

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

小規模水供給施設向け簡易消毒技術の適用可能性に関する実験的検討

研究代表者 国立保健医療科学院 浅見 真理
研究分担者 国立保健医療科学院 島崎 大
研究協力者 国立保健医療科学院 安達 吉夫

研究要旨：錠剤型消毒剤を充填した浮遊式塩素供給器、または、小型紫外線 LED 消毒装置を用い、小規模水供給システムを想定した簡易消毒手法の適用性に関する実験的検討を行った。前者では、大腸菌の消毒効果は確保できたものの、残留塩素濃度を長時間にわたり均一的に保持することは困難であること、接触槽内の水を循環する等の濃度制御の手段が課題となることが明らかとなった。後者では、定格最大流量の条件下で 98.73%ないし 99.82%の大腸菌不活化性能を有することが確認でき、安価かつ導入が容易であるため、小規模水供給システムにおいて効果的であると考えられた。

A. 研究目的

高齢化及び人口減少等により、全国数千の地域において水道管路等で構成される水道及び飲料水供給施設等（以下、水供給システム）を維持することが困難となりつつある。水供給システムにおいて必須である消毒については、本邦で主流となっている次亜塩素酸ナトリウム溶液に対して、地元住民による運搬や補充が重労働となること、周囲への腐食を生じる場合があること、不適切な保管や長期間の使用による有効塩素濃度の低下ならびに塩素酸濃度の上昇が懸念されることなどの課題が指摘されている。

ここでは、次亜塩素酸ナトリウム溶液の代替消毒手法として、錠剤型塩素剤（次亜塩素酸カルシウム）または紫外線 LED（UV-LED）を用いた市販の簡易消毒装置を対象に、大腸菌の不活化性能ならびに運用上の課題について明らかにすることを目的とした。

B. 研究方法

(1) 簡易型塩素供給器を用いた残留塩素濃度の制御および大腸菌不活化性能

① 簡易型塩素供給器および錠剤型塩素剤

南海化学株式会社「塩素供給器（浮遊式）」（写真 1, 2）および同社製「スタークロン T」を用いた。前者は米国 Pentair Water and Spa 社 RAINBOW™ MODEL 3200 の OEM 製品¹⁾であり、主に個人宅プール用の塩素消毒を目的とした製品である。後者は次亜塩素酸カルシウムを主成分とする 20 g 錠剤であり、有効塩素は公称 70~77.5 wt%である。簡易型塩素供給

器の下部には開口部（スリット）が設けられており、このスリットの開閉を調整することで、内部の錠剤型塩素剤の溶解速度を調整できるとしている。予備実験において、開口部を最小としても溶解速度が速すぎ残留塩素濃度が急上昇するため、当研究では供給器内部および外部をビニールテープで塞ぐことにより、塩素剤の溶解速度の調整を試みた（写真 3, 4）。



写真 1 塩素供給器（浮遊式）外観



写真 2 塩素供給器（浮遊式）内部



写真 3 塩素溶解速度の調整例（外部）

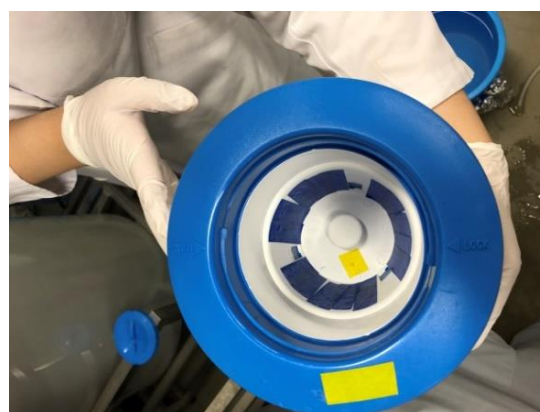


写真 4 塩素溶解速度の調整例（内部）

②大腸菌原液の調整と計数

大腸菌 *E. coli* K12 株を LB 液体培地にて振盪培養（37℃・72 時間以上）し、遠心分離（2000rpm・10 分間）より液体培地を除去、滅菌 1×PBS(-) 良好に再懸濁して洗浄した。遠心分離と再懸濁を 1 回繰り返して、最終濃度 $10^7 \sim 10^8$ CFU/mL となる大腸菌原液を得た。供試水には 1000 倍希釈となるように大腸菌原液を添加した（地下水 100L に対して大腸菌原液を 100mL 添加）。

