



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	水中パルス放電処理によるクリプトスポリジウムの不活化
Author(s)	大保, 忠司; 國友, 新太; 五十嵐, 千秋 他
Description	第11回衛生工学シンポジウム (平成15年11月6日 (木) -11月7日 (金) 北海道大学学術交流会館) . 一般セッション . 2 水処理 . 2-6
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 11, 119-122
Issue Date	2003-10-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7060
Type	departmental bulletin paper
File Information	11-2-6_p119-122.pdf



2-6

水中パルス放電処理によるクリプトスポリジウムの不活化

○大保忠司、國友新太、五十嵐千秋（荏原総合研究所）、須田康司（荏原製作所）

1. はじめに

水中で、電極間に水の絶縁破壊電圧以上の電圧を印可してアーク放電を発生させると、放電に伴って高強度の衝撃波や紫外線、ラジカル等の活性化学種が同時に発生することが知られている。^{1,2)} またこれらの作用を利用した水処理法に関しても多くの研究が行われている。^{2,3,4,5,6,7)} 特に殺菌については、比較的低エネルギーで薬品も使用せずに行え、さらに水の温度上昇を伴わない殺菌処理法となり得ることから食品産業等への応用が期待されている。¹⁾

クリプトスポリジウム (*C. parvum*) は重い下痢症状を引き起こす水系感染微生物として知られており、この10年間でもアメリカのミルウォーキー（1993年）や、埼玉県越生町（1996年）で大規模感染事故が報告されている。中でもミルウォーキーの事例は、感染者40万人以上、死亡者も100人を越えるという大事故であった。*C. parvum*は塩素に対して強い抵抗性を持ち、従来の上水処理で行われている塩素処理では殺滅出来ないため、その対策が問題となっている。

一方浄水場では、ろ過設備の逆洗排水（返送水）を着水井に返送して再利用することが、水資源の効率的利用の観点から重要となってきている。しかしこの返送水は濁質を多く含み、また*C. parvum*の大部分は濁質に付着して存在することから、返送水を何らかの方法で消毒してから再利用する方が、水道水の安全管理の上では望ましい。

*C. parvum*に有効な消毒方法としてはオゾン法や紫外線照射法などが検討されている。特に紫外線照射法については、比較的低線量の照射により殺滅は出来なくとも感染力を無くす、すなわち不活化出来ることが明らかになってきた。⁸⁾ しかし高濁度条件下で不活化を行う場合、単位時間当たりの処理量を増加させるために高強度の紫外線照射が必要不可欠である。

そこで著者等は高強度の紫外線発光等の特徴を有する水中パルス放電法を返送水中の*C. parvum*の不活化に適用し、濁度や放電条件と不活化率の関係を調べ、さらに配管を模した大型容器を用いてスケールアップ試験を行った。

2. 実験方法

2.1 試薬と調製

浄水場から採取した返送水は、遠心分離もしくはデカンテーションにより濁度を調節してから実験に用いた。濁質の影響を調べるために用いた疑似懸濁液は、蒸留水に塩化ナトリウムを加えて導電率を調製し、さらにカオリン添加により濁度を調製した。*C. parvum* オーストは大阪市立大学医学部より供給されたHNJ-1株を用い、また不活化率の評価は免疫不全 (SCID) マウス (*C. B-17/1cr-scid Jcl*, 5週齢メス) を用いた感染試験によって行った。全ての試薬には試薬級のものを用いた

2.2 実験装置

図1に小型容器を用いた実験装置の概略図を示す。小型容器はSUS製のだ円柱状（長径13.9cm、短径12.1cm、高さ9.3cm、内容積約1,230cm³）であり、これに処理溶液1Lを入れて実験を行った。蓋と底部にはそれぞれ棒電極（φ6、SUS）を備えており、蓋部の電極は蓋と絶縁体（ポリエチレン）で絶縁している。また底部電極は底部に溶接した。電極間隔は各実験の前に2mmに調整した。

