

東京大学工学部	○李	錫憲
東京大学工学部	大垣	眞一郎
東京大学工学部	滝沢	智
東京大学工学部	大瀧	雅寛

1. はじめに

近年、浄水処理法として膜濾過法が注目されている。すでに濁度成分や細菌類の除去に対しては、従来の急速砂濾過法より、優れた処理性能を示した研究例が報告されており、既存処理の代替処理法として特に小規模水道への適用の可能性が高い。一方、水道においては消毒副生成物の前駆物質や農薬などの溶溶性有機成分とともに、病原性ウイルスの除去についての研究が要求されており、膜濾過の導入を考える場合もこれらを考慮する必要がある。そこで、河川水を原水とするMF膜利用型浄水プラントにおいてモデルウイルスとして大腸菌ファージQβを用いて、MF膜のウイルス除去特性を解明するための研究を行った。

2. 実験装置と実験方法

実験は相模川を原水とする横浜市小雀浄水場内に設置されているpilot plant規模のMF膜利用型浄水処理実験装置を使って行った。図1に実験装置、表1に運転条件を示す。

濾過は定流量式の全量濾過で、原水ポンプを制御することによって一定の流速（flux）の濾過水を得ている。設定流速は $0.5\text{m}^3/\text{m}^2\text{d}$ であった。運転の持続とともに発生する目詰まりのために膜の入口側の圧力と出口側の圧力の差、すなわち差圧はだんだん上昇していく。この実験装置では出口側の圧力損失を無視し入口側の圧力を差圧（TMP, trans-membrane pressure）とした。1時間濾過した後、1分間空気洗浄してその洗浄液を排水する操作を繰り返す方式とした。

膜はポリエチレン製親水化中空糸精密濾過膜で公称孔径が $0.1\mu\text{m}$ のもので、膜面積が 10m^2 を用いた。膜のハウジングの有効容積は12.8Lで水量に対する濃縮係数は16.3である。

図1のように装置の原水槽にQβを一定の濃度で注入しその除去を測定する実験を運転開

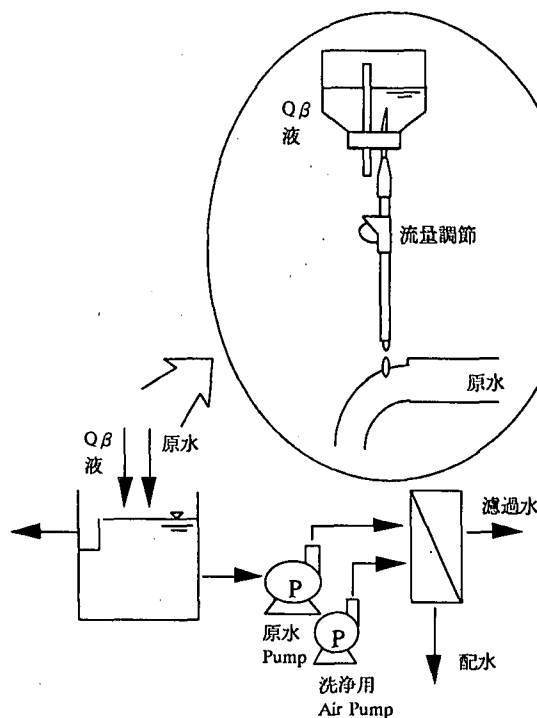


図1 実験装置

始から26, 36, 82, 89日目に4回行った。原水、排水、濾過水中のQβの濃度は二重寒天法で測定した。この実験で原水中のQβの濃度は $4.8 \times 10^4 \sim 6.4 \times 10^5$ pfu/mlの比較的に高濃度であり、4回の各実験中において原水中のQβ濃度は一定であった。Qβは図1の円内に示したように、注入中のQβ液の汚染を防止するため、滅菌したガラス瓶と流量の調節が可能な医療用の滅菌済みチューブから作った連続注入装置を利用した。Qβはガラス瓶の中で液体培地に保存されており、この培地とともに一定の流量で原水槽に注入される。

