

地表水を対象とした浄水処理の濁度管理技術を補完する 紫外線処理の適用に関する研究

研究分担者 小熊久美子 東京大学先端科学技術研究センター

研究要旨

地表水を原水とする浄水場への紫外線処理導入の可能性を検討するため、性状の異なる標準粒子を添加した試料で大腸菌および大腸菌ファージ MS2 の不活化実験を行った。その結果、カーボンブラック粒子が高濃度で存在すると微生物の不活化効率が低下した一方、白色ポリスチレン粒子が高濃度で存在すると不活化効率が上昇し、白色粒子による紫外線の散乱が不活化に寄与したと推察された。異なる粒子条件で実施した MS2 の不活化速度定数を比較した結果、濁度 0.5-1.5 度、色度 13 度以上、紫外線透過率 56-70% 程度と紫外線処理に不利な条件でも、粒子添加なしの場合（濁度 0.0 度、色度 0.7 度、紫外線透過率 97%）と不活化速度に有意な差はなかった ($p>0.05$)。逆に、濁質で不活化速度が有意に低下した試料は、濁度 50 度以上の極端な条件に相当し、実務上は紫外線処理以前に水質事故（処理機能の著しい低下）として検知可能なレベルと推察された。すなわち、降雨に伴う原水濁度の急上昇など地表水に特徴的な水質変動は、紫外線照射より上流の処理工程で対応する設計思想が有効と考えられた。

本研究により、水中に懸濁粒子が存在しても紫外線消毒を阻害しない場合や、粒子による紫外線の散乱で消毒効率が上がる場合のあることが示された。紫外線処理は濁度上昇に対して一定の頑健性を有しており、浄水処理で想定される濁度変動の範囲では、濁度による紫外線処理性能の低下は無視できる（有意差を検知できない）レベルであることが示唆された。また、少なくとも現行の地表水以外への紫外線適用要件（濁度 2 度以下、色度 5 度以下、紫外線透過率 75%以上）を満たす限り、原水の由来が地表水か地下水かによらず、濁質による処理効率の有意な低下は生じないと考えられた。紫外線処理の適用は、原水の由来ではなく、紫外線を照射する段階の水質で判定することが合理的と考えられた。

A. 研究目的

2007 年 3 月に通知された「水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針」改訂版¹⁾では、水道原水に係るクリプトスポリジウムによる汚染の可能性の程度を四段階に分類し、各レベルに応じた措置

を示している。指針において紫外線処理の適用が認められるのは、原水中に指標菌（大腸菌又は嫌気性芽胞菌）が検出され地表水以外を原水とする施設（レベル 3）であり、原水中に指標菌が検出され地表水を原水とする施設（レベル 4）は、

クリプトスポリジウム汚染の可能性がもっとも高いと推定される分類であるにもかかわらず、紫外線処理は推奨されていない。その理由のひとつとして、地表水は地下水に比べて土砂等を多く含み、濁度等の水質変動が大きいとの懸念がある²⁾。しかしながら、紫外線を利用した水処理技術が普及している北米では、原水によらず紫外線処理の適用が認められており、アメリカとカナダで紫外線処理を備えた浄水施設 123 箇所を調査した事例³⁾では、地表水（地表水の影響を受ける地下水を含む）を原水とする施設が全体の 76%を占めた。これら北米の施設では、原水水質が極めて良好な特例を除き、地表水を原水とする浄水場ではろ過処理の後に紫外線照射槽を設置しており、豪雨等に伴う原水濁度の急上昇など地表水に特徴的な水質変動は、紫外線照射より上流の処理工程で対応する設計思想が見られる。一方、日本の地表水を水源とする浄水場では、原水および処理工程水の水質変動を紫外線処理の適用可能性という観点から整理した知見は乏しい。

