

2013 年度（平成 25 年度）

博士論文

流水式放射光反応器の性能評価及び設計手法に関する研究

立命館大学大学院

理工学研究科 総合理工学専攻

山越 裕司

## 流水式放射光反応器の性能評価及び設計手法に関する研究

立命館大学大学院理工学研究科

総合理工学専攻

山越 裕司

放射光を用いた水処理技術は、微生物や原虫の UV による不活化を目的に、浄水、下水、飲料、液糖、注射用水、純水、水産飼育水、洗浄水などに使用されている。また、促進酸化法では OH ラジカルの生成に利用され、有害物質の酸化分解などの研究が盛んに行われている。これに用いる反応器内の配光特性と流動特性がわかれば、性能を予想することができる。配光特性については、測定結果を計算結果と比較することにより知ることができる。しかしながら、流動特性については実験で得られる結果が流出物の情報のみであり、反応器内の情報を得ることは困難である。そのため、実際の反応器を用いた性能評価で得られた結果から、流動モデルを検討する必要がある。そこで、本研究では、まず、実装置で一般的に使用されている UV 光源の配光特性を確認し、UV による微生物の不活化を評価手段に実装置規模の反応器を用いてその不活化挙動を説明できる流動モデルを検討することとした。また、流水式放射光反応器の照度分布と流動分布による性能への影響を調べ、性能評価と設計手法を確立することを試みた。

性能評価手法として、以下の知見を得た。配光特性を確認するためには、光源に対する測定位置が光源の長手方向の中心付近で直角方向に発光長の  $1/10$  以上離れた位置での照度測定結果から配光特性の式に含まれている係数を求め、発光点と受光点を結ぶ長さに対するランプ中心から受光点までの鉛直距離の比が明らかに 1 より小さい位置を選んで配光特性の計算結果と比較して判断することが望ましい。流動特性を把握するためには、回分系で 1 次反応である反応系を選ぶことが望ましい。

また、設計手法として以下の知見を得た。流入と流出が反応器に対して直交している実装置規模の流水式放射光反応器について、流入流出部の線速度と反応器の代表直径に依存する変数で反応器内の流入部と流出部の一部が栓流になっており、かつ、それ以外の領域では層流栓流モデルが適用できると仮定したモデルを用いることにより、本実験条件下での設計手法として用いることができる。実装置規模の流水式放射光反応器では、反応器内の一部に層流栓流モデルで説明できる流れが存在している可能性が高いので、その領域の照度分布が均一になるように光源の配列を工夫する設計をするか、栓流になるように反応器内の流れ分布を工夫する設計をすれば、性能が向上する。

本研究により、流水式放射光反応器の性能評価と設計手法について、以上の成果が得られた。

# 流水式放射光反応器の性能評価及び設計手法に関する研究

## 目次

第1章 序論	1
1.1 背景	1
1.2 目的	1
1.3 論文の構成	2
第2章 既往の研究	5
2.1 用途	5
2.2 光源の種類	6
2.2.1 疑似太陽光光源	7
2.2.2 紫外域を発光する光源	8
2.3 反応器形状	9
2.3.1 内部照射型+密閉型反応器	9
2.3.2 内部照射型+開放型反応器	10
2.3.3 外部照射型+密閉型反応器	10
2.3.4 外部照射型+開放型反応器	10
2.4 反応器性能	10
2.4.1 照度測定	10
2.4.2 光源の放射強度に影響を及ぼす因子	11
2.4.3 吸光係数	12
2.4.4 流動特性	12
2.4.5 反応器設計	13
2.4.6 問題点	13
第3章 配光特性の検証と反応器性能への影響	17
3.1 緒言	17
3.2 気中での配光特性	18
3.2.1 低圧水銀灯	19
3.2.2 高圧水銀灯	25
3.2.3 気中での配光特性に関するまとめ	30
3.3 水中での配光特性	31
3.3.1 UV 照度分布	31
3.3.2 各配光特性における流水式反応器の生残率比較	36
3.3.3 水中での配光特性に関するまとめ	41

3.4	まとめ	42
第4章	流水式 Annular 型 UV 照射反応器の流動特性解析	44
4.1	緒言	44
4.2	微生物不活化実験	44
4.2.1	指標菌とその分析方法	44
4.2.2	回分式照射	44
4.2.3	流水式照射	46
4.3	モデル式を用いた検証	47
4.3.1	光源の配光特性	47
4.3.2	槽列モデルを用いた検証	48
4.3.3	栓流モデルを用いた検証	51
4.3.4	層流栓流モデルを用いた検証	51
4.4	半径光モデルを用いた検証	54
4.5	まとめ	56
第5章	流水式円筒形光反応器の直径及び単純な照射場における流動状態による性能への影響	58
5.1	緒言	58
5.2	実験装置	58
5.3	実験方法	59
5.4	実験結果	60
5.4.1	ランプ1本タイプ	60
5.4.2	ランプ4本タイプ	61
5.5	考察	62
5.5.1	不活化速度	62
5.5.2	各反応器の流れ挙動	64
5.5.3	組合せモデルでの検証	68
5.6	流動特性による生残率への影響	81
5.6.1	均一照射場	82
5.6.2	流れ方向と並行に2つの照射場がある場合	89
5.6.3	流れ方向と直角に2つの照射場がある場合	98
5.7	まとめ	102
第6章	UVによる微生物不活化に与える濁度の影響と流水式放射光反応器による不活性化性能の検討	105
6.1	緒言	105
6.2	1回目の調査	105
6.2.1	事前調査	105

6.2.2 濁度の影響調査.....	109
6.3 2 回目の調査 .....	111
6.3.1 事前調査 .....	112
6.3.2 濁度の影響調査.....	112
6.4 まとめ.....	114
第7章 結論 .....	116
7.1 各章のまとめ.....	116
7.1.1 流水式放射光反応器の照度分布による性能への影響.....	116
7.1.2 流水式放射光反応器の流動分布による性能への影響.....	116
7.1.3 UV による微生物不活化に与える濁度の影響.....	117
7.2 本研究のまとめ .....	118
7.3 課題 .....	119

## 第1章 序論

### 1.1 背景

UV を用いた水処理技術は、幅広い分野で利用されている。下水処理場では、塩素消毒の代替として、残留塩素による生態系への影響を配慮して使用されている（日本下水道事業団技術評価委員会、1997）。浄水場では、既設の塩素消毒設備では不活化が困難なクリプトスポリジウムやジアルジアのような病原性原虫の対策の一つとして適用されている（厚生労働省、2007）。飲料分野では、ミネラルウォーター、ジュースの割水、液糖など薬品や熱による消毒を嫌う対象に使用されている。製薬分野では注射用水の製造設備に使用されており、日本薬局方では紫外線法が化学的消毒法で見られる耐性菌出現の心配がなく、細菌、真菌及びウイルスに対して殺滅効果を示すと紹介している（第十五改正日本薬局方、2006）。水産分野では、水族館や養殖の飼育水の殺菌に、あるいは、水揚げされた魚の洗浄用海水の殺菌に使用されている。電子産業分野では、ウエハや液晶パネルの洗浄用超純水設備に、殺菌装置と有機物の酸化分解装置が使用されている。この有機物の酸化分解は、超純水製造に限らず、促進酸化法と称して主に OH ラジカルの生成とその OH ラジカルによる有害物質などの低減を目的に研究が盛んに行われている。

消毒を目的とした水処理設備に限定して UV 装置を注目した場合、処理流量は水道の蛇口をひねった程度の小流量から、数十万  $\text{m}^3/\text{h}$  の浄水場までである。MF、UF、RO などの膜を用いた設備は、数  $\text{m}^3/\text{h}$  を処理できるモジュールを並列に複数個設置する（特許庁、2005）ため、設備費にスケールアップメリットが生じにくい。これに対して UV の設備は、数百～数千 W の光源を複数本使用した照射槽を用いることにより、装置 1 台で数千  $\text{m}^3/\text{h}$  を処理できることが特徴の一つである。ただし、処理流量が大きくなれば、その装置の性能を直接評価するために、大規模な設備が必要となる。直接評価しないでその装置の性能を予想するには、反応器内の照度分布と流れの経路の情報が必要である。照度分布は、配光特性がわかれば算出できる。配光特性は光源の種類と波長によって異なるため、必要に応じて確認すればよい。しかしながら、流れの経路を予想することは困難であり、数値流体力学により解析する手段があるが第三者の検証が困難である。USEPA では下水消毒に関する設計指針（EPA, 1986）で、UV による消毒性能の計算方法が示されている。その中で、流れ解析については、反応器の形状にかかわらず反応器内の流れ解析はトレーサ実験を行って滞留時間分布の実験結果から境膜拡散係数(the dispersion coefficient)を求める手法となっている。この手法では実際の反応器を用いた実験が必要である。

このように、水処理用 UV 装置の市場性は幅広く、大規模化が期待されている一方で、検証可能な性能評価は直接的な手段でしかなく、設計手法が確立されているとはいえない。

### 1.2 目的

流水式放射光反応器の性能は、照度分布と流動分布に影響される。照度分布は、光源の

配光特性、水の透過率、及び微粒子によって変化する。配光特性は複数のモデル化されているものがあるので、それらのいずれのモデルに従うかがわかれば照度分布は計算が可能である。しかしながら、流動分布は反応器の形状と流量によって変化するため、いくつかの流動モデルはあるものの、必ずしもそのいずれかの流動モデルに従うとは限らない。すべての反応器形状、流量条件に適用できる流動モデルを確立することは困難であるが、実用的な反応器に適用できる流動モデルを提案できれば一定の価値がある。そこで、本研究では実装置に使用されている光源の配光特性を確認した上で、配光特性による反応器性能への影響を調べた。次に、流動特性について、254 nm 光を発する低圧水銀灯を用いて微生物を不活化するための実装置規模の反応器を用いて、実用的な流量条件における流動モデルを提案することを目的とした。また、光反応器性能に及ぼす照度分布と流動分布の影響を調べることで、設計手法に必要な情報の蓄積をすることを目的とした。

まず、微生物の不活化に実用的な光源として、発光管内部に無機物が塗布された低圧水銀灯と一般的な高圧水銀灯を選び、気中点灯にて波長 254 nm 付近の配光特性を確認した。それらの光源を用いた場合の水中での照度分布について、異なる配光特性の場合と比較した。また、配光特性による反応器性能への影響について一般的な情報を得るため、両方の光源形状の条件で一つの流動特性を用いて、反応器性能を計算により比較した。

次に、低圧水銀灯を内挿した Annular 型反応器を 1 台使用し、水の透過率を因子に、流量と生残率の関係を説明できる流れモデルを検討した。また、水の透過率が一定の条件で、低圧水銀灯を用いて円筒形反応器の直径とランプ本数を因子に、微生物の不活化性能を調べ、これらの結果を説明できる流れモデルを検討した。さらに、流動特性による反応器性能への影響について一般的な情報を得るため、均一照射場における流動特性について計算により比較検討した。回分系の反応モデル式としては、1 次反応と 2 つの 1 次反応を持つテーリング反応を選んだ。加えて、一部に低い照射場が存在する場合を仮定して、その照射場の低い領域が流水式反応器内で、流れ方向に対して並行している場合と直行している場合についても同様の比較検討を行った。

最後に、微粒子の影響を確認するため、濁度による微生物不活化への影響を調べた。また、検討した流れモデルの検証の一つとして、実用レベルの小型反応器を用いて、微生物不活化実験の結果とその計算結果を比較した。

### 1.3 論文の構成

本論文では、3~6 章で実験とその考察を行った。その内容は、3 章では配光特性について確認し、4、5 章でその配光特性を用いて流動特性に関する新しい流動モデルを提案し、6 章ではその流動モデルの 1 つの検証を行った。以下にタイトルと各章の概略内容を示す。

第 1 章 序論

第 2 章 既往の研究

第 3 章 配光特性の検証と反応器性能への影響

第 4 章 流水式 Annular 型 UV 照射反応器の流動特性解析

第 5 章 流水式円筒形光反応器の直径、及び単純な照射場における流動状態による性能への影響

第 6 章 UV による微生物不活化に与える濁度の影響と流水式放射光反応器による不活化性能の検討

第 7 章 結論

第 1 章では、本研究の背景、目的、構成をまとめた。

第 2 章では、用途について紹介し、光源の種類について疑似太陽光光源と紫外域を発する光源を整理した。また、反応器性能に関連する項目として、照度測定に関して文献を引用してまとめ、光源の放射強度に影響を及ぼす因子、吸光係数、流動特性に関するこれまでの知見を整理し、一般的に反応器形状を紹介した上で反応器設計に関する既往の研究と問題点について示した。

第 3 章では、発光管内部に無機物が塗布された低圧水銀灯と一般的な高圧水銀灯の 2 つの光源を気中で点灯し、光源と UV センサーとの位置関係を複数箇所では波長 254 nm 付近の UV 照度を測定し、それらの光源の配光特性が拡散光モデルに一致することを確認した。また、流動特性一定の条件下で、配光特性による反応器性能への影響を調べた。

第 4 章では、低圧水銀灯を 1 本使用した流水式 Annular 型反応器を用いて、水の透過率を因子に微生物不活化実験を行い、その結果と一致する流れモデルを提案した。

第 5 章では、4 章と同じ低圧水銀灯を 1 本または 4 本使用した流水式円筒形反応器を用いて、反応器の直径を因子に微生物不活化実験を行い、その結果と一致する流れモデルとして 4 章で提案したモデルを改良したモデルを提案した。また、均一照射場、あるいは 2 つの照射場を持つ反応器を仮定して、流動特性による反応器性能への影響を考察した。

第 6 章では、UV の微生物不活化性能に与える濁度の影響を調べた。また、4、5 章と異なる光反応器について、5 章で提案した流れモデルを用いて検証した。

第 7 章では、本研究の総括し、課題を述べた。

参考文献

(アルファベット／五十音順)

EPA: Design Manual Municipal Wastewater Disinfection, EPA/625/1-86/021 USEPA  
(1986)

厚生労働省通知 健水発第 033005 号別添 :水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針、  
平成 19 年 3 月 30 日 (2007)

第十五改正日本薬局方、平成 18 年 3 月 31 日 厚生労働省告示第 285 号 (2006)

特許庁：平成 17 年度 標準技術集 水処理技術、P104-110 (2005)

日本下水道事業団技術評価委員会：最近の消毒技術の評価に関する報告書、平成 9 年 3 月  
28 日 (1997)