塩素消毒実験においては、チオ硫酸 Na 溶液入り滅菌済み試験管に試料を採水し、採水直後に残留塩素を消去した。大腸菌の培養には塩素消毒による擬陰性が生じない TSA 寒天培地を用い、リン酸希釈水にて各試料水を希釈、混濁培養（37℃・24 時間）して計数した。

③残留塩素濃度の測定

HACH 製ポケット残留塩素計 (Pocket Colorimeter II) および同社製遊離残留塩素用試薬を用いた。所定の採水時間ごとに各タンクの上層・中層・下層からディスポーサブルピペットを用いて採水し、直後に遊離残留塩素濃度を測定した。

④連続通水実験用配水タンク

実際の小規模水供給施設にて用いられている配水池 (配水タンク) を想定し、塩ビ製タンク (円筒形 $\Phi 580\text{mm}$ ・高さ 850mm) を 2 台用いた。1 日間でタンクの水がすべて入れ替わるよう、各タンクの流入量・流出量は 70mL/分と設定し、定流量送液ポンプ (Masterflex) を用いて、国立保健医療科学院浄水プラント用地下水を各タンクに通水した (写真 5)。



写真 5 連続通水実験用配水タンクおよび定流量送液ポンプ

各連続通水実験における採水時間は以下のように設定した。

- ・簡易型塩素供給器を用いた残留塩素濃度の制御
0 分, 5 分, 10 分, 20 分, 30 分, 60 分 (, 120 分, 24 時間)
- ・簡易型塩素供給器を用いた大腸菌不活化性能の評価
0 分, 5 分, 10 分, 20 分

(2) 小型紫外線 LED (UV-LED) 装置を用いた大腸菌不活化性能に関する実験

① 小型 UV-LED 装置

米国 Aquisense Technologies 社製 PearlAqua Micro™ 6B (写真 6) および 12C を用いた。前者の定格最大流量は 1.5L/分、後者は 4.5L/分であり、各々 99.99% の殺菌性能とされる。

② 大腸菌原液の調整と計数

(1) ② に準じて最終濃度 $10^7 \sim 10^8$ CFU/mL となる大腸菌原液を得た。供試水には 1000 倍希釈となるように大腸菌原液を添加した (地下水原水 4.5L/分に対して大腸菌原液を 4.5mL/分で混和)。

紫外線消毒実験においては、採水用の滅菌済み 15mL 遠沈管をアルミホイルで遮光する等、可視光による大腸菌の光回復が生じないように留意した。デソキシコレート寒天培地を用い、リン酸希釈水にて各試料水を希釈、混和培養 ($37^\circ\text{C} \cdot 24$ 時間) して計数した。

③ 連続通水実験の原水調整、通水および採水条件

国立保健医療科学院浄水プラントの地下水を 4.5L/分、大腸菌原液を 4.5mL/分となるよう各々定量送液ポンプで混和した (写真 7)。PearlAqua Micro™ 6B および 12C の各小型 UV-LED 装置を鉛直に設置、下部から通水し、装置内に空隙が生じて UV-LED ランプが空だきとないように留意した。

流量が安定した後、UV-LED ランプを消灯した状態で装置の流出口から採水し、供試水中の大腸菌濃度とした。その後、UV-LED ランプを点灯した。各装置の流量条件は以下と設定し、各条件について 3 試料を採水した。

- PearlAqua Micro™ 6B 0.75L/分、1.5L/分、3.0L/分 (定格最大流量 : 1.5L/分)
- PearlAqua Micro™ 12C 1.5L/分、3.0L/分、4.5L/分 (定格最大流量 : 4.5L/分)



