活性汚泥懸濁液の限外濾過におけるファージ阻止性

西 村 和 之* 河 村 清 史** 眞 柄 泰 基**

Coliphage Rejection under Ultra Membrane Filtration of Activated Sludge Suspension

Kazuyuki NISHIMURA*, Kiyoshi KAWAMURA** and Yasumoto MAGARA**

* Department of Waste Management Engineering, The Institute of Public Health, 6-1, Shirokanedai 4 chome, Minato-ku, Tokyo 108 Japan

** Department of Water Supply Engineering, The Institute of Public Health, ditto

Abstract

The performance of ultra membrane filtration to reject viruses in activated sludge suspension was examined by laboratory experiments. Coliphage T1 and coliphage Q β were applied as models of infectious viruses, and 4 type's ultra membrane filters were used in the experiments.

The rejection rate of coliphage is affected by the cut off molecular weight of ultra membrane filters, size of coliphages and resistance values (Rcg) of cake- and gel-layers. In the loosest ultra membrane filter used, coliphage T1 was not permeated at the filtration condition that develops the cake- and gel-layers with Rcg of $5 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ and more. In the case of coliphage Q β , the Rcg was $1 \times 10^{13} \text{ m}^{-1}$ and more.

When the concentration of viruses is $5.2 \times 10^3 \text{ PFU} \cdot \text{l}^{-1}$ in the treated wastewater by the activated sludge process and the inactivated rate of viruses of 99.9% is reached by chlorination process, the introduction of ultra membrane filtration process for liquid-solid separation can produce the fecal effluent with $5.2 \times 10^{-5} \text{ PFU} \cdot \text{l}^{-1}$ of viruses. In this condition, the health risks caused by viruses is calculated to be 5.2×10^{-5} .

Key words: ultra membrane filtration, coliphage, activated sludge suspension, cake-layer, gel-layer

1. はじめに

都市化社会が進展しているわが国では、下水処理施設、し尿処理施設等環境衛生施設の整備努力にもかかわらず、大都市周辺の公共用水域等では水環境の悪化を抑えることができていない^{1),2)}。公共用水域の水質汚濁の進行は、一方で水道水源の悪化として直接人体あるいは産業活動に影響を及ぼすことが懸念され、他方でより高度な処理技術の開発を促し、水資源不足と相まって雑用水道等の新たな利水システムの運用を促し

た。

雑用水道水の利用や各種排水処理水を用いた親水公園等の整備は、従来以上に水に係わる感染性微生物による健康影響リスクに対する関心を高めた^{3),4)}。すなわち、より高度な水質が排水処理水に求められる一方、生活空間に共存する健康影響リスクの高い利水系のリスク管理を目的として、ウイルス等を指標にした処理水の新たな評価が求められるようになった。

このような背景のもとで、し尿をはじめとする排水処理分野で新たな固液分離技術として膜分離プロセス

* 国立公衆衛生院廃棄物工学部 〒108 東京都港区白金台4-6-1

** 国立公衆衛生院水道工学部 同上

が導入されている⁵⁾が、これによって細菌はもちろんウイルス等の病原性微生物の除去が可能であるといわれている^{6),7)}。しかしながら、膜分離技術の排水処理分野への利用は始まったばかりであり、膜分離プロセスによるウイルス阻止性は十分に解明されているわけではない。

以上のことから、本研究では、物質阻止性の異なる4種類の限外濾過膜を用い、単独あるいは活性汚泥懸濁液共存下等での大腸菌ファージ阻止性の把握を行い、膜の分画分子量やケーキ層での濾過抵抗値との関連でウイルス阻止性を評価した。また、得られた結果から活性汚泥処理に限外濾過を導入することによるウイルスのリスク低減効果について評価した。

2. 実験方法

2.1 限外濾過膜と実験装置

実験に用いた限外濾過膜は、Table 1 に示す物質阻止性能の異なる4種であり、使用に先立ち操作圧力294.2kPa (3.0kgf・cm⁻²), 水温24°C、攪拌子の回転数900rpmの条件で精製水を一定時間(膜により異なるが60~90分間)透過させ、膜を圧密、安定化させて実際の使用状態になるように調整した^{8),9)}。

実験は、Fig. 1 に示すホルダー型の膜処理装置を用い全量濾過で行ったが、限外濾過膜の有効膜面積の関係で膜IとIIIについては、有効膜面積 $2.7 \times 10^{-3} \text{m}^2$ 、内

容量200mlのA型を用い、膜IIとIVについては有効膜面積 $3.85 \times 10^{-3} \text{m}^2$ 、内容量450mlのB型を用いた。

2.2 限外濾過膜の物質阻止性

膜の物質阻止性は、平均分子量600, 2,000, 20,000, 50,000, 500,000のポリエチレングリコール(以下、PEG)と平均分子量72,600, 150,000, 485,000, 2,000,000のデキストラン(以下、Dextran)の各200mgC・l⁻¹溶液を用い、TOCを指標として評価した。濾過条件は、操作圧力245.2kPa (2.5kgf・cm⁻²), 水温24°C、攪拌子の回転数300rpmとした。なお、採水は、一定時間毎あるいは一定透過水量毎に行った。

