

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26289181

研究課題名(和文)紫外発光ダイオードによる水中微生物の制御

研究課題名(英文) Application of ultraviolet light-emitting diodes to suppress microorganisms in water

研究代表者

小熊 久美子(Oguma, Kumiko)

東京大学・先端科学技術研究センター・准教授

研究者番号：00361527

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、水の消毒技術として紫外発光ダイオード(UV-LED)の利用を提案し、その有効性と課題の明確化を目指したものである。異なる発光ピーク波長のUV-LEDを用いて多様な微生物種の不活化特性を調査し、不活化効率を評価したほか、給水栓ごとや建物ごとに水を処理する個別分散型システムとしてのUV-LED活用を想定し、ラボスケール実験と実証試験を実施した。また、途上国へのUV-LED浄水装置の適用可能性とニーズについて、ベトナムのハノイ市で現地調査を行った。本研究により、UV-LEDを利用した水処理の有効性と課題を多角的に示し、装置開発と社会実装に資する基盤的知見を獲得した。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to propose the application of ultraviolet light-emitting diodes (UV-LED) for water disinfection and elucidate the effectiveness and challenges of the technology. UV-LEDs with different peak emissions were applied to various microorganisms to examine the dose-response properties. UV-LED module designed for point-of-use (POU) of water or point-of-entry (POE) to buildings were evaluated by lab-scale experiments and a field test. Furthermore, field survey in Hanoi, Vietnam, was conducted to examine the feasibility and local needs for UV-LED water treatment at household level. This study demonstrated the effectiveness and technical challenges of UV-LED to be applied for water treatment and developed fundamental knowledge base for module development and practical applications.

研究分野：環境工学

キーワード：水処理 消毒 紫外線 発光ダイオード(LED) 水系感染症

## 1. 研究開始当初の背景

おいしい水道水を求める社会的機運が高まり、残留塩素の低減化を掲げる水道事業者が増えている。また、人口減少などにより水道使用量が減少すると、浄水場出口から給水末端に到達するまでの経過時間が増加し、残留塩素が低減して給配水過程での微生物再増殖リスクが増大すると懸念される。さらに、日本の気温は概して上昇傾向にあり、貯水槽など一時貯留施設内での残留塩素低減と水質劣化が深刻化する可能性もある。浄水の安全性を担保するには、給水末端付近での追加的処理が有効と期待される。

殺菌紫外線 (220-300nm) を放射する紫外発光ダイオード (UV-LED) がある。UV-LED は、小型、無水銀、衝撃に強い、ウォームアップ不要など、光源として優れた特徴を有し、従来の水銀紫外線ランプでは実現し得なかった利用方法や装置形状が可能になると期待される。特に、水を給水栓直前で使用の都度に処理する Point-of-Use (POU) 型や、建物の入り口で水を処理する Point-of-Entry (POE) 型など、個別分散型水処理システムに適したデバイスと考えられる。

新水道ビジョン (H25 年 3 月、厚生労働省) では、人口減少社会を迎えつつ水道普及率 97.5% 超を達成した日本において、今後は柔軟な水供給方式を検討する余地があるとしており、個別分散型システムに寄せる社会的関心は高まっている。また、急速な都市化と経済発展の渦中にある途上国には、整備に莫大なコストと時間を要する水道の完成を待つばかりでなく、POU 型浄水装置が普及している国もある。さらに、無水銀化を志向する国際的潮流は明らかである。すなわち、UV-LED を用いた分散型浄水装置の開発は、国内外でニーズのある時機を得た課題である。

## 2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、水の消毒技術としての UV-LED の有効性と課題を明らかにし、装置開発や社会実装に資する基盤的知見を獲得することを本研究の目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 回分式実験

ピーク波長の異なる UV-LED を用いて多様な微生物の不活化特性を検証した。主にピーク波長 265nm, 280nm, 300nm の UV-LED を光源とし、シャーレ内の試料に回分式で照射した。試料表面の紫外線量率をシユウ酸鉄カリウム化学量計で測定し、試料の吸光による光の減衰分を Beer-Lambert の法則により補正し、照射時間を乗じて紫外線量を算出した。比較対象として低圧水銀紫外線ランプ (254nm) による不活化実験も実施した。

