 実験方法

(1) 使用したウイルス

本研究では，水系感染症を引き起こす病原性ウイルスの代替指標ウイルスとして広く用いられている大腸菌ファージ Qβ（直径 24–26 nm）を実験に使用した．なお，Qβの定量には，プラック形成法（感染性ウイルスを定量可）およびリアルタイム定量 RT-PCR 法（感染性ウイルス + 不活化ウイルスを定量可）を用いた．

(2) 使用した凝集剤

本研究では，塩基度の異なる 3 種類の PACl（PACl-B51: 塩基度 51%，PACl-B61: 塩基度 61%，PACl-B70: 塩基度 70%），塩化アルミニウム（$AlCl_3$: 塩基度 0%）および硫酸バンド（AS: 塩基度 0%）を実験に使用した．なお，これらの凝集剤に含まれるアルミニウム種の形態存在割合は，フェロン法および ^{27}Al-NMR 法により評価した．

(3) 凝集沈澱処理

豊平川河川水（北海道札幌市）に精製した Qβを 10^8 PFU/mL になるように添加したものを原水とした．ここに，凝集剤を 2.16 mg-Al/L になるように添加し，直ちに HCl あるいは NaOH にて pH を 7.0 あるいは 8.0 に調整した．これを攪拌翼を用いて G 値 200 s^{-1} にて 1 分間急速攪拌，20 s^{-1} にて 10 分間緩速攪拌し，60 分間静置した．原水および静置後の上澄水を採取し，それぞれの Qβ濃度を定量することにより，処理性を評価した．

3. 実験結果と考察

(1) 凝集沈澱処理における Qβの処理性

各凝集剤を用いた凝集沈澱処理における Qβの除去率を図-1，図-2 に示す．図の縦軸は Log[C_0/C]（C_0 ; 原水の Qβ濃度，C ; 上澄水の Qβ濃度）にて表記した．図-1 より，pH 7.0 においては，プラック形成法により評価した除去率は，$AlCl_3$ および AS を用いた場合，約 2 log であったのに対し，PACl を用いた場合は，いずれの塩基度においても約 5–6 log の高い除去率が得られた．従って，PACl は，$AlCl_3$ および AS に比べ効果的にウイルスを除去できることが示された．また，PCR 法により評価した除去率は，いずれの凝集剤を用いた場合においても約 2–3 log の除去率となり，PACl の塩基度を高めることにより僅かながら除去率が向上した．加えて，$AlCl_3$ および AS を用いた凝集沈澱処理においては，プラック形成法にて評価した除去率と PCR 法にて評価した除去率の間に差は見られなかったのに対し，PACl を用いた場合は，いずれの塩基度においても約 3–4 log の差が見られた．この差は，ウイルスが感染性を失う，すなわち不活化されることによって生じる可能性が指摘されていることから[2]，PACl 中に存在するアルミニウム種によって Qβが不活化された可能性

キーワード: アルミニウム形態，ウイルス，凝集沈澱処理，高塩基度 PACl
連絡先: 〒060-8628　北海道札幌市北区北 13 条西 8 丁目　北海道大学大学院工学研究院環境創生工学部門　E-mail: nobutaka@eng.hokudai.ac.jp

が示唆された.

図-2 より，pH 8.0 においては，プラック形成法により評価した除去率は，$AlCl_3$，AS，PACl-B51，PACl-B61 を用いた場合，1 log 程度以下となり，pH 7.0 の場合に比べて大きく低下した．同様に，PCR 法により評価した場合も，1 log 程度以下の低い除去率となった．これに対し，PACl の塩基度を高めた PACl-B70 を用いた場合は，その他の凝集剤を用いた場合に比べ高い除去率が得られ，プラック形成法により評価した除去率は約 5 log，PCR 法により評価した除去率は約 2 log となった．従って，特に弱アルカリ側の pH 領域においては，PACl の塩基度がウイルスの処理性に大きく影響することが示された．また，PACl-B70 を用いた場合，弱アルカリ側の pH 領域においても，その他の凝集剤に比べ，効果的にウイルスを除去できることが明らかとなった.

(2) アルミニウム形態が Qβの処理性に与える影響

フェロン法および ^{27}Al-NMR 法により得られた各凝集剤中のアルミニウム種の形態存在割合を図-3，図-4 に示す．図-3 および図-4 より，フェロン法および ^{27}Al-NMR 法において，ウイルスの除去率が低かった $AlCl_3$ および AS は，Al モノマーの存在割合が大きいという結果が得られた．従って，Al モノマーは，ウイルスの処理性に大きく影響しない可能性が示唆された.