## 第 2 章 既往の研究

### 2.1 用途

光反応を利用した技術には、ナイロン 6 を製造する工程の中間体生成のための光ニトロソ化反応 (Ito, 1956)、薬品の製造工程にある光塩素化反応などがあり、高い収率を低コストで得られることから、化学プラントでは工業的な利用価値が認められていた。水質汚濁という社会的問題を背景に、次亜塩素酸と UV の併用による促進酸化反応を用いた COD 低減のための水処理法 (広瀬他, 1973) が提案された。これが後に AOPs (Advanced Oxidation Processes) と称して、主に OH ラジカル等の活性化学種による環境汚染物質等の酸化分解反応として、多くの研究者から注目を集めることとなった。OH ラジカルは、UV、過酸化水素、オゾン、光触媒、プラズマ、Fenton 反応などを単独もしくは複合して生成される。酸化分解の対象となるものとしては、1,4-ジオキサン (北村他, 2011; 堀越他, 2011)、PFOS、PFOA (村上他, 2010) のような有機汚染物質以外に、ヒ素を酸化させる研究 (Lescano et al, 2012) がある。

また、殺菌、消毒の分野では、1878 年に Downes と Blunt により太陽からの UV によって微生物が不活化することが発見され、1910 年ごろフランスの Marseille で河川水のろ過後の水に UV 消毒設備が最初に導入された。これより UV による消毒技術が進化し、薬品を使用しないという利点から、多くの分野で広く利用されるようになった。日本薬局方では、超ろ過法のところに注射用水製造設備の構成の一つとして UV 殺菌装置が示されている。また、その日本薬局方の参考情報の微生物殺滅法の中には紫外線法があり、化学的消毒法で見られる耐性菌出現の心配がなく、細菌、真菌及びウイルスに対して殺滅効果を示すと紹介されている (第十五改正日本薬局方, 2006)。平成 23 年 3 月 11 日の東京電力福島第一原子力発電所事故により水道水の暫定規制値の超過で乳児飲用の水不足が社会問題の一つになったことを背景に、ミネラルウォーター類の輸入実績がない製品の殺菌方法について、UV 殺菌は 90%以上の透過率、254 nm の波長で  $26,000 \mu\text{W}\cdot\text{sec}/\text{cm}^2$  以上であれば厚生労働省への疑義紹介が不要と示されている (食安監発 1128 第 2 号, 2012)。飲料関係ではこれ以外にも、液糖やペットボトルのキャップの殺菌にも使用されている。水産分野では、水族館や放流用稚魚の飼育水の殺菌 (岡本他, 2012) に使用されている。また、近年では漁協で水揚げされた魚の洗浄用海水の殺菌 (鳩間他, 2009) にも用いられている。電子産業分野ではウエハや液晶パネルの製造過程で使用する洗浄用超純水の製造ラインに使用されている (半導体基板技術研究会, 1990)。公共事業では下水処理場で放流直前の消毒として、次亜塩素酸ナトリウムの代替になっている (日本下水道事業団技術評価委員会, 1997)。厚生労働省より、浄水場でクリプトスポリジウムやジアルジアのような耐塩素性の高い病原性の原虫対策に、UV 処理設備が適用されている (厚生労働省, 2007)。また、水処理以外の分野の一例として、厚生労働省は平成 21 年度第 1 回生活衛生関係営業等衛生問題検討会会議次第の参考資料 2 「理容所及び美容所における衛生管理要領」の中に、かみ

そり以外の器具で血液が付着している疑いのないものの消毒の手順として、UV 照射による消毒は  $85 \mu \text{W}/\text{cm}^2$  以上の UV を連続して 20 分間以上照射することとしている（厚生労働省ホームページ、2010）。

## 2.2 光源の種類

電磁波の中の一つである UV は、分子間の結合を解離するエネルギーを有している。その分子の種類や状態によって結合解離エネルギーが異なるので、解離させるための UV の波長も異なる。たとえば、水の H-OH 間の結合解離エネルギーが  $499 \pm 1 \text{ kJ/mol}$  であるのに対して、波長 185 nm の真空紫外の光量子 1 mol が持つエネルギーは、次式より 647 kJ/mol となる。同様に波長 254 nm では 472 kJ/mol である。

$$E = N_A \frac{hc}{\lambda} \quad (1)$$

ここで、 $E$  は 1 mol の光量子が持つエネルギー [J/mol]、 $N_A$  はアボドガロ数 [1/mol]、 $h$  はプランク定数 [Js]、 $c$  は光速 [m/s]、 $\lambda$  は波長 [m] である。これらの値の大小から水分子を解離させるには、254 nm 光より 185 nm 光の方が有効であることがわかる。

このように、光反応はその反応の目的によって波長を選択することになり、そこには光源が必要となる。発光は、原子、分子、固体が何らかの刺激を受けて電子がエネルギー準位の高い励起状態に移り、それが基底状態に遷移する際に余分なエネルギーを電磁波として放出したときに生じる。人工光源による発光には低圧ガス放電、高圧放電、ホトルミネッセンス、カソードルミネッセンス、エレクトロルミネッセンス、ケミルミネッセンスなどがある。低圧ガス放電には、冷陰極の放電であるグロー放電と、熱陰極からの熱電子放出による放電であるアーク放電がある。アーク放電の方がグロー放電より電流密度が高く、発光も強い。冷陰極管は液晶パネルのバックライトなどに用いられている。蛍光ランプの発光管内部の現象はアーク放電である。1~10<sup>4</sup> Pa 程度のガス圧で放電している。高圧放電は 10<sup>4</sup> Pa 以上のガス圧になっており、アーク中心温度が 5,500~6,500 K 程度の高圧水銀灯、4,500~6,000 K 程度のメタルハライドランプ、4,000~4,400 K 程度の高圧ナトリウムランプ、8,000 K 程度のキセノンランプなどがある。輝度が高いので、道路照明や自動車のヘッドライトに利用されている。ホトルミネッセンスとは物質に光が照射されたときに別の波長を放射する現象をいい、その物質を蛍光体という。一般には照射された光より放射した光の方が、波長が長い（ストークスの法則）。蛍光ランプがこの代表的な光源である。エレクトロルミネッセンスとは半導体に電圧を印加することにより発光する現象をいう。pn 接合に電流を流す方式が LED である。また、接合部の両端に反射面をつけキャビティを形成したものが半導体レーザーである。ケミルミネッセンスはルミノール反応に代表されるように、化学反応によって励起状態を引き起こして発光する現象である。エキシマラ

ランプは放電プラズマで励起された原子がエキシマ状態となり、それが基底状態に戻るときに発光する現象を利用している。電子レンジで蛍光灯が発光する原理を利用したのが、無電極ランプである。高周波の磁界により生じる電磁誘導で蛍光灯内部の水銀が励起されて、発光する。

### 2.2.1 疑似太陽光光源

光反应用光源を選択する上で発光分布は最も重要な特性である。光反応の光源として太陽光を利用することができれば、発光のための電源が不要であり、環境にやさしい。太陽光はオゾン層で短波長の UV が吸収され、地表には 300 nm 以上の波長の光が届く。この地表に届く UV を光反応として利用する技術には光触媒、SODIS、次亜塩素酸による AOP などがある。光触媒は空気中のホルムアルデヒドの分解 (Shiraishi et al, 2005)、水中フェノールの分解(中野他, 2012)などの環境浄化への適用に期待が高い。また、水と太陽光からの水素燃料製造技術 (Zou et al, 2003) としても注目を集めている。光触媒反応は波長による依存性が高く短波長の紫外域が有効であるが、近年では可視光応答型半導体光触媒の研究が盛んである(技術教育出版社, 2012)。SODIS (Solar Water Disinfection) とは、熱帯、亜熱帯地域の発展途上国に対して、ペットボトルなどの透明容器に水を入れて、太陽による光と熱で殺菌することで飲料水にすることを推奨する活動である (Sommer et al, 1997)。太陽光と次亜塩素酸による AOP では、染料であるメチレンブルーの分解について報告されている (Chan et al, 2012)。

このような太陽光利用を主眼とする光反応であっても、実験に使用する光源には太陽光よりも人工光源を利用した方が照度の制御が容易である。太陽光に対する製品や材料の寿命を予測することを目的に耐候性試験機がある。この試験機に使用されている光源の一例としてキセノンランプがある。JIS K 5600-7-7 では、塗料一般試験方法—第 7 部：塗膜の長期耐久性—第 7 節：促進耐候性及び促進耐光性 (キセノンランプ法) が記されている。この資料の附属書 B の中に太陽光の分光放射照度分布について CIE No.85:1989 の表 4 から引用した海面での水平面全天分光放射照度が波長 300 nm 付近から 2450 nm の範囲で示されている。キセノンランプは太陽光と発光分布が類似しており、この試験機は照度も同等となっている。この試験機を用いた場合の被照射体への照度を各波長で示した例を図 2-1 (岩崎電気 ホームページ) に示した。ここでは 2 種類の照度のランプと太陽光の発光分布を波長に対する分光放射照度で示した。光源と被照射体の距離をこの試験機と同等の位置に設置すれば、太陽光と同程度の照度を得ることができる。McGuigan らは、太陽光疑似光源として 150W のキセノンランプを用いて、プラスチックボトルの中の水の殺菌実験を行った (McGuigan et al, 1998)。耐候性試験機に使用されている光源には、これ以外に太陽光と比較して紫外域の照度が高いメタルハライドランプがある。

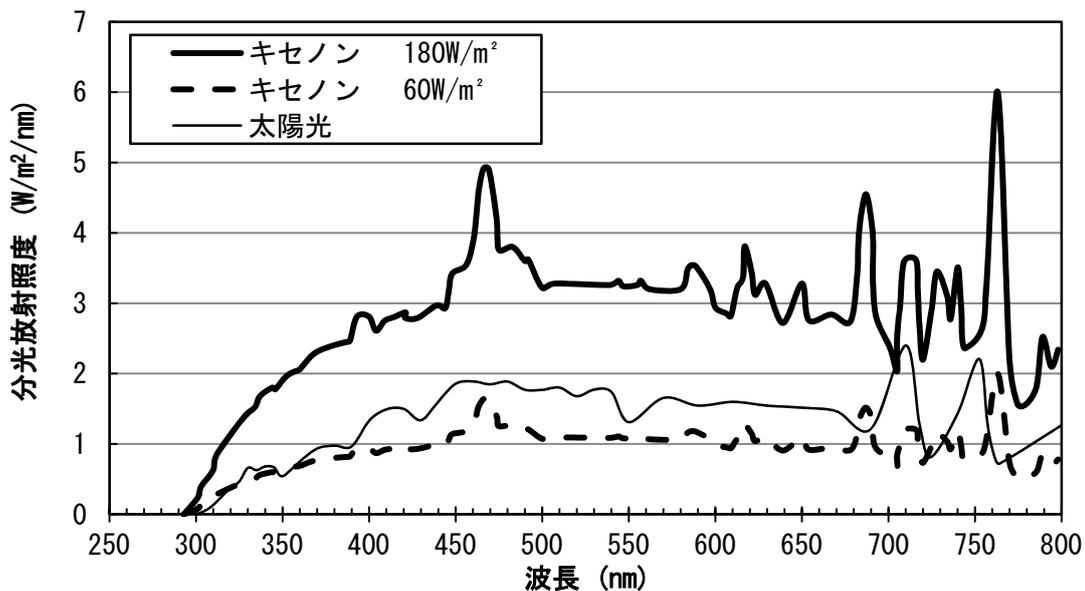


図 2-1 キセノンランプと太陽光の分光放射照度

### 2.2.2 紫外域を発光する光源

UV による微生物不活化の基本的な原理は、細胞内の核酸に損傷を与えることであり、その反応に有効な UV の波長は 260 nm 付近である (Sonntag, 1986)。ゆえに、この付近を放射する光源として、水銀灯が多く使用されている。水銀灯は点灯時の管内の水銀蒸気圧によって、低圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯に分かれる。UV を得るために選択される水銀灯は低圧水銀灯と高圧水銀灯である。両水銀灯の発光分布の一例を図 2-2 に示した (水道技術研究センター, 2012)。

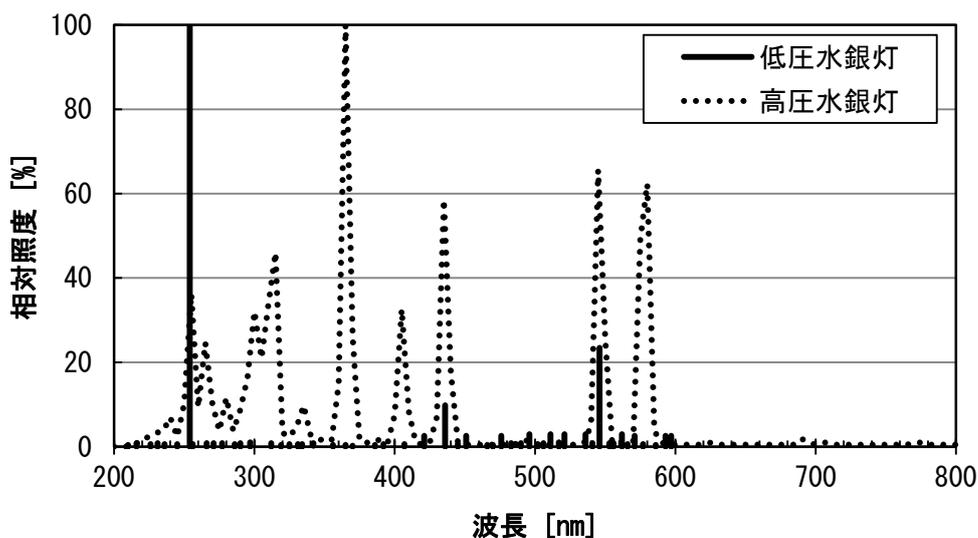


図 2-2 低圧水銀灯と高圧水銀灯の発光分布の一例

低圧水銀灯から発光される光はすべて輝線スペクトルで紫外域での最大発光波長は 254 nm にあり、これ以外の顕著なピークは可視光域である。200 nm 以下の波長では 185 nm などのピークがあるが、250 nm 以下の相対照度はランプの材質である石英の透過率に大きく依存する。高圧水銀灯では分子発光するため元素固有の輝線スペクトルではなく幅を持ったピークが表れ、365 nm に最大発光波長があり、254 nm 付近にもピークがある。なお、低圧水銀灯の輝線スペクトルの波長について 253.7 nm、184.9 nm で記されることがあるが、本論文では 254 nm、185 nm と記した。

紫外域を発光するその他の光源には、単波長を発光する光源としてレーザー以外に、若干の波長幅があるが 172 nm、222 nm、308 nm などを発光するエキシマランプがある。また、LED でも紫外域を発光するものが開発されている。

### 2.3 反応器形状

流水式放射光反応器の形状として、微生物の不活化を目的とした UV 反応器には内部照射型と外部照射型、密閉型と開放型がある。主な反応器形状の模式図で表 2-1 に示した。