2.3 限外濾過による大腸菌ファージの阻止性

2.3.1 大腸菌ファージ

実験に用いた大腸菌ファージ(以下、ファージ)は、頭部径50nm、尾部10×150nmのファージT1と正二十面体で径が24nmのファージQβである。

2.3.2 実験方法

濾過条件は、操作圧力294.2kPa、水温24°C、攪拌子の回転数900rpmとした。

濾過方法は、①ファージの懸濁液のみを濾過した場合(以下、膜濾過)、②スキムミルクを基質として実験室で培養した活性汚泥(2,000rpmで15分間遠心分離し精製水に再懸濁したもの)とファージを混合した懸濁液を濾過した場合(以下、混合濾過)および③予め②で示した活性汚泥を濾過し、膜面上にケーキ層を形成した後にファージ懸濁液を加えて濾過した場合(以下、ケーキ層濾過)の3種である。なお、ケーキ層濾過において、ケーキ層形成のために濾過した活性汚泥懸濁液量は、A型ホルダーの場合は約140mlであり、B型ホルダーの場合は約250mlであった。

濾過原水中のファージ濃度は $1.2 \times 10^5 \sim 2.8 \times 10^6$ PFU・ml⁻¹であり、活性汚泥濃度は4,300~7,930 mgSS・l⁻¹であった。

実験操作は、A型の膜処理装置の場合は200mlの試料を、B型の膜処理装置の場合は400mlの試料を限外濾過し、透過水を約50mlまたは約100mlごとに4回無菌的に分取した。

2.3.3 ファージの測定方法

ファージの測定方法については、環境水等ファージ濃度の低い試料からファージを検出するために開発されたGrabowら¹⁰⁾の方法を用いた。本法は、100mlの試料にCaCl₂溶液と宿主菌を添加し、試料と同量の寒天培地を混合した後その全量を10枚程度の大型シャーレに分注して混釈培養する方法であり、試料の濃縮操作をせずに $10^0 \sim 10^{-2}$ PFU・ml⁻¹の濃度範囲で測定できる方法であるが、ファージ濃度の高い試料の場合は、ファージ濃度がこの範囲内に入るように試料を希釈し

Table 1 Catalog data of the ultra membrane filters

Filter No.	I	II	III	IV
Material	Polyamide	Polysulfone	Polysulfone	Polysulfone
Pure water flux (m/day)	-	11	20	≥15
Filtration conditions				
Test material	Proteins	PEG	Dextran	Dextran
Molecular weight	-	-	2,000,000	2,000,000
Concentration (%)	0.0001	0.005	0.05	0.05
Pressure (kgf/cm ²)	4	2	1	-
Temperature (°C)	-	25	25	-
Flux (m/day)	-	-	1	≥1
Cut off M.W.	20,000 ^{a)}	50,000 ^{b)}	2,000,000 ^{c)}	-
Rejection rate of Dextran with M.W. 2,000,000 (%)	-	-	80	60~70

a: 95% Cut off M.W.

b: Definition of cut off in not offered

c: 80% Cut off M.W.

Fig. 1 Schematic diagram of a holder type equipment

て測定した。なお、ファージ T1 では *E. coli* WA 707 を、ファージ Q β では *E. coli* W 3110F⁺ を宿主菌とした。

2.3.4 除去率、阻止率と濾過抵抗の計算法

PEG, Dextran およびファージの除去率は、TOC 濃度またはファージ濃度を用いて式(1)によって求めパーセントで表示した。なお、ホルダー内に残留した液中濃度は、濾過と共に増加していくが、初期値は実測し、その後は TOC 濃度またはファージ濃度と透過水量を考慮して計算により求めた。

$$R = 1 - \frac{C_p}{C_f} \quad (1)$$

ここで、 R : 除去率(—), C_p : 透過液中濃度($\text{mgC} \cdot \text{l}^{-1}$ または $\text{PFU} \cdot \text{m}^{-1}$), C_f : ホルダー内に残留した液中濃度 ($\text{mgC} \cdot \text{l}^{-1}$ または $\text{PFU} \cdot \text{m}^{-1}$) である。

しかしながら、式(1)で求められる除去率は、試料の濃縮にともなって各採水時毎で変化することから、物質の阻止性を総体的に評価するための指標として式(2)を用いて PEG, Dextran およびファージの阻止率を求めてパーセントで表示した^{8),11)~13)}。

$$\frac{C_f}{C_0} = \left(\frac{V_{f0}}{V_f} \right)^{R_0} \quad (2)$$

ここで、 R_0 : 阻止率(—), V_f : 残留液量(l), V_{f0} : 試料原液量(l), C_0 : 試料原液中濃度 ($\text{mgC} \cdot \text{l}^{-1}$ または $\text{PFU} \cdot \text{m}^{-1}$) である。

