

## 流水式海水電解装置による飼育排水の殺菌

笠井久会,<sup>1</sup> 渡辺研一,<sup>2</sup> 吉水 守<sup>1\*</sup>

(2000年7月5日受付, 2000年10月30日受理)

<sup>1</sup>北海道大学大学院水産科学研究科, <sup>2</sup>日本栽培漁業協会厚岸事業場

## Bactericidal Effect of Continuous Flow Electrolyzer on Hatchery Waste-seawater

Hisae Kasai,<sup>1</sup> Ken-ichi Watanabe,<sup>2</sup> Mamoru Yoshimizu<sup>1\*</sup><sup>1</sup>Graduate School of Fisheries Science, Hokkaido University, Hokkaido 041-8611, <sup>2</sup>Akkeshi Station of Japan Sea-Farming Association, Hokkaido, 088-1108 Japan

The bactericidal effect of hypochlorite produced by a continuous flow electrolyzer on hatchery waste-seawater was investigated. The number of viable bacteria in the waste-seawater was reduced more than 99% when the water was treated with hypochlorite at 0.6 mg/L for 1 min, and over 99.9% of bacteria was reduced when treated with 1.0 mg/L for 1 min. In the next experiment, one part, 2.0 m<sup>3</sup>/h of hatchery waste-seawater was treated with electrolyzer and produced hypochlorite was mixed with the remaining, 16.5 m<sup>3</sup>/h waste-seawater. More than 99% of viable bacterial was reduced after treatment with 0.5 mg/L of total residual chlorine for 1 min. The bactericidal efficacy of electrolysis was almost the same as that of ultraviolet irradiation (1.0 × 10<sup>5</sup> μW•sec/cm<sup>2</sup>) or ozonization (TROs 0.5 mg/L, 1 min) of seawater. Electrolyzation is able to treat a large volume of waste seawater compared with the ultraviolet irradiation or ozonization.

キーワード: 飼育排水, 殺菌, 電気分解, 電解水

海産魚介類の種苗生産施設において, ひとたび疾病が発生すると病魚あるいは死亡魚から放出される病原体の数は膨大な数となり, 飼育排水とともに排出され, 水系汚染を引き起こすことが容易に推察される。湾内や水通しのよくない地形に飼育用水の取水口がある場合, 排水口から放出された病原体が飼育用水に混入し, 新たな感染を引き起こし発病に至る悪循環を繰り返す危険性がある。沿岸水域の病原体汚染を軽減するためにも, 飼育排水中の病原体を殺菌し, さらに沿岸環境対策からも排水中の一般細菌数を飼育用水と同一にすべきと考えられ, 飼育排水の殺菌処理は魚介類の種苗生産を行う上で重要な課題の一つとなっている。<sup>1)</sup>

人為感染実験施設の飼育排水の殺菌は古くから塩素を用いて実施されているが, 一般飼育排水の殺菌に関して, いくつかの施設で実施されている。<sup>2-4)</sup> これらはいずれも紫外線あるいはオゾン処理によるものであり, 大量の飼育排水を殺菌するには無理がある。

著者らは, 前報で食塩水あるいは海水を電気分解した際に生成される次亜塩素酸の魚類病原微生物に対する殺

菌・不活化効果について検討し, 魚類病原細菌の *Vibrio anguillarum* や *Aeromonas salmonicida* では 0.07 ~ 0.11 mg/L の次亜塩素酸量で 1 分間, 病原ウイルスの YAV や HIRRV でも 0.49 ~ 0.58 mg/L の次亜塩素酸量で 1 分間処理することにより 99.99% 以上の殺菌・不活化効果が得られることを報告した。<sup>5)</sup> 本報では飼育排水を対象に, 直接電気分解した場合およびその一部を電気分解にすることにより得られた高濃度の次亜塩素酸を飼育排水に添加した場合の殺菌効果について検討した結果を報告する。