高圧パルス供給部は、高圧電源（最高40kV、容量8kJ/秒、General Atomics Energy Products製）、コンデンサ（容量5μF、耐圧15kV、General Atomics Energy Products製）、制御部（九州計測器製）及び自作の気中スイッチから成る。充電が完了すると制御部からのトリガ信号で気中スイッチを強制放電させ、続いて水中電極が自然放電する構造とした。放電電圧及び電流は、電圧デバイダ（SK-301、岩崎通信機製）及びロゴスキー

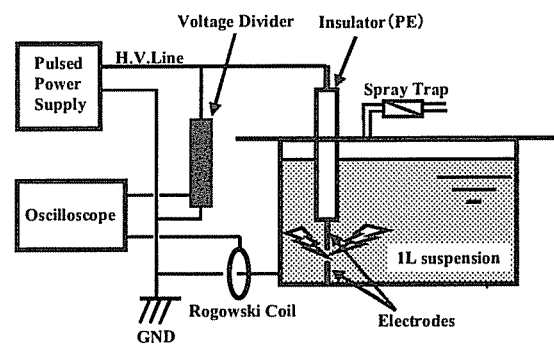


図1 小型容器を用いた実験装置概略図

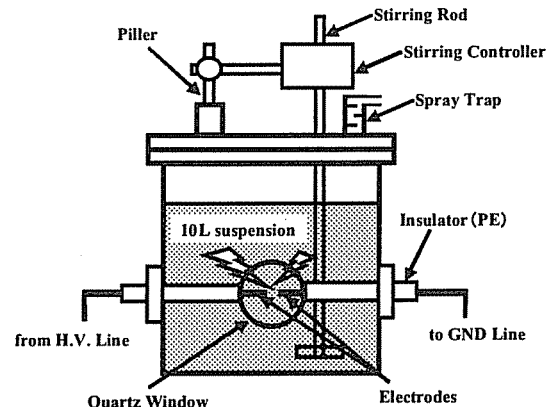


図2 大型容器概略図

コイル(CM-1-L, Ion Physics Corporation製)を用いてオシロスコープ(LC-374A, LeCroy Corporation製)にて測定した。

図2にスケールアップ試験用の大型容器の概略図を示す。大型容器はSUS製の円柱状(内径20cm、高さ35.5cm、内容積11,150cm³)であり、側壁に棒電極(φ6, SS400)、また蓋部を貫通している攪拌翼を備えている。高圧供給部などの電源及び計測装置については小型容器の場合と同じ物を用いた。

小型、大型いずれの容器を用いた実験においても、放電電圧は5.4kV、放電周波数は0.2Hz(5秒に1回放電)とし、コンデンサ数を変えることにより1パルス当りのエネルギー(73~292J/pulse)を、また放電回数を変えることにより単位体積当りの投入エネルギー(875~7008J/L)をそれぞれ変化させた。

2.3 分析

濁度は濁度計TY-4L(日本光電研究所製)、導電率はModel-24(堀場製作所製)、また返送水の紫外線透過率は紫外可視吸光度計UV mini 1240(島津製作所製)で測定した。さらに大型容器の窓部に石英基板(50C10-10, シグマ光機製)設置し、さらに1%偏光フィルター(20C02-1, シグマ光機製)を取り付けたプローブを用いて、紫外線発光強度をPMA-11(浜松ホトニクス製)で測定した。*C. parvum*の形態観察及び計数は、微分干渉装置を備えた偏光顕微鏡E600(ニコン製)を用いて行った。

2.4 不活化試験

全ての実験において、処理液中のオーシスト濃度が 5×10^6 個/Lとなるようにオーシストを添加した。放電開始前に対照試料として100mL採取した後、所定条件で放電を行い、放電終了後に処理後試料として同様に100mLを採取した。対照、処理後いずれの試料も遠心濃縮(1700G, 10分)した後、無菌水0.5mL中に再懸濁した。そこからオーシスト 10^5 個(0.1mL)を分取して、1試料につき3匹の

