

令和元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 東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 准教授

研究要旨：

小規模水供給システムに適した小型紫外線消毒装置の候補として、紫外発光ダイオード（UV-LED）を光源とする流水殺菌装置 2 機種を選定し、山間の沢水を未処理で供給する給水栓に UV-LED 装置を設置して約 1 年間の実証試験を行った。未処理の原水では散発的ながら大腸菌陽性の場合や従属栄養細菌が水道水質管理目標値を超過する場合がありますが、常時飲用には消毒が望まれた。一方、UV-LED 処理水では細菌濃度、検出率とも低下し、処理水中の最大濃度は大腸菌、大腸菌群、一般細菌、従属栄養細菌の順に 0.5, 1.0, 6.0, 485 CFU/mL で、試験期間を通じて大腸菌不検出を達成した機種もあった。装置による従属栄養細菌の不活化率に運転時間経過に伴う低下傾向は認められず、供用後の装置内部に顕著なスケール生成等も見られなかった。本研究により、分散型水処理技術として UV-LED 装置を活用する可能性が示された。

A．研究目的

過去 30 年間(1983 - 2012 年)に国内で発生した飲料水に由来する健康危機事例約 590 件(健康被害には至らないが給水停止や応急給水などにより生活に支障を生じた事例も含む)のうち、実際に健康被害(死亡、発症など)を生じた事例約 130 件のほとんどは微生物を原因とする水系感染症で、その 44%は小規模水供給施設で発生していた(岸田ら 2015)。一方、H29、H30 年度に研究班として実施した小規模水供給施設の見学と実務者ヒアリング検討により、現状の小規模施設の課題として、施設規模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。加えて、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かった。すなわち、小規模水供給施設における消毒の強化が求められる一方で、現在普及している次亜塩素酸水溶液による消毒は小規模な施設のニーズに必ずしも適していない実態がある。

そこで本研究では、電力があれば導入可能で、薬剤を必要とせず、維持管理が比較的容易で、水の味やにおいに一切影響しな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検討することとした。その際、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した。また、実証試験では、単発的に装置を屋外に設置して実験するのではなく、できるだけ長い期間継続運転することが重要と考えた。これは、実験室規模において UV-LED 消毒装置の不活化効果に関する基礎的知見は蓄積されつつあり、筆者自身の論文を含めて既往研究が増加の一途をたどっている一方、実証規模において実際に飲用に供する水(地下水・沢水など)を対象とする実証実験の知見は世界的にみても極めて乏しいことを踏まえた着眼であり、装置の実用化にあたっては長期運転に伴う性能低下やメンテナンス頻度などの知見が不可欠と考えたためである。上記を踏まえ、UV-LED を備えた水消毒装置をおよそ 1 年間に及ぶ実証試験に供し、その性能を定期的にもモニタリングすることで、紫外線装置の小規模施設への適用性と課題を明らかにすることを本研究の目的とした。

B. 研究方法

1. 実証実験

(1) 装置概要

実用化に資する装置の候補として、紫外発光ダイオード (UV-LED) を光源とする流水殺菌装置 2 機種 (日機装技研) を選定した。

・装置 A: 設計処理流量 2 L/min

・装置 B: 設計処理流量 10 L/min

ここで示す設計処理流量はあくまでメーカーが装置設計に設定した流量であり、他の流量での運転を排除するものではない。本研究では、装置 A (2L/min 用) は、蛇口ごとに取り付けて使う Point-of-Use (POU) 型の利用に、装置 B (10L/min 用) は建物の入り口に取り付けて使う Point-of-Entry (POE) 型の利用に適すると判断し、実証試験では両装置を並列に運転して性能を比較することとした。

(2) 試験地概要と期間

試験の場として、国内某所の個人宅敷地内にある私設の給水栓を選定した。当該住宅は公共水道給水区域に立地し、飲用を含む生活用水は公共水道を使用している。一方、本研究で装置を設置した私設給水栓は、公共水道とは別に集落の営農等の雑用水として沢水を未処理のまま宅内に引き込んだもので、現在は手洗いや野菜・農具洗浄等のために用いられている。なお、集落内の近隣住民の多くが同様の方式で沢水を利用している。

試験は 2018 年 6 月から 2019 年 6 月の約 1 年間実施し、概ね毎月 2 回 (隔週) の頻度で採水した。ただし 2018 年 9 月末の台風被害により 10 月と 11 月前半の計 3 回のデータ欠損があり、実証試験期間中の独立採水回数は計 21 回であった。なお、この台風被害は山間の原水導水管の目詰まりと停電による運転停止であり、装置本体に台風による目立った損傷はなかった。