表 2-1 主な流水式 UV 反応器の形状

	内部照射型	外部照射型
密閉型		
開放型		

#### 2.3.1 内部照射型+密閉型反応器

内部照射型で密閉型の反応器は、ポンプ圧送する水処理プラントには最も多く使用されている。表中に示した模式図は、ランプを内挿しているスリーブが円筒形反応器に複数本入っているタイプである。スリーブが中心に 1 本あれば Annular 型である。出入口については、一方が図示した方向にあり、もう一方が反応器内の流れ方向にある場合もある。図示したタイプを C 型と称するなら、そのタイプは L 型と称される。この反応器の場合、反応器の長さは光源の長さに依存しており、反応器の直径は処理水の透過率に依存している。このような形状の流動状態について、本論文で考察する。これ以外には、光源が流れに直

角方向に設置されたタイプや、円筒形ではないタイプなどがある。図 2-3 の右側のように光源が流れの直角方向にあるタイプは、光源に発光長の短い高圧水銀灯が用いられている場合が多い。発光長が長い低圧水銀灯では、図 2-3 の左側のように流れに対して斜め方向に設置されたタイプがある。

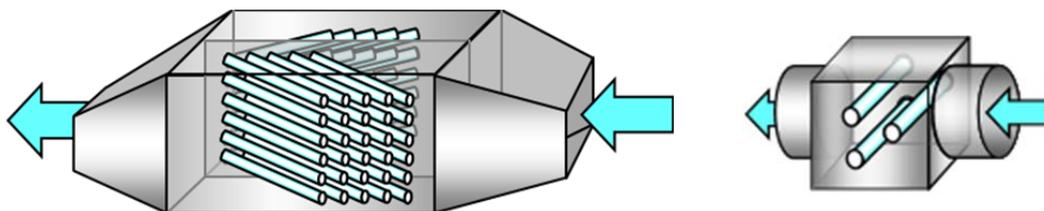


図 2-3 内部照射型+密閉型反応器のその他の例

### 2.3.2 内部照射型+開放型反応器

内部照射型で開放型の反応器は、自然流下で処理する場合に使用し、下水処理場で多く使用されている。表 2-1 で図示したように光源を流れと並行にしたタイプ以外に、直角にしたタイプ、光源を縦にしたタイプなどがある。入口側では線速度が一定になるような工夫をし、出口側では流量変動による水位の上下を抑える工夫をしている。

### 2.3.3 外部照射型+密閉型反応器

外部照射型で密閉型の反応器は、流路を囲うように光源が設置されている。流路は図示したような 1 本のタイプだけでなく、複数のタイプもある。また、流路を縦にしたタイプもある。流路には、UV を透過する材質として、石英以外に特定のフッ素樹脂を使用したタイプがある。流路は円管を使用しているため、流動状態は比較的容易に推測できる。

### 2.3.4 外部照射型+開放型反応器

外部照射型で開放型の反応器は、板の上をある液厚さで流れ落ちる上部に光源がある。構造が単純でメンテナンスが容易であるが、光源からの UV を効率的に使用しているとはいえない。

## 2.4 反応器性能

光反応器の性能は、反応器内の照度分布、被処理体の吸光係数などに影響され、連続処理をする場合には流体の流動特性が影響する。反応器内の照度分布は、光源からの任意の位置の照度と反応器内の相対照度分布によって得られる。

### 2.4.1 照度測定

照度の絶対値を測定する方法には、照度計、化学光量計などがある。

照度計の受光部には波長感度特性と斜入射角特性があるので、照度計で測定した結果を用いた場合には、その照度計と受光部の仕様と、光源と受光部の測定位置を明確にする必要がある。また、その照度計は NIST (National Institute of Standards and Technology)、産業技術総合研究所などで標準光源から校正されたトレーサビリティ体系が確認できるものを用いる。

化学光量計とは、量子収率が既知の光化学反応を利用して照射時間内の積算光量を測定する方法である。光量の照射時間内での変化がないとして、その光量を照射時間で除した値を照度とする。代表的なものにシュウ酸鉄カリウム溶液があり、その他にはシュウ酸ウラニル、ヨウ化カリウムなどの溶液がある（大瀧他、2007）。これらの化学光量計は吸光度が高い溶液であるため、その液面に到達した入射光の光量を測定する。それに対して、DPOF (Dilute Potassium Trisoxalatoferrate) 化学光量計（船山他、1984）は、希薄なシュウ酸鉄カリウム溶液を使用することにより溶液内での吸収が無視できるため、溶液の入った容器内で生じる反射、散乱を含めた光量を測定できる。

#### 2.4.2 光源の放射強度に影響を及ぼす因子

光反応の性能を制御するには、光源の放射強度に影響を及ぼす特性を把握しておく必要がある。その特性について、主に水銀灯を例に以下に示した。

低圧水銀灯は、管内の水銀蒸気圧がランプ表面温度に依存する。点灯後、安定すると数十℃程度になる。この温度が常温に近いので、周囲の温度や風の冷却などの影響を受けて表面温度が変化しやすい。その結果、管内の水銀蒸気圧が変化することで放射強度が変化する。これに対して高圧水銀灯はランプ表面温度が数百℃であるため、周囲の温度の影響を受けにくい。

点灯後、安定するまでの挙動である立ち上がり特性は、水銀蒸気圧が安定するまでに起こる現象である。低圧水銀灯は電源投入後数分から数十分で安定する。高圧水銀灯も同等であるが、消灯直後は管内の水銀蒸気圧が高いため、同程度の冷却時間を経てからでないと再点灯しない。無電極ランプ、エキシマランプ、LED などはこの立ち上がり特性が瞬時的であることが特徴の一つになっている。

放射強度は、蛍光ランプでは JIS C 7617-2 の 1.5.6a) で示すように、定格の 92% 以上、高圧水銀灯では JIS C 7604 の 1.4.6 で示すように、定格の 90% 以上、ただし、100W 以下は 83% 以上でなければならないと示しているように、光源個々にバラツキがある。

ある一定時間点灯後の初期値に対する維持率は、その光源の仕様の一つである。維持率を高く保つため、管内表面に無機物を塗布する技術が進んでおり、低圧水銀灯で実用化されている。

配光特性は、光源の種類や波長によって異なる。放射強度は点光源であれば距離の二乗に反比例し（点光源モデル）、無限長の線光源であれば距離に反比例する（半径光モデル）。しかしながら、実際の光源は長さや直径が有限であるため、いくつかのモデルが提案され

ている (Alfano et al, 1986)。たとえば、棒状光源を点光源が集まった線光源として、その点光源からの光が点光源モデルに従うとする透明光モデル、線光源に直角方向の照度に対して角度  $\theta$  の方向の照度が直角方向の照度に対して  $\cos \theta$  を乗じた値とする拡散光モデルなどがある。半徑光モデル、透明光モデル、拡散光モデルの模式図を図 2-4 に示した。

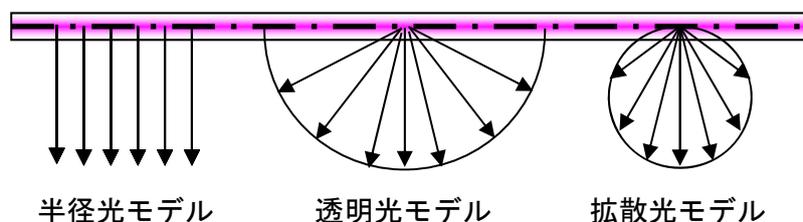


図 2-4 半徑光モデル、透明光モデル、拡散光モデルの模式図

### 2.4.3 吸光係数

ランベルト・ベールの法則では、吸光度は光を吸収する物質の濃度と光路長に比例し、波長に依存する。吸光係数とは吸光度を光路長で除した値で、水質により決定される。光反応器内の照度分布は、この吸光係数に大きく依存する。

波長 254 nm の吸光度は  $COD_{Mn}$  と関係づけられて水質総量規制に係る水質汚濁負荷量に用いられており、工場排水や河川、湖沼などの公共用水域の水の汚濁程度を評価するために、水質監視用紫外線吸光度自動計測器として JIS で規格化されている (JIS K 0807: 1997)。この波長を吸収する物質には、有機物であれば芳香族や二重結合があり、酸化剤ではオゾン、過酸化水素、次亜塩素酸塩などがある。

吸光度と同義の透過率で水質を表現する場合がある。光路長 1 cm、波長 254 nm の透過率で示されている一般的な値は、塩素消毒する前の下水 2 次処理水では約 70%、地下水では 95% 以上、イオン交換水では 98% 以上、超純水ではほぼ 100% である。

この吸光係数以外にも、SS (浮遊物質) や濁度などで表現される固体が影を作るかあるいは光を反射、散乱することで反応器内の照度分布に影響を及ぼす場合がある。

### 2.4.4 流動特性

水中の微生物を不活化するニーズには、連続した処理が求められる。そのため、反応器は流通式となる。流通式光反応器の反応器性能を把握するためには、照度分布以外に、反応器内を微生物がどのように移動したかの軌跡を含めた滞留時間分布の情報が必要である。

流通反応器内の理想流れとして、流れ方向に均一で流れとその直角方向に完全混合されている栓流と、反応器に流入して瞬時に完全混合される完全混合流がある。非理想流れとしては、完全混合槽を多段に並べた槽列モデル、栓流と完全混合流を組合せたモデルなどがある。また、層流の場合、円管内や二重円管内では速度分布を算出できる。被照射体の

拡散速度が無視できる条件下でこれらの流れモデルを用いることができれば、反応器内での被照射体の移動の軌跡が定義できるので、流通式光反応器の反応器性能を予測するための手段になり得る。

#### 2.4.5 反応器設計

流通式光反応器を設計するには、上記で示したように光源の放射強度に影響を及ぼす因子を考慮した上で、配光特性と吸光係数から反応器内の照度分布を計算し、流動特性から滞留時間と移動軌跡を把握する必要がある。これらから照射量が算出され、回分系での照射量に対する反応速度の情報が加われば、照射量に対する未反応物濃度が導き出される。流水式光反応器の照射量を測定する方法には、生物線量計、微粒子照射量計などがある。

微生物の不活化を目的とした流水式 UV 照射反応器に関して性能予測する手法として、単一ランプ二重円筒管型反応器について、配光特性に半径光を用いて、完全混合流、栓流、流速分布のない層流の押し出し流れなどの流動特性を適用し、吸収係数と光路長を因子に相対照射時間と生残率の関係を導いた報告がある(平田他、2008)。光源に低圧水銀灯を用い、同様の反応器で層流状態を作って微生物を流して不活化実験を行い、配光特性に拡散光モデルを適用して不活化率を計算した結果が実験結果と一致した報告がある(Sugawara et al, 1981)。また、同様の反応器を用いて乱流領域で微生物の不活化実験を行い、流動特性として混合拡散モデルを適用しトレーサ実験によってペクレ数を求め、提案された修正半径光で照度分布を計算して不活化率を計算した結果を実験結果と比較した報告がある(安井他、2008)。

USEPA (United States Environmental Protection Agency) では下水消毒の設計指針(EPA, 1986)と浄水での UV 消毒技術(EPA, 2003)で UV 照射反応器の設計に関してまとめられている。下水消毒では配光特性に半径光モデルと透明光モデルを示し、流動特性はトレーサ実験による滞留時間分布関数の解析方法を紹介している。また、流動様式は栓流、乱流、あるいはデッドスペースがない流れで設計すべきとした上で、反応器内の UV 照度は平均値を用いて、消毒効果を計算する手法を紹介している。浄水の方では配光特性については下水消毒での紹介内容と同じで、流動特性については数値流体力学(CFD)について触れられている。加えて、栓流と流れに対して完全混合直交する流れの場合は理想的な反応器であり、UV 照射量の計算は UV 照度に平均値を用い照射時間に平均滞留時間が使用できることを示している。しかしながら、基本的には実装置を用いた消毒効果の確認を求めている。

#### 2.4.6 問題点

流通型光反応器の設計には、反応器内の照度分布と流動分布の情報が必要である。照度分布は光源によって異なる。流動分布は反応器の形状と流量に大きく依存する。その光反応器が微生物の不活化を目的とした場合は、光源に低圧水銀灯と高圧水銀灯を用いること

が多い。低圧水銀灯の配光特性は拡散光モデルが適用できる。近年の低圧水銀灯には、照度維持率を高くするために発光管内壁に無機物が塗布されている。そのような低圧水銀灯についての配光特性を調査した報告がない。一方、高圧水銀灯の場合、微生物不活化に有効な波長付近での配光特性を調査した報告がない。微生物の不活化を目的とした流通型光反応器内の流れは、実際の装置の場合、乱流領域であることが一般的である。実装置規模で流動特性を調べる場合は、CFD やトレーサ実験を用いる手法がある。しかしながら、CFD は第三者の検証が困難という問題があり、トレーサ実験は実装置による通水実験をするための大規模な設備が必要である。実装置規模で流動特性を調べた報告は少なく、更なる情報の蓄積が必要である。

実装置の微生物不活化性能を評価しようとするれば、照射量分布の影響を受けた結果が得られる。照射量分布は、照度分布と滞留時間分布により生じている。これらを独立させて、個々の分布による影響を把握できれば、光源の開発や反応器形状の検討に有効な情報となる。既知の配光特性と流動特性を用いて、反応器性能への影響を確認しておくことが望まれる。

## 参考文献

(アルファベット／五十音順)

- Alfano O. M., R. L. Romero and A. E. Cassano: Radiation Field Modelling In  
Photoreactors-I: Homogeneous Media, Chemical Engineering Science, 41(3)  
p.421-444 (1986)
- Chan Po Yee, Mohamed Gamal El-Din, James R Bolton: A solar-driven UV/Chlorine  
advanced oxidation process, Water Research, 46(17) p.5672-5682 (2012)
- EPA: Design Manual Municipal Wastewater Disinfection, EPA/625/1-86/021 USEPA  
(1986)
- EPA: Ultraviolet Disinfection Guidance Manual. EPA 815-D-03-007 USEPA (2003)
- Fumihide Shiraishi, Daisuke Ohkubo, Kentaro Toyoda and Shunsuke Yamaguchi:  
Decomposition of gaseous formaldehyde in a photocatalytic reactor with a parallel  
array of light sources, Chemical Engineering Journal, 114 p.153-159 (2005)
- McGuigan K.G., T.M. Joyce, R.M. Conroy, J.B. Gillespie and M. Elmore-Meegan: Solar  
Disinfection of Drinking water contained in transparent plastic bottles:  
characterizing the bacterial inactivation process, Journal of Applied Microbiology,  
84, p.1138-1148 (1998)
- Maia Lescano, Cristina Zalazar, Alberto Cassano, Rodolfo Brandi: Kinetic modeling of  
arsenic (III) oxidation in water employing the UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> process, Chemical  
Engineering Journal, Vol. 211-212, p. 360-368(2012)
- Sommer B. et al.: SODIS – An Emerging Water Treatment Process, J. Water SRT –  
Aqua 46 p. 127-137(1997)
- Sonntag Clemens von: Disinfection by free radical and UV-radiation, Water Supply, 4(3)  
p.11-18 (1986)
- Takuo Sugawara, Michio Yoneya and Hiroshi Ohashi: Performance Of Annular Flow  
Sterilizer Irradiated By A Germicidal Lamp, Journal of Chemical Engineering of  
Japan, 15 (5) p.406-411 (1981)
- Yoshikazu Ito: Photonitrosation of Cycloalkanes with Nitrosyl Chloride. I.\* Synthesis of  
Cyclohexanone Oxime, Bulletin of the Chemical Society of Japan, 29(2)227-230  
(1956).
- Zhigang Zou, Hironori Arakawa: Direct water splitting into H<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> under visible  
light irradiation with a new series of mixed oxide semiconductor photocatalysts,  
Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry 158 p.145–162 (2003)
- 岩崎電気ホームページ [http://www.iwasaki.co.jp/tech\\_rep/technical/05/](http://www.iwasaki.co.jp/tech_rep/technical/05/)

