

無水銀ランプを用いた真空紫外放射とオゾンガスの同時処理による殺菌効果

Sterilization of both Vacuum ultraviolet radiation and ozone gas using the mercury-free lamp

○高野友二郎、小林剛、小池彩乃、芹澤和泉

㈱オーク製作所

論文要旨

無水銀のエキシマ UV ランプを用いた真空紫外 (VUV) 照射とオゾン発生による微生物不活性化効果を評価した。VUV 照射と低濃度オゾン処理はそれぞれ大腸菌を不活化することが可能であり、室内浮遊菌は VUV とオゾンの同時処理によって明らかに減少した。有人環境の許容基準である 0.1 ppm 以下の低濃度オゾン処理を連続的に処理することで、14 日後のミドリカビを 89%減少させることが可能であり、エキシマ UV ランプは環境負荷が小さく、室内除菌を達成するモジュールとしての利用が期待される。

キーワード：エキシマ UV ランプ、無水銀、殺菌

1. はじめに

世界規模の感染症流行や衛生意識の高まりによって、オゾンガス、紫外線、光触媒またはフィルターといった様々な空気清浄機が開発され、普及している。オゾンガスは高い酸化力による高い処理能力に加えて、空気原料で生成できるため日常での維持や管理が容易であることが利点として挙げられる。一方、日本産業衛生学会が定めるオゾンガスの許容濃度は 0.1 ppm であり、室内空間では許容濃度以下の低いオゾン濃度による連続処理が広く利用されている。

オゾンの発生方式は紫外線 (UV) 式、放電式、電気分解式に大別され、UV 式では低圧水銀ランプやエキシマ UV ランプ (Xe 封入) を用いて、酸素分子から一重項酸素原子、三重項酸素原子およびオゾン分子の活性酸素種を発生させる¹⁾。UV 式は、一般的に利用されている無声放電式と比べて、窒素酸化物 (NO_x) を原理的に生成しないことが大きな特徴である。同じオゾン濃度の処理であっても NO_x 発生の有無によって金属板の腐食の程度が異なり²⁾、室内空間への連続的なオゾン処理のような多様な設置物がある条件下では UV 式が適当であるかもしれない。

エキシマ UV ランプは水銀を使用せず、200 nm 以下の真空紫外 (VUV) 領域の 172 nm に中心波長を持つランプである。UV による微生物不活性化効果は広く知られており、室内空気を取り込む空気清浄機において、エキシマ UV ランプはオゾン発生のみならず、ランプ近傍を通過した微生物へ VUV 照射による不活性化効果が期待される。加えて、オゾン発生器の使用に際して、ウイルスと細菌の除菌や消臭だけでなく、カビの抑制効果が利用者からの要望として挙げられる。実使用環境でのカビ発生頻度の低下や、密閉容器内での高濃度オゾンガス処理の効果は知られているものの、室内空間での低濃度オゾンガスの連続処理がカビへ及ぼす効果はほとんど報告されていない。

そこで本研究では、VUV 照射と低濃度オゾン処理による大腸菌と室内浮遊菌への不活性化効果を評価した。併せて、低濃度オゾンの連続処理での室内のカビ生育と生菌数を評価し、カビ抑制効果を検証した。

2. VUV 照射と低濃度オゾンの同時処理による不活性化効果

2.1. VUV 照射または低濃度オゾン処理による大腸菌不活性化効果

VUV 照射または低濃度オゾン処理による大腸菌 *Escherichia coli* (NBRC3301) の不活化効果を評価した。VUV 照射光源とオゾン発生源のいずれもスマートエキシマ UV ランプ (OEL-050HSE, 図 1) を使用した。大腸菌は標準寒天平板培地で 35°C、24 h 培養したコロニーを白金耳掻き取り、滅菌水 30 mL に入れて菌液とした。湿らせた脱脂綿上に設置した PTFE メンブレンフィルター (孔径 0.45 μm) に菌液 0.1 mL を滴下しサンプルとして、処理区毎に 3 サンプル作製した。VUV 照射はサンプルを容器 (容積 38 L) 内に設置し、窒素雰囲気下で行った。照射距離 100 mm、ランプ点滅頻度 (Duty 比) 0、0.25、0.5、照射時間 60 min として VUV 照射を行った。処理後、メンブレンフィルターを滅菌水 10 mL に入れて攪拌して回収し、段階希釈した後、標準寒天培地を用いて 35°C、24 h 下で培養した時のコロニー数から生菌数を計数した。

