

研究要旨

濁質が存在する条件下での紫外線照射の効果を調べるために、下水処理場の最初沈殿池出口水をろ過して濁度の調整を行った後大腸菌ファージ MS2 を添加して紫外線照射を行い、濁度と不活化速度の関係を調べた。また、ろ過前後の下水処理場最初沈殿池出口水に対して紫外線照射を行い、大腸菌の不活化速度の変化を調べた。その結果、濁度の増大により不活化速度は小さくなったが、254nm 吸光度から求められる平均紫外線量と比較すると、濁質の存在する試料における不活化速度は濁質が無い試料と同等かそれ以上であった。よって、平均紫外線量を算定することで安全側の対応が可能であると考えられた。また、流水式紫外線照射槽に紫外線耐性の異なる 2 種の微生物を流して不活化効果を調べたところ、微生物種により異なる換算紫外線量 (RED) が算出された。線量分布がある紫外線照射槽においては自明であるが、それが実験的に確認できた。また、95%以上の水量に 10mJ/cm² というクリプト対策指針における表記についても、いくつかの線量分布を仮定して平均紫外線量、生物線量計 RED、病原微生物 RED を求め、より明確な紫外線照射槽の要件について考察した。

A. 研究目的

紫外線照射は現在上水道のクリプトスポリジウム対策として導入されている。しかし、適用できる原水は地表水以外であり、地表水を原水とする場合の適用性については様々な議論がなされている。

本分担研究においては、紫外線照射を適用可能な原水の条件を明らかにすることに加え、流水式紫外線照射装置による処理効果の検証をどのように行えば良いのか明らかにすることを目的とした。

B. 研究方法

(1) 濁質存在下での紫外線照射の効果

下水処理場の最初沈殿池出口水を孔径 8 μm のメンブレンフィルターでろ過し、さらに孔径 5 μm のメンブレンフィルターでろ過することで、濁度を調整した 3 種類の試料を得た。それぞれの濁度および 254nm 吸光度を測定した後に大腸菌ファージ MS2 を添加し、試料を満たし石英ガラス板で封をした水深 1.7cm のペトリ皿の上部より 254nm の紫外線を照射し、照射した紫外線量と MS2 生残率の関係を調べた。

また、下水処理場の最初沈殿池出口水を孔径 5 μm のメンブレンフィルターでろ過して濁度を減じて大腸菌を含む試料を得た。ろ過前後の濁度および 254nm 吸光度を測定した後に、試料を満たし石英ガラス板で封をした水深 1.7cm のペトリ皿の上部より 254nm の紫外線を照射し、照射した紫外線量と大腸菌生残率の関係を調べた。

(2) 流水式紫外線照射槽の性能評価

塩化ビニルで覆って出力を低下させた低压紫外線ランプを装備した一灯式紫外線照射槽（内径 12cm、照射容積 400mL）を用い、大腸菌ファージ MS2 と X174 を同時に流下させ、理論的滞留時間と両ファージ生残率の関係を調べた。

C. 研究結果

(1) 濁質存在下での紫外線照射の効果

大腸菌ファージ MS2 を添加した最初沈殿池出口水における紫外線照射実験の結果を図 1 および 2 に示す。図 1 は照射時間と MS2 濃度との関係を、図 2 は平均紫外線量と log 生残率の関係を示している。