Qβの除去率は%除去率と対数除去係数 $\Phi (= \log_{10}(C_b/C_p))$ 、 C_b : 原水濃度、 C_p : 濾過水濃度)で表す。

3. 実験結果と考察

3. 1. 膜の目詰まり進行とウイルス除去率の増加

図2に膜装置に運転開始からの膜差圧の変化とQβの除去率の変化を示す。運転日数26日目の除去率は87%であって、運転日数の増加とともにQβの除去率は図2のように99.96%まで増加した。これは図2で示すように差圧の増加から示唆する目詰まりの進行と相関があると考えられる。この実験装置に使った膜の公称孔径はQβの直径20nmの数倍になるが、目詰まりがあまり進行していない運転初期でもかなりのQβ粒子が除去されている。この膜による運転初期のQβ除去はふるい分けというより膜への吸着が主な要因と考えられる。しかし、目詰まりの進行とともにふるい分けによる除去の役割が増大して、除去率が増加すると考えられる。

3. 2. 他の水質項目の除去率変化

Qβの除去を測定する実験と同じ期間において他の水質項目の膜による除去特性を調べた。E260と390nmでの吸光度の測定は粒子保持能1.0μmのガラス繊維ろ紙でろ過した後分析した。図3に膜による除去率の変化を測定した結果を示す。これによると溶溶性物質の指標になる項目の除去率は高くない。除去されている部分に対してもQβの場合とは違って、目詰まりの進行とともに除去率が上昇する傾向は見られなかった。これらの溶溶性物質の除去機構は吸着だと考えられる。これらの溶溶性物質の除去率は、原水中の濃度が高い時に特に減少する傾向があった。

濁度はほとんど除去されているが、TSの除去率が高くないのはその成分の多くが溶溶性のものからなっているた

表1 膜の特性と運転方式

膜の材質と形式	ポリエチレン製親水化中空糸精密濾過膜	
膜面積	10 m ²	
公称孔径	0.1 μm	
流速	0.5 m ³ /m ² d	
洗浄方式	空気洗浄	
ハウジング容積	12.8L	
運転	濾過	1時間
	中止	20秒
	空気洗浄	1分
	排水	3分

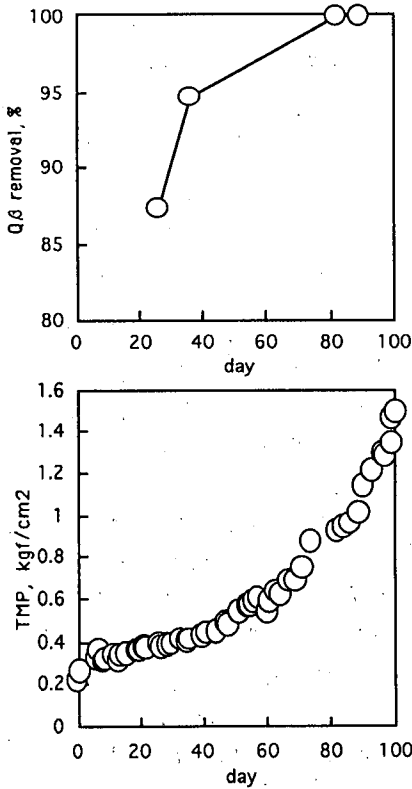


図2 膜目詰まりの進行とウイルス除去率の増加

めたと考えられる。

3. 3. 膜の空気洗浄によるQβ除去率への影響

ウイルス除去への空気洗浄による影響を検討するために洗浄と洗浄の間でのQβ除去率の変化を測定した。その結果を図4に示す。洗浄直後に低下していた除去率が濾過時間5分ぐらいまでは(運転日数82日目には15分まで)増加していくことが図4から分かる。空気洗浄によって詰まっていた膜孔の一部がQβを通過させるようになり、目詰まりの進行とともに除去率が回復すると考えられる。運転日数の経過とともに目詰まりが進行して差圧が増加するのと同じように運転1 cycle間でも差圧は増加していくが、選手日数26、36日目においては除去率が増加した後再び減少していくことから見ると除去率増加の原因は目詰まりだけではないと考えられる。