膜面上に形成される濾過抵抗層による抵抗値(以下、 R_{cg})は、式(3)で求める濾過抵抗(以下、 R)から、予め圧密後の水透過フラックスから求めた膜抵抗(以下、 R_m)を引いて求めた⁸⁾。

$$J = \frac{P}{\eta \cdot R} = \frac{P}{\eta \cdot (R_m + R_{cg})} \quad (3)$$

ここで、 J : 透過フラックス ($\text{m} \cdot \text{d}^{-1}$), P : 圧力 (kPa), η : 透過水の粘性係数 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$), R : 濾過抵抗 (m^{-1}), R_m : 膜抵抗 (m^{-1}), R_{cg} : 濾過抵抗層抵抗(ケーキ層とゲル層を合わせたものによる抵抗 (m^{-1}) であるが、 R_{cg} には膜内部での物質の目詰まり抵抗を含めている)である。

2.4 活性汚泥懸濁液との接触による大腸菌ファージの除去性

大腸菌ファージと活性汚泥が接触することによるファージの除去性を調べるために、ファージと活性汚泥を混合した後、活性汚泥を分離し、上澄水の中のファージ濃度を測定し、式(1)を用いて除去率を計算して評価した。

実験に用いた大腸菌ファージは、2.3に示した大腸菌ファージ T1 と大腸菌ファージ Q β であり、大腸菌ファージの測定方法も2.3に同じ方法で行った。

実験条件は、活性汚泥とファージを攪拌子の回転数 900rpm で10分間攪拌・接触した後に2,000rpm で15分間遠心分離した場合、および同条件で60分間攪拌・接触した後に2,000rpm で15分間遠心分離した場合と60分間自然沈降させた場合の3条件であった。

本実験における原水中のファージ濃度は、 $4.8 \times 10^5 \sim 4.9 \times 10^5 \text{PFU} \cdot \text{m}^{-1}$ であり、活性汚泥濃度は $1,660 \sim 14,080 \text{mgSS} \cdot \text{l}^{-1}$ であった。

3. 結 果

3.1 限外濾過膜の物質阻止性

膜IIIを例として、物質の分子量と阻止率の関係を示す分子量分画カーブを Fig. 2 に示す。

限外濾過膜の物質阻止性の評価は、分画分子量で表す方法、分子量既知の物質の阻止率で表す方法等がある^{9),13),14)}。また、評価手法の標準化に関する研究¹⁵⁾がなされているが、統一的な手法はいまだ定められていない^{9),15)}。

本研究では、分子量分画カーブから求められる90%の阻止率を示す分子量をその膜の分画分子量とし⁹⁾、実験に用いた限外濾過膜の物質阻止性を評価した。評価結果を Table 2 に示した。また、分子量200万の Dextran の阻止率も同時に示した。

各膜の分画分子量は、Dextran で評価した場合の方が PEG で評価した場合より10倍以上大きく評価された。Table 2 に示した実験結果と Table 1 に示したカタログデータを比較すると、同程度の濃度の分子量200万

Fig. 2 Relationship between molecular weight and rejection rate (Filter III)

Table 2 Cut off molecular weight of the ultra membrane filters

Filter No.	I	II	III	IV
Estimated value by PEG	119,000	156,000	174,000	197,000
Estimated value by Dextran	1,260,000	1,670,000	2,570,000	2,740,000
Rejection rate of Dextran with M.W. 2,000,000 (%)	90.9	86.2	85.4	85.0

の Dextran で評価している膜Ⅲの場合には、評価条件に差異はあるが両者の分画分子量の値は比較的一致していた。しかしながら、評価物質として同じく PEG を用いても、濃度や評価条件が異なる膜Ⅱの場合、実験で得られた分画分子量はカタログデータよりも 3 倍大きく、評価物質や評価条件の異なる膜Ⅰの場合、分画分子量の値は両者で大きく異なっていた。

一方、膜Ⅳにおける分子量 200 万の Dextran 阻止率は、同程度の濃度で評価したにもかかわらず大きく異なっており、評価条件が異なっていることが示唆される。

また、カタログデータの分画分子量は、膜Ⅰと膜Ⅲで 100 倍の差があったが、実験結果では、PEG で評価した場合で 1.5 倍、Dextran で評価した場合で 2 倍程度の差しか認められていない。

3.2 限外濾過によるファージの除去

各膜における試料容量の濃縮倍率(以下、濃縮倍率)と透過ファージの積算量の関係は、膜Ⅲによるファージ T1 およびファージ Q β の結果を例として Fig. 3 に

Fig. 3a Relationship between condensation rate of sample volume and number of permeated phage (Filter III, Coliphage T1)

Filtration method 1: Filtration of phage suspension

Filtration method 2: Filtration of mixture of phage suspension and activated sludge suspension