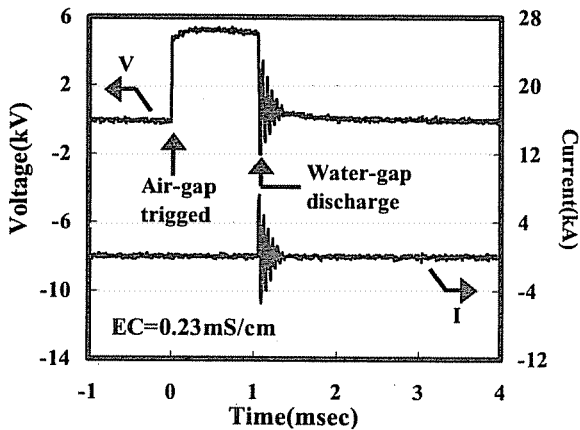


図3 放電電圧及び電流波形
(5.4 kV, 292 J/pulse, turbidity 40)

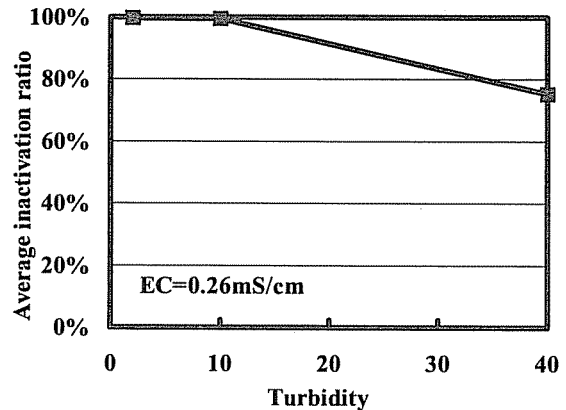


図5 不活化率に対する濁度の影響
(5.4 kV, 292 J/pulse, 3 pulses)

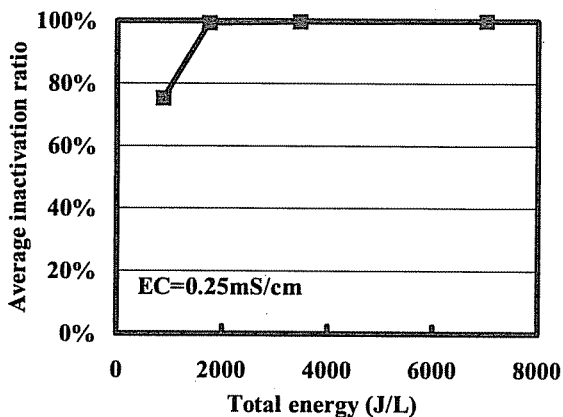


図4 不活化率に対する投入エネルギーの影響
(5.4 kV, 292 J/pulse, turbidity 40)

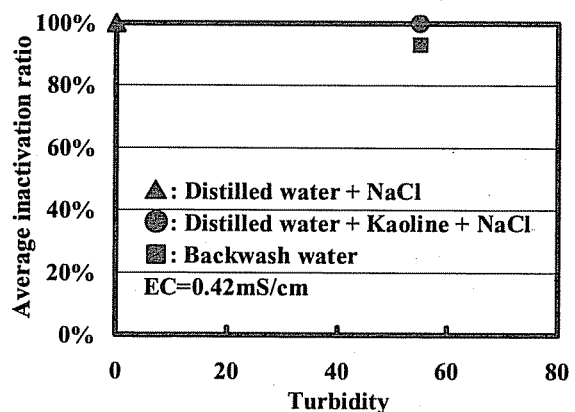


図6 不活化率に対する懸濁液組成の影響 (5.4 kV, 73 J/pulse, 12 pulses)

マウスを1群として用意し、各マウスにそれぞれ経口投与した。対照については再懸濁液をさらに希釈し、 10^3 個 (0.1mL) ずつ投与する第2対照群も用意した。全てのマウスを約1ヶ月間飼育し、糞便中に排出されるオーシスト数が 10^5 個/日に達するまでの日数を、処理後と対照とで比較して不活化率を算出した。

