

平成 29 年度厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
小規模水供給システムの安定性及び安全性確保に関する統合的研究
（H29-健危-一般-004）
分担研究報告書

小型紫外線消毒装置の基礎的知見の収集と実際へ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：

小規模水供給システムに適した特徴を持つ紫外線消毒装置について、多種の微生物を対象に消毒性能を調べた。また、実施設への紫外線装置の導入可能性を探るため、施設見学と実務者ヒアリングを実施した。

実験では、複数の微生物種を対象とし、波長の異なる紫外線光源を用いて紫外線量に対する不活化応答を調べた。その結果、菌種の違いによる紫外線の波長感受性の違いを定量的に示した。また、従属栄養細菌の紫外線感受性が低いこと（紫外線耐性が高いこと）、紫外線処理の結果として従属栄養細菌のうちでも特に紫外線耐性の高い種が選択的に残存しうることを示した。従属栄養細菌は、直接の健康リスクとの関連性は明確でないものの、水の衛生状態を示す目安として水質管理目標値が設定されており、小規模水供給システムへの紫外線消毒適用において従属栄養細菌の制御が課題であると考えられた。

一方、施設見学とヒアリングの結果から、現状では小規模施設に適した消毒方法は十分に検討されておらず、特に、消毒剤の補充や当番制での維持管理が住民の負担になっている実情が伺えた。消毒剤のにおいに対する抵抗感から消毒を実施しない小規模施設も多く、紫外線消毒であれば利用者の受容性が高まると期待された。総じて、水供給システムの施設規模に見合った消毒技術の開発やその持続可能な維持管理方式の検討が重要と考えられた。

A．研究目的

国連が示す持続可能な開発目標（Sustainable Development Goals, SDGs）の目標6では、「だれひとり取り残さない」をスローガンに、すべての人が安全な水と衛生施設を利用可能な世界の実現を目指している。とかく SDGs は発展途上国の文脈で語られることが多いが、日本を含む先進諸国の遠隔地において公共の上下水道施設から取り残されている、あるいは将来的に取り残されうる人々についても、同じ理念と目標が掲げられてしかるべきである。国際社会の先陣を切って人口減少と高齢社会に突入した日本が、国内の遠隔地等における水の安全性をいかに担保するかは、世界各国の道標となりうる。

過去 30 年間に国内の水道施設で生じた水質事故は施設規模が小さいほど多い傾向があり、その多くは微生物関連の水質事故である（岸田ら 2015）。この事実は、現在一般的な塩素消毒剤注入による消毒方法が、技術面と維持管理面の双方で必ずしも小規模施設に適合していないことを示唆している。

そこで本研究では、海外の小規模水供給施設での利用実績が多い紫外線消毒技術に注目し、国内の小規模水供給施設に紫外線消毒を適用する可能性と課題を明らかにすることを目指す。海外で実績があるのは従来型の水銀紫外線ランプであるが、無水銀光源である紫外発光ダイオード（UV-LED）が小規模施設での利用に一層適しているとの研究仮説にもとづき、光源に UV-LED を備えた水消毒装置の小規模施設への適用性検討を主たる研究目的とする。

B．研究方法

1．実験による検討

UV-LED を備えた水消毒装置を用いて、多種の微生物について紫外線量に対する不活化応答を調べた。回分実験では、UV-LED として発光ピーク波長 265nm, 280nm, 300nm (日機装技研) の素子を用い、波長の違いによる消毒性能の違いを調べた。対象微生物として、大腸菌、大腸菌ファージ Q、枯草菌芽胞、緑膿菌、レジオネラ属菌を用い、種による違いを検討した。比較対象として、従来型の水銀紫外線ランプ(発光ピーク波長 254nm、東芝)を光源とする不活化実験も実施した。一方、流水実験では、発光ピーク波長 285nm の素子を備えた流水殺菌装置を用いてその効果を調べた。対象微生物は、大腸菌、大腸菌ファージ MS 2、従属栄養細菌とした。従属栄養細菌については、紫外線照射後前後の菌叢変化を把握する目的で、次世代シーケンサーを用いて 16S rRNA 遺伝子配列にもとづく相同検索も行った。