本研究では、平成 26 年度に地表水を原水とする国内の浄水場 2 施設（いずれも急速ろ過方式）を対象に、原水および処理工程水（凝集沈澱水およびろ過水）における水質の変動幅を調査した⁴⁾。その結果、原水水質は台風や降雨の後に大きく変動したものの、処理工程水では台風直後を含むすべての試料で水質が安定し、凝集沈澱水では 14 試料中 13 試料、ろ過水では 14 試料すべてが、現行指針の示す地表水以外に対する紫外線処理適用の水質要件（濁度 2 度以下、色度 5 度以下、

253.7nm 付近の紫外線透過率が 75%を超えること）¹⁾を満たした。これにより、国内の地表水を原水とする浄水場でも、ろ過処理の後段であれば、紫外線処理が有効に機能しうることを報告した⁴⁾。

翻って、地表水を原水とする施設への紫外線処理導入の適否を論じるには、紫外線照射より上流の処理工程で事故が生じるリスクを想定し、それに伴う水質悪化が紫外線消毒効率に及ぼす影響を正しく理解する必要がある。ろ過処理等の機能低下で増加し紫外線処理を阻害しうる物質として、水中の懸濁粒子がある。懸濁粒子は、紫外線の水中への透過を阻害したり、微生物を紫外線から遮蔽したりして、処理効率を低下させる可能性がある^{5, 6, 7)}。

上記の背景を踏まえ、本年度の研究目的を以下の通り設定した。

- 1) 濁質粒子の特性（素材、色、粒径）が紫外線処理に及ぼす影響について、実験データの解析と知見の整理
- 2) 3年間の総括として、装置設計や運転方針など実務に資する情報の発信

B. 研究方法

実験は以下の通り実施した。平成 27 年度報告書⁸⁾と一部重複するが、本年度の結論に直接関与する主要な部分について、改めて報告する。

1. 試料の調整

標準粒子として、カーボンブラック粒子（黒、0.1-0.2 μm 、Aqua-Black-001、東海カーボン）、ポリスチレン粒子（白、

0.2 μm または 1.0 μm 、Polybead® Microspheres, Polyscience 社製; 黒、0.2 μm または 1.0 μm 、Polybead® Black Dyed Microspheres, Polyscience 社製) の 5 種を選定し、粒子の個数濃度 (個/mL) で条件を調整した (表 1)。一部の濃度条件については、濁度等の水質分析のみ実施し、微生物試験では採用しなかった。なお、選定した 0.2 μm 、および 1.0 μm の粒径は、平成 26 年度に調査した台風・降雨直後の地表水系浄水場原水の粒径分布のピークに相当する⁴⁾。粒径分布はナノトラック粒度分析計 (UPA-EX150, NIKISSO)、粒子濃度は Nano sight (LM10, Malvern) で測定した。

表 1. 採用した標準粒子の種類と濃度

素材	色	略称	公称粒径 (μm)	粒子濃度 (個/mL)		
				10^{10}	10^9	10^8
カーボンブラック (親水性)	黒	CB	0.12-0.21	○	○	-
	白	W0.2	0.2	○	○	-
ポリスチレン	黒	B0.2		△	○	-
	白	W1.0	1.0	-	○	○
	黒	B1.0		-	△	△

○ : 微生物試験実施、
 △ : 水質分析実施、微生物試験は実施せず、
 - : 試験せず

滅菌済みリン酸緩衝液 (1/15 mol/L、pH 7.2) に、いずれかの標準粒子を表 1 にしたがって調整した後、微生物 (大腸菌 K12 IFO3301 又は大腸菌ファージ MS2) を添加して試験水とした。表 2 に、微生物添加後の試験水水質を示す。表 2 における粒子濃度 0 とは、標準粒子を添加せずに微生物のみを添加した試料の水質を示す。紫外線透過率、濁度、色度はいずれも後述する分析方法により測定した。