(3) 試験実施方法

- 1) 装置 A, B とともに定格電流 350mA (LED あたり) により LED 点灯開始、以降台風による中断期間を除きすべて点灯状態を維持した。
- 2) 装置 A, B それぞれについて、順に 2 L/min, 10 L/min の定流量で通水した。
- 3) UV-LED 装置前 (原水) および UV-LED 装置後の試料を採水し、東京大学へ冷蔵輸送の後、採水後 24 時間以内に表 1 に従い細菌数を培養法で測定した。検水量は全て 1 mL とした。
- 4) 微生物以外の一般的な水質項目として、以下の水質について、採水時 (現場) または浜松市内の実験施設で測定した。
: 濁度、色度、硬度、鉄、マンガン、水温、pH、電気伝導率、流量
- 5) 一部試料について、東京大学で紫外域吸光スペクトル (220-400nm) を測定し、紫外線線透過率を算出した。

表 1 微生物測定項目と測定方法 (検水量は全て 1 mL)

大腸菌	クロモカルトコリフォーム培地、37℃で一晩 (18 時間程度) 培養の後コロニー数を計測、青～深紫のコロニーを大腸菌と定義
大腸菌群	クロモカルトコリフォーム培地、37℃で一晩 (18 時間程度) 培養の後コロニー数を計測、赤～赤紫のコロニーを大腸菌以外の大腸菌群と判定、青 + 赤のコロニー総数を大腸菌群数と定義
一般細菌	LB 培地、37℃で一晩 (18 時間程度) 培養の後、乳白色コロニー数を計測
従属栄養細菌	R2A 寒天培地、25℃で 7 日間培養の後、乳白色コロニー数を計測

(倫理面への配慮)

本研究は、既設の非飲用用途の給水栓における実証試験であり、現場に存在する細菌野生株を対象にした研究である。試験微生物の系外からの持込はない。試験地の選定にあたり、当該給水栓の所有者および当該地区管轄の行政担当者に研究の目的と方法、予想される不利益やリスクについて十分に説明し、同意を得たうえで試験地を決定した。さらに、試験開始前に再度、現地で研究の目的、方法、期間、不利益やリスクについて所有者および行政担当者に説明し、口頭で同意を得た。実証試験に供した試料はすべて排水し、非飲用・洗浄用途を含め一切使用はしていない。試料は採水後密栓のうえ東京大学に冷蔵輸送し、東京大学の実験安全管理指針に基づき分析したのち、オートクレーブ滅菌を経て適切に廃棄した。

C. 研究結果及びD. 考察

1. 実証実験結果

(1) 原水水質

表2に、一般的な水質項目の変動幅を示す。試験期間を通じて、総じて極めて清澄な水質であった。また、紫外線透過率の測定結果の例として、図1に2018年7月試料の結果を示す。当該試料は濁度0.1度、色度0.9度であり、期間中に採水した試料として概ね平均的な水質であったことから、原水は試験期間を通じて概ね同等の高い紫外線透過率であったと推察された。

表2 実証試験原水の水質概要
(2018年6月~2019年6月、概ね毎月2回測定、n=21)

濁度	度	0.1 未満	0.1
色度	度	0.5 未満	2.2
硬度	mg/L	36.0	55.0
鉄	mg/L	0.01 未満	-0.02
マンガン	mg/L	0.005 未満	
水温(採水時)	□	6.2(2月)	29.0(8月)
pH	-	7.4	7.9
電気伝導率	mS/m	8.8	13.9

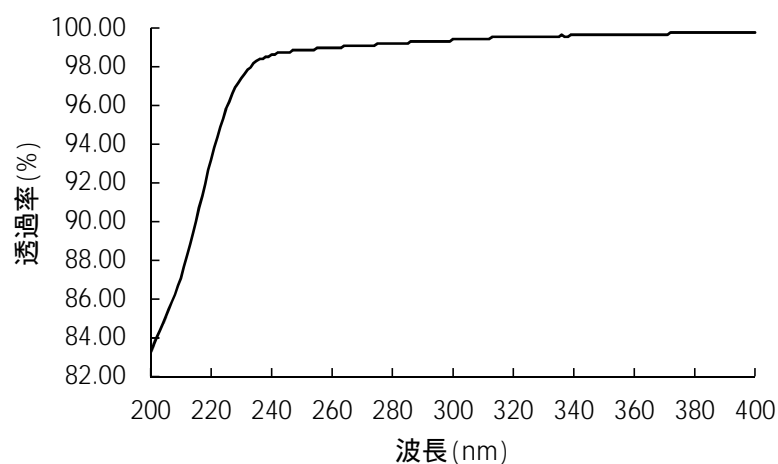


図1 原水の紫外線透過率(%) (2018年7月17日採水試料の例)
(98.9% at 254 nm, 99.1% at 265 nm, 99.2% at 280 nm)