写真 6 小型 UV-LED 装置



写真 7 小型 UV-LED への連続通水実験

(倫理面への配慮)

本研究は病原性を有しない大腸菌の純菌株を培養して使用しており、実験作業における作業員への危険はない。国立保健医療科学院微生物等に関するバイオセーフティー取扱要領に基づき、バイオセーフティー小委員会の審査ならびに承認を得て実施した。

C. 研究結果

(1)簡易型塩素供給器を用いた残留塩素濃度の制御および大腸菌不活化性能

残留塩素濃度の制御

簡易型塩素供給器および錠剤型塩素消毒剤を用いてタンク内の残留塩素濃度の制御を試みたところ、供給器を最も閉塞した条件（底部の水抜き穴、内部開口スリット、供給器下部の隙間をすべて閉塞し、外部開口スリット 1 箇所および供給器上部の隙間のみ通水、写真 3, 4）において、通水 60 分後までのタンク内の残留塩素濃度は上層・中層・下層ともに 0.19~0.29mg/L の範囲であったものの、通水 24 時間後はいずれも 50mg/L 程度に達した。いずれの条件下でも、簡易型塩素供給器の内部では錠剤型塩素消毒剤が溶解して高濃度の次亜塩素酸カルシウム溶液が形成されており、装置外部に徐々に浸出している状況にあった。特に簡易型塩素供給器の開口部が大きい条件では、高濃度の塩素溶液が速やかにタンク下部に到達し、10 分以内に 2.0mg/L（定量下限値）を超える高濃度の残留塩素が観察された。

大腸菌の不活化性能

タンク内に大腸菌原液を 1000 倍希釈となるよう添加し、簡易型塩素供給器および錠剤型塩素消毒剤を用いて塩素消毒実験を行った。経過時間における大腸菌の生残率を図 1 に示す。ここで、条件①は塩素消毒剤の添加無し、条件②は底部の水抜き穴、供給器下部の隙間をすべて閉塞し、外部・内部開口スリット各 1 箇所および供給器上部の隙間を通水、条件③は底部の水抜き穴、供給器下部の隙間、内部開口スリットをすべて閉塞し、外部開口スリット 1 箇所および供給器上部の隙間を通水した。

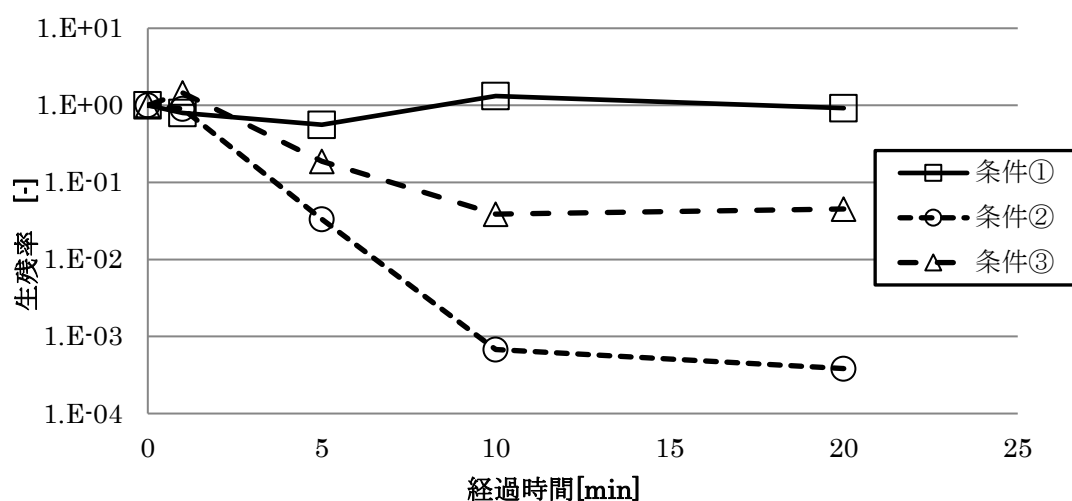


図1 簡易型塩素供給器を用いた塩素消毒実験による大腸菌生残率の時間経過

塩素供給器の開口部が大きい条件②の大腸菌生残率は 3.8×10^{-4} まで、開口部が小さい条件③は 4.5×10^{-2} まで低下した。なお、大腸菌の初期濃度は $2.5 \times 10^4 \sim 6.0 \times 10^4$ CFU/mL であった。タンク内の残留塩素濃度は、条件②が 0.08～0.11mg/L、条件③が 0.05～0.10mg/L の範囲であった。