2. 紫外線照射

試験水 35mL をボルテックスで 2 分間攪拌し粒子や微生物を均質化したのち、内径 85mm のシャーレに入れて攪拌子で混合しながら回分式で照射した。照射は独立して 3 回実施した。光源として低圧水銀ランプ (GL15, TOSHIBA) を用い、試料表面の紫外線 (254nm) 線量率を紫外線強度計 (UVR-2, TOPCON) で 6 回測定し、その平均値を当該試験日の表面線量率とした。実験期間を通じ、表面線量率は概ね 0.275mW/cm² であった。Bolton and Linden (2003)⁹⁾ に従い、表面線量率に、試験水の吸光による深さ方向の減衰、試料表面での反射、シャーレ表面の線量率分布の各ファクターを考慮して試料内平均線量率を算出した。表面線量率と吸光度は、試験日ごとの測定値を使用した。試料内平均線量率に紫外線照射時間を乗じ、試料内に到達した平均紫外線量を算出した。

表 2. 微生物添加後の試験水の水質（平成 27 年度報告書⁸⁾より）

粒子濃度 (個/mL)	紫外線透過率(%)				濁度(度)				色度(度)					
	10 ¹⁰	10 ⁹	10 ⁸	0	10 ¹⁰	10 ⁹	10 ⁸	0	10 ¹⁰	10 ⁹	10 ⁸	0		
大腸 菌	CB	1.3	64.0	-		59.9	5.86	-		1640	164	-		
	W0.2	3.7	64.0	-	94.7	32.5	3.48	-	1.69	82.8	12.7	-	0.00	
	B0.2	-	68.6	-		-	3.09	-		-	-	11.8		-
	W1.0	-	1.2	26.7		-	1820	183		-	-	50.4		4.13
CB	0.4	56.0	-			51.7	1.52	-			1690	169		-
MS2	W0.2	4.4	69.2	-	97.0	42.9	0.58	-	0.00	69.6	13.8	-	0.74	
	B0.2	-	68.7	-		-	1.01	-		-	-	16.4		-
	W1.0	-	0.8	38.3		-	1780	185		-	-	64.5		7.62

(- : 不活化試験を実施せず)

表 3. 地表水を原水とする浄水場の原水の水質変動幅（平成 26 年度報告書⁴⁾より）

	濁度 (度)		色度 (度)		紫外線透過率 (%)	
	浄水場 A	浄水場 B	浄水場 A	浄水場 B	浄水場 A	浄水場 B
最大値	* 42.10	10.00	* 54.70	25.20	96.2	91.6
75%値	9.08	6.35	17.33	18.67	95.8	88.1
中央値	1.97	3.83	4.83	10.50	95.1	87.1
25%値	1.30	2.35	3.58	9.58	82.7	80.9
最小値	0.70	1.77	3.17	5.50	* 63.1	77.9

(* : 統計的外れ値に相当)

3. 分析項目と分析手法

試験水の 254nm 吸光度 ($A_{254}[\text{cm}^{-1}]$) は分光光度計 (UH5300, 日立) で測定し、紫外線透過率に換算した。濁度と色度は積分球式濁色度計 (WA6000, 日本電色工業) で測定した。大腸菌 IFO3301 はクロモカルト寒天培地 (Merck 社)、大腸菌ファージ MS2 は大腸菌 K12A/λ (F+) を宿主とした重層寒天培地で測定し、コロニー形成能 (colony forming unit/mL, 以下 CFU/mL) またはプラーク形成能 (plaque forming unit/mL, 以下 PFU/mL) により生残率を算出した。なお、初期濃度について大腸菌は 10^6 CFU/mL、MS2 は 10^7 PFU/mL のオーダーとなるよう調整した。

(倫理面への配慮)

本研究は、正規に購入した微生物純粋株を適切に管理された実験室内で試験に供したものであり、倫理面の問題はない。

C. 研究結果

1. 試験水水質の特徴

表 2 より、不活化実験に供した試料はいずれも紫外線透過率が 75% を下回っており、紫外線消毒には不利な条件であった。W1.0 の濁度は突出して高く、同一の粒子濃度で比較すると、粒子が大きいと濁度は著しく高くなった。色度は、CB が突出して高く、これは試料外観の印象と整合した。