(2) 原水および処理水の微生物測定結果

原水および装置 A 処理水、装置 B 処理水中の大腸菌、大腸菌群、一般細菌、従属栄養細菌の濃度を図 2, 3, 4, 5 の順に示す。また、一年間のデータを総括した一覧表を表 3 に示す。

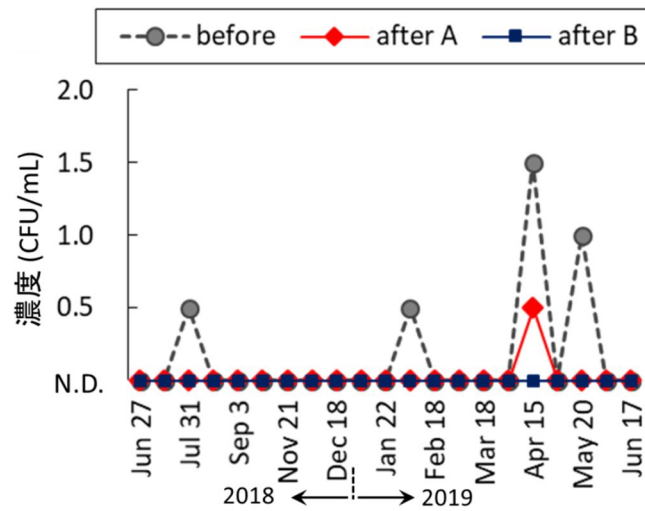


図2 原水および装置 A, B 処理水の大腸菌濃度 (小熊と渡邊 2020 より改変、N.D.は不検出)

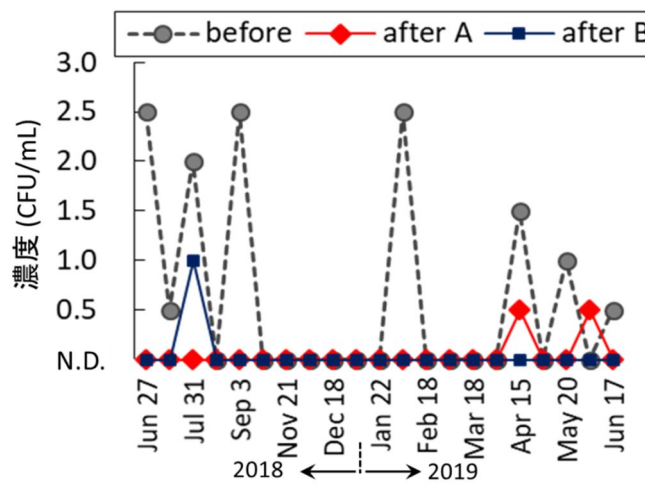


図3 原水および装置 A, B 処理水の大腸菌群濃度 (小熊と渡邊 2020 より改変、N.D.は不検出)

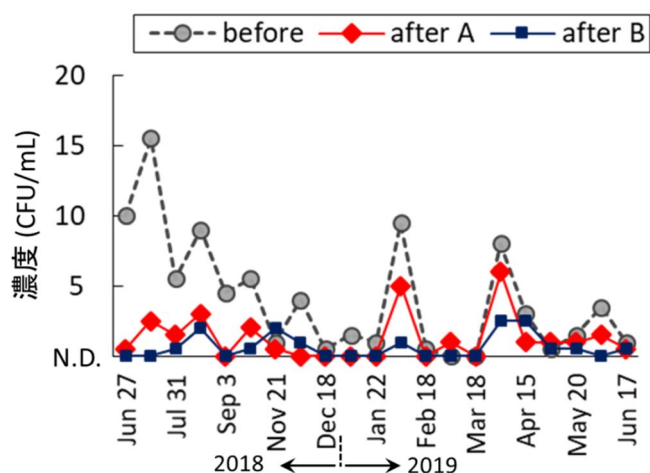


図4 原水および装置 A, B 処理水の一般細菌濃度
(小熊と渡邊 2020 より改変、N.D.は不検出)