- 大瀧雅寛、廣戸裕子：紫外線量の化学光量計による計測、第 10 回日本水環境学会シンポジウム要旨集 (2007)
- 岡本満、石原成嗣、堀玲子、井岡久：殺菌冷海水使用による定置網漁獲物の鮮度保持効果、島根水技セ技報 4, p.1-7 (2012)
- 技術教育出版社；可視光応答型半導体光触媒 (2012)
- 北村拓也、岸本直之、大倉 誠、大津秀緒：Fe<sup>2+</sup>/HOCl 反応系を利用した電解促進酸化処理に及ぼす各種運転操作因子の影響、水環境学会誌、34(6)81-87 (2011).
- 厚生労働省ホームページ(2010) <http://www.mhlw.go.jp/shingi/2010/02/dl/s0202-9j.pdf>
- 厚生労働省通知 健水発第 033005 号別添：水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針、平成 19 年 3 月 30 日 (2007)
- 食安監発 1128 第 2 号、厚生労働省、平成 24 年 11 月 28 日 (2012)
- 水道技術研究センター：紫外線照射装置 JWRC 技術審査基準、平成 24 年 7 月 1 日 (2012)
- 第十五改正日本薬局方、平成 18 年 3 月 31 日 厚生労働省告示第 285 号 (2006)
- 中野涼子、大淵英子、加藤勝美、中野勝之：担体の異なる酸化チタン光触媒による水中フェノールの分解挙動、化学工学論文集、38(6)p.403-407(2012)
- 日本下水道事業団技術評価委員会：最近の消毒技術の評価に関する報告書、平成 9 年 3 月 28 日 (1997)
- 鳩間用一、甲斐哲也、仲原英盛、小濱健徳：ハマフエフキの種苗生産、沖裁セ事報 p.15-17 (2009)
- 半導体基板技術研究会：超純水の科学、リアライズ社 (1990)
- 平田 強、岩崎達行、大瀧雅寛、片山浩之、神子直之、木村憲司、土佐光司、松本直秀、本山信行、森田重光：紫外線照射一水の消毒への適用性一、技報堂出版 (2008)
- 広瀬道郎、大谷光伸“光を用いた水処理法”安全工学、12(4)283-290 (1973)
- 船山 斉、荻原宏二郎、菅原拓男、大橋弘保：1,10-フェナントロリンを含む希薄なシュウ酸鉄 (III) カリウム水溶液の光分解を利用した新しい化学光量計の開発、化学工学論文集 10(4) p.446-453 (1984)
- 堀越 智、土田晃大、阿部正彦：新規粒状マイクロ波励起無電極ランプを用いた 1,4-ジオキサンの光分解、水環境学会誌、34(6)89-93 (2011).
- 村上道夫、滝沢 智：フッ素系界面活性剤の水環境汚染の現況と今後の展望、水環境学会、33(8)103-114 (2010).
- 安井宜仁、神子直之、岩崎達行：新たな紫外線強度分布推定法による紫外線照射槽の消毒効果予測への影響、環境技術、37 (9) p.671-677 (2008)

## 第 3 章 配光特性の検証と反応器性能への影響

### 3.1 緒言

光反応器の性能を予測するために、少なくとも反応器の照度分布の情報が必要である。反応器内の照度分布を求めるには、照度の絶対値は物理的な方法 (Oliver et al, 2008)、もしくは化学光量計 (大瀧他、2007) を用いた方法で測定し、相対的な照度分布はいくつかの配光特性を用いて計算する。光反応器の放射場で使用されている配光特性に関しては既往の研究でまとめられている (Alfano et al, 1986)。点光源の集合である線光源モデルとして、以下の 3 つの配光特性で示されている。

- 半径光モデル：ランプ軸に直角な平行面で各点から放射される。すなわち、その点から放射された照度がランプからの距離に反比例する。
- 透明光モデル：各点がすべての方向に均等に放射される。すなわち、その点から放射された照度がランプからの距離の 2 乗に反比例する。
- 拡散光モデル：各点あらゆる方向に拡散して放射される。すなわち、ひとつの発光点から放射された光がある受光点に届く照度  $I$  が  $I_0 \cos\theta$  に定義される。ここで、 $I_0$  はランプ軸に直角な方向の照度、 $\theta$  はランプ軸に直角な方向と発光点から受光点への方向との角度である。

低圧水銀灯から放射される 254 nm の共鳴線は拡散光モデルであることが知られている (船山他、1977)。低圧水銀灯によって照射された環状流水式光反応器において、層流で枯草菌芽胞体の不活化による実験結果が拡散光モデルと流速分布によって良くシミュレートできている (Sugawara et al, 1981)。EPA (EPA, 2003) では半径光モデルを Radial Model、透明光モデルを Point Source Summation Model として紹介しているが、拡散光モデルは紹介されていない。

近年、ランプ内に無機物を塗布した低圧水銀灯が開発された。その塗布の目的は UV 照度の維持率を高く保つことである。そのランプについてその無機物による散乱の影響を調査する必要がある。高圧水銀灯のように透明な光源の場合、可視光において透明光モデルが適用できると紹介されている (電気学会、1963) が、UV 照度に関して十分な報告がなされていない。

ここでは、気中でそれらのランプからの UV 照度を測定し、その実験結果と 3 つの配光特性の計算結果と比較した。それらの配光特性には定数があり、その定数は 1 つの測定結果から求めることになる。そこで、その測定した基準点をランプ近傍にした場合と、ランプから離れた位置にした場合の比較をした。

また、水の透過率の影響を受ける水中での照度分布について拡散光モデルに対する他の配光特性とで計算比較を行い、流水式反応器の性能をいくつかの水の透過率の条件で各配光特性の比較をした。

### 3.2 気中での配光特性

線光源の配光特性である半径光モデル、透明光モデル、拡散光モデルについて、以下に示す。図 3-1 は各モデルを表す式に使用する記号を示した。

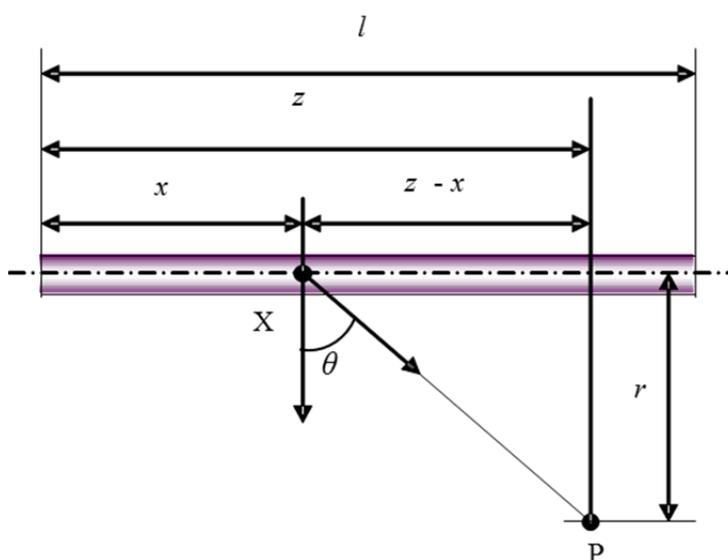


図 3-1 線光源の配光特性式に使用する記号

$l$  は光源の発光長、 $X$  は発光点の位置、 $P$  は受光点の位置、 $x$  は発光点のランプ端部からの距離、 $r$  は受光点のランプからの直角方向の距離、 $z$  は受光点のランプ端部からの距離、 $\theta$  は線分  $PX$  と発光点からの垂線との成す角である。各モデルの模式図を図 3-2 に示した。

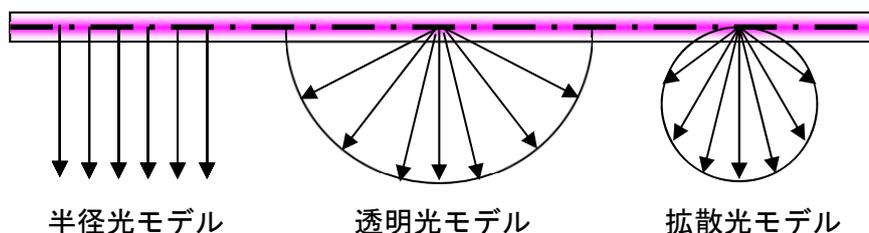


図 3-2 半径光モデル、透明光モデル、拡散光モデルの模式図

半径光モデルを図 3-1 の記号を用いて表すと次式になる。

$$I_p = k_p \frac{1}{r} \quad (2)$$

ここで、 $I_p$  は半径光モデルで算出される UV 照度、 $k_p$  は定数である。

透明光モデルは次式になる。

$$I_s = k_s \int_0^l \frac{1}{\overline{PX}^2} dx \quad (3)$$

ここで、 $I_s$  は透明光モデルで算出される UV 照度、 $k_s$  は定数である。

拡散光モデルは次式になる。

$$I_D = k_D \int_0^l \frac{\cos\theta}{\overline{PX}^2} dx \quad (4)$$

ここで、 $I_D$  は拡散光モデルで算出される UV 照度、 $k_D$  は定数である。線分 PX の長さと  $\cos\theta$  は次式となる。

$$\overline{PX} = \sqrt{(x-z)^2 + r^2} \quad (5)$$

$$\cos\theta = \frac{r}{\overline{PX}} \quad (6)$$

定数  $k_p$ 、 $k_s$ 、 $k_D$  は任意の位置で測定した UV 照度とその受光点の位置を各式に代入して求める。

### 3.2.1 低圧水銀灯

#### 3.2.1.1 実験装置及び方法

図 3-3 に紫外線強度計を用いて測定した低圧水銀灯(日本フォトサイエンス製:C091WS、

発光長：1470 mm) の UV 照度の測定範囲を示した。ここで使用した低圧水銀灯の管内部には UV 照度維持率を向上させるための無機物が塗布してある。ランプは室温 25°C 一定の条件で水平に点灯し、UV 照度が安定したことを確認してから UV 照度の測定を行った。測定には紫外線強度計 TOPCON 製 UVR-2 (受光部：UD-25) を用いた。この紫外線強度計の受光部の角度特性は  $\cos$  則にほとんど一致している。図 3-4 に、この受光部の入射角度特性を、図 3-5 に波長感度特性を示した (トプコン社カタログ)。電源電圧は定電源装置を用いて、一定の電圧とした。内部照射型流水式 UV 照射反応器の形状として、低圧水銀灯を用いた反応器の場合、一般的には円筒形の流路に対してランプ軸が円筒軸と並行している。そこで、図に示したように発光長  $L$  に対して測定範囲は概ね  $z$  が 0 から  $L/2$  まで、 $r$  が  $L/10$  から  $L/2$  までとした。