ここで、地表水を原水とする浄水場 A,B における原水水質の変動幅⁴⁾ (9 月-3 月の毎月 1 回ずつ測定、 $n=7$) を表 3 に示し、試験水の水質を比較する。

原水水質の変動幅として四分位範囲 (25% 値~75% 値の範囲) と比較すると、本実験の試験水の濁度は、BC, W0.2, B0.2 の 10^9 個/mL は概ね原水水質の四分位範囲に入るが、 10^{10} 個/mL になると高濁度で範囲外に相当した。また、原水色度の変動幅と比較すると、W0.2、B0.2 の 10^9 個/mL と W1.0 の 10^8 個/mL は概ね四分位範囲に入るが、それ以外は色度が高く範囲外であった。紫外線透過率の変動幅と比較すると、すべての試験水が原水水質の四分位範囲よりも低い透過率に相当し、すなわち紫外線処理にとって著しく不利な水質条件であることが確認された。

2. 粒子濃度と紫外線透過率の関係

粒子濃度と紫外線透過率の関係を図 2 に示す。紫外線透過率は、粒子原液を段階的にリン酸緩衝液で希釈した試料の紫外線 (254nm) 吸光度を測定し、透過率に換算した。

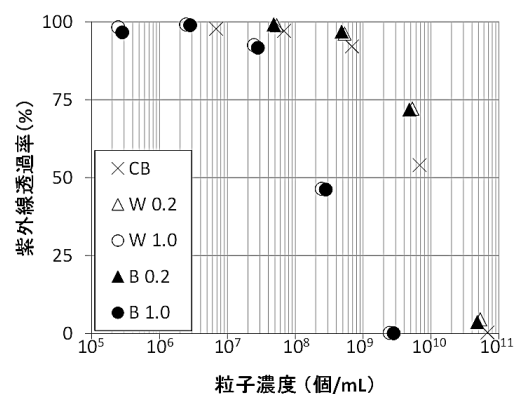


図 2. 粒子濃度と紫外線透過率の関係

図2より、0.2 μm の粒子(CB、W0.2、B0.2)は粒子濃度が 10^9 – 10^{10} 個/mLにかけて、1.0 μm の粒子(W1.0、B1.0)は 10^7 – 10^8 個/mLにかけて透過率が急低下する閾値が観察された。このように、粒径が同じ粒子は紫外線透過率低下の傾向が類似しており、紫外線透過率の低下に支配的な因子は粒子の素材や色よりも粒径であることが示唆された。

3. 不活化実験

大腸菌とMS2の不活化結果について、同一粒径(0.2 μm)で異なる粒子を添加した場合の結果を図3に、同一粒子(ポリスチレン白)で粒径を変えた場合の結果を図4に、それぞれ示す。粒子条件ごとに紫外線照射を独立して3回実施し、プロットはその平均値、エラーバーは最大値と最小値を意味する。いずれの条件でも、大腸菌は肩のある不活化曲線を示し、MS2は一次反動的に不活化された。

図3より、粒径0.2 μm の 10^9 個/mLでは、不活化傾向に粒子の素材や色による差はみられないが、 10^{10} 個/mLでは粒子によって顕著に差が現れた。すなわち、CBは粒子により不活化効率が低下とテーリングがみられた一方、W0.2は粒子により不活化効率が向上した。これら試料の紫外線透過率や濁度に大差はないが、CBの黒色表面が紫外線を吸収した一方、ポリスチレン粒子はCBに比べて紫外線反射率が高いと推定され、反射や散乱が不活化に寄与した可能性が示唆された。