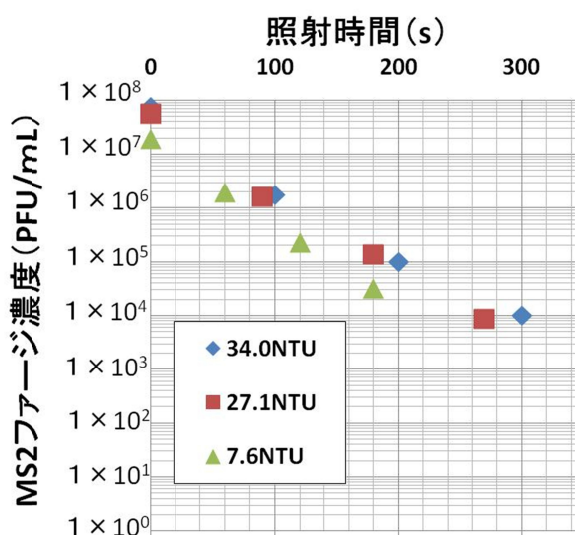


図 1 大腸菌ファージ MS2 を添加した最初沈殿池

出口水における照射時間とファージ濃度の関係

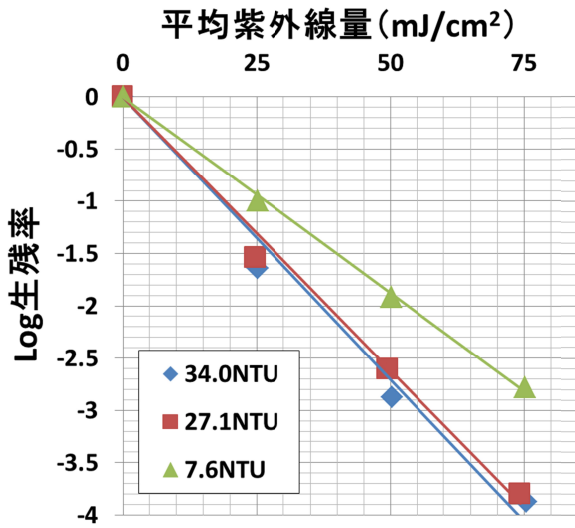


図2 大腸菌ファージ MS2 を添加した最初沈殿池出口水における平均紫外線量と log 生残率の関係

図1より、同じ濃度まで不活化するのに必要な照射時間が、濁度が小さい試料ほど少なくなっていることがわかる。これは濁度が大きい試料ほど254nm吸光度が大きく、水深方向での紫外線照度の減衰が大きいためであると考えられる。しかし、254nm吸光度を用いて水深方向の平均紫外線照度を算出して照射時間を乗じた平均紫外線量に対して log 生残率をプロットすると、濁度が34.0NTUと27.1NTUの結果には差が見られなくなったが、濁度が一番小さい7.6NTUの試料においては不活化速度が小さくなった。これは、濁度が大きい場合に散乱光が生じてそれによる不活化を示唆しているものと考えられた。