## 試料および方法

**海水電解装置** 本研究には前報で供試した小型の試作海水電解装置 (ライトクロア®荏原製作所) および実証試験機 (H-100 型®荏原製作所) を使用した。

**紫外線殺菌装置およびオゾン殺菌装置** 紫外線殺菌装置には中圧ランプ使用の HANOVIA UV60M 型® (荏原製作所) を, オゾン殺菌装置にはオゾンバリア® (荏原実業) を使用した。なお紫外線照射量は 1.0 × 10<sup>5</sup> μW•

\* Tel : +81-138-40-8810, Fax : +81-138-40-8810, E-mail : yosimizu@fish.hokudai.ac.jp

sec/cm<sup>2</sup>, オキシダント濃度は 0.5 mg/L とし, オキシダントとの反応時間を 1 分間とした。

**次亜塩素酸および残留塩素の測定法** 前報同様ポケット残留塩素計 46700-00 型 (セントラル科学) を用い, DPD 法による測定と, ヨウ素滴定法による測定を行った。<sup>6)</sup>

**生菌数測定法** 供試水を適宜希釈し, その 0.2 mL を海水寒天培地平板<sup>7)</sup>に塗抹し, 20°C で 7 日間培養後, 出現コロニー数から算出し, 3 回の平均値で示した。なお殺菌処理後の供試水は, その 10 mL を 0.45 μm フィルター (Millipore HA) で濾過し, フィルターを海水寒天培地平板に貼り付けて培養し, 出現コロニー数から同様に算出した。

**直接電気分解による飼育排水の殺菌効果判定試験** 日本栽培漁業協会厚岸事業場において, マツカワ, ニシン, ハナサキガニ, ケガニの飼育を行った排水を供試水として用いた。試水は排水溝より水中ポンプを用いて本装置まで圧送した。流量は 2.0 m<sup>3</sup>/h とし, 電流を 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 A とし, ライトクロアに通した。電極を通過した直後の電気分解処理水を採取し, 生成した次亜塩素酸濃度を DPD 法により測定した。同時に供試水 1 mL を採取し, 1 分後に 9 倍量の 1% ペプトン水を残留塩素の作用を停止させる目的で加えたのち生菌数を測定した。対照には無処理の飼育排水に 1% ペプトン水を加え同様に生菌数を測定した。同時に紫外線殺菌装置およびオゾン殺菌装置の殺菌効果を検討した。両装置に供給した試水の流量は海水電解装置と同一にし, 紫外線照射量は  $1.0 \times 10^5 \mu\text{W} \cdot \text{sec}/\text{cm}^2$ , オキシダント濃度は 0.5 mg/L とした。オゾン処理水には 1 分後に 9 倍量の 1% ペプトン水を加え, 残留オキシダントの作用を停止させたのち生菌数を測定した。

**電気分解により生成した次亜塩素酸を滴下することによる飼育排水の殺菌効果判定試験** 飼育排水の流量を 18.5 m<sup>3</sup>/h とし, そのうち 2.0 m<sup>3</sup>/h の排水を H-100 型機<sup>8)</sup>に通し, 電気分解した。電流を 10, 20, 30, 40, 67, 90

A とし, 本装置を運転し, 電極を通過した直後の電気分解処理水を採取し, 生成した次亜塩素酸濃度をヨウ素滴定法により測定した。この電気分解処理水 2.0 m<sup>3</sup>/h を残りの 16.5 m<sup>3</sup>/h の排水と混合し, 混合後 1, 4, 7 分経過した後の排水の一般生菌数を測定するとともに残留塩素濃度をヨウ素滴定法により測定した。対照として無処理の試水の生菌数を測定した。

## 結 果

**飼育排水を直接電気分解した場合の殺菌効果** 供試したライトクロア<sup>9)</sup>の電流値と生成された次亜塩素酸濃度, そのときの殺菌率を Table 1 に示した。次亜塩素酸の生成量は電流の増加とともに増大し, 電流 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 A のとき, それぞれ 0.33, 0.60, 0.85, 1.10, 1.28 mg/L と測定された。殺菌率はそれぞれ 93.84, 99.13, 99.77, 99.86, 99.91% と増加し, 電流値 1.0 A, 残留塩素濃度 0.60 mg/L で 99%, 1.28 mg/L で 99.9% を超えた。なお, 同時に測定した紫外線殺菌装置とオゾン殺菌装置の殺菌率はともに 99.99% であった。