Filtration method 3: Filtration of phage suspension after filtration of activated sludge suspension

示すが、濃縮倍率の小さな段階でファージは多く透過するものの、濃縮倍率が大きくなるにつれて透過量が少なくなる傾向を示した。この傾向は、膜の種類によらず同じであった。

濾過方法毎のファージ阻止率と Dextran で評価した膜の分画分子量との間には、Fig. 4 に示す関係があった。ファージ Q β を用いた混合濾過やケーキ層濾過における膜Ⅲと膜Ⅳで逆転が認められたが、一般的な傾向として、同一ファージで同一濾過方法の場合、膜の分画分子量が小さいほどファージ阻止率が高く、同一膜で同一濾過方式の場合、ファージの大きさが大きいほどファージ阻止率が高くなった。また、膜濾過や混合濾過の場合、最も物質阻止性の高い膜Ⅰであってもファージの種類にかかわらず濾過初期にわずかながらファージの透過は認められ、ファージ阻止率は、膜濾過、混合濾過ケーキ層濾過の順番で高くなった。最も低いファージ阻止率を示す濾過条件は、膜Ⅳを用いた膜濾過の場合であり、その時のファージ阻止率は、ファージ T1 で 99.9982% であり、ファージ Q β で 99.9927% であった。

3.3 活性汚泥懸濁液との接触によるファージの除去

ファージと活性汚泥が接触することによるファージ除去率は、Table 3 に示すように、活性汚泥とファージを 10 分間攪拌・接触させて遠心沈殿した場合は、活性汚泥濃度に影響されずファージ T1 で平均 99.9985%、ファージ Q β で平均 99.7023% であった。また、ファ-

Fig. 3b Relationship between condensation rate of sample volume and number of permeated phage (Filter III, Coliphage Q β)

Fig. 4a Relationship between cut off molecular weight and rejection rate (Coliphage T1)

Fig. 4b Relationship between cut off molecular weight and rejection rate (Coliphage Qβ)

Table 3 Removal rate of coliphage by mixing with activated sludge

Test 1			
		Revolution (rpm)	Time (min)
Mixing condition with activated sludge		900	10
Centrifugation condition		2,000	15
Coliphage T1		Coliphage Qβ	
MLSS (mgSS·L ⁻¹)	Removal rate (%)	MLSS (mgSS·L ⁻¹)	Removal rate (%)
1,660	99.9983	1,910	99.7000
2,990	99.9993	3,090	99.7000
3,770	99.9966	7,200	99.6450
11,960	99.9998	14,080	99.7643

Test 2			
		Revolution (rpm)	Time (min)
Mixing condition with activated sludge		900	60
Centrifugation condition		2,000	15
Sedimentation condition			60
Coliphage Qβ			
Centrifugation		Sedimentation	
MLSS (mgSS·L ⁻¹)	Removal rate (%)	MLSS (mgSS·L ⁻¹)	Removal rate (%)
4,970	99.5510	4,970	99.5714

ジ Qβ について60分間接触させた場合の遠心沈殿と自然沈降による除去率は、差が認められず両者の平均で99.5612%であった。これは、前の方法と比べて透過率は1.5倍大きいが大差はない。

これらのことから、活性汚泥とファージを攪拌・接触させることによるファージ除去率は、攪拌・接触時間や活性汚泥との分離方法に影響されないといえる。

3.4 ファージの限外濾過における Rcg

膜濾過における濃縮倍率と透過フラックスの関係は、ファージ T1 およびファージ Qβ の結果を例として Fig. 5 に示すが、透過フラックスは濃縮倍率の増加とともに減少し、ファージが膜面に捕捉されていくと考えられた。なお、物質阻止能力の大きい膜 I の場合、透過フラックスの初期値が小さく、ファージによる透過フラックスの低下傾向は小さかった。

濾過の終了段階における Rcg は、膜に係わらず $4 \times 10^{11} \sim 6 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ 程度であったが、膜 I で20枚、膜 II で12枚、膜 III で102枚、膜 IV で16枚の膜で調べた Rm の値は $5 \times 10^{11} \sim 6 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ の範囲内にあったことから、ファージが膜面に捕捉されることによる Rcg は、Rm と同程度であると結論される。

混合濾過における濃縮倍率と Rcg の関係は、膜 III の場合を例として Fig. 6 に示す。図中には、Rm と活性汚泥だけを濾過した場合の Rcg を合わせて示した。膜やファージの種類にかかわらず、Rcg は濾過初期に増加しその後 $4 \times 10^{12} \sim 7 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ 程度で安定した。しかしながら、濾過の終了段階で濃縮倍率が大きくなり活性汚泥濃度やファージ濃度が高くなった時に、急速に大きく増加する場合があった。

活性汚泥だけを濾過した場合の Rcg は、濾過初期に

Fig. 5a Relationship between condensation rate of sample volume and permeation flux in filtration method 1 (Coliphage T1)

