

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：12611

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420529

研究課題名(和文) 通水式紫外線消毒装置の持つ照射量分布の実験的検証方法の確立

研究課題名(英文) Establishment of experimental methods of verifying UV dose distribution in UV flow device

研究代表者

大瀧 雅寛 (Otaki, Masahiro)

お茶の水女子大学・基幹研究院・教授

研究者番号：70272367

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、紫外線消毒装置内の照射量分布のモデル推定値を、より確実に検証するために不活化速度値として2～9 mJ/cm<sup>2</sup>のファージを収集し、精密な紫外線回分試験にて波長依存性も含めて確認した。数種類のファージと数種類の宿主菌の組合せにて検出の可否を確認し、結果としてMS2、X174、T4(もしくはT7)であれば、流通試験に同時に投入して試験が行えることがわかった。さらに実プラント規模の装置を用いてこれら3種ファージの同時投入試験を行い、別個に不活化率を測定できることを確認した。これにより、全く同じ流通条件において、3種ファージそれぞれのRED値の取得が可能であることを示すことができた。

研究成果の概要(英文)：The coliphages whose UV inactivation rate constants were from 2 to 9 mJ/cm<sup>2</sup> were collected and verified by the accurate UV batch test. The detection ability of several kinds of phages with several kinds of host bacteria were investigated to find the appropriate combination. As results, the mix solution of MS2, X174, T4 (or T7) were possible to detect and measure the concentration separately when they were introducing together for bio-dosimetry experiment. Then the mix solution of MS2, X174, T7 were introduced to the plant scale UV flow devices and it was confirmed that the inactivation ratio of introduced three phages could be measured. Consequently, the RED (Reduction Equivalent Dose) of different three phages could be measured in completely similar condition by using mix solution and these REDs could verify the simulated UV dose distribution more accurately.

研究分野：環境衛生工学

キーワード：紫外線消毒 流通式装置 生物線量計 照射量分布の検証 ファージの同時投入

1 . 研究開始当初の背景

浄水処理における塩素耐性病原生物 ( 主としてクリプトスポリジウム ) 対策として紫外線消毒装置は省令により「対象水の 95% 以上に 10 mJ/cm<sup>2</sup> 以上の照射量が保証される」としており、装置内の照射量分布の把握が必須である。モデル計算による照射量分布の推定値を求め、紫外線耐性既知の微生物を装置に通過させることで確認している ( 紫外線照射装置 JWRC 技術審査基準 ( H24 ) より ) 。しかし一種類のみでの微生物実験では、推定値の検証としては不十分であり、安全性の担保が最重要課題であり浄水用消毒装置においては切実な課題であった。

2 . 研究の目的

本研究の目的は、紫外線消毒装置内の照射量分布のモデル推定値を、より確実に検証する方法を提案することが目的である。具体的には、以下の 2 つの目的として示される。

- (1) 特に扱いやすく解析も簡便な大腸菌ファージに焦点を絞り、紫外線耐性の異なる複数種のファージを用いて、より効率的に検証する方法を確立する。
- (2) 実規模装置を用いて、複数種のファージの同時投入試験の検証と、照射量分布のモデル推定値との整合性を検証することで、提案した方法の有効性を検証する。

3 . 研究の方法

上記の目的を達成するために、具体的に以下の 3 つの内容について研究を行った。

- (1) 紫外線耐性が異なり、かつ扱いやすい大腸菌ファージを用いて、紫外線耐性のバリエーションが揃った照射量分布検証用のファージコレクションを確立した。大腸菌ファージについては、ファージの保存機関からの分譲株を用いて、実験室に回分式の紫外線実験を行い検討した。また波長光が 254 nm の低圧水銀ランプだけでなく、波長光が 200 ~ 400 nm に渡る中圧水銀ランプへの適用も考慮し、分光器を用いて、数種のファージについて紫外線耐性の波長依存性を調べた。また異なる照射量を与える回分試験を行い、それらの被照射試料を任意の割合で混合することで人為的に照射量分布が把握できる溶液を作成し、その溶液中のファージ濃度が理論と合致するのかが検証した。

- (2) 宿主菌の選択により複数ファージの混合溶液において各ファージの濃度測定を個別に行えるが検証した。具体的には各ファージ測定のための宿主菌を用いて、他の種のファージの検出の有無を確認することにより、個別ファージの選択的測定が可能な組合せについて検討した。5 種類のファージとして ( Q $\beta$ , MS2, T4,  $\lambda$ ,  $\Phi$ X174 ) を用い、宿主菌として 5 種類の *E.coli* の組合せについて、プラック形成の有無により検出の可否を確認した。

- (3) 実プラント規模装置を用いた流通試験を行った。その際、上記 ( 2 ) において得られたファージ混合液を用いて、実験を行った。さらに照射量分布のモデル推定値との比較を行った。以上の結果を総合して、ファージ混合溶液による不活化実験への適用性を検証することとした。