3. 4. Qβの膜moduleへの捕捉

ファージQβのマスバランスを計算した。膜装置への流入原水、濾過水、排水中の濃度や流量、洗浄排水量によって運転1 cycle間での膜装置に供給されたファージQβの総量($Q\beta_{inf}$)、濾過水に出たQβの総量($Q\beta_{fil}$)、排水に出たQβの総量($Q\beta_{drain}$)を計算した。その結果より膜へ吸着または膜moduleで不活化されたと考えられるQβの総量($Q\beta_{inact}$)を得た。各実験日の $Q\beta_{inf}$ に対する $Q\beta_{inact}$ の比を図5に示した。実験により1時間以内では源水中でのQβの濃度がほとんど変わらなかった。空気洗浄による不活化は無視できると考えれば $Q\beta_{inact}$ は膜に吸着された量であると考えられる。したがって、運転日数の増加とともにQβの膜への捕捉量が増えていくと考えられる。

4. まとめ

河川水を原水とするMF膜利用型浄水プラントにおいて、モデルウイルスとして大腸菌ファージQβを用いて、ウイルス除去特性を検討し、以下の結果を得た。

- 1) 選手日数の経過とともに膜差圧が増加し、同時にQβの除去率は増加する。
- 2) 原水中の溶解性成分の除去率は低い。また、これらの除去率の変動は膜差圧の増加と相関がない。
- 3) 空気洗浄後短時間でQβの除去率が回復する。
- 4) 選手日数の経過とともに、膜moduleで捕捉される量が増加する。

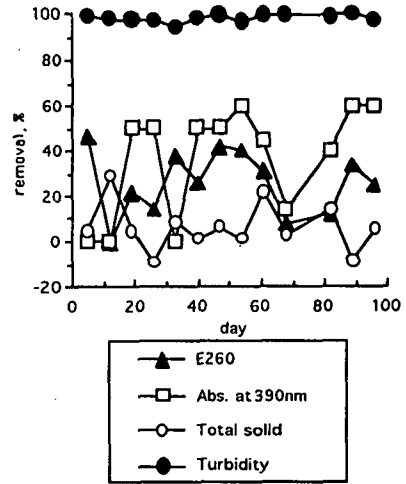


図3 各水質項目の除去率変化

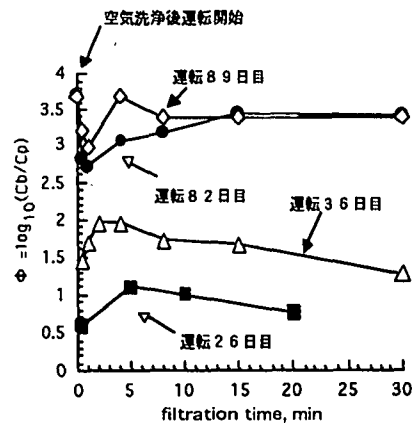


図4 運転1 Cycle間のQβ除去率の変化

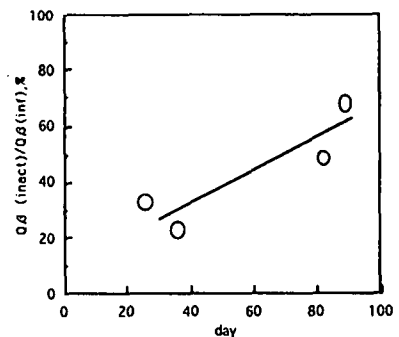


図5 膜へのウイルス捕捉量の増加