Fig. 5b Relationship between condensation rate of sample volume and permeation flux in filtration method 1 (Coliphage Qβ)

Fig. 6a Relationship between condensation rate of sample volume and Rcg in filtration method 2 (Filter III, Coliphage T1)

Fig. 6b Relationship between condensation rate of sample volume and Rcg in filtration method 2 (Filter III, Coliphage Qβ)

Fig. 7a Relationship between condensation rate of sample volume and Rcg in filtration method 3 (Filter III, Coliphage T1)

Fig. 7b Relationship between condensation rate of sample volume and Rcg in filtration method 3 (Filter III, Coliphage Qβ)

増加しその後膜IIIで1ケース $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-1}$ を示した場合を除き、 $5 \times 10^{12} \sim 7 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ 程度で安定した。すなわち、濾過の中間段階や終了段階で示される安定した R_{cg} の値は、活性汚泥だけを濾過した場合の濾過の終了段階で示される安定した R_{cg} と同程度であった。また、これらの値は、先に示した R_m の最大値 $6 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ と同程度であった。

Fig. 7 は、ケーキ層濾過での濃縮倍率と R_{cg} の関係を示している。図中には、 R_m とファージ懸濁液の代わりに精製水を透過させた場合の R_{cg} とを合わせて示した。 R_{cg} は、濾過初期に増加してやがて安定する傾向を示したが、この安定値は $1 \times 10^{13} \sim 6 \times 10^{13} \text{ m}^{-1}$ の範囲にあり一定せず、膜やファージによる傾向も認められなかった。また、濾過の終了段階での R_{cg} は、混合濾過した場合と同様に、急速に大きく増加する場合があった。

一方、ケーキ層形成後に精製水を透過させた場合、 R_{cg} は濾過初期に増加してやがて安定する傾向を示し、濾過終了段階では $1 \times 10^{12} \sim 7 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ であった。この R_{cg} の値は、混合濾過の中間段階や終了段階で示される安定した R_{cg} と同程度であり、ケーキ層濾過でファージ懸濁液を濾過した場合の1/10程度であった。

4. 考 察

4.1 限外濾過膜の物質阻止性

実験に用いた限外濾過膜の実験で得た分画分子量は、線状の高分子である PEG で評価した場合よりも球状の高分子である Dextran で評価した方が10倍以上大きかった。また、4種の膜の分画分子量は、カタログデータでは2万から200万以上と大きな幅を持つことになっていたが、PEG で評価した場合11万9千から19万7千であり、Dextran で評価した場合は126万から274万であり、いずれの場合も膜毎の差が小さく、カタログデータとは大きく差異が認められた。これらの原因は、分画分子量の評価物質や濾過条件等の評価手法の違いによるものと考えられる^{9),15)}。したがって、本研究のように膜の物質阻止性を評価する場合には、膜の分画分子量だけでなく、評価物質や評価方法を明確にする必要があると考えられる。

また、限外濾過膜を用いた膜分離プロセスの能力を相互に比較していくためには、異なる膜の性能を统一的に評価することが不可欠であることから、ここで例示したような、膜の物質阻止性を含めた標準評価手法の確立が必要であると考えられる。

一方、ポリオウイルスやA型肝炎ウイルスに代表される水系の感染性ウイルスの多くはエンテロウイルスであるが、それらの形状は、直径25~30nmの正二十面

体であり¹⁶⁾、本研究で用いたファージ $Q\beta$ と近似している。このような形状を持つウイルスは、大きさの一定した球状の高分子有機物質として扱うことができると考えられる。したがって、排水処理に限外濾過を導入する場合に、感染性ウイルスの除去能を考慮するのであれば、ここで用いた Dextran のような球状の高分子による膜の物質阻止性の評価を行い明示する必要があると考えられる。

4.2 限外濾過によるファージの除去の支配因子

限外濾過によるファージ阻止率は、Fig. 4 に見るように、膜濾過、混合濾過、ケーキ層濾過の順に高くなり、膜面上にケーキ層が形成することにより大きく向上する。これらのことから、ファージは限外濾過膜だけでなく活性汚泥による目詰まりやケーキ層によっても除去されると結論できる。

また、ファージ阻止率は、混合濾過やケーキ層濾過

Fig. 8a Relationship between R_{cg} and removal rate of coliphage (Filter III, Coliphage T1)

Fig. 8b Relationship between R_{cg} and removal rate of coliphage (Filter III, Coliphage $Q\beta$)

では膜の物質阻止性に依存しなくなることから、活性汚泥懸濁液の限外ろ過におけるファージの阻止性は、活性汚泥によるろ過抵抗層により大きく支配されると考えられる。

実験は、2.3.2で述べたように各々4回に分けて透過水を分取し、透過水中のファージ濃度を測定したが、それぞれのろ過時点におけるファージ除去率を計算し、そのろ過時点での R_{cg} との関係を図8に示した。