(2) 小型紫外線 LED (UV-LED) 装置を用いた大腸菌不活化性能に関する実験

各 UV-LED 装置に通水し、紫外線消毒に供した後の大腸菌の log 不活化数を図 2 に示す。定格最大流量における大腸菌の生残率は、PearlAqua Micro™ 6B (1.5L/分) が 1.3×10^{-2} 、12C (4.5L/分) が 1.8×10^{-3} であった。6B については、定格最大流量の倍となる流量 3.0L/分での生残率は 8.6×10^{-2} 、半分となる流量 0.75L/分での生残率は 1.7×10^{-3} となった。また、12C については、定格最大流量の 2/3 となる流量 3.0L/分での生残率は 1.2×10^{-3} 、1/3 となる流量 1.5L/分での生残率は 2.8×10^{-4} となった。なお、大腸菌の初期濃度は 6B の実験時が 3.2×10^3 CFU/mL、12C は 1.2×10^4 CFU/mL であった。

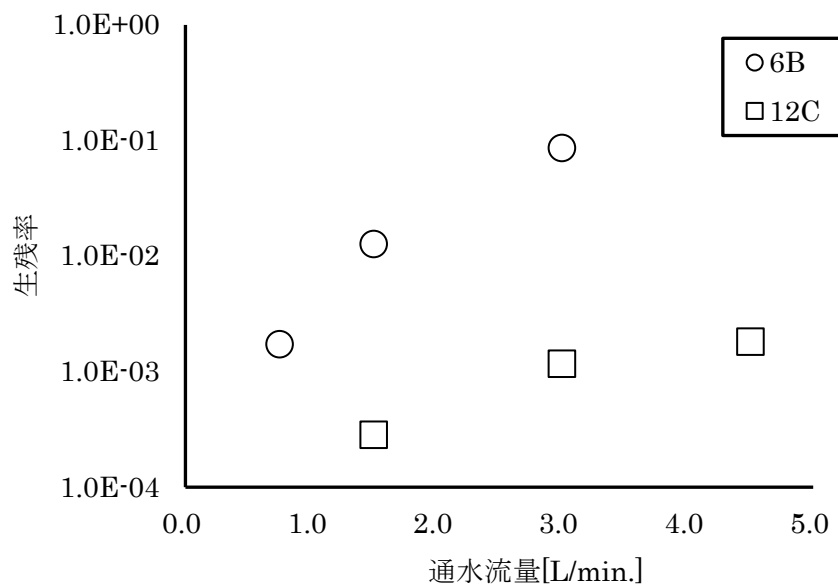


図2 小型 UV-LED 装置を用いた紫外線消毒実験における通水流量と大腸菌生存率の関係

D. 考察

(1) 簡易型塩素供給器を用いた残留塩素濃度の制御および大腸菌不活化性能

当該の簡易型塩素供給器は、60 分程度の短時間であれば、開口スリットの調整により 0.1 ~0.3mg/L 程度の残留塩素濃度を保持可能であったものの、供給器内部の高濃度次亜塩素酸カルシウム溶液の外部への初期浸出を遅らせるのみであり、長時間にわたって継続的に残留塩素を低濃度（0.5~1.0mg/L 程度）で制御することは困難であると考えられた。また、塩素剤のタンク内への溶出により、10 分以内に最大で 3 桁（99.9%）以上、大腸菌を不活化可能であることが確認されたものの、タンク内の水流が不定であること等により、残留塩素濃度ならびに大腸菌濃度の測定値にばらつきが生じ、再現性に欠ける面があった。このため、今回検討した塩素供給方法は、配水タンク内で低濃度の残留塩素を一定かつ均一に保持する点で課題があることが明らかとなった。以下の点に改良などにより、適正な残留塩素濃度ならびに消毒性能を安定して保持することが可能になると考えられた。