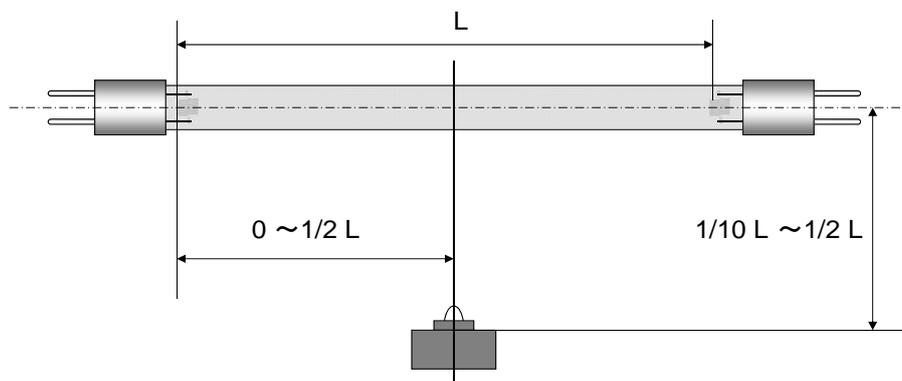


図 3-3 紫外線強度計を用いた低圧水銀灯の UV 照度測定範囲

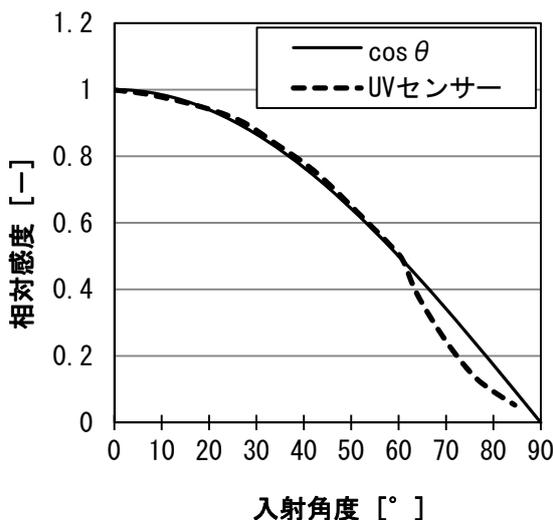


図 3-4 受光部の入射角度特性

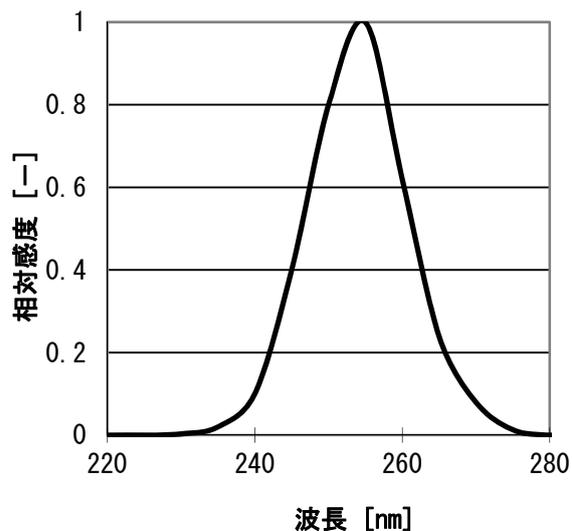


図 3-5 受光部の波長感度特性

### 3.2.1.2 実験結果

測定結果を図 3-6 に示した。横軸はランプ中心から直角方向の距離、縦軸は UV 照度、各キーはランプ端部から z 軸方向の受光点の位置である。

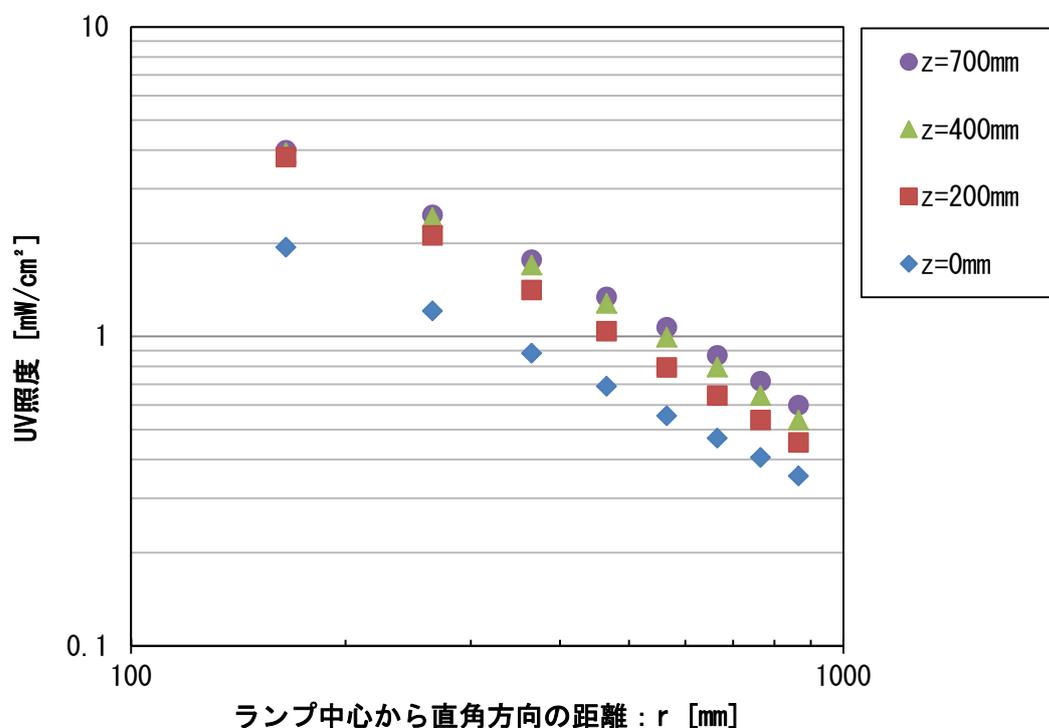


図 3-6 低圧水銀灯の UV 照度測定結果

UV 照度をもっとも高い値を示す位置はランプ中心であり、z 値によって UV 照度が異なっていた。つまり、半径光モデルに一致しないことを意味する。

### 3.2.1.3 各モデルとの照合

測定した実験結果の内の 1 つを用いて、式(2)から式(4)に含まれている定数を求めた。UV 照度の測定結果には、UV センサーの cos 則の角度特性が含まれている。半径光モデルでは角度を表現する因子がないので、式(2)の  $I_p$  と  $r$  に測定結果を代入して  $k_p$  を求めた。しかし、透明光モデルと拡散光モデルには角度特性があるので、式(3)と式(4)に cos 則を考慮した式(7)と式(8)を用いて定数を求めた。I には照度計で測定した値を代入した。

$$I = k_s \int_0^l \frac{\cos \theta}{PX^2} dx \quad (7)$$

$$I = k_D \int_0^l \frac{\cos^2 \theta}{PX^2} dx \quad (8)$$

角度特性の影響が最も少ない  $r = 865 \text{ mm}$ 、 $z = 700 \text{ mm}$  と、発光長の約 1/10 の距離である  $r = 165 \text{ mm}$ 、 $z = 700 \text{ mm}$  を選んで、 $k_p$ 、 $k_s$ 、 $k_D$  を求めた。その結果を表 3-1 に示した。

表 3-1 照度測定に使用した低圧水銀灯の測定位置  $r$  が異なる場合の各配光特性内の定数

UV 照度測定位置	$k_p$	$k_s$	$k_D$
$r = 865 \text{ mm}$ 、 $z = 700 \text{ mm}$	51.9 mW/cm	39.9 mW/cm	43.2 mW/cm
$r = 165 \text{ mm}$ 、 $z = 700 \text{ mm}$	66.0 mW/cm	33.8 mW/cm	42.2 mW/cm

このように異なる  $r$  の位置によってこれらの定数が最も変化しないモデルが拡散光であり、次いで透明光、半径光の順であった。これらの値を用いて各モデルの計算結果と測定結果を比較した。その結果を図 3-7～3-9 に示す。計算結果は\*\*光  $z = ** * \text{ mm}$  で、測定結果のキーで示した色と同じ色の線で示した。実線がランプ中心からの距離  $r = 865 \text{ mm}$  の場合に求めた定数を使用しており、点線が  $r = 165 \text{ mm}$  の場合である。

図 3-7 に示した半径光モデルでは  $z$  の位置が計算に影響しないため、 $z$  ごとの計算結果は示していない。 $z$  の値が小さいランプ端部では計算結果が測定値より高い UV 照度になり、 $z$  が大きいランプ中心付近では  $r$  の変化に対して UV 照度計算結果の変化が少ない結果となった。これらのことから、半径光モデルで気中の UV 照度を計算する場合、計算式中の定数を求めるための基準となる測定位置がランプ中心から直角方向の距離  $r$  が遠い方が、その位置よりランプに近い領域で実際の UV 照度が計算結果より大きい値となることが分かった。また、半径光モデルでは光源軸方向  $z$  の補正ができない。

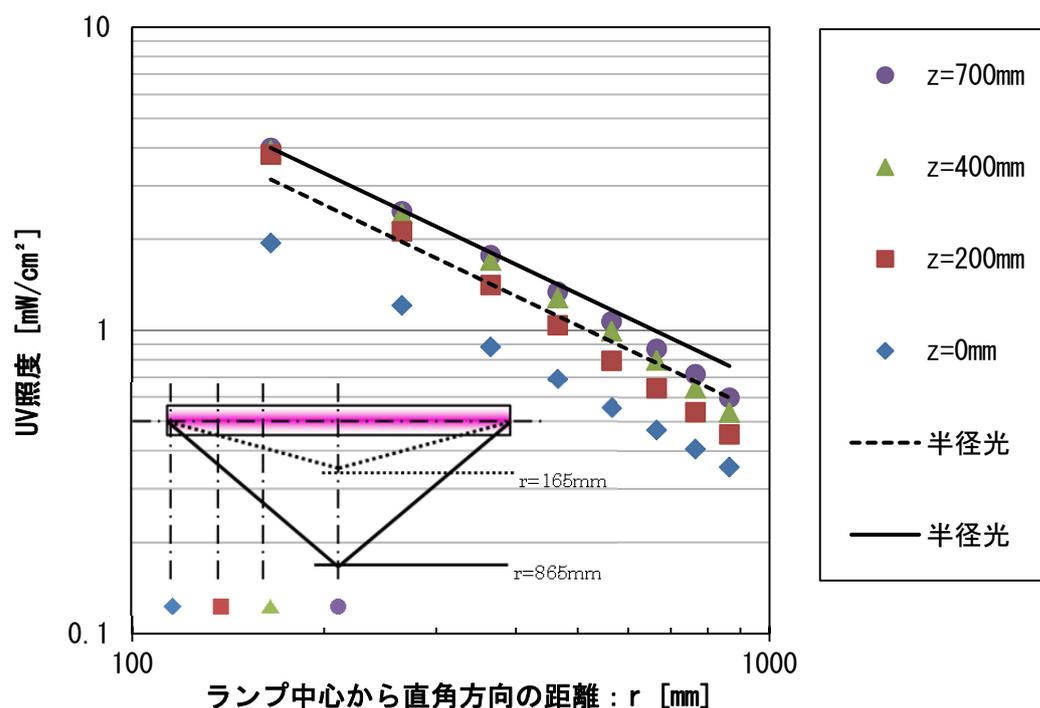


図3-7 低圧水銀灯のUV照度測定結果と半径光モデルとの比較

透明光モデルと比較した図 3-8 の実線では、 $z$  が 0 mm での計算結果は測定結果より高くなり、それ以外の  $z$  についてはランプ近傍で測定値より高い計算結果となった。また、点線では、 $z$  が 0 mm では計算結果が測定値に概ね一致したが、それ以外の  $z$  については計算結果が測定値より低い結果となった。つまり、透明光モデルでは半径光モデルとは逆に、 $r$  の変化に対する UV 照度の変化が大きくなった。透明光モデルで気中の UV 照度を計算する場合、計算式中の定数を求めるための基準となる測定位置がランプ中心から直角方向の距離が小さければ、発光長方向がランプ端部からランプ中心の範囲で実際の値に同等か小さくなることわかった。

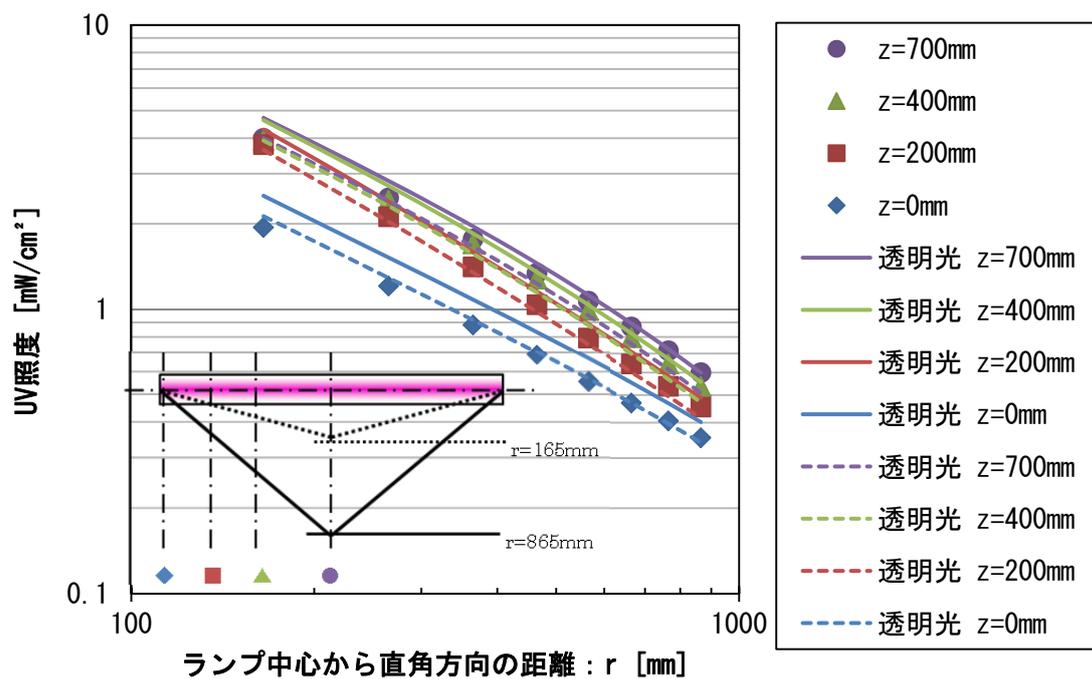


図3-8 低圧水銀灯のUV照度測定結果と透明光モデルとの比較

拡散光モデルと比較した図 3-9 では、実線、点線ともに計算結果と測定値が概ね一致した。よって、拡散光モデルで気中のUV照度を計算する場合、計算式中の定数を求めるための基準となる測定位置がランプ中心から直角方向の距離が発光長の約 1/10 と約 1/2 で、かつ、発光長方向がランプ中心であれば、ここでの測定範囲の実測値と同等の結果になることわかった。

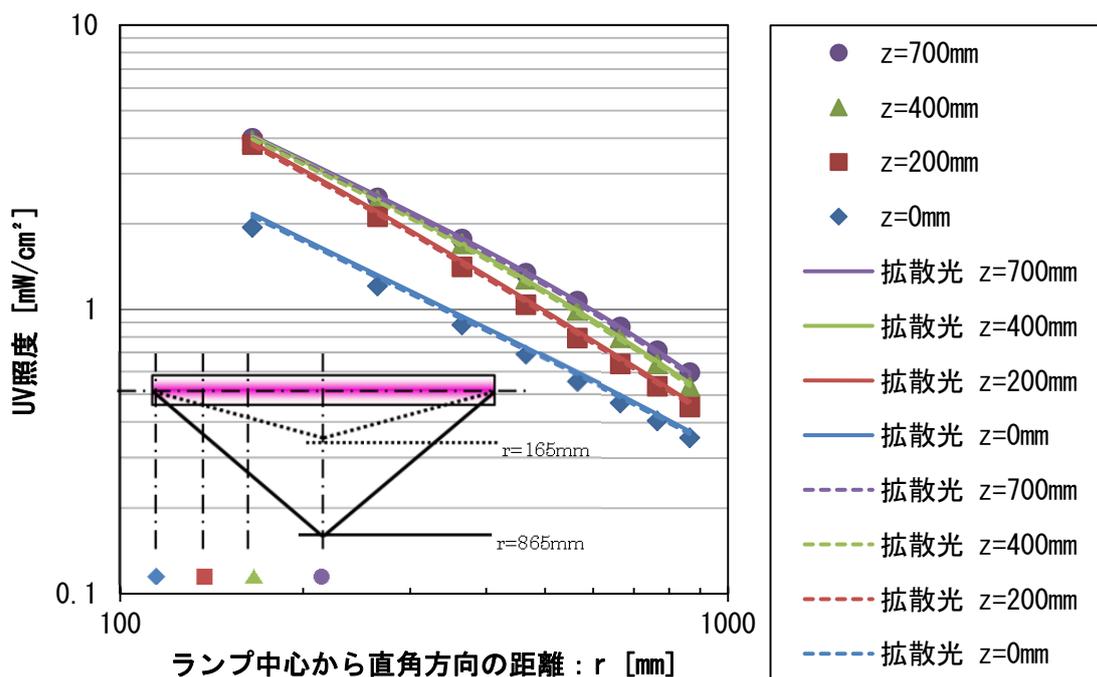


図3-9 低圧水銀灯のUV照度測定結果と拡散光モデルとの比較

以上のことから、本実験条件においては発光管内面に無機物が塗布された低圧水銀灯の配光特性としては、一般の低圧水銀灯における波長 254 nm と同様に拡散光モデルが適当であることがわかった。低圧水銀灯は管内で電子の衝突により励起された水銀が基底状態に戻る際に、そのエネルギー差を光としてこの波長を主に放出している。ただし、この波長は管内の水銀によって吸収されるため、配光特性が拡散光となる。本実験に使用した低圧水銀灯には発光管内面に無機物が塗布されているが、その無機物による反射散乱などで配光特性に影響を与える効果がないと考察できた。