実験で用いた最もルーズな膜Ⅳによる膜ろ過で、透過ファージ量が最も大きい最初の透過水分取時点でのファージ除去率を計算すると、ファージ T1 で 99.9954%、ファージ Q β が 99.9743% であった。ファージ T1 の場合、膜ろ過の場合の初期のファージ除去率は、活性汚泥との接触による除去率 99.9985% と同程度であるが、ファージ Q β では膜ろ過の方がファージの透過率が 1/12~1/17 低くなった。一方、最もルーズな膜Ⅳを用いた混合ろ過による初期のファージ除去率は、ファージ T1 の場合、最初の透過水分取時点では活性汚泥との攪拌・接触による除去率 99.9985% と同程度であるが、二回目は 99.9995% となった。また、ファージ Q β の場合には、最初の透過水分取時点で 99.9971% の除去率を示し、活性汚泥と接触させた場合の除去率 99.5612% 以上のファージ除去率となる。

これらのことは、ファージと活性汚泥が混合してろ過された場合、膜だけで除去される量や活性汚泥に吸着される量以上のファージ量が活性汚泥により形成されるケーキ層等により除去されることを示している。

R_{cg} とファージ除去率の関係は、膜やファージの種類に係わらず明瞭なものが認められ、 R_{cg} の増加に対応してファージ除去率が大きく増加した。また、図8から読みとった透過ファージ量が検出限界以下となる

R_{cg} の値と膜の物質阻止性との関係は、図9に示すように膜の物質阻止性が低くなるとともに R_{cg} が大きくなる傾向を示した。しかしながら、ファージ T1 で約 $5 \times 10^{12} \text{m}^{-1}$ 、ファージ Q β で約 $1 \times 10^{13} \text{m}^{-1}$ 以上の R_{cg} になると、比較的ルーズな膜Ⅲや膜Ⅳでもファージが検出されなくなる。なお、 $5 \times 10^{12} \sim 1 \times 10^{13} \text{m}^{-1}$ 程度の R_{cg} を示すようなケーキ層が形成された場合の透過フラックスは、 $1.7 \sim 2.8 \text{m} \cdot \text{d}^{-1}$ 程度であり、実用上問題のない透過フラックスである。

これらのことから、活性汚泥懸濁液の限外ろ過において、ほぼ完全な除去という意味でのファージ等ウイルスの阻止性を支配する因子は、膜面上に形成されるろ過抵抗層であり、その効果は R_{cg} の大きさにより判断できると考えられる。また、ファージが検出されなくなる時の R_{cg} から計算した透過フラックスから考えて、限外ろ過によるウイルスの除去は、稼働中の膜で形成されているケーキ層でも十分な効果が期待できるものと考えられる。

4.3 活性汚泥懸濁液の限外ろ過によるウイルスリスクの低減効果

活性汚泥処理によるウイルスの除去は、活性汚泥とウイルスが接触することによる不活化ではなく、水中のウイルスが活性汚泥に移行することで行われていることが明らかにされている^{17)~19)}。このため、活性汚泥の固液分離の効率化は、有機性排水処理水の感染性ウイルスに係わる健康リスクの低減化につながることになる。

金子³⁾は、下水処理水等を修景用水として再利用する場合、誤飲によって生じる腸管系ウイルスによる健康リスクは、発病率が 10^{-5} 程度であれば実質的に安全な目標値として許容できるとしている。しかしながら、活性汚泥等による下水の二次処理水を塩素処理した場合、処理水中のウイルス濃度が $0 \sim 750 \text{PFU} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、誤飲量を 100ml とし、ウイルスに感染した場合に発病する割合を 1% とし Haas の式で発病率を計算すると 10^{-2} と計算されることから、下水を十分処理し、懸濁物質をできるだけ少なくしてから塩素処理を十分行う必要があるとしている。

本実験における混合ろ過では、ファージの透過が大きい1回目の透過水分取時点でのファージ除去率は、最もルーズな膜Ⅳとより小さなファージ Q β の組み合わせの場合でも、99.9971% であったが、ファージと活性汚泥を接触させて沈殿分離した場合のファージ除去率 99.7023% と比較すると、限外ろ過を用いることにより、少なくともファージの透過量は約 1/100 に減少するといえる。下水の活性汚泥処理水中のウイルス濃度は、Table 4 に示すようにかなりの幅を持った値が報告さ

Fig. 9 Relationship between cut off molecular weight and R_{cg} of 100% of coliphage removal rate

Table 4 Concentration of naturally occurring enteric viruses :
activated sludge effluent²⁰⁾