低濃度オゾン処理は、上記と同様のサンプルを用いて、オゾンガス濃度計 (OZG-6305, アプリクス) とエキシマ UV ランプを設置した密閉ブロックをチューブで接続した容器内にて実施した。オゾンガス濃度計の測定値を基にオゾン発生を制御し、0.1 ppm 一定条件下で最大 360 min 間処理を行った。処理後、上記の方法で生菌数を計数した。

VUV 照射と低濃度オゾン処理による生菌数変化を図 2 に示す。生菌数は、窒素雰囲気に設置しただけではコントロールとほとんど差はなく、VUV 照射時のみ減少した。また Duty 比が高いほうが生菌数はより低くなり、VUV 照射による大腸菌不活化効果が認められた。低濃度オゾン処理においても、処理時間に伴って生菌数は減少し、360 min 後では $1.2 \times 10^3 \text{ CFU/mL}$ (不活性化率 99.97%) に達した。以上の結果より、エキシマ UV ランプは VUV 照射とオゾンガス発生の両方で大腸菌を不活化させることが明らかになった。

2.2. 室内浮遊菌における不活化効果

室内浮遊菌を用いてエキシマ UV ランプを追加した際の不活化効果を評価した。住宅の一室 (長野県茅野市) にて設置したエアサンプラーの前段において、図 3 (A) で示す通り円筒管とエキシマ UV ランプを設置し、オゾンガス単独処理 (O_3) または VUV 照射とオゾンガスの同時処理 (VUV + O_3) を行った。エアサンプラー稼働と同時にランプを点灯させ、稼働 10 min 後にエアサンプラーから回収した標準寒天平板培地を 35°C 下で 48 h 培養しコロニー数を計数した。各処理区は同日に実施し、調査する処理区の順番と日付を変えて 5 回行った。 O_3 区と VUV + O_3 区におけるエアサンプラー取込み口のオゾン濃度はそれぞれ平均 4.7 ppm と 3.4 ppm であった。

室内浮遊菌のコロニー数を図 3 (B) に示す。 O_3 区、VUV + O_3 区のいずれもコントロール区よりも菌数が減少する傾向であり、VUV + O_3 区のみ明らかに少なかった ($p < 0.05$, Tukey's HSD test)。そのため、エキ