4 . 研究成果

- (1) 紫外線耐性の異なるファージコレクションの確立

結果として、幅広い耐性のファージを収集することができた。それらファージの各不活化速度値 ( 生残率 = exp ( - 照射量 / 不活化速度定数 ) に従うとした ) として 2 mJ/cm<sup>2</sup> から 9 mJ/cm<sup>2</sup> の範囲であることを、化学線量計を用いた精密な紫外線回分試験を実施することで確認した。なお波長光が 254 nm の低圧水銀ランプだけでなく、波長光が 200 ~ 400 nm に渡る中圧水銀ランプへの適用も考慮し、数種のファージについて紫外線耐性の波長依存性を調べた。結果を図 1 に示す。

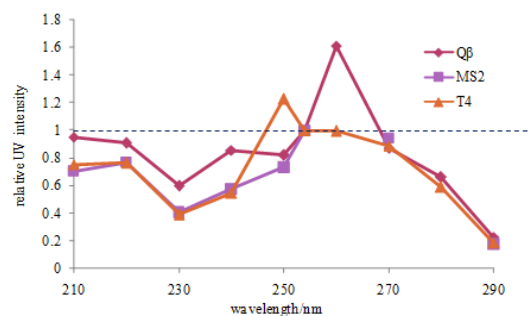


図 1 ファージ 3 種の紫外線耐性の波長依存性

いずれも 250 ~ 260 nm 付近に耐性が弱くなる、すなわち感受性の高い波長域があることがわかった。

図 2 は人為的に 15, 30, 45 mJ/cm<sup>2</sup> の度数分布が 1:2:1 となる溶液を作成し、その溶液中の残存 Q $\beta$  および MS2 濃度の理論値と実測値を示したものである。

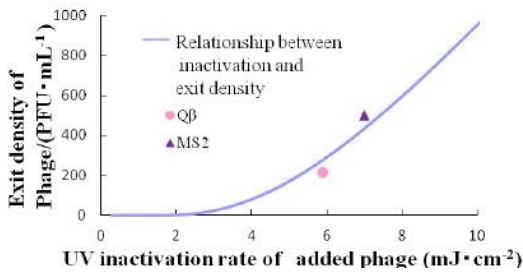


図2 ある照射量分布における残存ファージ濃度の理論値と実測値

この図に示される通り、実測値は理論値とほぼ近い値となっており、照射量分布をもつ流通試験においてはその分布に則したファージの不活化効果が得られるものと考えられた。

(2) 複数種のファージの同時投入実験方法の確立

5種類のファージ(Qβ, MS2, T4, λ, ΦX174)と、5種類の*E. coli*(宿主菌)の組合せにおいて、プラック形成の有無により検出の可否を確認した結果を表1に示す。

表1 各宿主菌(*E. coli*)とファージの組合せによるプラック形成の有無

	Qβ	MS2	T4	λ	Φx174
NBRC13965	○	○	△	△	×*
NBRC13168	×	×	○	△	×
NBRC12713	×	△	○	○	×
NBRC13898	△	×*	△	○	○
NBRC3301	○	○	○	△	×

\*:濃度測定を行い検出限界以下であることを確認した。

この結果からMS2とΦX174の混合溶液であれば、宿主菌として*E. coli*(NBRC13965)を用いれば、ΦX174を検出せずにMS2が測定でき、かつ*E. coli*(NBRC13898)を用いれば、MS2を検出せずにΦX174が測定できることがわかった。

またMS2, ΦX174, T4の混合溶液とし、ΦX174およびMS2の濃度よりもT4の濃度を数オーダー低く設定しておけば3種の同時投入試験ができると考えられた。即ち、T4については*E. coli*(NBRC13168)にて、単独での濃度測定が可能である。*E. coli*(NBRC13965)ではMS2とT4の両者を出してしまうが、測定済みのT4濃度を引けば、MS2の濃度がわかる。また同様に*E. coli*(NBRC13898)ではΦX174とT4を検出してしまうが、T4濃度を引けばΦX174の濃度がわかる。ただこの方法では、不活化実験後にT4濃度が*E. coli*(NBRC13898と13965)での濃度測定を上回ってしまった場合には適用できない。

さらにファージT7を用いて各種宿主*E. coli*との組み合わせを検討したところ、T4と全く同様の検出可否であった。すなわち3種の混合溶液においてはT4の代わりにT7を代替して使用することも可能であることがわかった。

以上のように、2種および3種のファージの同時投入試験が行えることを確認することができた。

(3) 実プラント規模装置を用いた流通試験の実施

上記(2)において示したファージ3種(MS2, ΦX174, T7)の同時投入試験を、実プラント規模の装置を用いて行った。図3は小型の流通装置(流量として12~58 m<sup>3</sup>/h)での投入実験を行った結果である。この図の縦軸は各ファージの不活化率から、各不活化速度定数値を用いて算出したRED(換算等価紫外線量)値である。また図4は中型の流通装置(流量として25~75 m<sup>3</sup>/h)での投入実験を行った結果である。