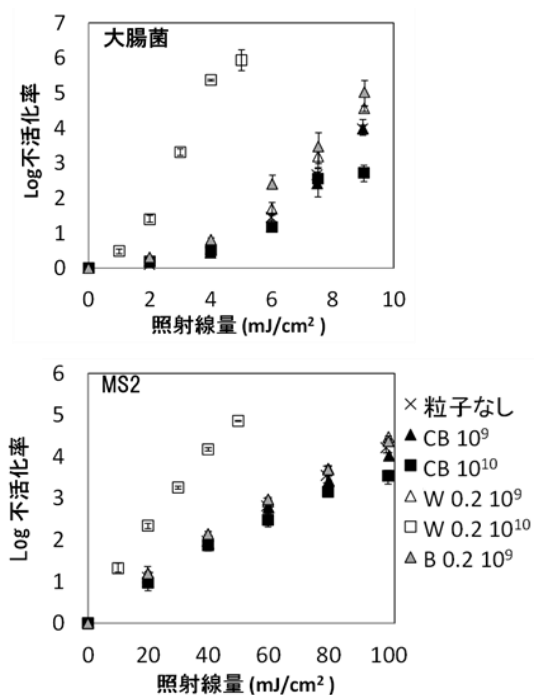


図3. 粒径0.2 μm 粒子添加時の不活化

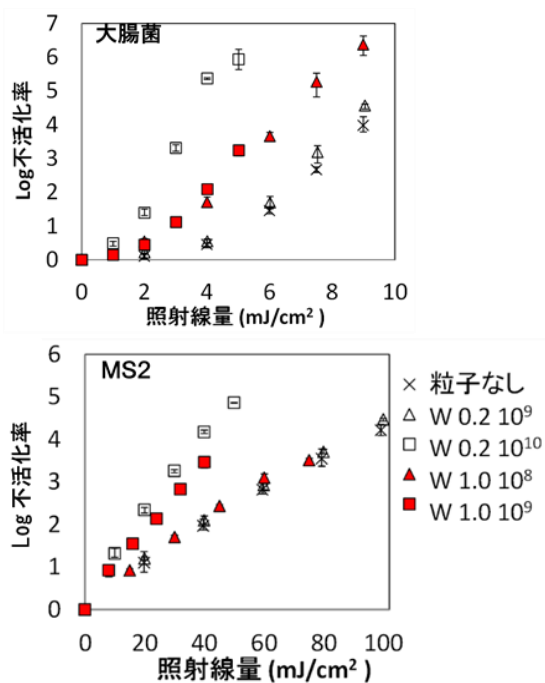


図4. 白色ポリスチレン粒子添加時の不活化

一方、図4より、同じ白色ポリスチレンで粒径と濃度が異なる場合を比較すると、実験条件の範囲では W0.2 の 10^{10} 個/mL 試料がもっとも不活化効率が高く、概して小さい粒子が高濃度で存在するほど散乱光の寄与が大きい可能性が示唆された。また、 $0.2\mu\text{m}$ 粒子による影響の程度は大腸菌と MS2 で同等であったが、 $1.0\mu\text{m}$ 粒子の影響は両者で異なる傾向があり、粒子と微生物の相対的なサイズが影響した可能性が推定された。

D. 考察

対数直線的に不活化された MS2 について、縦軸を常用対数とする不活化曲線を最小二乗法で直線回帰し、その傾きを不活化速度定数 k [cm^2/mJ] と定義した。各条件下で独立に3回ずつ照射を繰り返して k を算出し、その平均値の差を一元配置の分散分析 (Analysis of Variance, ANOVA) に供し、Scheffe テストによる多重比較で有意差を判定した。有意水準は 5% および 1% とした。表4に、MS2 の k の平均値 ($n=3$) を左から小さい順に整理し、併せて、粒子添加なしの条件で得られた k に対する p 値を示す。

不活化速度定数 k は、CB では濃度が

高いほど小さくなり、白のポリスチレン粒子では濃度が高いほど大きくなった。解析の結果、粒子添加なしの試料の k に比べて、W0.2 の 10^{10} 個/mL と W1.0 の 10^9 個/mL の k は有意に大きく ($p<0.01$)、これらの試料では散乱光が卓越し不活化に寄与したものと推察された。一方、CB の 10^{10} 個/mL では粒子添加なしの試料よりも k が有意に小さく、消毒効率の低下が認められた ($p<0.05$)。