3. 結果

図3に代表的な放電電圧及び電流波形を示す。気中スイッチの放電後に電圧が急激に立ち上がっており、水中電極が瞬間的に充電されていることが分かる。その後アークに到達するまでの1 msec程度は電圧が徐々に低下し、ある瞬間で電流が急激に立ち上がると共にアーク放電に到達する。放電電流の最大値は瞬間的に8~10kAに達し、その後振動しながら減衰している。本実験に用いた返送水の導電率は、採取時期や天候により0.23~0.42 mS/cmの間で変化した。放電電圧や電流波形に大きな変化は見られなかった。

図4に不活化率に対する投入エネルギーの影響を示す。濁度40の処理液 1Lに対し、パルスエネルギー292 J/pulseで3回放電 (876 J/L = 0.24 kWh/m³) した場合の不活化率は75.3%であったが、不活化率は投入エネルギーの増大に伴って上昇し、6回放電 (1750 J/L = 0.49 kWh/m³) では99.4%に達した。また24回放電 (7008 J/L = 1.95 kWh/m³) では、感染試験に用いた3匹のマウス全てが飼育期間内に下痢症状を発症しなかったことから、不活化率はほぼ100%に達していると考えられる。

図5に不活化率に対する濁度の影響を示す。濁度2、10ではいずれも292 J/pulse、3回の放電 (投入エネルギー 876 J/L) で不活化率が99%以上に達した。また濁度2については、マウス3匹のうち2匹が飼育期間中に発症しなかったことから、100%に近い不活化率に達していると思われる。しかし、同じ投入エネルギーでも濁度40では不活化率が76%にとどまり、濁度の増加により不活化率が低下することが分かった。

図6に不活化率に対する懸濁液組成の影響を示す。疑似懸濁液において、カオリン添加による濁度の増加は不活化率にほとんど影響を与えていない (いずれも >99%) が、同じ濁度の返送水では不活化率は93%に低下した。これより不活化率に影響を及ぼすのは濁度ではなく、濁質や溶液の組成が大きな要因であることが分かった。

図7に不活化率に対する処理液量の影響を示す。パルスエネルギーは292 J/pulseとし、小型容器 (処理液量 1L) の場合は6回、大型容器 (処理液量 10L) の場合は60回放電を行い、いずれも投入エネルギーを1750 J/Lとした。不活化率は小型容器で99%以上に達し、また大型容器では若干低下するものの97.7%に達した。これより本投入エネルギーおよび容器条件下においては、不活化率に対する処理液量の影響は小さいことが分かった。

4. 考察

水中放電による殺菌については多くの研究がなされているが、その効果は高電界、衝撃波、紫外線または活性化学種の何れかによるものと考えられており、放電条件や放電装置によって各因子の効果は変化すると考えられる。

我々の実験ではアーク放電が2本の電極間のみで行われ、またアーク放電に至るまでの

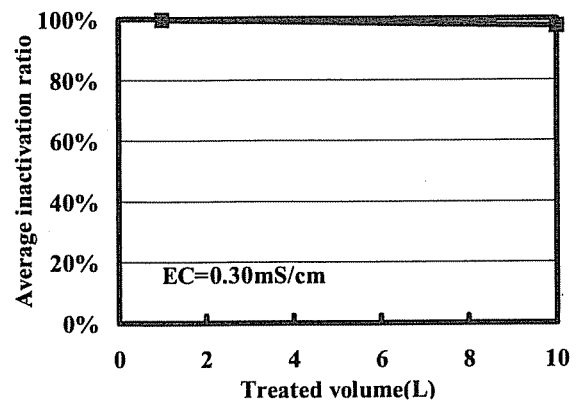


図7 不活化率に対する処理液量の影響 (5.4 kV, 292 J/pulse, 1750 J/L)

は、採取時期や天候により0.23~0.42 mS/cmの間で変化した。放電電圧や電流波形に大きな変化は見られなかった。

図4に不活化率に対する投入エネルギーの影響を示す。濁度40の処理液 1Lに対し、パルスエネルギー292 J/pulseで3回放電 (876 J/L = 0.24 kWh/m³) した場合の不活化率は75.3%であったが、不活化率は投入エネルギーの増大に伴って上昇し、6回放電 (1750 J/L = 0.49 kWh/m³) では99.4%に達した。また24回放電 (7008 J/L = 1.95 kWh/m³) では、感染試験に用いた3匹のマウス全てが飼育期間内に下痢症状を発症しなかったことから、不活化率はほぼ100%に達していると考えられる。