最初沈殿池出口水のろ過前後での大腸菌の254nm紫外線による不活化実験の結果を図3および4に示す。

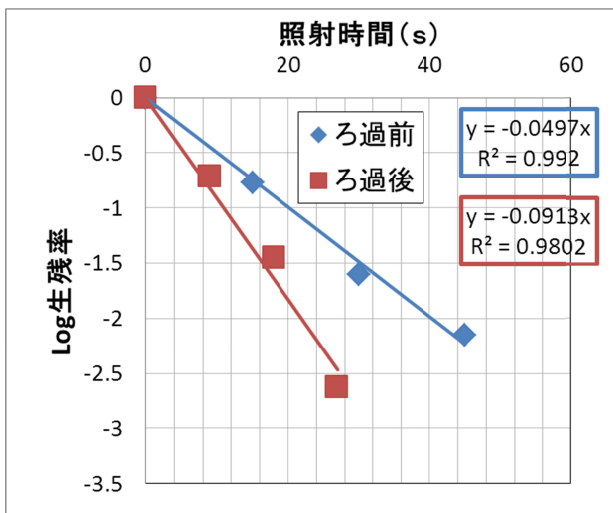


図3 ろ過前後の最初沈殿池出口水に対する紫外線による大腸菌不活化過程における照射時間と log 生残率の関係

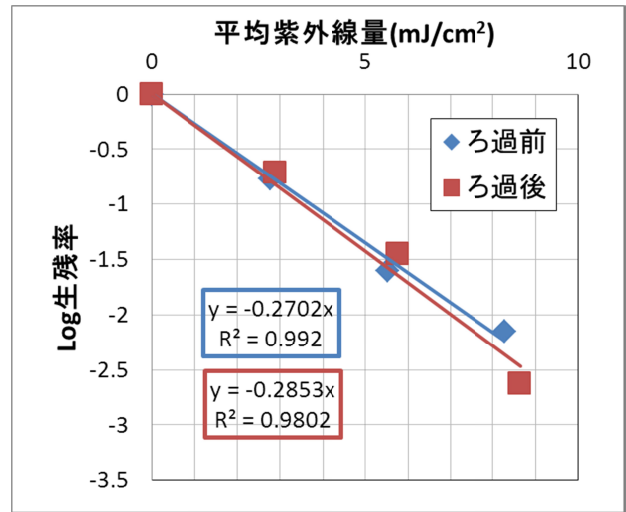


図4 ろ過前後の最初沈殿池出口水に対する紫外線による大腸菌不活化過程における平均紫外線量と log 生残率の関係

図3より、照射時間当たりの不活化速度はろ過後(8.57NTU)の試料の方がろ過前(33.2NTU)よりも大きかった。濁質による遮蔽で水深方向の紫外線の減衰が原因と考えられる。一方、図4に示すように横軸を平均紫外線量として整理すると、ろ過前後で大腸菌の不活化効率に大きな差が見られなかった。すなわち、ここで用いた濁質の異なる水における紫外線照射による不活化速度の差は、濁度による遮蔽効果のみであり、それを254nm吸光度で把握することが可能であることが明らかになった。

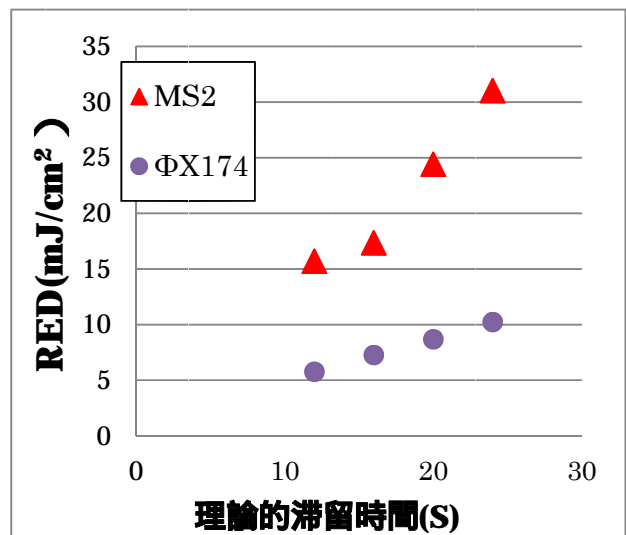


図5 二種の大腸菌ファージを同時に流した流水式紫外線照射装置における理論的滞留時間と RED と

の関係

(2) 流水式紫外線照射槽の性能評価

図5に、二種の大腸菌ファージを同時に流した流水式紫外線照射装置における理論的滞留時間とRED(換算紫外線量)との関係を示す。この図より、MS2(1log不活化に要する紫外線量 $22.94\text{mW}/\text{cm}^2$)の生残率から求めたREDの値は、X174(1log不活化に要する紫外線量 $2.18\text{mW}/\text{cm}^2$)の生残率から求めたREDの値の2.3~3.0倍であった。これは、紫外線照射装置を通過する際に水塊ごとに様々な線量を照射されていること、すなわち、紫外線量分布があることを示している。

D. 考察

(1) 濁質存在下での紫外線照射の効果

大腸菌ファージ MS2 および下水処理場最初沈殿池流出水中の大腸菌に対する回分式の紫外線照射実験の結果より、濁質が多く存在している方が、同じ生残率を達成する際に多くの照射時間を必要とした。これが濁質による紫外線到達量の減少に起因するものと考え、被照射試料の254nm吸光度を用いて試料中における紫外線の減衰を考慮して平均紫外線量で整理すると、同じ生残率となるのは同じ平均紫外線量の時であること(図4に示す大腸菌の場合)あるいは、平均紫外線量で整理すると濁質表面による散乱光を考慮していないため、濁度の高い方が不活化速度が増大すること(図2に示す大腸菌ファージMS2の場合)が示された。これは、濁質が存在している場合に予見される、濁質内部への微生物の吸着あるいは取り込みによる遮蔽効果が実験を行った範囲では見られず、すべての結果において、254nm吸光度に基づく平均紫外線量で設計をすることで安全側の効果が得られることを示している。