対象微生物として、大腸菌 (*Escherichia coli* K12 IFO 3301)、大腸菌ファージ 2 種 (Q $\beta$ , MS2)、枯草菌芽胞 (*Bacillus subtilis* ATCC 6633 spore)、緑膿菌 (*Pseudomonas aeruginosa*

ATCC 10145)、レジオネラ菌 (*Legionella pneumophila* ATCC 33152)、ヒトアデノウイルス 5 型 (HAV5) を用いた。さらに、大腸菌を 265nm, 280nm, 300nm の UV-LED で不活化した後の光回復と暗回復についても調べた。

### (2) 流水式実験

実装に近い使用方法として、小型 UV-LED 浄水装置試作機による流水式での不活化実験も行った。脱塩素・滅菌後の水道水に緑膿菌 (*P. aeruginosa* ATCC 10145) を接種して供試水とした。また、水道水中の従属栄養細菌に対する UV-LED 浄水装置の不活化効果を定量した。さらに、UV-LED 照射に伴う従属栄養細菌の群集構造変化をとらえるため、UV-LED 照射前後の試料から形成した R2A 培地上のコロニーを色調別に釣菌し、単離株の 16sRNA 遺伝子シーケンスを決定した。得られた配列に基づき、遺伝子塩基配列データベース BLAST により相同性検索を行った。さらに、国内山間地の水道未普及地区において、飲用井戸を対象に、UV-LED 流水殺菌装置の実証試験を行った。

### (3) 途上国への UV-LED 適用の検討

ベトナムのハノイ市で水道水質や水利用実態に関する現地調査を行った。ハノイ市の地下水または河川水を原水とする 4 浄水場を選定し、浄水場から配水管路、貯水槽を経て蛇口に至るまでの残留塩素、大腸菌、大腸菌群の挙動を調査した。

## 4. 研究成果

### (1) 回分式実験

UV-LED による枯草菌芽胞の不活化曲線を図 1 に示す (Rattanukul and Oguma, 2018)。他の供試微生物についても同様の手法で不活化曲線をプロットし、その対数直線部分の傾きを不活化速度定数  $k$  と定義し、異なる波長による  $k$  の違いを共分散分析で検定した (有意水準 5%)。その結果、本研究の範囲では、すべての微生物について 265nm の UV-LED が照射線量あたりの不活化効率  $k$  にすぐれ、低圧水銀紫外線ランプに比べても不活化効率が高かった。概して  $k$  は  $265 > 254$  (低圧水銀ランプ)  $> 280 > 300$  nm の順となり、この順列は遺伝子塩基の光子吸収効率の順に一致することから、紫外線による微生物不活化の主因が遺伝子損傷であることと整合性があった。ただし、微生物種によっては不活化効率の順列が異なる場合があり、緑膿菌:  $265 > 280 > 254 > 300$  nm、大腸菌:  $265 = 254 > 280 > 300$  nm、枯草菌芽胞:  $265 > 280 = 254 > 300$  nm となった。ヒトアデノウイルス 5 型では  $280$  nm  $> 254$  nm となった (Oguma *et al.* 2016)。このように、概して 280nm の UV-LED は遺伝子塩基の光子吸収効率から推定されるよりも不活化率が高い場合があった。

大腸菌の光回復と暗回復では、3 波長いずれの UV-LED で不活化してもその後の回復現象における最大回復量も回復速度も統計的に同等となった ( $p > 0.05$ , 細井ら, 2017)。す