**電気分解により生成した次亜塩素酸を滴下することによる飼育排水の殺菌効果** 供試した H-100 型機<sup>8)</sup>の電流値と発生した次亜塩素酸の濃度, そのときの殺菌率を Table 2 に示した。2.0 m<sup>3</sup>/h の排水を電気分解した場合, 電流値が 10, 20, 30, 40, 67, 90 A のときに次亜塩素酸濃度は 0.62, 1.15, 2.01, 2.70, 4.60, 6.16 mg/L となった。この次亜塩素酸含有水を 16.5 m<sup>3</sup>/h の排水と混合処理し 1 分間処理した場合, 電流値 20 A, 残留塩素濃度 0.50 mg/L で殺菌率が 99% に達した。4, 7 分後には残留塩素濃度は 0.50, 0.48 となり, 殺菌率は 99% 以上であった。

排水の一部 (2.0 m<sup>3</sup>/h) を電気分解後, 生成された次亜塩素酸を混合してからの時間の経過と残留塩素量を Fig. 1 に示した。処理時間に関わらず, 電流値と残留塩素濃度の間には相関関係が認められた。しかし混合後の時間が長くなるに伴い残留塩素濃度は漸減する傾向が認

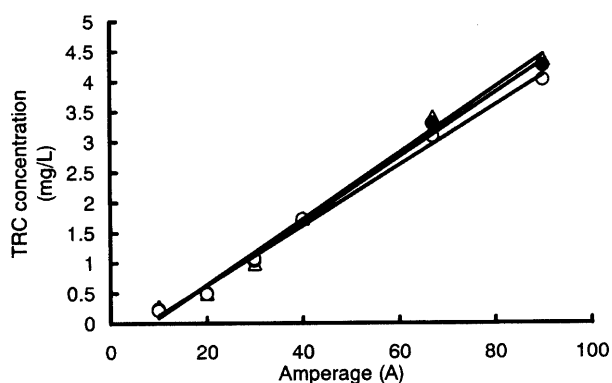
**Table 1.** The effects of electrolyzation, U.V. irradiation and ozonization on the viability of bacteria in hatchery waste-seawater

Methods	Flow rate (m <sup>3</sup> /h)	Electricity (A)	Hypochlorite concentration (mg/L)	Treatment time (min)	Viable counts (CFU/mL)	Reduction rate (%)
Electrolyzation	2.0	0	0	0	$4.7 \times 10^4$	—
		0.5	0.33	1	$2.9 \times 10^3$	93.84
		1	0.60	1	$4.1 \times 10^2$	99.13
		1.5	0.85	1	$1.1 \times 10^2$	99.77
		2	1.10	1	$6.6 \times 10^1$	99.86
		2.5	1.28	1	$4.3 \times 10^1$	99.91
U.V. irradiation	2.0		( $1.0 \times 10^5 \mu\text{W} \cdot \text{sec}/\text{cm}^2$ )		$1.3 \times 10^0$	99.99
Ozonization	2.0		(TROs 0.5 mg/L, 1 min)		$3.0 \times 10^0$	99.99

**Table 2.** The effects of hypochlorite produced by seawater electrolyzer on the viability of bacteria in hatchery waste-seawater

Electricity (A)	Hypochlorite concentration produced by H-100® (mg/L)	Treatment time (min)	Total residual chlorine concentration in waste water (mg/L)*	Viable counts (CFU/mL)	Reduction rate (%)
0	0	0		$7.2 \times 10^2$	—
10	0.62	1	0.28	$6.0 \times 10^1$	91.7
20	1.15	1	0.50	$4.7 \times 10^0$	99.4
30	2.01	1	0.99	$3.3 \times 10^0$	99.5
40	2.70	1	1.74	$5.1 \times 10^0$	99.3
67	4.60	1	3.40	$1.4 \times 10^0$	99.8
90	6.16	1	4.35	$1.3 \times 10^0$	99.8
-----					
10	0.62	4	0.23	$2.9 \times 10^1$	94.0
20	1.15	4	0.50	$4.2 \times 10^0$	99.4
30	2.01	4	1.03	$7.4 \times 10^0$	99.0
40	2.70	4	1.71	$5.4 \times 10^0$	99.2
67	4.60	4	3.29	$1.4 \times 10^0$	99.8
90	6.16	4	4.25	$1.6 \times 10^0$	99.8
-----					
10	0.62	7	0.21	$1.2 \times 10^1$	98.4
20	1.15	7	0.48	$2.4 \times 10^0$	99.7
30	2.01	7	1.06	$3.0 \times 10^1$	99.6
40	2.70	7	1.72	$4.9 \times 10^0$	99.3
67	4.60	7	3.08	$1.2 \times 10^0$	99.8
90	6.16	7	4.01	$1.3 \times 10^0$	99.8