### 3.2.2 高圧水銀灯

#### 3.2.2.1 実験装置及び方法

図 3-10 に紫外線強度計を用いて測定した高圧水銀灯(日本フォトサイエンス製:H-400、発光長:75 mm)のUV照度の測定範囲を示した。ランプは室温 25°C一定の条件で、ランプは水平に点灯し、UV照度が安定したことを確認してからUV照度の測定を行った。測定には紫外線強度計トプコン UVR-2(受光部:UD-25)を用いた。電源電圧は定電源装置を用いて、一定の電圧とした。内部照射型流水式UV照射反応器の形状として、高圧水銀灯を用いた反応器の場合、一般的には円筒形の流路に対してランプ軸が円筒軸と直行してい

る。そこで、図に示したように発光長  $L$  に対して測定範囲は概ね  $z$  が  $-2L$  から  $L/2$  まで、 $r$  が  $2L$  から  $11L$  までとした。

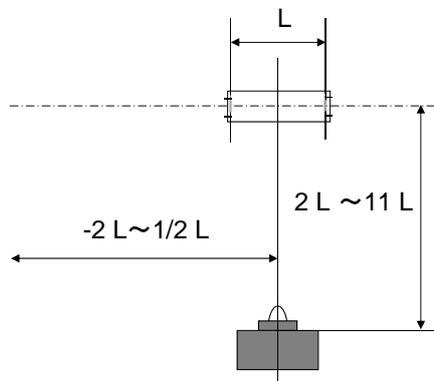


図 3-10 紫外線強度計を用いた高圧水銀灯の UV 照度測定範囲

### 3.2.2.2 実験結果

測定結果を図 3-11 に示した。横軸はランプ中心から直角方向の距離、縦軸は UV 照度、各キーはランプ端部から  $z$  軸方向の受光点の位置である。図中の直線は点光源モデルである距離の二乗に反比例した場合の傾きを示すが、 $r$  が発光長の約 10 倍である 700 mm 以上になると  $z$  の位置に依らずこの直線に一致していることがわかる。

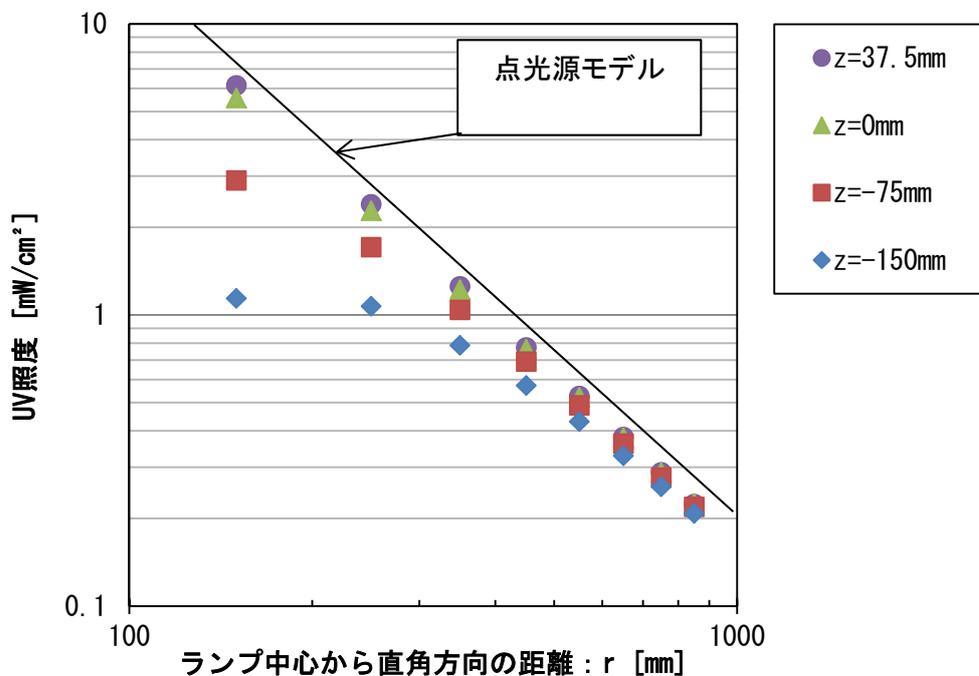


図3-11 高圧水銀灯のUV照度測定結果

### 3.2.2.3 各モデルとの照合

測定した実験結果の内の1つを用いて、式(2)、式(7)、式(8)からそれぞれに含まれている定数を求めた。角度特性の影響が最も少ない  $r = 862.5\text{mm}$ 、 $z = 37.5\text{ mm}$  と、最も測定位置がランプに近い  $r = 162.5\text{ mm}$ 、 $z = 37.5\text{ mm}$  を選んで、 $k_p$ 、 $k_s$ 、 $k_D$  を求めた。その結果を表 3-2 に示した。

表 3-2 照度測定に使用した高圧水銀灯の測定位置  $r$  が異なる場合の各配光特性内の定数

UV 照度測定位置	$k_p$	$k_s$	$k_D$
$r = 862.5\text{ mm}$ 、 $z = 700\text{ mm}$	19.3 mW/cm	220 mW/cm	220 mW/cm
$r = 162.5\text{ mm}$ 、 $z = 700\text{ mm}$	99.9 mW/cm	220 mW/cm	222 mW/cm

異なる  $r$  の位置によって半径光モデルの定数は大きく異なったが、透明光と拡散光のモデルではその値がほぼ一致した。この値を用いて各モデルの計算結果と測定結果を比較した。その結果を図 3-12~3-14 に示す。計算結果は\*\*光  $z=***\text{mm}$  で、測定結果のキーで示した。透明光と拡散光のモデルでは、 $k_s$ 、 $k_D$  に 220 mW/cm を用いた。

半径光モデルでは  $r$  によって  $k_p$  が異なったので、 $r = 862.5\text{mm}$  の場合に求めた定数を使用して計算した結果を実線で、 $r = 162.5\text{ mm}$  の場合を点線で図 3-12 に示した。図中の計算結果と測定値とを比較すると、 $z$  がランプ中心もしくはランプ端部の場合  $r$  の変化に対する UV 照度の変化が計算より測定値の方が大きかった。

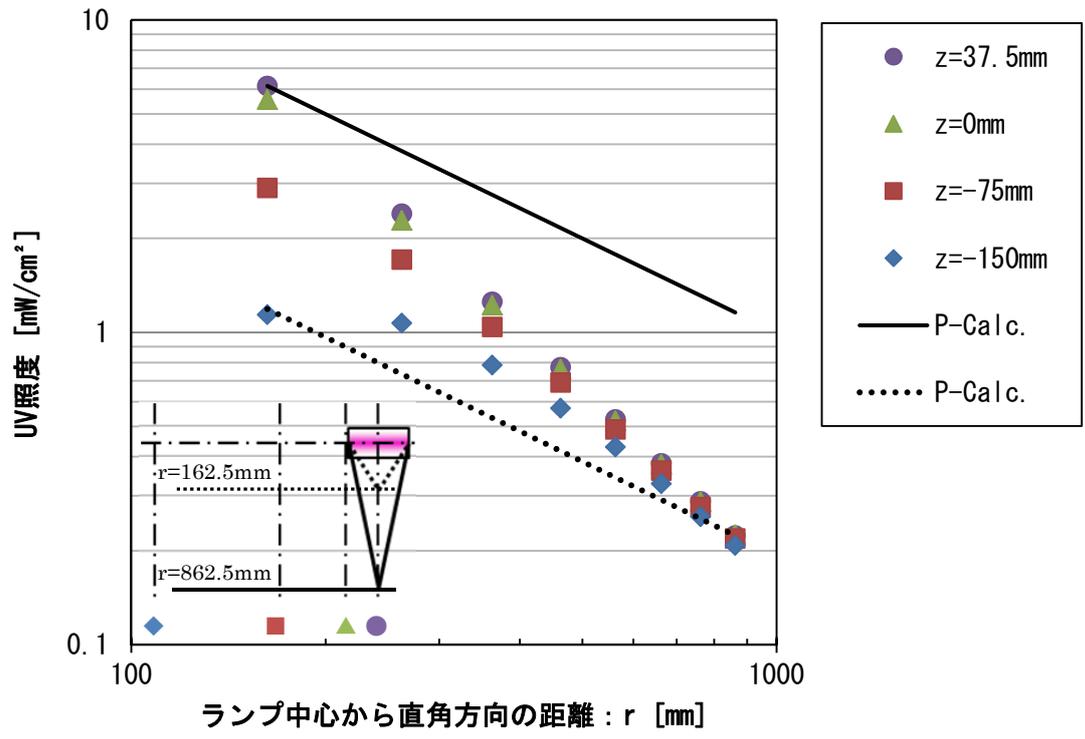


図3-12 高圧水銀灯のUV照度測定結果と半径光モデルとの比較

図 3-13 に示した透明光モデルでは、 $z$  が 37.5 mm と 0 mm では測定値と概ね一致した。 $z$  が -75 mm と -150 mm で  $r$  が 600 mm を越えた付近から測定値の概ね一致した。 $z$  が -75 mm と -150 mm で  $r$  がランプ近傍では一致しなかった。

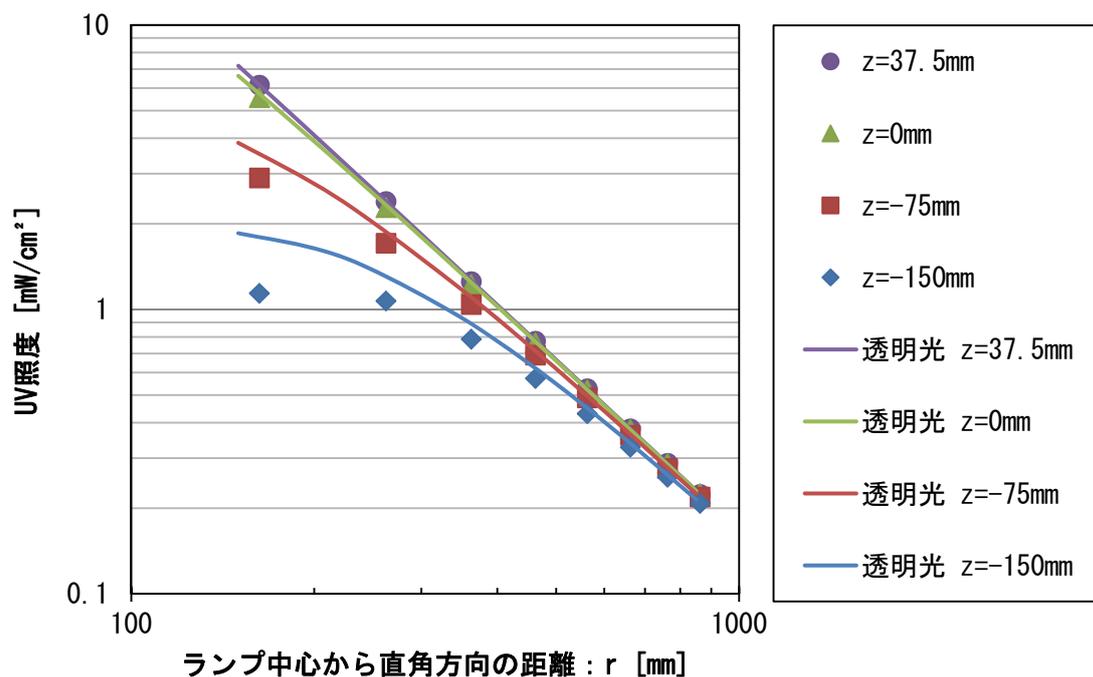


図3-13 高圧水銀灯のUV照度測定結果と透明光モデルとの比較

図 3-14 に示した拡散光モデルでは測定値と概ね一致しており、特に、透明光モデルでは一致しなかったランプ近傍で発光長方向に中心から離れた位置でも良好に一致した。よって、本実験条件においても高圧水銀灯の配光特性を算出するには、拡散光モデルが適切であることがわかった。本実験では波長 254 nm 付近に受光感度があるセンサーを使用し、低圧水銀灯のような輝線ではないが高圧水銀灯にもこの波長に発光分布のピークがある。この波長は低圧水銀灯のところで示したように、水銀による自己吸収があるため、配光特性が拡散光に近似できたものと考えられる。式(3)と式(4)は  $\cos \theta$  が 1 であれば、両者は同じ式である。ゆえに、 $\cos \theta$  がほとんど 1 となる条件では透明光と拡散光の両モデルは概ね同じ計算結果となった。

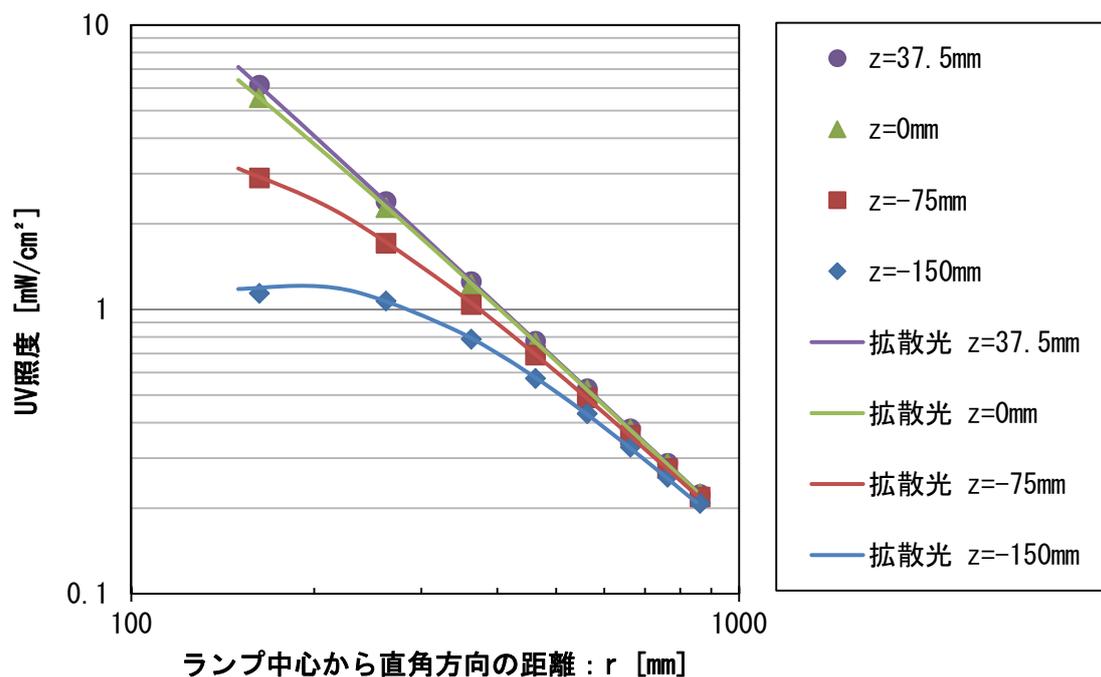


図3-14 高圧水銀灯のUV照度測定結果と拡散光モデルとの比較

### 3.2.3 気中での配光特性に関するまとめ

内面に無機物が塗布された低圧水銀灯と一般的な高圧水銀灯のUV照度を気中で測定し、各配光特性による計算結果と比較した。その結果、低圧水銀灯ではランプに直角方向の距離を発光長の約1/10から約1/2の範囲で、発光長方向にランプ中心からランプ端部までの範囲で、拡散光モデルとよく一致した。高圧水銀灯ではランプに直角方向の距離を発光長の約2倍から約11倍の範囲で、発光長方向にランプ中心からランプ端部の外側に発光長の2倍離れた位置までの範囲で、拡散光モデルとよく一致した。