図5に不活化率に対する濁度の影響を示す。濁度2、10ではいずれも292 J/pulse、3回の放電 (投入エネルギー 876 J/L) で不活化率が99%以上に達した。また濁度2については、マウス3匹のうち2匹が飼育期間中に発症しなかったことから、100%に近い不活化率に達していると思われる。しかし、同じ投入エネルギーでも濁度40では不活化率が76%にとどまり、濁度の増加により不活化率が低下することが分かった。

図6に不活化率に対する懸濁液組成の影響を示す。疑似懸濁液において、カオリン添加による濁度の増加は不活化率にほとんど影響を与えていない (いずれも >99%) が、同じ濁度の返送水では不活化率は93%に低下した。これより不活化率に影響を及ぼすのは濁度ではなく、濁質や溶液の組成が大きな要因であることが分かった。

図7に不活化率に対する処理液量の影響を示す。パルスエネルギーは292 J/pulseとし、小型容器 (処理液量 1L) の場合は6回、大型容器 (処理液量 10L) の場合は60回放電を行い、いずれも投入エネルギーを1750 J/Lとした。不活化率は小型容器で99%以上に達し、また大型容器では若干低下するものの97.7%に達した。これより本投入エネルギーおよび容器条件下においては、不活化率に対する処理液量の影響は小さいことが分かった。

4. 考察

水中放電による殺菌については多くの研究がなされているが、その効果は高電界、衝撃波、紫外線または活性化学種の何れかによるものと考えられており、放電条件や放電装置によって各因子の効果は変化すると考えられる。

我々の実験ではアーク放電が2本の電極間のみで行われ、またアーク放電に至るまでの

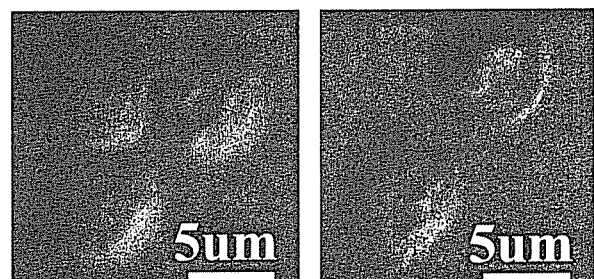


図8 放電処理前後のオーシストの顕微鏡観察像 (5.4 kV, 292 J/pulse, 15 pulses; 処理前 (左); 処理後 (右))

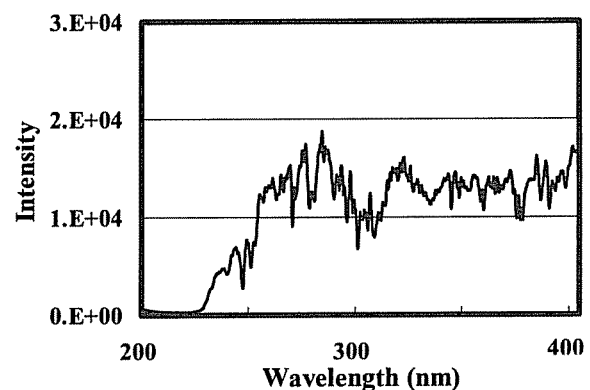


図9 放電による紫外線発光スペクトル (5.4 kV, 292 J/pulse, 1pulse, in tap water)

わずかなリーク電流を除けば、ほとんど全ての電流が電極間のみを流れる。よって電流によるアークプラズマで直接生成した活性化学種は、化学種の寿命と拡散速度を考慮すると電極近傍のみで有効であると考えられ、バルクの溶液中で不活化に寄与するとは考え難い。また、もしこれが不活化の主因子であるとすれば、拡散距離の差から大型容器と小型容器では不活化率に大きな差が生じるはずであり、図 7 の実験結果と矛盾することから主因子ではないと考えられる。