なわち、回復現象の程度は UV-LED 素子の波長選定の決定因子にはならないと考えられた。

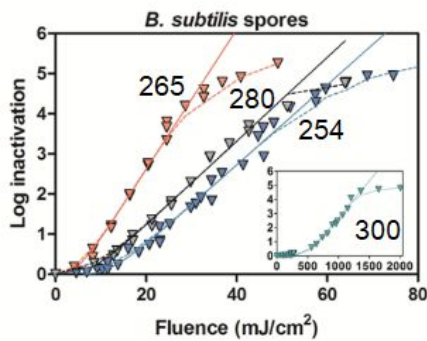


図1 . UV-LED (265, 280, 300nm) および低圧水銀紫外線ランプ (254nm) による枯草菌芽胞の不活化 (Rattanakul and Oguma 2018)

## (2) 流水式実験

水道水(蛇口水)中の従属栄養細菌を培養したところ、白、ピンク、黄のコロニーを形成した。また、UV-LED 照射の前後で出現するコロニーの色の存在比率が変化し、照射前には黄色いコロニーが優占するものの、照射後には白およびピンクのコロニーが優占した(図2)(Oguma et al. 2018)。

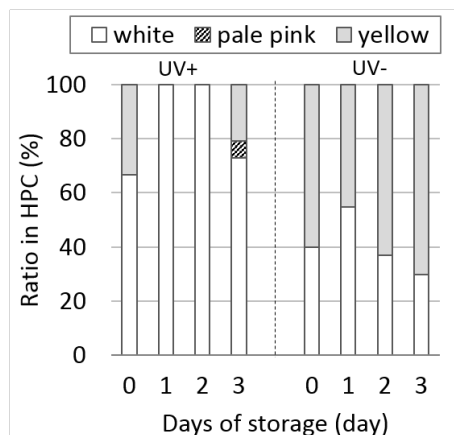


図2 . UV-LED 照射後の保存期間中に形成した従属栄養細菌コロニーの色調のうちわけ (UV+: UV-LED 照射あり、UV-: UV-LED 照射なし、Oguma et al. 2018 より)

従属栄養細菌の群集構造解析の結果、UV-LED 照射後に存在比率が高くなった白とピンクの細菌はいずれも *Methylobacterium* 属であった。すなわち、UV-LED 照射が選択圧となって紫外線耐性の高い *Methylobacterium* 属が優占したものと考えられた。従属栄養細菌は細菌群の総称で存在自体が必ずしもリスクを意味しないが(水道水質管理目標として 2000cfu/mL まで許容)、POU 型や POE 型の処理ではその後のバリアなく直ちに利用されるため、特に慎重な検討が望まれる。

国内山間地の水道未普及地区において、飲用井戸水を対象に実証試験を行った。POU の利用を想定した UV-LED 流水殺菌装置試作

機を用い、流量 2L/min の循環なしで処理した。その結果、大腸菌は 2.2log の不活化を達成し、一般的な飲用井戸の地下水を想定すれば、UV-LED 処理後に大腸菌不検出を達成可能と推察された。一方、一般細菌や従属栄養細菌の不活化率はいずれも 0.5log 未満と低く、装置性能の技術的課題を明確化した。また、利用者の意向として、POU よりも POE での処理、すなわち、蛇口ごとよりも建物の入り口で一括処理する装置のほうが好まれる傾向があり、今後の装置開発に資する知見となった。

## (3) 途上国への UV-LED 適用の検討

ハノイ市での調査の結果、浄水場での塩素注入が十分でない場合があること、残留塩素消費は主に浄水場から貯水槽に至るまでの配水過程で生じること、高温期(5月、平均水温 31.2℃、試料数 n=9)のほうが平温期(10月、27.6℃、n=14)にくらべて配水過程での残留塩素消費が速い傾向にあること、浄水中のアンモニア濃度が高いために添加した遊離塩素の多くは結合塩素として残留する配水区域があること、結合塩素が多い配水区域ではベトナムの残留塩素規定(全塩素として 0.3 - 0.5mg/L)を満たしても蛇口で大腸菌陽性となる場合があること、などが判明した(小熊ら 2015)。この結果を踏まえ、ハノイでは浄水場で注入する残留塩素だけで給配水中の微生物汚染や再増殖を制御することは困難と考えられ、給水末端で微生物を制御する技術の必要性が示された。今後は現地ニーズに沿った性能や価格、さらに維持管理などの観点から実装を視野に入れた検討が必要である。