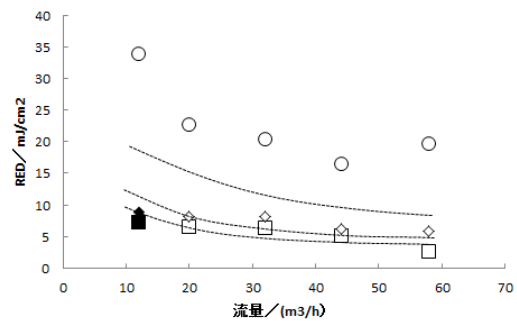


図3 小型流通紫外線装置におけるファージ3種の同時投入によって求めた各RED値(図中の点線はいずれもモデル推定値(○:MS2, □:T7, ■:ΦX174, 黒色はRED値がこれ以上の値であることを意味する。))

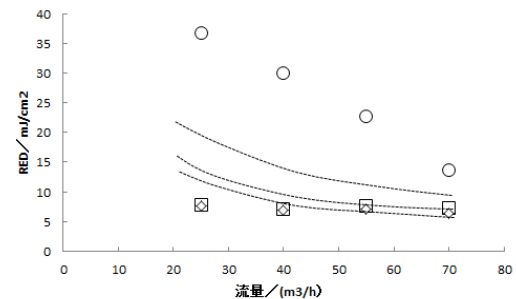


図4 中型流通紫外線装置におけるファージ3種の同時投入によって求めた各RED値(図中の点線はいずれもモデル推定値(○:MS2, □:T7, ◇:ΦX174))

図3,4ともに、3種のファージを同時

投入し、別個に濃度測定を行い不活化率を求めることにより、個別の RED 値が求められることが確認できた。特に T7 はクリプトスポリジウムの紫外線耐性と同等と言われており、このデータからクリプトスポリジウムで期待される RED 値もしくは不活化率が確認できることになり、その意義は大きい。また既報により、クリプトスポリジウムの RED 値は、クリプトスポリジウムよりも耐性が低い微生物によって得られた RED 値よりは高くなるとされているため、ΦX174 において得られた RED 値がクリプトスポリジウムにおいて満たすべき RED 値よりも高ければ、装置の有効性が確認できるという点で意義が高い。MS2 は、紫外線耐性が高いため、照射量が高い条件においても出口濃度が測定限界以下にならずに実測 RED データが安定して得られるということで重要である。

以上のように、本研究の結果は、それぞれの RED 値のもつ意義が高いファージ 3 種を同時に投入し、全くの同条件において、それぞれの RED 値が得られることが可能であることをしめしており、その有用性は非常に高いと考えている。

図中のモデル推定値に比べると MS2 における実データとの解離程度が大きくなっていった。これはモデル推定値が流通装置の反応槽内面の紫外光反射の影響を含んでいないことから、実データの方が RED 値がより大きく出たためと考えられる。この点については、今後のモデルの精緻化により解決を図っていかねばならないと考えられる。

#### <引用文献>

USEPA (2006) UV guidance manual for the final LT2ESWTR

#### 5. 主な発表論文等

##### 〔雑誌論文〕(計 1 件)

大瀧雅寛, 紫外線による水処理技術の現状と課題, 用水と廃水, 査読有, 59(4), 2016, pp.270-276

##### 〔学会発表〕(計 3 件)

大瀧雅寛, 流水式紫外線照射装置の性能評価において供試微生物を用いる際の問題点とその解決策, 第 19 回日本水環境学会シンポジウム講演集, pp.255-256, 2016

大瀧雅寛, 石原愛, 通水式紫外線消毒装置の有する照射量分布の実験的検証方法, 第 50 回日本水環境学会年会講演集, p.361, 2016

大瀧雅寛, 紫外線の測定方法, 第 18 回日本水環境学会シンポジウム講演

集, pp.207-208, 2015

##### 〔図書〕(計 0 件)

##### 〔産業財産権〕

##### ○出願状況 (計 1 件)

名称: 紫外線照射量情報評価装置および紫外線照射量情報評価方法  
発明者: 大瀧 雅寛  
権利者: 同上  
種類: 特許  
番号: 特願 2015-061207  
出願年月日: 2015 年 3 月 24 日  
国内外の別: 国内

##### ○取得状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

##### 〔その他〕

ホームページ等

<http://www.eng.ocha.ac.jp/enveng/index.html>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

大瀧 雅寛 (OTAKI, Masahiro)

お茶の水女子大学・基幹研究院・教授

研究者番号: 70272367