2．施設見学とヒアリング

小規模水供給システムの見学とその管理体制調査のため、国内の水道組合とその管理施設、水道未普及地区に整備された飲料水供給施設を訪問しヒアリングを実施した。

C．研究結果及びD．考察

1．実験による検討

(1) 回分式試験による微生物種ごとの波長感受性の調査

表 1 に、回分試験の結果として得られた不活化速度定数(紫外線照射量あたりの Log_{10} 不活化率)を不活化光源別、微生物種別に示す。不活加速度定数が大きいほど不活化されやすいことを示すため、本研究で調べた条件下では、不活化効果は概して 265nm の UV-LED が最も高く、次いで 254nm (低圧水銀ランプ)、280nm、300nm の順に効果が低下する傾向が見られた。これは、遺伝子塩基の光子吸収効率順と一致しており、紫外線不活化の主因が微生物遺伝子損傷であることと整合的であった。ただし、種によって 265nm 以下の順列に違いを生じる場合があり、緑膿菌では $265 > 280 > 254 > 300 \text{ nm}$ 、大腸菌では $265 = 254 > 280 > 300 \text{ nm}$ 、枯草菌芽胞では $265 > 280 = 254 > 300 \text{ nm}$ の順に不活加速度定数が大きかった。なお、等号と不等号は共分散分析により有意水準 5% で判定した統計的有意差を示す。この結果、紫外線照射量あたりの不活化効率の観点では 265nm の UV-LED が有効と考えられた。

表 1．各微生物の不活化速度定数 (cm^2/mJ) (Rattanakul and Oguma 2018 より抜粋)

	緑膿菌	レジオネラ菌	大腸菌	ファージ Q	枯草菌芽胞
低圧水銀紫外線ランプ					
254 nm	0.45	0.66	0.81	0.09	0.10
UV-LED					
265 nm	0.77	0.86	0.81	0.10	0.17
280 nm	0.51	0.45	0.56	0.06	0.10
300 nm	0.06	0.05	0.06	0.006	0.005

一方、実用化の観点からは消費電力あたりの不活化効率も重要な要素である。UV-LED は発光効率(投入電力に対する発光エネルギーの比率)が素子によって異なり、概して発光波長の短い素子ほど発光効率が低い。そこで、各微生物の $3\log$ 不活化に要する投入電力量を微生物種ごとに整理した(表 2)。同一の不活化を達成するために必要とされる消費電力は小さいほど望ましい(効率が良い)と考えられるため、本研究で調査した実験条件では、低圧水銀ランプが突出して省エネルギーで、UV-LED の中では 280nm が最も望ましく、265nm、300nm の順

にエネルギー要求量が増加した。これは、上述の発光効率が低圧水銀ランプで約 30%なのに対し UV-LED では 265, 280, 300nm の順に 0.65、1.91、2.60%と低いことが主な原因である。現在、UV-LED の素子開発の進行に伴い素子の発光効率が改善傾向にあり、今後の素子性能向上に期待する。

表 2 . 各微生物の 3 Log₁₀ 不活化に要する消費電力 (kWh/m³)
(Rattanukul and Oguma 2018 より抜粋)

	緑膿菌	レジオネラ菌	大腸菌	ファージ Qβ	枯草菌芽胞
低圧水銀紫外線ランプ					
254 nm	1.08 × 10 ⁻²	0.65 × 10 ⁻²	0.99 × 10 ⁻²	4.86 × 10 ⁻²	6.45 × 10 ⁻²
UV-LED					
265 nm	0.39	0.24	0.41	2.02	1.63
280 nm	0.17	0.15	0.17	1.11	0.83
300 nm	1.22	0.96	1.22	7.44	17.4

(2) 流水試験による従属栄養細菌の不活化

回分式試験よりも実装に近い条件での性能を調べるため、流水式 UV-LED 装置を用いた不活化実験結果の一例を図 1 に示す。図 1 より、水を循環させずに単回照射 (ワンパス) する条件で大腸菌不活化率 2.2log (不活化率 99.4%) を達成可能な装置でも、従属栄養細菌はほとんど不活化できず、試験した範囲では最も不活化されにくい微生物群であった。

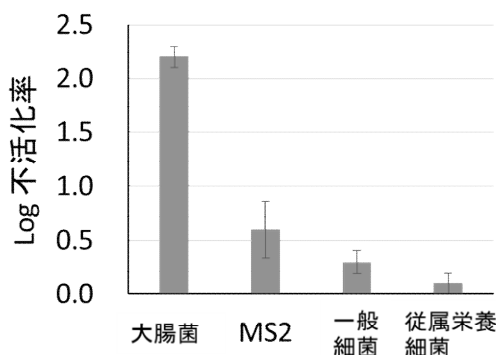


図 1 . 流水式 UV-LED 装置による不活化性能 (流量 2L/min、循環なしの単回照射)
(エラーバーは標準偏差、n=3)