Country	Virus Concentration	References
Australia	100 - 12,850 IU·L ⁻¹	Irving and Smith, 1981
Britain	0 - 60 PFU·L ⁻¹	Slade, 1981
France	0.12 - 9.6 MPN CU·L ⁻¹	Schwartzbrod <i>et al.</i> , 1980
India	5 - 60 PFU·L ⁻¹	Rao <i>et al.</i> , 1977
South Africa	100 - 4,000 TCID ₅₀ ·L ⁻¹	Grabow <i>et al.</i> , 1978
USA		
Arizona	1.58 - 74.75 PFU·L ⁻¹	Gilbert <i>et al.</i> , 1976
Florida	0.8 - 38 PFU·L ⁻¹	Hejkal <i>et al.</i> , 1981
Florida	0.4 - 10 TCID ₅₀ ·L ⁻¹	Chang <i>et al.</i> , 1981
Hawaii	0 - 5,222 PFU·L ⁻¹	Fujioka and Loh, 1978
Houston	0.1 - 8.0 PFU·L ⁻¹	Gerba <i>et al.</i> , 1978
Los Angeles (Pomona)	0.44 - 136.6 PFU·L ⁻¹	Dryden <i>et al.</i> , 1979
South Tahoe	0 - 4,300 PFU·L ⁻¹	Culp, 1974

れている²⁰⁾が, Fujioka らの報告の最大値 5.2×10^3 PFU·l⁻¹を活性汚泥処理水中のウイルス濃度とした場合, 上述の結果から活性汚泥処理に限外濾過を組み合わせると処理水中のウイルス濃度は1/100となり 5.2×10^1 PFU·l⁻¹となると想定される。この処理水にウイルス除去率が99.9%となるような塩素処理を行った場合, 放流水中のウイルス濃度は 5.2×10^{-2} PFU·l⁻¹となり, 金子が想定したように誤飲量を100ml, ウイルスに感染した場合の発症割合を1%として Haas の式を用いて計算すると, 放流水の持つウイルス性疾患の発症確率は, 5.2×10^{-5} となる。また, 南アメリカでは, 下水処理水10l で試験を行ってウイルスが検出されなければ飲用としての利用を認めている²¹⁾が, 5.2×10^{-2} PFU·l⁻¹というウイルス濃度はこの条件に近いレベルであると判断される。

以上のことから, 塩素等の消毒が行われることを前提とした場合, 下水やし尿の活性汚泥処理に限外濾過を導入することは, 感染性ウイルスに対する健康リスクを非常に小さくする効果があると結論できる。また, 生物処理水を限外濾過した場合の懸濁物質濃度はND⁵⁾であり, 懸濁物質による消毒効果の減衰はほとんどないと考えられる。したがって, 雑用水道等の処理プロセスとして限外濾過を導入することは, 生活空間に共存する利水系の感染性微生物による健康影響リスクを低減化するという観点に立つならば最も効果的な処理プロセスであると考えられる。

5. ま と め

活性汚泥の限外濾過によるウイルス阻止性とその支配因子について, 大腸菌ファージを代替指標として検討した結果, 以下のことがわかった。

1) 実験で求めた膜の物質阻止性とカタログデータとでは差異が認められたが, ここで例示したような膜

の物質阻止性を評価する標準手法の確立が必要である。

2) 排水処理に限外濾過を導入する場合に, 感染性ウイルスの除去能を考慮するのであれば, Dextran のような球状の高分子による膜の物質阻止性の評価と明示が必要である。

3) 活性汚泥とファージを攪拌・接触させることによるファージ除去率は, 攪拌・接触時間や活性汚泥との分離方法に影響されず, ファージ T1 で平均99.9985%であり, ファージ Q β で平均99.5612%であった。

4) 限外濾過膜によるファージの阻止性は, 膜の物質阻止性能やファージの大きさに依存する。また, 活性汚泥懸濁液が共存した場合の限外濾過では, ほぼ完全な除去という意味でのファージ阻止性は, 膜の物質阻止性よりも膜面上の濾過抵抗層により大きく依存すると結論できる。すなわち, 濾過抵抗層の R_{cg} がファージの阻止性の向上に大きく影響する。

5) ファージ T1 では 5×10^{12} m⁻¹, ファージ Q β では 1×10^{13} m⁻¹程度の R_{cg} が存在するならば, 膜の物質阻止性能に係わらずファージは検出されない。このときの透過フラックスは1.7~2.8 m³·d⁻¹程度であり, 実用上十分な透過フラックスである。

6) 活性汚泥処理水中のウイルス濃度を 5.2×10^3 PFU·l⁻¹とした場合, 活性汚泥処理と限外濾過を組み合わせた処理水中のウイルス濃度は 5.2×10^1 PFU·l⁻¹となるが, 塩素処理によるウイルス除去率を99.9%とすると, 放流水中のウイルス濃度は 5.2×10^{-2} PFU·l⁻¹となり, 放流水の持つウイルス性疾患の発症確率は 5.2×10^{-5} となる。