## 5 . 主な発表論文等

(雑誌論文)(計 15 件)

1. Kumiko Oguma, Kaori Kanazawa, Ikuro Kasuga, Satoshi Takizawa, Effects of UV Irradiation by Light Emitting Diodes on Heterotrophic Bacteria in Tap Water, *Photochemistry and Photobiology*, 査読有, Vol. 94, 2018, pp.570-576. <https://doi.org/10.1111/php.12891>
2. Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Inactivation kinetics and efficiencies of UV-LEDs against *Pseudomonas aeruginosa*, *Legionella pneumophila*, and surrogate microorganisms, *Water research*, 査読有, Vol.130, 2018 (published online in Nov. 2017), pp.31-37. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.11.047>
3. 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、土木学会論文誌G(環境)、査読有、Vol.73、No.7、2017、pp. \_337- \_343.  
[https://doi.org/10.2208/jscej.73.III\\_337](https://doi.org/10.2208/jscej.73.III_337)
4. 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、査読無、vol.59、No.4、2017、pp.177-281.
  5. 小熊久美子、紫外線を利用した水の消毒と紫外発光ダイオード(UV-LED)の展望、環境技術、査読無、Vol.46、No.7、2017、pp.378-382.
  6. Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Analysis of Hydroxyl Radicals and Inactivation Mechanisms of Bacteriophage MS2 in Response to a Simultaneous Application of UV and Chlorine, Environmental Science and Technology, 査読有, Vol.51, No.1, 2017, pp 455-462.  
<http://doi.org/10.1021/acs.est.6b03394>.
  7. 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、査読有、Vol.40、No.2、2017、pp.59-65.
  8. 小熊久美子、金澤かおり、紫外発光ダイオードを利用した水処理技術の研究動向と課題、査読無、第19回日本水環境学会シンポジウム講演集、2016、pp.241-242.
  9. Kumiko Oguma, Ryo Kita, Satoshi Takizawa, Effects of Arrangement of UV Light-Emitting Diodes on the Inactivation Efficiency of Microorganisms in Water, Photochemistry and Photobiology, 査読有, 92, 2016, pp.314-317.  
<http://doi.org/10.1111/php.12571>
  10. Kumiko Oguma, Surapong Rattanakul, James R. Bolton, Application of UV Light Emitting Diodes to Adenovirus in Water, Journal of Environmental Engineering, ASCE, 査読有, Volume 142, Issue 3, 2016, p.04015082  
[http://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0001061](http://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001061).
  11. Kumiko Oguma, Madjid Mohseni, UV Treatment: A Solution for Small Community Water Supplies?, IUVA News, International Ultraviolet Association, 査読無, Fall 2015, Vol.17, No.2, 2015, pp.25-27.
  12. 小熊久美子、岡佐充、Nga Tran Thi Viet、滝沢智、ハノイ市水道の配水および宅内給水過程における水質劣化の実態、用水と廃水、査読有、Vol.57、No.10、2015、pp.741-749.
  13. Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Satoshi Takizawa, Sequential and Simultaneous Applications of UV and Chlorine for Adenovirus Inactivation, Food and Environmental Virology, 査読有, Vol.7, No.3, , 2015, pp.295-304,  
<https://doi.org/10.1007/s12560-015-9202-8>
  14. 喜多諒、小熊久美子、酒井宏治、滝沢智、紫外線発光ダイオード(UV-LED)を用いた環状外照式水消毒装置の開発と評価、土木学会論文誌G(環境)、査読有、Vol.70、No.7、2014、pp.III\_1-III\_8.  
[https://doi.org/10.2208/jscej.70.III\\_1](https://doi.org/10.2208/jscej.70.III_1)
  15. Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Hiroshi Sakai, Satoshi Takizawa, Inactivation of viruses by combination processes of UV and chlorine, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, Vol.12, No.6, 2014, pp.511-523.  
<https://doi.org/10.1007/s12560-015-9202-8>
- 〔学会発表〕(計 35 件)
- 細井山豊、小熊久美子、橋本崇史、滝沢智、細菌の細胞外高分子物質(EPS)産生に及ぼす紫外線照射の影響、第52回日本水環境学会年会、北海道 北海道大学、2018年3月
- 細井山豊、小熊久美子、橋本崇史、滝沢智、緑膿菌のバイオフィーム形成に及ぼす紫外線照射の影響、UV(紫外線水処理技術)ワークショップ、東京 首都大学東京、2018年3月
- 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、三重三重大学、2018年3月、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 ホテルコンコルド浜松、2017年11月、招待講演