\* One part (2.0 m<sup>3</sup>/h) of waste-seawater was treated with electrolyzer and produced hypochlorite was mixed with other (16.5 m<sup>3</sup>/h) waste-seawater.



**Fig. 1.** Stability of total residual chlorine (TRC) produced by seawater electrolyzer (Type H-100®) after mixed with hatchery waste seawater.  $\Delta$ : After mixed with hypochlorite for 1 min,  $\bullet$ : After mixed with hypochlorite for 4 min,  $\circ$ : After mixed with hypochlorite for 7 min.

められた。

### 考 察

前報で食塩水あるいは海水を電気分解することにより生成された次亜塩素酸の魚類病原微生物に対する殺菌・不活化効果を検討し、さらに飼育用水に対する殺菌効果

についても検討した結果、魚類病原細菌およびウイルスは次亜塩素酸濃度 0.07~0.58 mg/L で 1 分間処理することにより 99.99% 以上殺菌あるいは不活化され、飼育用水も 1.0 mg/L で 1 分間処理することにより一般生菌数は 99.9% 以上減少し、従来用いられてきた紫外線殺菌装置やオゾン処理装置と同等の殺菌効果が認められた。

今回当初の目的であった飼育排水の殺菌効果について検討した。まず、前報で供試した試作機を用いて飼育排水を直接電気分解処理したところ、次亜塩素酸濃度 0.6 および 1.28 mg/L で 1 分間処理することにより 99% および 99.9% 以上の殺菌率が得られた。同時にオゾン殺菌装置および紫外線殺菌装置を供試して比較したところ、オゾン殺菌装置ではオキシダント濃度 0.5 mg/L で 1 分間反応させることにより 99.99% が殺菌され、殺菌率は海水電解装置を用いた場合より高かった。しかし、オゾン処理の場合はオキシダント濃度を 0.5 mg/L とするまでに 2 分あまりを要し、所定濃度となってから 1 分間反応させている。この間、飼育排水はオゾンガス気泡と接触し続けており、オゾン気泡にも殺菌効果があること<sup>8)</sup>および実際の反応時間は 3 分間程度となっていたことが原因と考えられる。また、紫外線殺菌装置の殺菌率も 99.99% と高かったが、これは中圧ランプを用い紫外線照射線量が  $1.0 \times 10^5 \mu\text{W} \cdot \text{sec}/\text{cm}^2$  と高かったため

と考えられる。実際にオゾンにより飼育排水を殺菌する場合、オゾン発生装置の他に発生したオゾンガス気泡と飼育排水を数分間接触させるための装置（インジェクションタワー）が必要となる。また紫外線殺菌装置を飼育排水の殺菌に用いる場合には、排水中の懸濁物をあらかじめ除去する必要があり、紫外線殺菌装置の他にろ過装置が必要となる。この点、海水電解装置の場合は発生した次亜塩素酸が少なくとも1分間以上残留するような構造であれば良く、簡便で優れた装置と考えられる。それぞれの装置の価格、維持経費については、紫外線殺菌装置では電気代とランプの交換に費用がかかり、オゾン殺菌装置は維持費に加え装置自体も高価である。この点でも海水電解装置はわずかな電気代だけで済み、装置もチタン電極板と電流の制御装置のみであり、三者の中では最も安価である。