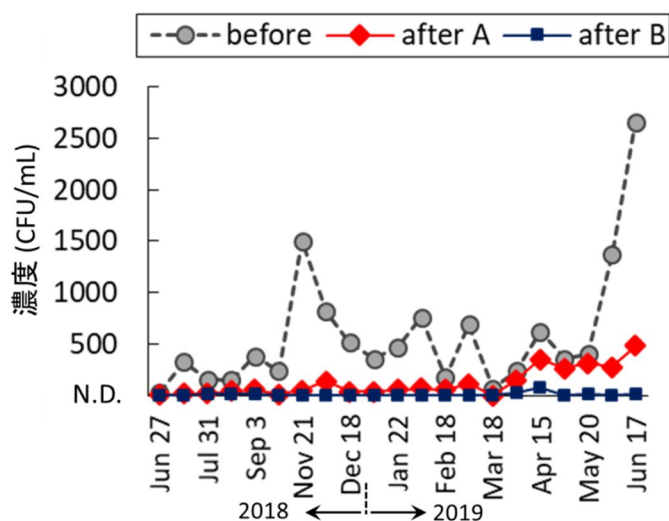


図5 原水および装置 A, B 処理水の従属栄養細菌濃度
(小熊と渡邊 2020 より改変、N.D.は不検出)

表3 大腸菌 (EC)、大腸菌群 (TC)、一般細菌 (SPC)、従属栄養細菌 (HPC) の
原水、装置 A 処理水、装置 B 処理水中の濃度の変動幅
(小熊と渡邊 2020 より改変)

	原水		装置 A 処理水		装置 B 処理水	
	最小 - 最大 (CFU/mL)	陽性率	最小 - 最大 (CFU/mL)	陽性率	最小 - 最大 (CFU/mL)	陽性率
EC	N.D. - 1.5	19.0%	N.D. - 0.5	4.8%	N.D.	0.0%
TC	N.D. - 2.5	38.1%	N.D. - 0.5	9.5%	N.D. - 1.0	4.8%
SPC	N.D. - 15.5	90.5%	N.D. - 6.0	66.7%	N.D. - 2.5	52.4%
HPC	30.5 - 2650	100.0%	3 - 485	100.0%	N.D. - 82	81.0%

独立採水試料数 n=21、N.D.は不検出 (検出下限値 0.5 CFU/mL 未満)

原水中の大腸菌，大腸菌群，一般細菌，従属栄養細菌は不検出または概ね低い濃度で推移した。住民からは，原水について野生動物由来の糞便汚染が気になるとの意見があったが，本研究で測定した範囲では大腸菌の濃度が総じて低く，そのような汚染の兆候は見られなかった。しかし，散発的ながら大腸菌陽性の場合や，従属栄養細菌が水道水質管理目標設定値（2000 CFU/mL）を超過する場合があったことから，常時飲用に供するには消毒処理が望ましいと判断された。

処理水では，装置 A, B いずれの場合も全ての微生物項目において濃度が低下し，さらに，総じて検出率が低下した（表 3）。特に，装置 B では 1 年間を通して大腸菌不検出を達成した。ただし，本研究の微生物項目の検水量は実務上の制約からすべて 1 mL であり，水道水質基準に定める「100 mL 中に大腸菌が検出されないこと」と比較するには検水量を増加した慎重な判断が必要である。装置 A, B による大腸菌の不活化について，*Escherichia coli* K 12（IFO3301）を滅菌済みリン酸緩衝液（pH 7.2）に初期濃度レベル 10^6 CFU/mL で調整した試料（280 nm 光透過率およそ 96%）を用いて実験室で事前に評価した結果では，装置 A は 2 L/min で 2.5log 以上，装置 B は 10 L/min で 5.0log 以上の不活化性能を確認していた。一方，実証試験では，原水中の大腸菌濃度が最大 1.5 CFU/mL にもかかわらず装置 A の処理水中に大腸菌を検出したケースがあった。この要因はさらなる検討を要するが，一つの可能性として，実験室で継代培養した純粋株と環境中の野生株で紫外線に対する感受性が異なることが挙げられる（Hijnen *et al.* 2006）。