小熊久美子、濁質が紫外線処理に及ぼす影響～地表水の水質変動を想定して、JUVA 技術セミナー、東京、2017年11、招待講演

Kumiko Oguma, Expansion of UV Light-Emitting diodes, UV-LED's, to Water Treatment, IUVA Symposium: UV Technology Advancement For Water Environment, Singapore, Japan, November, 2017、招待講演

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 和歌山大学、2017年9月、招待講演

Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Spectral Impacts of UV-LEDs on the Efficiencies and Mechanisms of Virus Inactivation, IUVA 2017 World Congress & Exhibition, Dubrovnik, Croatia, September, 2017

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

Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Protocol Development for the Detection of Human Adenovirus Serotype 5 in Wastewater with Infectivity Assay, Water and Environment Technology Conference 2017, Sapporo, Japan, July, 2017

Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Application of UV-LEDs for Water Disinfection: Effects of Wavelengths on Surrogate and Pathogenic Microorganisms, 第51回日本水環境学会年会、熊本 熊本大学、2017年3月

金澤かおり、小熊久美子、橋本崇史、滝沢智、紫外発光ダイオード(UV-LED)の照射が水道水中の従属栄養細菌および緑膿菌に及ぼす影響、第51回日本水環境学会年会、熊本 熊本大学、2017年3月

細井山豊、小熊久美子、滝沢智、紫外発光ダイオード(UV-LED)による大腸菌の不活化波長が光回復に及ぼす影響、第51回日本水環境学会年会、熊本 熊本大学、2017年3月

Kumiko Oguma, Water Quality Deterioration in Drinking Water Supply Systems in Hanoi, The 12th International Symposium on Southeast Asian Water Environment (SEAW12), Hanoi, Vietnam, Nov., 2016

小熊久美子、水の消毒技術としての紫外線処理、市民環境学校『水道技術講座』、東京 全水道会館、2016年11月、招待講演

小熊久美子、紫外発光ダイオードを用いた水処理、スマートエンジニアリング TOKYO, 東京 東京ビックサイト、2016年10月、招待講演

小熊久美子、深紫外発光ダイオードによる水処理、JLEDs セミナー、東京 東洋海事ビル、2016年10月、招待講演

小熊久美子、金澤かおり、紫外発光ダイオードを利用した水処理技術の研究動向と課題、第19回日本水環境学会シンポジウム、秋田 秋田大学、2016年9月

Kumiko Oguma, UV-LED as a potential solution for water treatment, IUVA Symposium Tokyo, Tokyo, Japan, April 2016、招待講演

⑳ 金澤かおり、小熊久美子、橋本崇史、滝沢智、紫外発光ダイオード(UV-LED)による水道水中の従属栄養細菌の制御、第50回日本水環境学会年会、徳島 アステイ徳島、2016年3月

㉑ 小塩美香、小熊久美子、Lohwacharin Jenyuk、滝沢智、濁質粒子の特性が紫外線の微生物不活化効果に及ぼす影響、第50回日本水環境学会年会、徳島 アステイ徳島、2016年3月

㉒ Kumiko Oguma and Mari Asami, Challenges at small water systems in Japan: Can UV-LED be a solution?, World Congress of International Ultraviolet Association. Vancouver, Canada, 2016年1月