以上のことから, 塩素等の消毒が行われることを前提とした場合, 下水やし尿処理への限外濾過の導入は, ウイルス性疾患に関する健康影響リスクを低減できる

実用技術であると結論できる。また、生物処理水に限外汚過を導入すると、懸濁物質を含まない処理水が得られることから、より効果的な消毒が行えると考えられる。したがって、限外汚過は、雑用水道等の生活空間に共存する利水系の感染性微生物による健康影響リスクを考慮するならば最も有効な処理プロセスであると考えられる。

謝 辞

本研究実施にあたり、国立公衆衛生院廃棄物工学部井上雄三主任研究官に御助言をいただき、また実験にあたり当時、麻布大学環境保健学部学生 知久智之君（現住友重機㈱）、杏林大学保健学部学生 小山知佳子君（現㈱荏原総合研究所）および北里大学衛生学部学生 針生洋子君（現東京水道設計㈱）の協力を得たので記して感謝いたします。また、本研究は、ヒューマンサイエンス振興財団のヒューマンサイエンス基礎研究事業および環境庁の国立機関公害防止等試験研究費による研究成果の一部であり、記して謝意を表す。

（原稿受付 1993年8月17日）

（原稿受理 1994年1月6日）

参 考 文 献

- 1) 厚生省生活衛生局水道環境部環境整備課 (1992) 日本の廃棄物処理 (平成2年度版), 1-25.
- 2) 環境庁 (1993) 環境白書—総論— (平成5年度版), 28-37.
- 3) 金子光美 (1987) 下水処理水活用の衛生学的課題—主としてウイルスの側面より—, 下水道協会誌, 24(279), 45-53.
- 4) 大垣眞一郎, 橋本光雄 (1989) 生活環境水系中に存在する大腸菌ファージの定量, 浄化槽研究, 1(1), 19-24.
- 5) ㈱全国都市清掃会議 処理技術評価委員会 (1991) 膜分離高負荷生物脱窒素処理施設: 評価書, (13).
- 6) 矢野一好 (1990) 膜処理における処理性評価としてのウイルス, 水質汚濁研究, 13, 485-490.
- 7) 浦瀬太郎, 山本和夫, 大垣眞一郎 (1991) 活性汚泥の膜分離における大腸菌ファージの排除率に与える因子, 土木学会第46回年次学術講演集, 378-379.
- 8) 西村和之, 河村清史, 眞柄泰基 (1992) 限外汚過膜の水及び物質透過に及ぼす圧密の影響, 第28回衛生工学研究討論会講演身, 62-64.
- 9) 中垣正幸監修 (1991) 膜処理技術大系上巻 {基礎・製品編}, フジ・テクノシステム, 106-109.
- 10) Grabow, W.O.K. and Coubrough, P. (1986) Practical direct plaque assay for coliphages in 100-ml samples of drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, 52, 430-433.
- 11) 西村和之, 小山知佳子, 河村清史, 眞柄泰基 (1992) 限外汚過膜の大腸菌ファージ阻止性に関する検討, 第26回日本水環境学会年会講演集, 64-65.
- 12) 西村和之, 針生洋子, 河村清史, 眞柄泰基 (1993) 活性汚泥共存下における大腸菌ファージの限外汚過による阻止性, 第27回日本水環境学会年会講演集, 230-231.
- 13) 荻原文二, 橋本光一編 (1974) 膜による分離法, 講談社サイエンティフィック, 8-10.
- 14) 化学工学協会編 (1988) 化学工学便覧改訂第5版, 丸善㈱, 924.
- 15) 大矢晴彦, 橋本智加子, 灰尾明仁, 根岸洋一, 松本幹治 (1989) 限外汚過膜分画特性の標準化 第1報 物質移動係数を用いた阻止率の補正, 膜, 14(1), 88-97.
- 16) 北村敬訳 (1987) 医学ウイルス学第三版, 近代出版, 435-455.
- 17) 林悦子, 杉嶋伸稜 (1980) 下水処理場におけるウイルス除去について, 日本水処理生物学会誌, 15(2), 21-27.
- 18) 丘依枢 (1981) ウイルスと水処理 (V), 水質汚濁研究, 4, 175-180.
- 19) 金台東, 本多裕之, 白神直弘, 矢野一好, 海野肇 (1993) 活性汚泥混合液中のウイルス感染価の低減について, 水環境学会誌, 16, 339-345.
- 20) Irving, L.G. (1982) Viruses in Wastewater Effluents, Viruses and Disinfection of Water and Wastewater, Proceedings of the International Symposium held at the University of Surrey, 7-13, 金子光美監訳 (1987) 下水処理水中のウイルス, 「上下水のウイルスと消毒」国際シンポジウム講演集, 水中微生物研究会, 4-19.
- 21) Kott, Y. (1982) Effluent usage and disposal, Viruses and Disinfection of Water and Wastewater, Proceedings of the International Symposium held at the University of Surrey, 88-95, 金子光美監訳 (1987), 排水の利用と処理, 「上下水のウイルスと消毒」国際シンポジウム講演集, 水中微生物研究会, 53-56.