(2) 流水式紫外線照射槽の性能評価

実験結果より、同じ装置に同時に二種の微生物を流下させて換算紫外線量を求めると微生物種により紫外線量の値が異なることが示された。これは、紫外線照射装置における紫外線量分布が存在する場合に自明の事柄であり、それを実験的に示したことになる。

それをここであらためて議論すべきと考える理由は、その自明の事柄が厚労省によるクリプトスポリジウム等対策指針(以下、クリプト対策指針と称す。)の規定およびJWRCによるその装置の適合認定において十分に周知されているのか確信が持てなかったからである。そのため、クリプト対策指針の文言で

ある「95%以上の水量に $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ 以上の紫外線照射量」について、理想的な条件における計算を行い、換算紫外線量とクリプトスポリジウムの不活化に関する検討を行った。

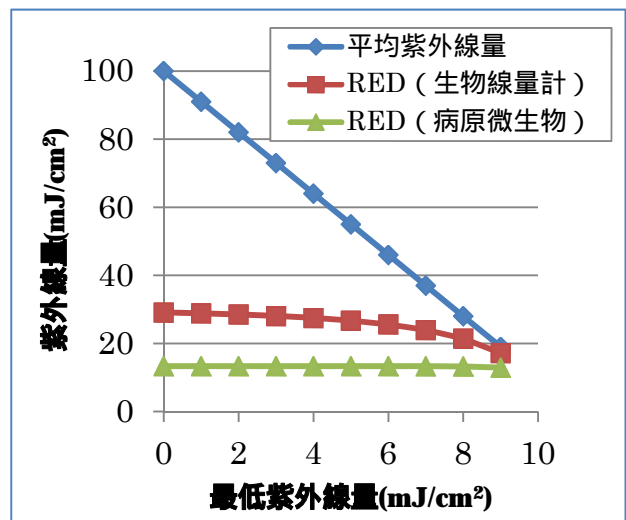


図6 紫外線量が一樣分布で95%以上 $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ 以上を達成した場合の平均紫外線量、生物線量計RED、病原微生物REDの値

図6に示したのは、クリプト対策指針の紫外線照射量の要件を一樣分布でちょうど満たした場合に、照射槽内の平均紫外線量、生物線量計(90%不活化に必要な紫外線量を $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ とした。)および病原微生物(90%不活化に必要な紫外線量を $3.33\text{mJ}/\text{cm}^2$ とした)の換算紫外線量(RED)がどのような値になるのか計算した結果である。95%以上が $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ の一樣分布を仮定しているため、最低紫外線量(横軸)が $0\text{mJ}/\text{cm}^2$ の時は $200\text{mJ}/\text{cm}^2$ までの一樣分布、最低紫外線量が2, 4, 6, 8 mJ/cm^2 の時それぞれ162, 124, 86, 48 mJ/cm^2 までの一樣分布となる。

いずれの分布においても病原微生物REDは $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ を超えた値であり、すなわち99.9%不活化が達成されている。一方で、それだけの消毒効果を得る際の生物線量計REDは $30\text{mJ}/\text{cm}^2$ という大きな値になっている。すなわち、生物線量計による換算紫外線量は病原微生物の換算紫外線量および消毒効果には一致しない。同時に、この照射槽の平均紫外線量はいずれも病原微生物と生物線量計の換算紫外線量よりも大きくなっており、紫外線照射槽内の設計を行う際には平均紫外線量を十分に大きく取らなくてはならない可能性がある。

さらに、より現実的な紫外線量分布を仮定した計算も行った。すなわち、紫外線量の5%値が $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ となり、紫外線量の標準偏差がそれぞれ1, 2, 3, 4,