次に、海水電解装置の実用化、飼育現場への導入を目的に H-100 型機<sup>®</sup>を供試し、まず飼育排水の一部を電気分解し生成された次亜塩素酸を未処理の飼育排水と混合する方法で殺菌率を調べたところ、電流 20 A で 0.62 mg/L の次亜塩素酸が生成され、これを残りの飼育排水と混合した場合、残留塩素濃度 0.5 mg/L 以上で 1 分以上処理することにより 99% の殺菌率が得られた。H-100 型機<sup>®</sup>は 100 A の電流を流す能力があり、100 g/h の次亜塩素酸を生成することができる。飼育排水を生成した次亜塩素酸で 1 分間処理する施設があると仮定し、0.5 mg/L の残留塩素濃度で 99% 以上の殺菌効果が得られたことから推定すると、H-100 型機<sup>®</sup>は 200 m<sup>3</sup>/h の飼育排水を処理できることになる。日本栽培漁業協会厚岸事業場の取水量は 100 m<sup>3</sup>/h であり、飼育排水の殺菌に用いる場合十分な能力を持っていると考えられる。

一方、H-100 型機<sup>®</sup>による殺菌試験から明らかとなったように、生成された次亜塩素酸は少なくとも 7 分間は残留する。塩素は魚毒性を有することを考慮すると、実際の使用にあたっては排水路あるいは排水管中での残留塩素の減少量を検討し、必要に応じ残留塩素を分解してから放流する等の配慮が必要となり、そのための技術開発が望まれる。また、海水中の微量元素が電気分解された場合に生じる物質についても、その毒性等を検討しておく必要があると考える。

このように、今回供試した海水電解装置により飼育排水の殺菌が可能になると考えられる。塩素殺菌法は水道水の殺菌法に広く用いられている。本装置で生成された次亜塩素酸で飼育排水を処理する水槽の出口に塩素センサーを設置し、測定された値を基に、本装置の運転を制御すれば、自動運転での飼育排水の殺菌が可能になると考えられる。イニシャルコストおよび処理能力を考慮すると種苗生産現場における排水処理装置の有力候補の一つと考えられる。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり、海水電解装置の提供および助言を頂いた株式会社荏原製作所エンジニアリング事業本部の上西敏夫氏および関係各位、荏原実業株式会社水産技術研究所の三村 元博士、および試験の場を提供していただいた日本栽培漁業協会厚岸事業場の方々に感謝申し上げます。また本研究は文部省科学研究費基盤研究(B)展開(課題番号 09556041)によった。ここに記して感謝申し上げます。

## 文 献

- 1) 吉水 守. 用水および排水の殺菌. 「魚類防疫」月刊海洋号外 No. 14, 海洋出版株式会社, 東京, 1998; 112-117.
- 2) 三村 元, 長瀬俊哉. 養魚排水処理システムの最新動向. 養殖 1996; 33: 146-151.
- 3) 坂井勝信, 太田博巳. 飼育用水および魚病実験排水の殺菌システム. 養殖 1990; 27: 82-84.
- 4) マリノフォーラム 21 新技術評価基準作成委員会. 「海水殺菌装置評価基準」マリノフォーラム 21, 東京, 1991; 220.
- 5) 笠井久会, 石川麻美, 堀 友花, 渡辺研一, 吉水 守. 流水式海水電解装置の魚類病原細菌およびウイルスに対する殺菌効果. 日水誌 2000; 66: 1020-1025.
- 6) Sugita H, Asai T, Hayashi K, Mitsuya T, Amanuma K, Maruyama C, Deguchi Y. Application of ozone disinfection to remove *Enterococcus serotocida*, *Pasteurella piscicida*, and *Vibrio anguillarum* from seawater. *Appl. Environ. Microbiol.* 1992; 58: 4072-4075.
- 7) Yamamoto H, Ezura Y, Kimura T. Effects of antibacterial action of seawater on the viability of some bacterial species. *Nippon Suisan Gakkaishi* 1982; 48:1427-1431.
- 8) 伊藤慎悟, 吉水 守, 絵面良男. 人工海水における低濃度オキシダントの魚類病原微生物に対する殺菌・不活化効果. 日水誌 1997; 63: 97-102.