また、「従属栄養細菌」は操作定義 (貧栄養、20 - 25 °C、7 日間の培養でコロニーを作る細菌) として規定されるため多様な菌種を含むが、水道水中の従属栄養細菌から形態学的特徴の異なる白色、黄色、ピンク色のコロニー形成が確認され、UV-LED を照射すると白・ピンクのコロニーの比率が高くなる (菌叢が変化すること) が観察された (図 2)。そこで、UV-LED 照射前後のコロニーを形態別に釣菌し、16sRNA の遺伝子配列にもとづく相同検索を行った結果を表 3 に示す。表 3 の通り、UV - LED 点灯の有無によらず、また、コロニーの形状 (円型または米粒型) によらず、白色およびピンク色のコロニーはいずれもメチロバクテリウム属の細菌であると推定された。すなわち、図 2 の UV-LED 照射試料で優占したのはメチロバクテリウムと推認された。メチロバクテリウム属は塩素耐性が高いために水道水や給配水施設中での検出率が高いことが知られているが、紫外線耐性も高いとの既往報告もあり、UV-LED を照射したことでメチロバクテリウム属が優占した本研究の結果と整合的であった。このように消毒

処理がある種の選択圧となって一部の微生物種が優占する現象は UV-LED に限らずあらゆる消毒剤・消毒方法で生じうるが、Point-of-Use や Point-of-Entry など水利用の直前で UV-LED を適用し後段のバリアなくそのまま消費する利用形態を想定する場合にどのような影響が生じうるかは、今後慎重に検討する必要がある。

従属栄養細菌は細菌群の総称でありその存在自体が必ずしも健康リスクを意味しないが、水の衛生状態を示す目安として水質管理目標設定項目 2000 個/mL が示されている。また、従属栄養細菌として検出される細菌群に院内感染や日和見感染の原因菌が含まれる場合もある。UV-LED 照射による従属栄養細菌の制御については、特定種の優占を生むことの公衆衛生上の意味も含めて、今後の研究において丁寧な検討・検証を行う。

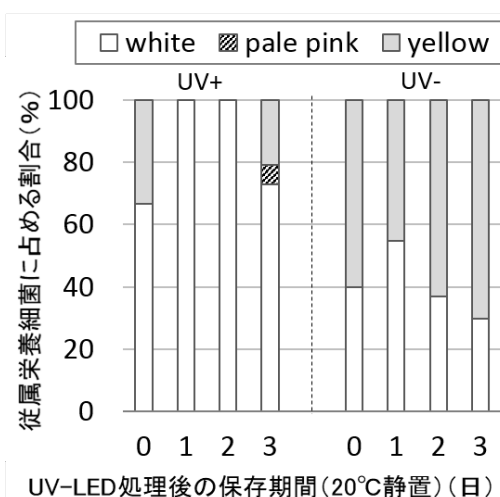


図2 . UV-LED 処理後の従属栄養細菌叢の変化
 (UV+ : UV-LED 点灯して装置通水、UV- : UV-LED 点灯せずに装置通水)
 (Oguma *et al.* 2018 より一部改編)

表3 . 従属栄養細菌の相同検索結果 (Oguma *et al.* 2018 より一部改編)

Sample	Color	Shape	Species	Identity (%)
UV+	white	rice	<i>Methylobacterium</i> sp.	100
			<i>Methylobacterium populi</i> strain	99
	white	round	<i>Methylobacterium</i> sp.	100
	pale pink	round	<i>Methylobacterium</i> sp.	99
	yellow	rice	<i>Novosphingobium</i> sp.	99
UV-	yellow	round	<i>Novosphingobium</i> sp.	99
	white	rice	<i>Methylobacterium populi</i> strain	100
		round	<i>Methylobacterium</i> sp.	100
	yellow	rice	<i>Novosphingobium</i> sp.	99
yellow	round	<i>Novosphingobium</i> sp.	99	