5mJ/cm²である場合の平均紫外線量、生物線量計 RED、病原微生物 RED を求めた。紫外線量分布を図7に、仮定した標準偏差と各紫外線量の関係を図8にそれぞれ示す。

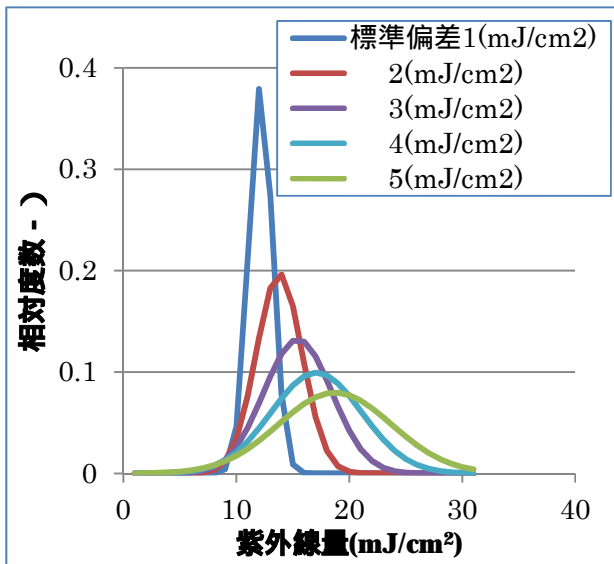


図7 5%値が10mJ/cm²となる正規分布で標準偏差が異なる紫外線量分布における相対度数

検討を行った範囲において、平均紫外線量と生物線量計 RED は標準偏差が大きくなればなるほど大きな値になったが、病原微生物 RED は標準偏差が3mJ/cm²のデータから減少し、標準偏差5mJ/cm²でかろうじて10mJ/cm²を満たす値となった。ここでも、平均紫外線量と生物線量計 RED は病原微生物 RED と異なり、大きい値になった。病原微生物の RED あるいは消毒効果をしっかりと担保するためには、ここでも大きめの平均紫外線量および生物線量計 RED を設計の際に用いる必要があると考えられた。

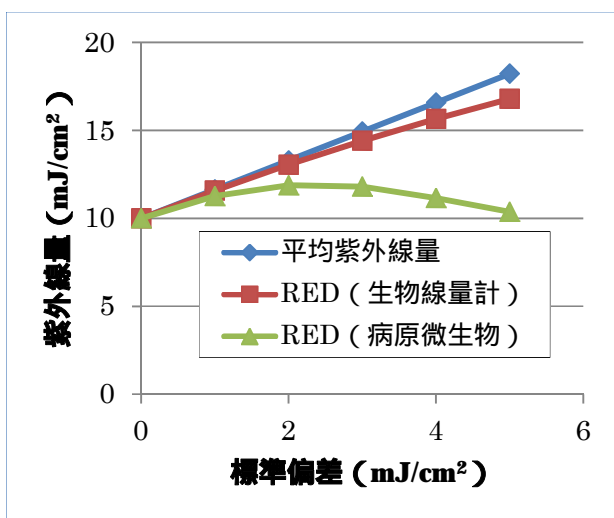


図8 図7に示す分布における平均紫外線量、生物線量計 RED、病原微生物 RED の値

(3) 流水式紫外線照射槽の性能を担保するのに必要なこと

クリプト対策指針にある「紫外線照射槽を通過する水量の95%以上に対して、紫外線(253.7nm付近)の照射量を常時10mJ/cm²以上確保できること。」自体は、5%の水に紫外線を照射せずに95%の水にだけ無限大の紫外線を照射すれば満たすように読める。しかし、同指針「紫外線処理設備の整備に関する留意事項」において「紫外線照射槽は水流の偏りのない、所定の滞留時間が得られる構造のものである