また、性能評価方法の一つとして、透明光モデルと拡散光モデルのいずれの配光特性が適当であるかを確認する場合、光源の長手方向の中心付近で直角方向に発光長の1/10以上離れた位置での照度測定結果から各配光特性の式に含まれている係数を求め、発光点と受光点を結ぶ長さに対するランプ中心から受光点までの鉛直距離の比が明らかに1より小さい位置での照度測定値に対する両モデルの計算値を比較すれば、明確な判断が得られることを示した。

### 3.3 水中での配光特性

#### 3.3.1 UV 照度分布

ここまでは気中での UV 照度分布について、低圧水銀灯と高圧水銀灯で測定値と配光特性を比較し、それぞれが拡散光モデルに一致することを確認した。水中では水の透過率が UV 照度に影響する。また、測定値を得ることが困難である。そのため、計算による結果を考察することを試みた。ここでは一般化するために、拡散光モデルでの UV 照度の計算結果が  $0.001 \text{ mW/cm}^2$  まで、もしくはランプ軸から直角方向の距離が  $1 \text{ m}$  までを計算範囲とした。半径光モデルは計算の利便性があり、透明光モデルは他の光源または波長を用いる場合に適用できる可能性がある。そこで、拡散光モデルでの計算結果に対する半径光モデルと透明光モデルでの計算結果を比較した。水の透過率を含む各モデルの計算式は、半径光モデル、透明光モデル、拡散光モデルの順に次式となる。

$$I_P' = k_P \frac{1}{r} T^{r-q} \quad (9)$$

$$I_S' = k_S \int_0^l \frac{1}{PX^2} T^{\overline{PX}(r-q)/r} dx \quad (10)$$

$$I_D' = k_D \int_0^l \frac{\cos\theta}{PX^2} T^{\overline{PX}(r-q)/r} dx \quad (11)$$

$I_P'$ 、 $I_S'$ 、 $I_D'$  は各モデルで算出された UV 照度 [ $\text{mW/cm}^2$ ]、 $k_D$  は定数 [ $\text{mW/cm}$ ]、 $T$  は液厚さ  $1 \text{ cm}$  あたりの透過率 [-]、 $q$  はランプスリーブの半径 [ $\text{cm}$ ] を示し、 $T$  のべき乗の項は長さ  $\text{cm}$  の単位となる値を用いる。

ランプの仕様には UV 照度測定に使用した低圧水銀灯 C091WS と高圧水銀灯 H-400 の値を用いて、 $1 \text{ cm}$  あたりの UV 透過率  $T=100$ 、 $95$ 、 $70\%$ 、ランプスリーブ半径  $1.25 \text{ cm}$ 、ランプ端部からの位置  $z$  に  $0$  または発光長の半分である  $l/2$  代入して、ランプ中心からの直角方向の距離  $r$  が  $1.25 \text{ cm}$  から  $100 \text{ cm}$  の範囲とした。計算した結果を、ランプ中心から直角方向の距離と、拡散光モデルに対する半径光モデルまたは透明光モデルの比で、UV 透過率と計算式に含まれている定数を求めるための基準点を因子に、ランプ端部からの位置ごとで整理した。その結果を図 3-15～3-18 に示した。図中には、定数を求める基準点が、低圧水銀灯では  $r = 865 \text{ mm}$  の場合を実線で  $r = 165 \text{ mm}$  を点線で示した。高圧水銀灯では表 3-2

で示したように透明光と拡散光の定数がほとんど一致したので、半径光に関してのみ  $r = 862.5 \text{ mm}$  を実線で  $r = 162.5 \text{ mm}$  を点線で示した。

### 3.3.1.1 低圧水銀灯の場合

図 3-15 に示した低圧水銀灯の  $z=l/2$  の実線において、拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、水の透過率の影響を受けていない透過率 100%の場合はランプスリーブ表面では約 1.4 で  $r$  が 2 cm の付近で最大になり 100 cm で約 1.0 となった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が大きくなるにつれて小さくなり、70 cm 付近で 1 となった。透過率が 70%では 95%での結果より  $r$  が小さい値で 1 となった。また、半径モデルとの比では、透過率が 100%の場合、 $r$  がスリーブの表面から 20 cm 付近までは約 0.6 でそれより  $r$  が大きくなるにつれてその比が大きくなり、100 cm 付近で 1 となった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が大きくなるにつれて大きくなり、60 cm 付近まで 1 以上となった。透過率が 70%では 95%での結果より  $r$  が小さい値で 1 以上となった。

点線についても同様の変化があった。拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、透過率 100%の場合はランプスリーブ表面では約 1.2 で  $r$  が 2 cm の付近で最大になり 30 cm を越えた辺りで約 1.0 となった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が大きくなるにつれて小さくなり、10 cm を越えた辺りで 1 となった。透過率が 70%では 95%での結果より  $r$  が小さい値で 1 となった。また、半径モデルとの比では、透過率が 100%の場合、 $r$  がスリーブの表面から 20 cm 付近までは約 0.8 でそれより  $r$  が大きくなるにつれてその比が大きくなり、60 cm 付近で 1 となった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が大きくなるにつれて大きくなり、10 cm を越えた辺りまで 1 以上となった。透過率が 70%では 95%での結果より  $r$  が小さい値で 1 以上となった。

図 3-16 に示した低圧水銀灯の  $z=0$  の実線において、拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、透過率 100%の場合はランプスリーブ表面では約 1.2 で  $r$  が 10 cm の付近で最大となり 100 cm まで 1 以上であった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が 2 cm 付近で緩やかな最大ピークがあり、 $r$  が 70cm 付近まで 1 以上であった。透過率 70%では  $r$  が 10 cm 付近まで 1 以上であった。また、半径モデルとの比では、透過率が 100%の場合、ランプスリーブ表面では約 0.7 で、 $r$  が 4 cm 付近から 1 以上となった。透過率 95%では 3 cm 付近から、透過率 75%では 2 cm 付近から 1 以上となった。 $r$  が大きくなるにつれてその比が大きくなり、その傾向は透過率が低い方が顕著であった。

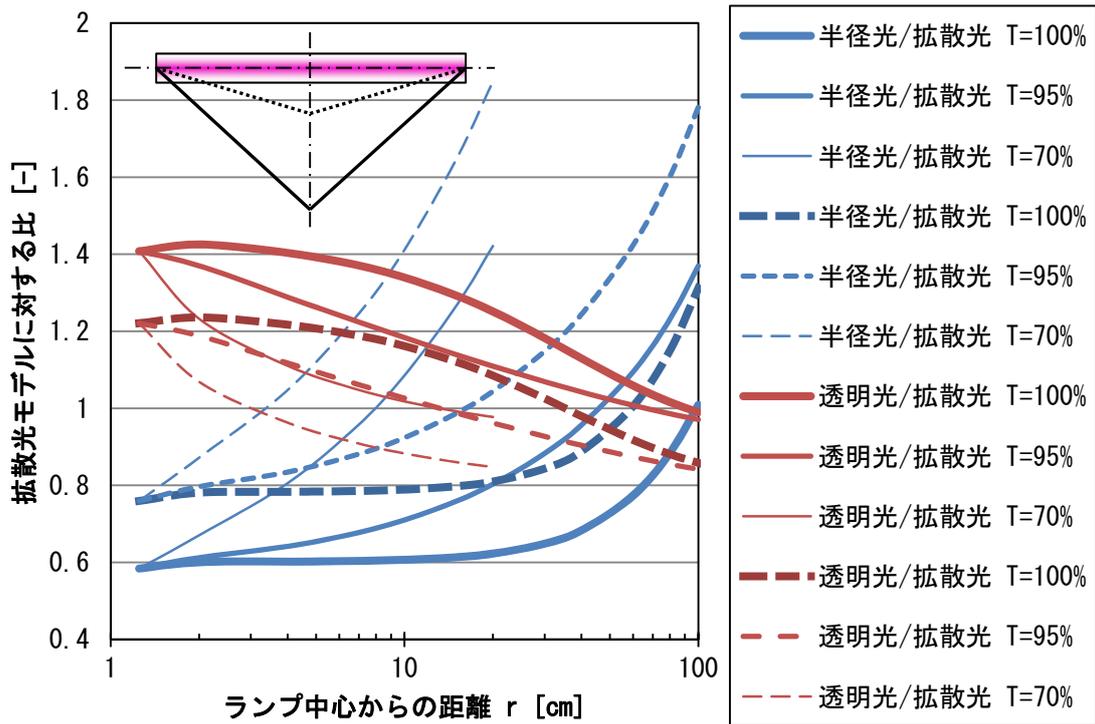


図3-15 拡散光モデルでのUV照度計算結果に対する半徑光・透明光モデルでの計算結果の比（低圧水銀灯、 $z=l/2$ の場合）

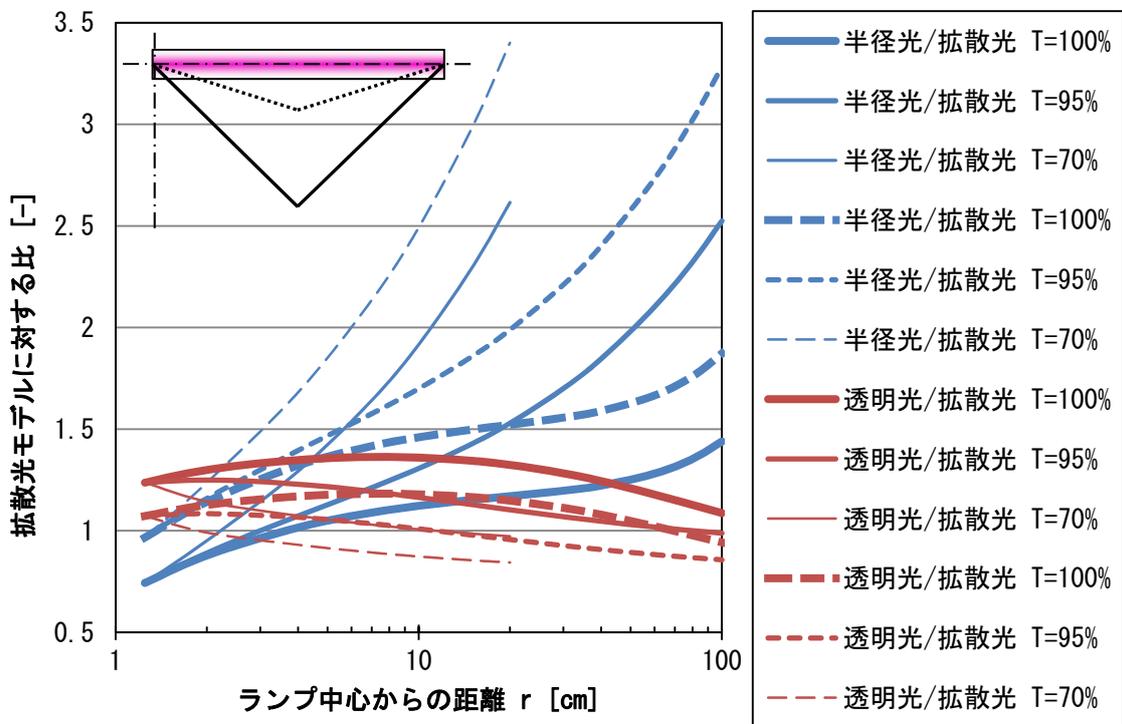


図3-16 拡散光モデルでのUV照度計算結果に対する半徑光・透明光モデルでの計算結果の比（低圧水銀灯、 $z=0$ の場合）

点線についても同様の変化があった。拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、透過率 100%の場合はランプスリーブ表面では約 1.1 で  $r$  が 10 cm の付近で最大となり約 70 cm まで 1 以上であった。水の透過率が 95%の場合は  $r$  が 2 cm 付近で緩やかな最大ピークがあり、 $r$  が 10 cm 付近まで 1 以上であった。透過率 70%では  $r$  が 2 cm 付近まで 1 以上であった。また、半径モデルとの比では、透過率が 100%の場合、ランプスリーブ表面では約 0.9 で、 $r$  が 2 cm より小さい位置から 1 以上となった。透過率 95%と透過率 75%でも同様に位置から 1 以上となった。 $r$  が大きくなるにつれてその比が大きくなり、その傾向は透過率が低い方が顕著であった。

### 3.3.1.2 高圧水銀灯の場合

図 3-17 に示した高圧水銀灯の  $z=l/2$  において、拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、ここで示したいずれの水の透過率に対してほとんど同じ傾向を示し、ランプスリーブ表面では約 1.3 で  $r$  が大きくなるにつれてほとんど 1 となった。また、半径モデルとの比でも水の透過率に対してほとんど同じ傾向を示し、実線ではランプスリーブ表面では約 0.05 で、 $r$  が 100 cm で約 1 となった。点線ではランプスリーブ表面では約 0.2 で、 $r$  が 15 cm を越えた辺りから 1 以上となり、100 cm で約 6 となった。

図 3-18 に示した高圧水銀灯の  $z=0$  において、拡散光モデルに対する透明光モデルの比は、ここで示したいずれの水の透過率に対してもほとんど同じ傾向を示し、ランプスリーブ表面では約 1.4 で  $r$  が大きくなるにつれてほとんど 1 となった。また、半径モデルとの比でも水の透過率に対してほとんど同じ傾向を示し、実線ではランプスリーブ表面では 0.1 未満で、 $r$  が 100 cm で約 1 となった。点線ではランプスリーブ表面では約 0.5 で、 $r$  が 20 cm を越えた辺りから 1 以上となり、100 cm で約 6 となった。