電界強度は、電圧と距離から計算すると電極間で約25 kV/cmであるが、バルクの溶液中では最大でも2 kV/cmもしくはそれ以下と考えられ、その殺菌作用も小さいと考えられる。

図 8 に処理前後のオーシスト微分干渉像写真を示す。処理前後でオーシストの形態に大きな変化はなく、高電界や衝撃波による細胞の破壊は起こっていないことが分かる。さらに図 5 において不活化率に対して濁度が大きく影響しているが、そのSS量を分析した所、濁度10で17 mg/L、40で88 mg/Lであった。外観上はフロック状の柔らかいSSであり、特に気泡も含んでいなかったことを考え合わせると、濁度10と40で衝撃波の減衰が大きく変化することも考えにくい。よって、衝撃波が主因子であれば濁度による影響は小さくなるはずであり、図 5 の結果と矛盾するため、これも不活化の主因子ではないと考えられる。

以上の事から考えると、本システムでの不活化の主因子は紫外線であると推測される。図 9 に、水道水中で放電を行った場合の紫外線発光スペクトルを示す。発光波長範囲は230~400nmに渡っており、230nm付近より高波長側に向かうにつれて徐々に発光強度が増大し、260~400nmではほぼ一様に発光していることが分かる。

図 10 に濁度10、20及び40の返送水の紫外線透過率を示す。紫外線透過率は濁度の増加に伴い低下し、濁度40では260nmにおける透過率が濁度10の約60%程度であった。もし紫外線が不活化の主要因とすると、図 5 で濁度増加に伴い不活化率が低下した原因は、紫外線の透過率が低下したためと考えれば説明ができる。

本実験結果の考察から主要な効果は紫外線であると推測され、また*C. parvum*の不活化に対する紫外線の所要線量が低い事を考えると、直接の紫外線照射による影響が大きいと思われる。ただし高強度紫外線により二次的に生成する活性化学種などによる効果も否定は出来ないことから、今後さらなる検討が必要である。

5. 謝辞

本研究を行うに当たり、*C. parvum*オーシストの御提供、感染試験及び顕微鏡観察をはじめ多大なる御協力を賜りました大阪市立大学医学部の木俣勲先生に深く感謝致します。

6. 参考文献

- 1) M. Allen 他, Science, Oct., p. 155 (1966).
- 2) A. C. Elmore 他, Practice Periodical of Hazardous Toxic and Radioactive Waste Management, 3 (4), p. 178 (1999).
- 3) P. Sunka 他, Plasma Sources Science Technology, 8, p. 258 (1999).
- 4) A. K. Sharma 他, Hazardous Waste & Hazardous Materials, 10 (2), p. 209 (1993).
- 5) S. E. Gilliland 他, Applied Microbiology, 15 (5), p. 1031 (1993).
- 6) E. J. M. van Heesch 他, IEEE Transactions on Plasma Science, 28 (1), p. 137 (2000).
- 7) A. M. Anpilov 他, Letters in Applied Microbiology 2002, 35, p. 90 (2002)
- 8) 平田強 他, 用水と廃水, 44 (4), p. 32 (2002).
- 9) 國友新太 他, 第53回全国水道研究発表会講演集, p. 640 (2002).

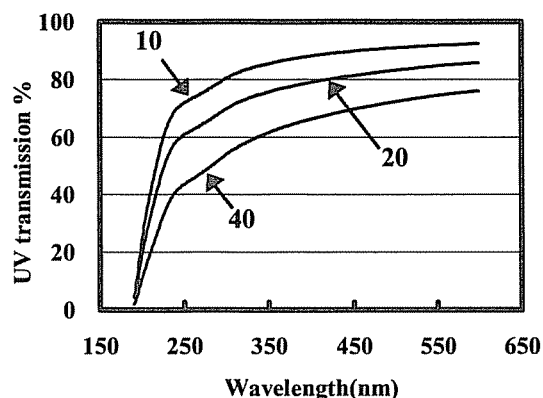


図 10 紫外線透過率に対する返送水濁度の影響