こと。」と定められているため、上記0か無限大という極端な紫外線量分布は想定されていない。

そのような要件になっている理由は以下のように推測される。すなわち、流水式紫外線照射というプロセスは確かに定常状態を仮定できる(出口における消毒効果は経時的に変化せず常に一定である。)が、水塊を細かく考え、例えば紫外線照射後にも生残している微生物を取り巻く非常に小さい水塊だけを考えると紫外線量は0であり、不活化率は0となる。そのように、紫外線照射槽の出口における消毒効果はある程度以上の水量を仮定すれば一定であるが、小さい水塊ごとに考えれば確かに変動の可能性がある。そのため、そのような紫外線量の変動が時に10mJ/cm²を少々下回ったとしても、クリプトに対する不活化性能自体には、ある程度以上の平均的な性能の観点から見れば大きな影響は無い。そのため、例えば100%、99%が10mJ/cm²以上の紫外線を受けると指定すると過大な装置になりかねないという意識があったため95%以上、という線引きがなされたのだと考えられる。

しかし、「偏りのない」という表記は定量的でないため最悪の場合を想定する必要がある。また、10mJ/cm²が「クリプトスポリジウム99.9%不活化(3log不活化)」と明記されていることから、紫外線照射槽にそのような性能を期待していることは明白である。そこで、現行の紫外線照射設備の備えるべき要件に関しては、「紫外線照射槽を通過する水量の95%以上に対して、紫外線(253.7nm付近)の照射量を常時10mJ/cm²以上確保できること。」に加えて、例えばクリプト RED を10mJ/cm²実現できること(これは、クリプト99.9%不活化を意味する。)等の表記を付加することが必要ではないかと考えられる。

紫外線照射槽は、95%以上に10mJ/cm²の紫外線を照射することそのものよりも、クリプト99.9%の不

活化が本来の目的であり、それにより直結した紫外線照射槽の要件を定めるべきであると考える。

E．結論

- ・実験を行った範囲において、濁質の存在により紫外線消毒の効果は減じられ、濁質が無い場合よりも大きな照射時間を要した。しかし、濁質による紫外線照射効果の低減は吸収よりも大きなものは無く、254nm 吸光度を測定して得られる平均紫外線量を用いれば、濁質の無い試料における不活化率と同じ不活化率を濁質の存在する試料で得るには同じかあるいはより少ない照射時間を必要とした。濁質による紫外線の散乱が不活化効率を増大させているものと考えられた。よって、濁質による紫外線照射の効果算定する場合には、254nm 吸光度を用いて平均紫外線量を算定することで安全側の対応が可能である。
- ・紫外線耐性の異なる二種の微生物を同時に流水式紫外線照射装置に流した場合には、その微生物の紫外線耐性に応じて、異なる換算紫外線量が算出されることが実験的に確認できた。これは、流水式紫外線照射槽の性能を評価する場合に、単一の微生物の不活化実験の結果だけでは病原微生物に対する効果を予測できないことを表している。
- ・紫外線照射槽の性能評価において、水量の95%以上に対して10mJ/cm²以上という表記は、常識的な紫外線量分布においてクリプト99.9%を達成できていることが計算により示された。しかし、極端な装置においてはそれを達成できない可能性があり、さらに要件を付加する必要があるのではと考えられた。

F．健康危険情報

特になし

G．研究発表

1．論文発表

無し

2．学会発表

1) Akihiro Ishida and Naoyuki Kamiko (2015.12)

Inactivation and photoreactivation of E.coli in secondary treated wastewater by various UV light sources: The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015

2) Nodoka Kanzaki and Naoyuki Kamiko (2016.2)

Ultraviolet resistance of indigenous coliphages and their DNA found in wastewater: IUVA 2016 World Congress & Exhibition

3) 中村栄希、神子直之(2016.3) 流水式紫外線装置における微生物を用いた性能評価に関する検討、

第50回日本水環境学会年会、徳島

4) 石田晃啓、神子直之(2016.3) 指標細菌の不活化速度に対する紫外線波長ごとの濁質による影響の把握、第50回日本水環境学会年会、徳島。

H．知的財産権の出願・登録状況

1．特許取得

無し

2．実用新案登録

無し

3．その他

無し