一方，PACl においては，$AlCl_3$ および AS に比べてコロイド状 Al あるいは Al_{13}（$[AlO_4Al_{12}(OH)_{24}(H_2O)_{12}]^{7+}$）以外の Al ポリマーの存在割合が大きく，PACl の塩基度を高めることによりそれらの存在割合が増加した．PACl を用いた凝集沈澱処理は，$AlCl_3$ および AS を用いた場合に比べウイルスの処理性が高く，PACl の塩基度を高めることにより，更なる処理性の向上が確認されたことから，コロイド状 Al あるいは Al_{13} 以外の Al ポリマー，すなわち Al_{30}（$[(AlO_4)_2Al_{28}(OH)_{56}(H_2O)_{26}]^{18+}$）等がウイルスの処理性に大きく影響する可能性が考えられた.

4. 結論

本研究で得られた知見を以下にまとめる.

(1) PACl の塩基度を高めた PACl-B70 は，弱アルカリ性の pH 領域においても，$AlCl_3$，AS，PACl-B51，PACl-B61 と比べ効果的にウイルスを除去できることが示された.

(2) ウイルスの除去には，Al_{30} 等の高分子ポリマーが大きく寄与している可能性が示唆された.

(3) 高塩基度 PACl を凝集沈澱処理に用いることにより，懸濁質や溶解性有機物の処理性の向上，処理水中の残留アルミニウム濃度の低減効果が期待できることに加え，ウイルスの処理性も向上することが示された.

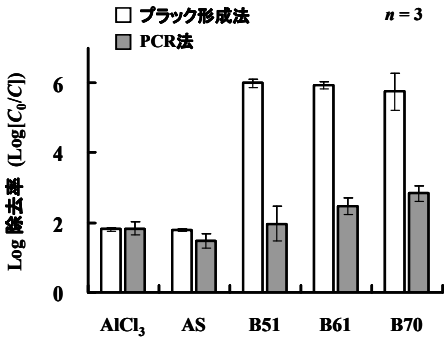

図-1. pH 7.0における凝集沈澱処理後のQβの除去率

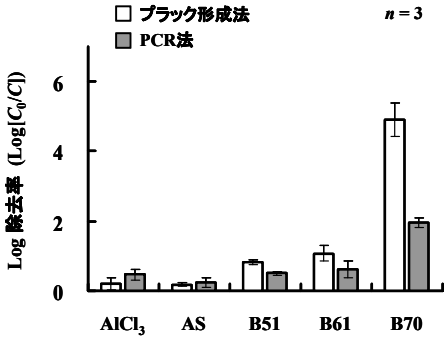

図-2. pH 8.0における凝集沈澱処理後のQβの除去率

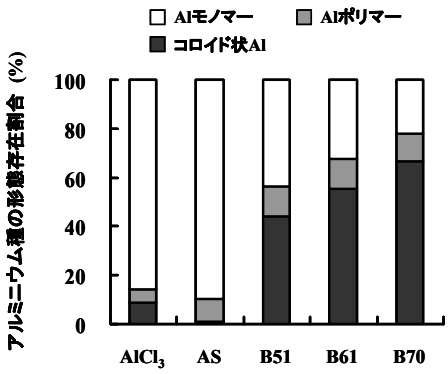

図-3. フェロン法による各凝集剤中のアルミニウム種の分析結果

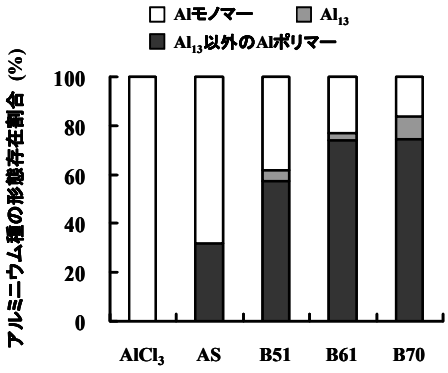

図-4. ^{27}Al-NMR法による各凝集剤中のアルミニウム種の分析結果

参考文献

1) Kimura *et al.*, *Proceedings of WET2010*, 26-2B-02, 51, 2010.

2) Shirasaki *et al.*, *Water Res.*, 43(3), 605-612, 2009.