濁質によって不活化速度が有意に低下した試料は、黒色粒子が著しく高濃度で存在する特殊な条件で、濁度 50 度以上の極端な条件に相当し、実務では紫外線処理以前に水質事故 (処理機能の著しい低下) として検出可能なレベルと推察された。すなわち、降雨に伴う原水濁度の急上昇など地表水に特徴的な水質変動は、紫外線照射より上流の処理工程で対応する設計思想が有効と考えられた。一方、CB の 10^9 個/mL、B0.2 の 10^9 個/mL、W0.2 の 10^9 個/mL、W1.0 の 10^8 個/mL の各試料と粒子添加なしの試料とで不活化速度に有意な差は無かった ($p>0.05$)。このうち、大腸菌では不活化効率が上昇した W1.0 の 10^8 個/mL (図4参照) を除く3試料 (CB の 10^9 個/mL、B0.2 の 10^9 個/mL、W0.2 の 10^9 個/mL) は、濁度

表4. MS2 の不活化速度定数 k と粒子添加なしに対する有意差検定結果

	CB 10^{10}	CB 10^9	粒子なし	B0.2 10^9	W0.2 10^9	W1.0 10^8	W1.0 10^9	W0.2 10^{10}
k (平均) [cm^2/mJ]	0.036	0.040	0.042	0.043	0.044	0.047	0.084	0.097
「粒子なし」との p 値	.020*	.955	-	.999	.970	.125	.000**	.000**

(繰り返し回数 $n=3$, * : 5%有意、** : 1%有意)

0.6-1.5 度、色度 13 度以上、紫外線透過率 56-70%と紫外線処理に不利な条件に相当したが、粒子添加なしの試料（濁度 0.0 度、色度 0.7 度、紫外線透過率 97%）と同等の不活化効率が得られた。よって、少なくとも現行の地表水以外への紫外線処理適用要件（濁度 2 度以下、色度 5 度以下、透過率 75%以上）を満たす限り、濁質による処理効率の有意な低下は生じないと考えられた。

本研究により、水中に懸濁粒子が存在しても紫外線消毒を阻害しない場合や、粒子による紫外線散乱で消毒効率が高まる場合のあることが示された。紫外線処理は濁度上昇に対し一定の頑健性を有しており、浄水処理で想定される濁度変動の範囲では、濁度による紫外線処理性能の低下は無視できる（有意差を検出できない）レベルであると推察された。また、少なくとも現行の地表水以外への紫外線処理適用要件（濁度 2 度以下、色度 5 度以下、紫外線透過率 75%以上）を満たす限り、原水の由来によらず、濁質による処理効率の有意な低下は生じないと考えられた。紫外線による水の消毒は、紫外線（光子）が水中を透過して微生物に到達し達成される。この原理を考えれば、紫外線処理の適用は、原水の由来が地表水か地下水かではなく、紫外線を照射する段階の水が一定の水質要件を満たすか否かで判断することが合理的である。ここで満たすべき水質要件は別途議論する余地があるが、少なくとも現行の地表水以外に適用される水質要件を満たす限り、紫外線処理が有効に機能することが確認された。

E. 結論

素材、色、粒径の異なる標準粒子を添加した試料について、濁度、色度、紫外線透過率の変化を分析した。また、当該試料に大腸菌または大腸菌ファージ MS2 を添加し、紫外線不活化実験を行った。その結果、以下の結論を得た。

- (1)粒子濃度と紫外線透過率の関係について、0.2 μm の粒子は粒子濃度 10^9 – 10^{10} 個/mL にかけて、1.0 μm の粒子は 10^7 – 10^8 個/mL にかけて、紫外線透過率が急低下する閾値が観察された。粒径が同じ粒子は紫外線透過率の低下傾向が類似しており、紫外線透過率低下に支配的な因子は粒子の素材や色よりも粒径であることが示された。
- (2)カーボンブラック粒子（粒径 0.1–0.2 μm ）を添加すると微生物不活化効率が低下した一方、白色ポリスチレン粒子（粒径 0.2 μm ）を添加すると不活化効率が向上した。白色ポリスチレン粒子による紫外線の散乱が不活化に寄与したものと推定された。
- (3)異なる粒子条件における MS2 の不活化速度定数を比較した結果、濁度 0.5 - 1.5 度、色度 13 度以上、紫外線透過率 56 - 70%程度と紫外線処理に不利な条件下でも、粒子添加なしの場合と不活化速度に有意差はなかった ($p>0.05$)。一方、濁質で不活化速度が有意に低下した試料は、濁度 50 度以上に相当し、実務では紫外線処理以前に水質事故（処理機能の著しい低下）として検出可能なレベルと推察された。