一般細菌について，装置 A 処理水中の濃度が 2019 年 2 月 4 日および 2019 年 4 月 1 日の試料でやや高く検出されたものの，試験期間全体を通じた装置 A による一般細菌の不活化率の変動幅（処理後不検出となった試料を除く 12 試料の平均 \pm 標準偏差として 0.47 ± 0.30 log）の概ね範囲内であり，両日の原水水質も平均的であった（濁度・色度の順に，2 月 4 日は 0.6 度・0.1 度未満，4 月 1 日は 0.5 度未満・0.1 度未満）。

次に，従属栄養細菌について，原水および処理水から検出されたコロニーは全て乳白色で，処理前後でコロニーの形態や色調に変化は見られなかった。装置 A, B による従属栄養細菌の不活化率を図 6 に示す。ここで特に従属栄養細菌の不活化率に注目したのは，その他の微生物項目（大腸菌，大腸菌群，一般細菌）では処理後に不検出となった試料が多く，処理による不活化率が初期濃度に支配されて装置性能を適切に評価しにくいためである。装置 A では，1 年間すべての処理水で低濃度ながら従属栄養細菌が検出され，従属栄養細菌の不活化率は最大 1.5log 程度，平均 0.77log 程度（ $n=21$ ）であった。平均で 1log（90%）に満たない不活化率は，従属栄養細菌の紫外線耐性が一般に高いこと（Oguma *et al.* 2018）と整合しており，原水水質や用途によっては通水する処理流量を低減させるなど運転操作上の対応が望ましいと考えられた。一方，装置 B では，処理水中に従属栄養細菌が検出された 17 試料における不活化率は最大 3.0log 程度，平均 1.8log 程度（ $n=17$ ）であった。ただし，処理後に不検出となった試料が 4 試料あったため，この値は装置 B の不活化性能を過小評価している可能性がある。装置 B の潜在的な処理性能を適切に把握するには，今後，より微生物濃度の高い原水を用いた実証試験による長期的な装置性能評価が望まれる。従属栄養細菌の不活化効果を累積運転時間で整理した図 6 において，時間経過に伴い不活化率が低下する明確な傾向は認められなかった。運転時間約 5500～6700 時間において，装置 A による不活化率が見かけ上低下した原因は不明であるが，原水の水温やその他水質項目についてこの期間に特徴的な変化はなく，また，運転 6700 時間以降の不活化率は 5500 時間以前と同等にまで回復したことから，装置性能の不可逆的な経時劣化というよりは一時的な変動と推察された。

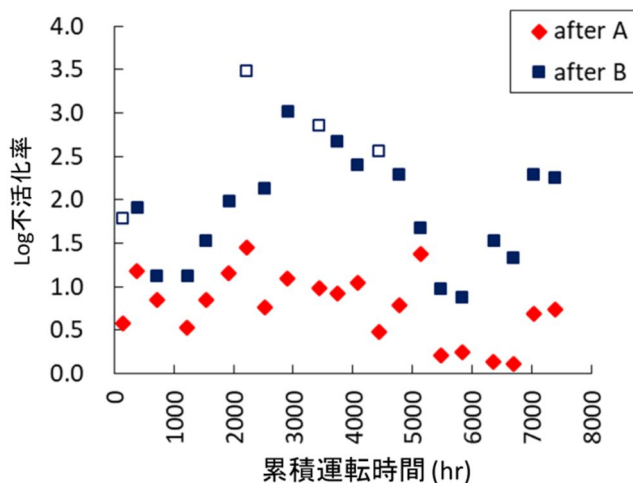


図6 装置運転積算時間に対する従属栄養細菌 Log 不活化率の変化
 (白抜きは処理水中に不検出)
 (小熊と渡邊 2020 より改変)

およそ1年にわたる実証試験の終了後、UV-LED装置を回収・分解し、内部を調査した。装置躯体(紫外線照射槽)の内部(接液部)を観察すると、装置A、Bともに未使用品と比較して内部表面への目立ったスケール付着や汚損はなかった。装置A、Bの紫外線照射槽は、主にポリテトラフルオロエチレン(Polytetrafluoroethylene, PTFE)が用いられ、紫外線を反射して不活化効率を高めるよう設計されている。よって、長期に渡る使用において照射槽内部にスケールや汚れが発生すると反射光量の減少による不活化性能低下が懸念されたが、本試験で検証した範囲では目立ったスケールや汚れがなく、約1年間の連続運転中に経時的な不活化率の低下傾向が認められなかったことと整合した。