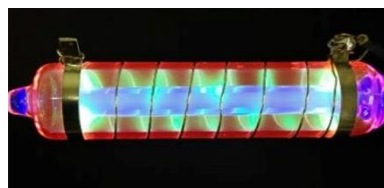


図 1. スマートエキシマ UV ランプ外観

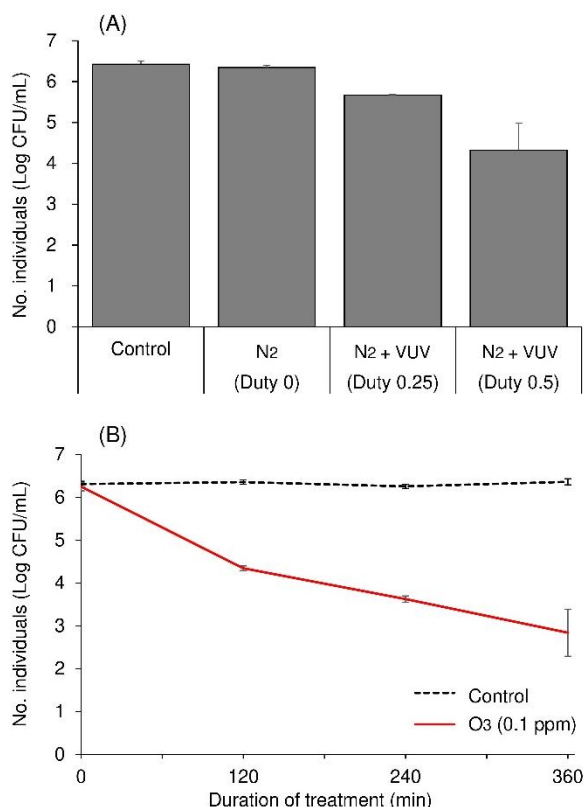


図 2. (A) VUV 照射または (B) 低濃度オゾン処理が大腸菌生菌数に及ぼす影響

シマ UV ランプの VUV 照射とオゾン発生の同時処理は、ランプ近傍を通過する浮遊菌をより効果的に不活化できると考えられた。

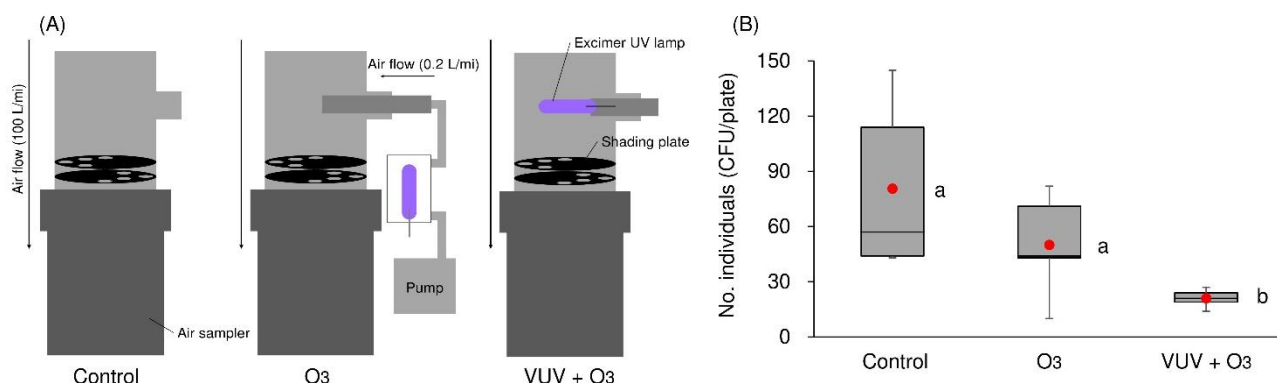


図 3. 室内浮遊菌における (A) 処理区毎の模式図および (B) 生菌数の変化

3. 低濃度オゾンの連続処理によるミドリカビ抑制効果

3.1. 実験方法

上記の住宅内において、オゾンの連続処理または無処理の部屋を用意した。オゾン処理区は 0.1 ppm 以下で制御した一定区 (Constant, 調査日: 2022 年 8 月 22~9 月 7 日) と 16:00~22:00 (6 h) の間にオゾン濃度を上昇させる変動区 (Fluctuating, 調査日: 2022 年 9 月 20 日~10 月 4 日) とした。オゾン発生源はスマートエキシマ UV ランプ (OEL-050HSE, 図 1) を使用した。

供試微生物のミドリカビ *Penicillium digitatum* はウンシュウミカン *Citrus unshiu* 表面に発生したカビから単離し、グラム染色、形態観察および相同性検索を行い同定した。PDA 平板培地にて、25°C、5 d 間培養したコロニーと滅菌水 30 mL を用いて孢子懸濁液を作製した。孢子懸濁液は評価開始日にそれぞれ作製した。低濃度オゾンの連続処理が生育に及ぼす影響を評価するために、PDA 平板培地に塗抹したミドリカビのコロニー形成の有無を評価した。初期菌液を 10^4 倍希釈した菌液を PDA 平板培地に 0.1 mL 滴下し、コンラージ棒で塗り広げた後、それぞれの部屋に培地表面が下向きになるように設置した。3 d 後、それぞれのコロニー数を計数した。

同時に、低濃度オゾンの連続処理によるミドリカビ生菌数推移を評価した。孢子懸濁液を用いて 2.1. と同様にサンプルを作製し、各部屋に設置した。処理 14 d の間で定期的にサンプルを回収し、2.1. と同様の方法で希釈した後、PDA 平板培地にて 35°C、72 h 後のコロニー数を計数した。すべての評価において 3 反復実施した。

3.2. 結果と考察

オゾン処理区における処理開始から 7 d 間のオゾン濃度推移の平均時別値を図 4 に示す。一定区の日内平均は 0.08 ppm でほとんど変化はなく、変動区は夜間に最大 0.98 ppm まで達し、その後 3 h 程度で 0.1 ppm 以下まで減少した。24 h での CT 値 (ppm · min) は一定区が 120 CT、変動区が 362 CT であった。

ミドリカビを塗抹した PD 平板培地を各部屋に

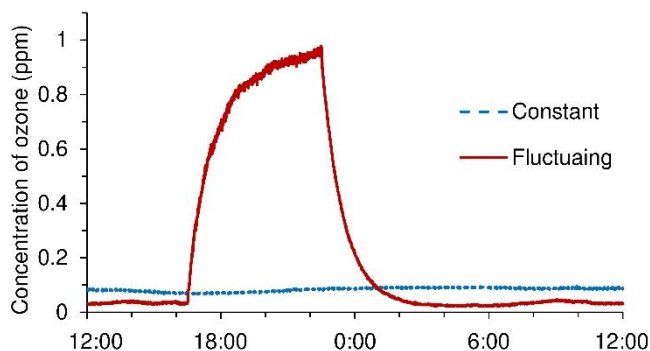


図 4. エキシマ UV ランプを用いた室内空間処理におけるオゾン濃度の平均時別値

設置した時のコロニー数を図 5 に示す。一定区では無処理と比べて有意にコロニー数が少なく ($n = 6$; $p < 0.05$, t-test)、平均値から算出した減少率は 74%だった。変動区はほとんどコロニーが観察されず、明らかに減少した ($n = 10$; $p < 0.001$, t-test)。