2. 施設見学とヒアリング

国内の水道組合とその管理施設、水道未普及地区に整備された飲料水供給施設を訪問し、施設を見学したほか、実務者にヒアリングを実施した。その結果、現状では小規模施設に適した消毒方法は十分に検討されておらず、特に、消毒剤の補充や当番制での維持管理が住民の負担になっている実情が伺えた。また、塩素消毒剤のにおいに対する抵抗感から消毒を実施していない小規模施設も多く、味やにおいに一切影響を及ぼさない紫外線消毒であれば利用者の受容性が高まると期待された。一方、仮に紫外線消毒を導入する場合、紫外線には消毒の残留効果がないため処理水は保存に適さないことを利用者に十分に周知するなど、技術導入と情報提供を並行して実施する必要性を認識した。総じて、水供給システムの施設規模に見合った消毒技術の開発やその持続可能な維持管理方式の検討が重要と考えられた。

E. 結論

紫外線消毒装置について基礎検討を行い、波長の違いや菌種の違いにより効果が異なることを確認した。導入可能性について現地ヒアリングを行い、導入に対するニーズと期待が高いことを改めて認識した。実験室規模の基礎検討として、波長の異なるUV-LEDを用いて数種の微生物の不活化特性を解明し、その知見に関する学術論文を国際学術誌（Water Research）に発表した。また、流水殺菌用のUV-LED装置試作機を用いて水道水中の従属栄養細菌不活化実験を実施し、一定の不活化効果がある一方で、紫外線照射により紫外線耐性が相対的に高い種が選択される現象を確認し、国際学術誌（Photochemistry and Photobiology）に発表した。なお、紫外線耐性が高い種が選択されて残存する現象の再現性や公衆衛生上の意味、健康リスクとの関連付け等については、今後の研究における重要課題として取り組む計画である。さらに、施設見学とヒアリングを通じて小規模施設での消毒技術へのニーズを再認識するとともに、今後の技術的課題や住民参加型の維持管理手法に求められる要件を把握し、今後の研究に資する知見を得た。

F. 研究発表

1. 論文発表

Surapong Rattanukul and Kumiko Oguma, Inactivation kinetics and efficiencies of UV LEDs against *Pseudomonas aeruginosa*, *Legionella pneumophila*, and surrogate microorganisms. *Water Research* 130: 31–37, 2018. (published online on Nov 23, 2017)

Kumiko Oguma, Kaori Kanazawa, Ikuro Kasuga and Satoshi Takizawa. Effects of UV Irradiation by Light Emitting Diodes on Heterotrophic Bacteria in Tap Water. *Photochemistry and Photobiology*, in press (Early view published online in February 2018). DOI · 10.1111/php.12891

細井山豊、小熊久美子、滝沢智. 大腸菌の不活化と光回復を考慮した紫外発光ダイオード (UV-LED) の評価. 土木学会論文集 G(環境)、Vol.73, No.7, 337-343. 2017年11月.

小熊久美子. 紫外発光ダイオード (UV-LED) の水処理光源としての魅力. 用水と廃水、vol.59、No.4、177-281、2017年4月.

2. 学会発表

小熊久美子. 深紫外 LED を利用した水処理 -研究最前線と将来展望-. 深紫外 LED で創生される産業連鎖フォーラム、三重大学、2018年3月2日. (招待講演)

Kumiko Oguma. Expansion of UV Light-Emitting diodes, UV-LEDs, to Water Treatment, IUVA Symposium: UV Technology Advancement for Water Environment. Singapore. November 6, 2017. (招待講演)

小熊久美子. 紫外発光ダイオードの水処理への展開. 第46回結晶成長国内会議 (JCCG-46)、浜松、2017年11月27日. (招待講演)

細井山豊, 小熊久美子, 滝沢智. 大腸菌の不活化と光回復を考慮した紫外発光ダイオード (UV-LED) の評価. 第 54 回環境工学研究フォーラム, 岐阜大学. 2017 年 11 月 18 日.

小熊久美子. 紫外線を利用した水処理技術の最前線. 第 20 回日本水環境学会シンポジウム, 和歌山大学, 2017 年 9 月 27 日.

Kumiko Oguma and Rattanakul Surapong. Inactivation of *Pseudomonas aeruginosa*, *Legionella pneumophila* and Common Indicator Microorganisms by UV-LEDs at Different Wavelengths. IUVA 2017 World Congress & Exhibition, Dubrovnik, Croatia, September 18, 2017.

G . 知的所有権の取得状況

なし