- ①錠剤型塩素剤の溶解速度を制御し、所定濃度の塩素溶液を調整する手法
- ②塩素溶液を一定量（あるいは浄水の流量に応じて）タンク内に注入する手段
- ③水流に循環や乱れを生じさせるなどタンク内部に滞留を生じない設計

(2) 小型紫外線 LED (UV-LED) 装置を用いた大腸菌不活化性能に関する実験

今回用いた小型 UV-LED 装置は、メーカー公称値である 99.99%の不活化性能までは確認されなかったものの、定格最大流量での大腸菌不活化率として 99.82%（12C）ないし 98.73%（6B）が確保されていた。流量を低下させるに従って、装置内での紫外線照射線量が増大するため大腸菌不活化率は向上し、12C では 99.97%（定格最大流量の 33.3%）、6B では 99.83%

(定格最大流量の 50%) まで確認された。一方、6B にて流量 3.0L/分 (定格最大流量 200%) にて通水した場合には、紫外線照射線量の低下により、大腸菌不活化率は 91.42%まで低減した。以上のことから、大腸菌不活化率は小型 UV-LED 装置への流量に大きく依存するものの、定格流量の範囲であれば 99.9%程度の大腸菌不活化が可能であることが示された。

なお、12C の定格最大流量は 4.5L/分、6B は 1.5L/分であるため、1 人あたり 1 日平均給水量を 300L/人/日と設定し、各小型 UV-LED 装置を常時(24 時間)運用すると仮定する場合、装置 1 台につき、最大 21.6 人分(12C)ないし 7.2 人分(6B)の給水量に対して消毒が可能であること、また、各装置とも UV-LED ランプの寿命は公称値で 1 万時間とされているため、1 年強 (416 日) にわたって使用可能であると推定された。

ただし、当 UV-LED 装置は UV-LED の照射時に常時通水されていることが必要であり、照射部に空気がある状態ではランプが焼き切れるなど影響を及ぼすとされている。また、実験時には UV-LED が点灯しているのか外部からの判断が難しい。通水時のみ UV ランプに通電されるスイッチを追加する、ランプが点灯しない (あるいは出力が低下している) 際に外部から判断できるセンサーを設けるなど、現場での UV-LED ランプ運用と管理が適切かつ容易に行えるような改良が必要と考えられた。

E. 結論

小規模水供給システムを想定した簡易消毒手法の適用性に関する実験的検討を行った。錠剤型消毒剤を充填した浮遊式塩素供給器は、大腸菌の消毒効果は確保できたものの、残留塩素濃度を長時間にわたり均一的に保持することは困難であり、手法の根本的な改良が必要であることが示された。小型紫外線 LED 消毒装置は、定格最大流量の条件下で 98.73%ないし 99.82%の大腸菌不活化性能を有することが確認でき、安価かつ導入が容易であるため、小規模水供給システムにおいて効果的であると考えられた。

謝辞：

簡易型塩素供給器を用いた塩素消毒実験に協力いただいた末吉 智氏 (那覇市上下水道局)、中里 文江氏 (八戸圏域水道企業団)、前川 啓子氏 (奈良広域水質検査センター組合) に、御礼申し上げます。

参考 URL：

1) Pentair Ltd. “FLOATING CHEMICAL DISPENSERS”
https://www.pentair.com/en/products/pool-spa-equipment/pool-maintenance/floating_chemicaldispensers.html

F. 研究発表

1. 論文発表

(該当なし)

2. 学会発表

(該当なし)

3. 総説・解説

(該当なし)

4. その他講演等

島崎大, 浅見真理: 上向式ろ過や消毒剤に関する検討. 小規模水供給システムのあり方に関するシンポジウム, 東京大学工学部, 2019. 9. 3

https://www.niph.go.jp/soshiki/suido/r01small_water_supply.html

G. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む。)

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)