㉓ Kumiko Oguma, A perspective on the use of UV light emitting diodes for water treatment, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2015). Honolulu, USA, 2015年12月、招待講演

㉔ Kumiko Oguma, Ryo Kita, Satoshi Takizawa, Effects of Arrangement of UV

Light Emitting Diodes (UV-LEDs) on the Inactivation Efficiency of Microorganisms in Water, ASPIRE 2015, International Water Association. Beijing, China, 2015年9月

②⑥ Kumiko Oguma, Small water systems in Japan: current status and technical challenges for the future, The 10th International Symposium on Water Supply Technologies (第10回水道技術国際シンポジウム), Kobe, Japan, 2015年7月

②⑦ Kumiko Oguma, Disinfection: UV-LED as a new option, The UV Research Frontiers Conference, Leeuwarden, The Netherlands, 2015年6月, 招待講演

②⑧ 喜多諒、小熊久美子、橋本崇史、滝沢智、紫外LEDを用いた水消毒装置の不活化性能に及ぼす設計因子の影響、第49回水環境学会年会、石川 金沢大学、2015年3月

②⑨ 岡佐充、小熊久美子、Vu Duc Canh、滝沢智、ベトナム・ハノイ市の上水道システムにおける微生物およびトリハロメタン汚染の実態調査、第49回水環境学会年会、石川 金沢大学、2015年3月

③⑩ Kumiko Oguma, Water quality changes in water supply network and household storage, Workshop on Water Resources and Water Supply in Hanoi, Hanoi, Vietnam, 2015年3月

③⑪ Kumiko Oguma, Surapong Rattanakul, Validation of a UV-LED disinfection apparatus and its application to microorganisms in water, 3<sup>rd</sup> Water Research Conference, Shenzhen, China, 2015年1月

③⑫ Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Satoshi Takizawa, Sequential and simultaneous applications of UV and chlorine for adenovirus inactivation, 3rd Water Research Conference, Shenzhen, China, 2015年1月

③⑬ 喜多諒、小熊久美子、酒井宏治、滝沢智、紫外線発光ダイオード(UV-LED)を用いた環状外照式水消毒装置の開発と評価、第51回環境工学研究フォーラム、山梨山梨大学、2014年12月

③⑭ 小熊久美子、Jatuwat Sangsanont、片山浩之、災害時の応急下水処理としての紫外線消毒の有効性評価、第17回日本水

環境学会シンポジウム、滋賀 滋賀大学、2014年9月

③⑮ Surapong Rattanakul, Kumiko Oguma, Hiroshi SAKAI, Satoshi TAKIZAWA, Inactivation of viruses by combination processes of UV and chlorine, Water and Environment Technology Conference 2014, 日本水環境学会, 東京 早稲田大学, 2014年6月, Excellent Research Award

〔図書〕(計 1 件)

1. 一般財団法人造水促進センター編、追水技術ハンドブック<追補版>、造水促進センター、2014

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 1 件)

名称: 紫外線照射装置  
発明者: 丸山 司、小熊 久美子  
権利者: 国立大学法人 東京大学、DOWAエレクトロニクス株式会社  
種類: 特許  
番号: 特許第 6208563 号  
取得年月日: 平成 29 年 10 月 4 日  
国内外の別: 国内

〔その他〕

ホームページ等  
<http://www.urbanwater.t.u-tokyo.ac.jp/oguma/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小熊 久美子 (Oguma, Kumiko)  
東京大学・先端科学技術研究センター・准教授

研究者番号: 00361527

(2) 研究分担者

春日 郁朗 (KASUGA, Ikuro)  
東京大学・大学院工学系研究科・准教授  
研究者番号: 20431794

(3) 連携研究者

Lohwacharin Jenyuk (LOHWACHARIN, Jenyuk)  
東京大学・大学院工学系研究科・特任助教  
(平成 28 年度まで)  
研究者番号: 60709517

(4) 研究協力者

なし