E. 結論

本研究により得られた主な結論を以下に示す。

- 1) 未処理水では、散発的ながら大腸菌陽性の場合や従属栄養細菌が水道水質管理目標値2000 CFU/mLを超過する場合があったことから、常時飲用には消毒が望ましいと考えられた。
- 2) UV-LED処理水では、未処理水に比べて細菌の濃度、検出率とも総じて低下し、処理水中の最大検出濃度は大腸菌0.5 CFU/mL、大腸菌群1.0 CFU/mL、一般細菌6 CFU/mL、従属栄養細菌485 CFU/mLで推移し、試験期間を通じて大腸菌不検出を達成した機種もあった。
- 3) UV-LED装置による従属栄養細菌の不活化率を装置の累積運転時間で整理した結果、時間経過に伴う不活化率の低下傾向は認められなかった。
- 4) 実証試験供用後の装置内部に目立ったスケールや汚損等は観察されず、従属栄養細菌の不活化率に経時的な低下傾向が認められなかったことと整合した。

本研究により、給水末端などで処理を行う分散型水処理技術のひとつとしてUV-LEDを光源とする消毒装置を活用する可能性が示された。本研究で得られた実証規模での約1年間におよぶ試験結果は、世界的にも極めて貴重な知見であり、今後の装置開発や社会実装に資することを期待する。今後の研究展開として、家庭ごとの給水栓だけでなく、集落規模で管理する小規

模水供給施設などでの活用も実証規模での検証が求められるほか、本研究に比べて水質の悪い原水（微生物濃度が高い、紫外線透過率が低い、スケールを生じる無機成分が多い、など）を対象とした長期的な性能評価が望まれる。また、実務的には、処理流量や原水水質、設置場所、用途に応じて適切なUV-LED装置を選定する判断基準を示すことも重要である。本研究の知見を端緒として、UV-LED装置を活用した分散型水処理を検討し、山間の遠隔地などでも安全な飲み水を容易に得られるシステムの構築に貢献したい。

F．研究発表

1．論文発表（査読付き）

- 小熊久美子、渡邊真也.分散型水処理技術としての活用を想定した紫外発光ダイオード（UV-LED）装置の実証. 水環境学会誌, 2020. 掲載決定（印刷中）.
- 政池美映, 小熊久美子, 橋本崇史, 滝沢智. 凝集状態にある大腸菌の紫外線不活化特性. 土木学会論文集 G(環境) , 56, III_85, 2019.
- 佐渡 友康, 小熊 久美子, 橋本 崇史, 風間 しのぶ, 滝沢智, 深紫外 LED を用いた紫外線のパルス照射による大腸菌の不活化, 土木学会論文集 G(環境), 56, III_91, 2019.
- Bernice Yu Jeco, Aris Larroder and Kumiko Oguma. Techno-social feasibility analysis of solar-powered UV-LED water treatment system in a remote island of Guimaras, Philippines. Journal of Photonics for Energy, 9(4), 043105, 2019. doi: 10.1117/1.JPE.9.043105.
- Kumiko Oguma, Surapong Rattanakul and Mie Masaïke. Inactivation of health-related microorganisms in water using UV light-emitting diodes. Water Science and Technology: Water Supply 19(5): 1507-1514, 2019. doi: 10.2166/ws.2019.022

2．学会発表

- Kumiko Oguma, UV Disinfection of Water: Current Status and Future Perspectives, July 10, 2019, International Symposium on Water Supply Technology, Yokohama
- 小熊久美子, 小規模水供給システムに適した 紫外線処理の検討, 2019 年 9 月 3 日, 東京, 小規模水供給システムのあり方に関するシンポジウム
- Kumiko Oguma, Toward Sustainable Water Use in Asia, October 24, 2019, Special Lecture, University of Toronto. Toronto, Canada. (招待講演)
- Kumiko Oguma, Toward Safe, Stable and Sustainable Water Supply in Asia. November 11-12, 2019, 1st Symposium of JSPS Core-to-Core Program “Center of Excellence in Health Risk Assessment for Adaptation to Climate Change”, Manila, Philippines. (基調講演)
- Kumiko Oguma, UV Disinfection: It's Achievements and Forefronts, Nov 18, 2019, International UV Association (IUVA) Asia Symposium. Bangkok, Thailand. (基調講演)
- 宇田川 洋一, 高塚 威, 小熊 久美子, UV-LED (波長 280nm) を用いた空調機ドレン水処理に関する検討, 2019 年 12 月 6 日, 那覇、室内環境学会学術大会
- 小熊久美子, 紫外線を利用した水処理技術の最前線. 2020 年 1 月 29 日、東京、InterAqua 2020

G．知的所有権の取得状況

なし