低濃度オゾンの連続処理による生菌数推移を図 6 に示す。無処理区における処理 14 d 後の生菌数はわずかに減少したものの、オゾン処理を行った一定区と変動区が生菌数はいずれも無処理区よりも低かった。処理 14 d 後における無処理区とオゾン処理区が生菌数から算出した減少率は、一定区が 89%、変動区が 98%だった。以上の結果より、低いオゾン濃度であっても連続的に処理することでミドリカビ生菌数を減少させることができ、日内でオゾン濃度が変動している方が効果はより高いことが分かった。

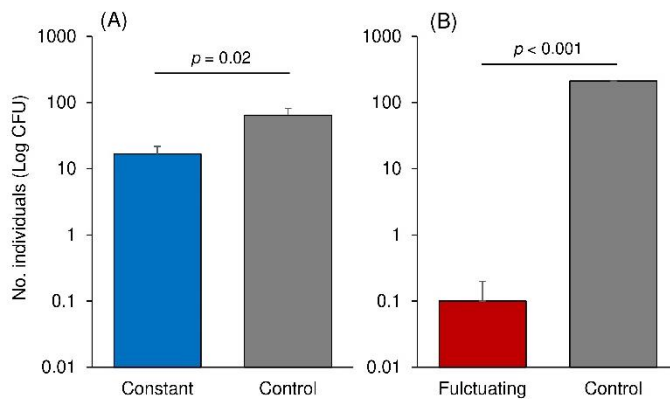


図 5. (A) 一定区または (B) 変動区の処理空間に設置した PDA 培地上のミドリカビのコロニー数

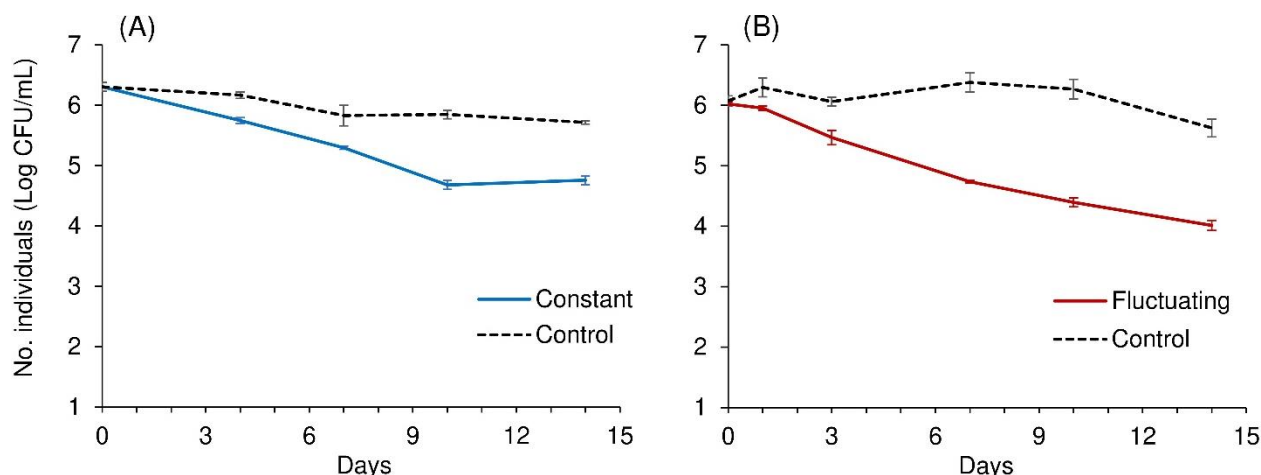


図 6. (A) 一定区または (B) 変動区の処理空間に設置したミドリカビ生菌数推移

4. まとめ

本研究では、無水銀のエキシマ UV ランプを用いた微生物への不活性化効果を検証した。エキシマ UV ランプによる VUV 照射は NO_x を含まないオゾン生成に加えて、ランプ近傍を通過する微生物を不活化するため、VUV とオゾンの両方が除菌に貢献すると考えられた。また、有人環境の許容基準以下の低濃度オゾンであっても連続して処理することでミドリカビのコロニー形成と生菌数を減少させることができ、カビの抑制効果が明らかになった。さらに、夜間にオゾン濃度を上昇させることでより高いカビ抑制効果があった。エキシマ UV ランプは環境負荷が小さく、室内の除菌を達成するモジュールとしての利用が期待される。

5. 参考文献

- 1) 日本オゾン協会 オゾンハンドブック【改訂版】，2016
- 2) 早川ら. 医療・環境オゾン研究, 2022, 29, 48-56