以上より、水中に懸濁粒子が存在しても紫外線消毒を阻害しない場合や、粒子による紫外線の散乱で消毒効率が高まる場合のあることが示された。紫外線処理は濁度上昇に対しある程度の頑健性を有しており、浄水処理で想定する濁度変動の範囲では、濁度による紫外線処理性能の低下は無視できる（有意差を検知できない）レベルであると推察された。また、少なくとも現行の地表水以外への紫外線処理適用要件（濁度2度以下、色度5度以下、紫外線透過率75%以上）を満たす限り、原水の由来によらず、濁質による処理効率の有意な低下は生じないと考えられた。総じて、紫外線処理の適否は、原水の由来ではなく、紫外線を照射する段階の水質で判定することが合理的と考えられた。

(参考文献)

- 1) 厚生労働省. 2007. 水道水中のクリプトスポリジウム等対策の実施について【健康水発第0330005号通知】
<http://www.mhlw.go.jp/file/06-Seisakujouhou-10900000-Kenkoukyoku/ks-0330005.pdf>.
- 2) 厚生労働省パブリックコメント「水道施設の技術的基準を定める省令」の一部改正等に関する意見募集の結果について、平成19年4月。
<http://search.e-gov.go.jp/servlet/Public?ANKENTYPE=3&CLASSNAME=Pcm1090&KID=495060159&OBJCD=&GROUP>
- 3) Harold Wright, David Gaithuma, Mark Health, Chris Schulz, Travis Bogan, Alexander Cabaj, Alois Schmalweiser, Marcia Schmelzer and Janet Finegan-Kelly, 2012, UV disinfection knowledge base, Water Research Foundation, Denver, CO. pp.104-106.
- 4) 小熊久美子、平成26年度厚生労働科学研究費補助金「地表水を対象とした浄水処理の濁度管理技術を補完する紫外線処理の適用に関する研究」(H26-健危-一般-004, 代表：大垣眞一郎) 平成26年度研究分担報告書。
- 5) Örmeci, B. and Linden, K. G. 2002. Comparison of UV and chlorine inactivation of particle and non-particle associated coliform. Water Science and Technology: Water Supply 2(5-6), 403-410.
- 6) Christensen, J. and Linden, K. G. 2003. How particles affect UV light in the UV disinfection of unfiltered drinking water. Journal American Water Works Association 95(4), 179-189.
- 7) Mamane, H. 2008. Impact of Particles on UV Disinfection of Water and Wastewater Effluents: A Review. Reviews in Chemical Engineering 24(2-3), 67-157.
- 8) 小熊久美子、平成27年度厚生労働科学研究費補助金「地表水を対象とした浄水処理の濁度管理技術を補完する紫外線処理の適用に関する研究」(H26-健危-一般-004, 代表：大垣眞一郎) 平成27年度研究分担報告書。

- 9) Bolton R.J. and Linden K., 2003.
Standardization of Methods for Fluence
(UV Dose) Determination in Bench-Scale
UV Experiments. Journal of Environmental
Engineering 129:209-215.

G. 研究発表

1. 論文発表

小熊久美子, 小塩美香, Jenyuk
Lohwacharin, 滝沢智. 水中の懸濁粒子
が紫外線消毒効率に及ぼす影響. 水環
境学会誌 Vol. 40, No. 2, pp. 59-65. 2017.

2. 学会発表

該当なし

H. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得

該当なし

2. 実用新案登録

該当なし

3. その他

該当なし