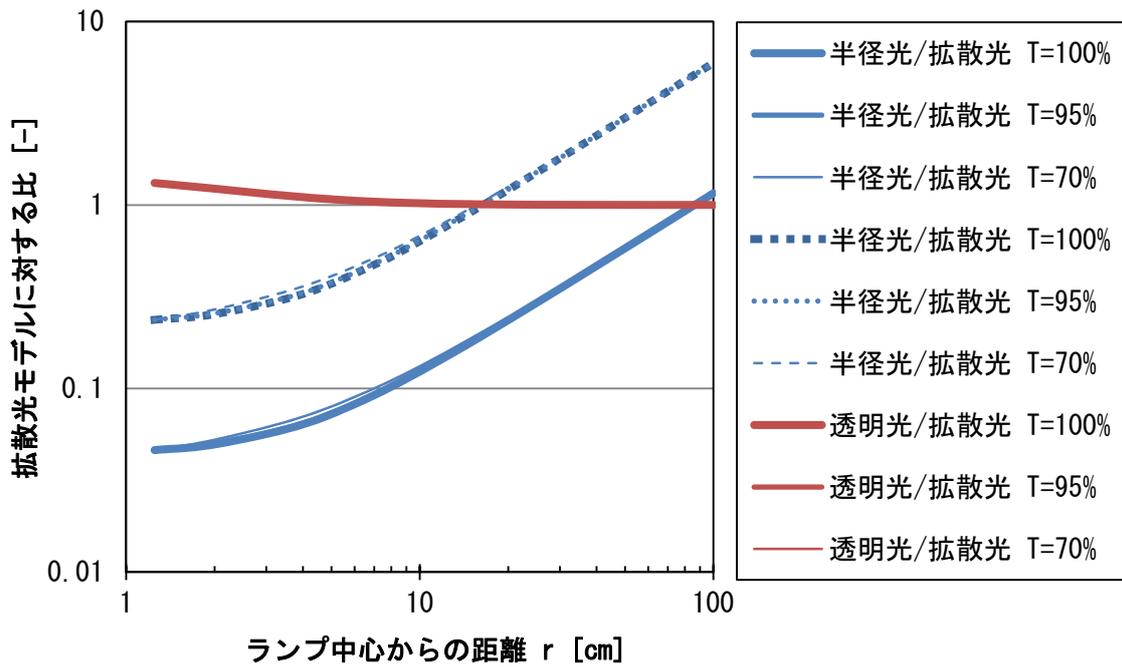


図3-17 拡散光モデルでのUV照度計算結果に対する半径光・透明光モデルでの計算結果の比（高圧水銀灯、 $z=l/2$ の場合）

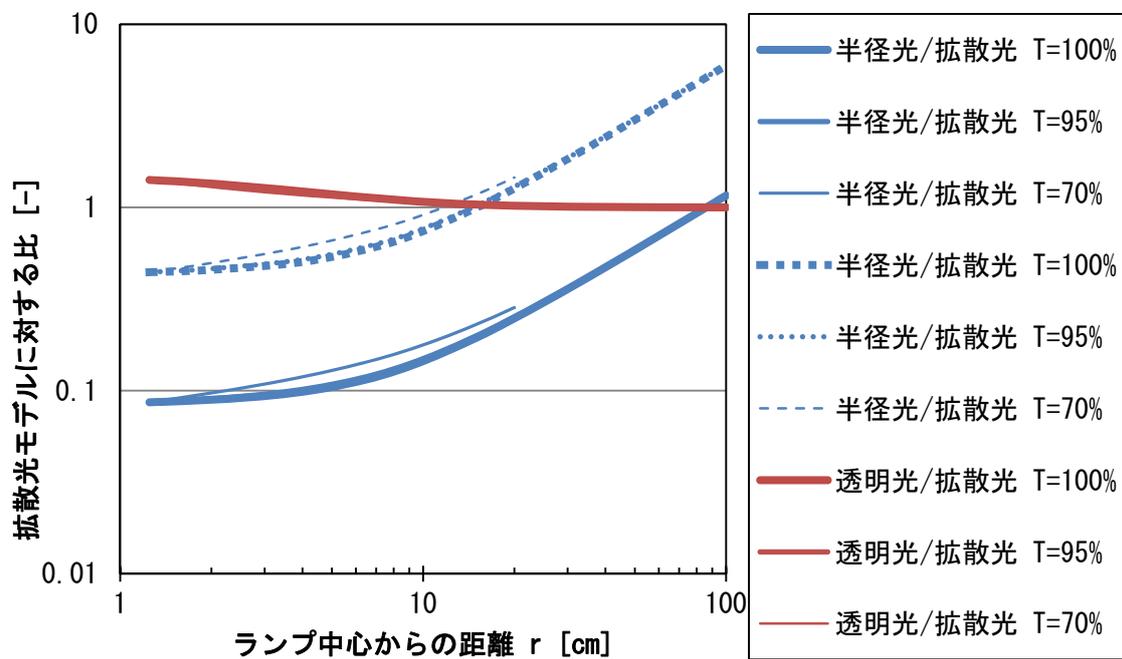


図3-18 拡散光モデルでのUV照度計算結果に対する半径光・透明光モデルでの計算結果の比（高圧水銀灯、 $z=0$ の場合）

### 3.3.2 各配光特性における流水式反応器の生残率比較

水の透過率を含んだ各配光特性の照度分布、流動状態、反応速度の 3 つの情報がわかれば、反応物の拡散が無視できる条件で、流水式光反応器の性能予測をすることが可能である。微生物の不活化を目的とした場合は、一例として反応速度が 1 次反応であると仮定すれば、不活化速度定数から生残率が予測できる。

そこで、内径を高圧水銀灯 H-400 の発光長と同じ 75 mm、長さを低圧水銀灯 C091WS の発光長より長い 2 m とし、反応器の中心に外径 25 mm のランプスリーブを図 3-19 で示すように、低圧水銀灯は流れと並行に、高圧水銀灯は流れと直角に設置した反応器を仮想した。これらの形状より、流動状態は 4 章で示した層流栓流モデルが適用できると仮定した。層流栓流モデルとは流れ方向に均一で、流れと直角方向には移動がないとするモデルである。これらの条件で、流量の逆数に対する生残率を各配光特性で計算した。ただし、高圧水銀灯については、発光分布、水の透過率、及び微生物の波長感度などの波長依存性がないものとした。各配光特性の定数を求めるための基準点は、先と同様に、低圧水銀灯では  $z=700$  mm、 $r=865$  mm を選んだ場合を実線で、 $z=700$  mm、 $r=165$  mm を選んだ場合を点線で示し、高圧水銀灯では拡散光と透明光の定数がほとんど一致したことから、半径光についてのみ  $r=862.5$  mm での定数を用いた場合を実線で、 $r=162.5$  mm での定数を用いた場合を点線で示した。

水の透過率が 70%では下水二次処理水の大腸菌群を対象とした場合を考慮して、微生物を 99.9%不活化するために必要な UV 照射量を  $30 \text{ mJ/cm}^2$  とした。水の透過率が 95%では浄水用反応器の評価に使用する MS2 を対象とした場合を考慮して、不活化速度定数を  $10 \text{ mJ/cm}^2$  とした。水の透過率が 100%では超純水用反応器の一般的な設計を考慮して、微生物を 99.9%不活化するために必要な UV 照射量を  $50 \text{ mJ/cm}^2$  とした。

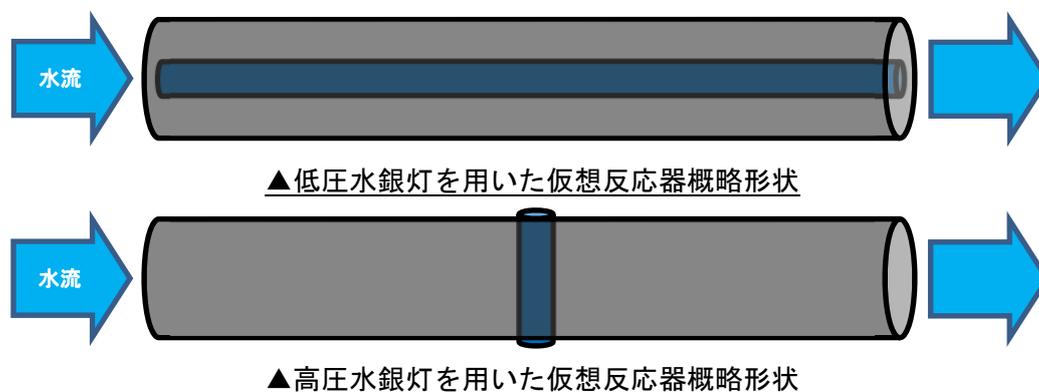


図 3-19 流量と生残率の関係を計算するために仮想した反応器概略形状

### 3.3.2.1 低圧水銀灯の場合

水の透過率が 70%で、各配光特性で計算した結果を図 3-20 に示した。微生物を 99.9%不活化するための UV 照射量が  $30 \text{ mJ/cm}^2$ である場合、不活化速度定数は  $4.34 \text{ mJ/cm}^2$ である。拡散光モデルでは基準点が異なっても計算結果に差異がほとんどなかった。透明光モデルでは点線は拡散光モデルより生残率が高く、実線では低くなった。半径光モデルでは点線は拡散光モデルと同等の結果となったが、実線は拡散光モデルより生残率が高くなった。

水の透過率が 95%で、不活化速度定数を  $10 \text{ mJ/cm}^2$ とした場合について、各配光特性で計算した。その結果を図 3-21 に示した。拡散光モデルでは基準点が異なっても計算結果に差異がほとんどなかった。透明光モデルでは実線、点線ともに拡散光モデルより生残率が高くなった。半径光モデルでは実線、点線ともに拡散光モデルより生残率が高くなった。

水の透過率が 100%で、各配光特性で計算した結果を図 3-22 に示した微生物を 99.9%不活化するための UV 照射量が  $50 \text{ mJ/cm}^2$ である場合、不活化速度定数は  $7.24 \text{ mJ/cm}^2$ である。その結果を図 3-23 に示した。拡散光モデルでは基準点が異なっても計算結果に差異がほとんどなかった。透明光モデルでは実線、点線ともに拡散光モデルより生残率が高くなった。半径光モデルでは実線、点線ともに拡散光モデルより生残率が高くなった。

このような拡散光モデルに対する他の配光特性での性能比較の結果は、図 3-15、3-16 から類推できる。

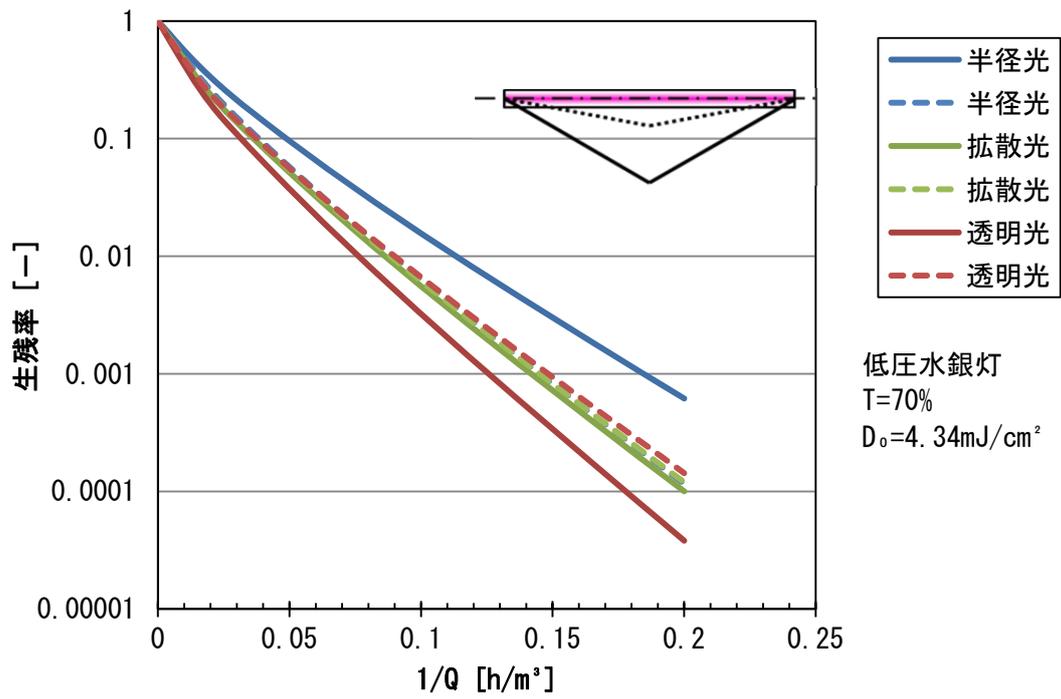


図3-20 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生残率比較

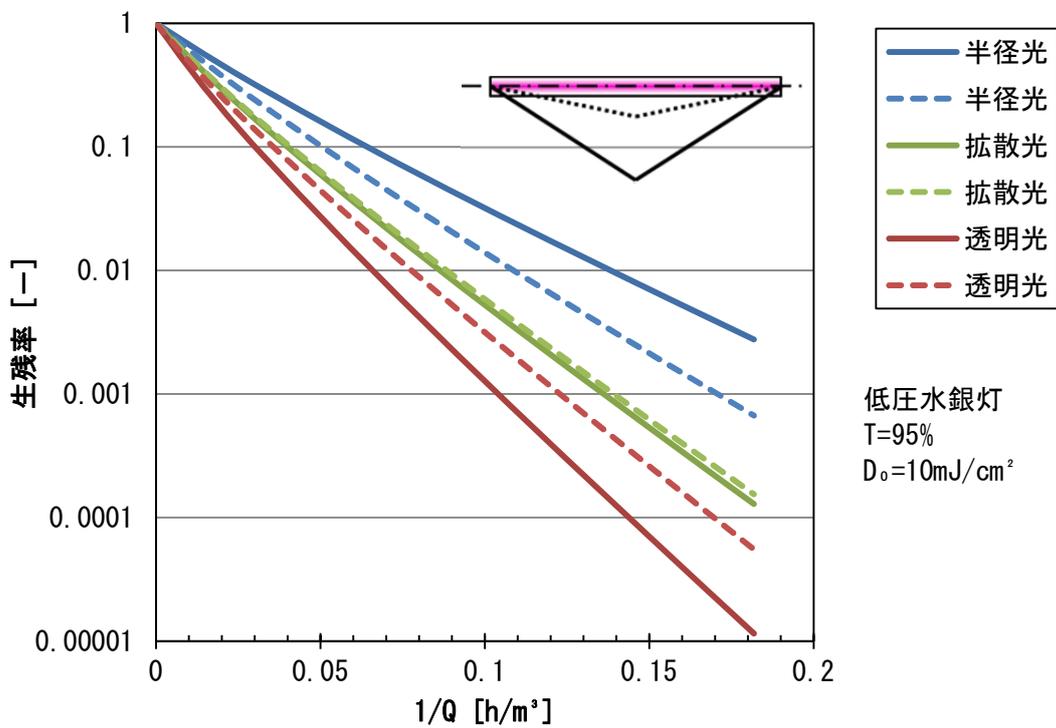


図3-21 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生残率比較

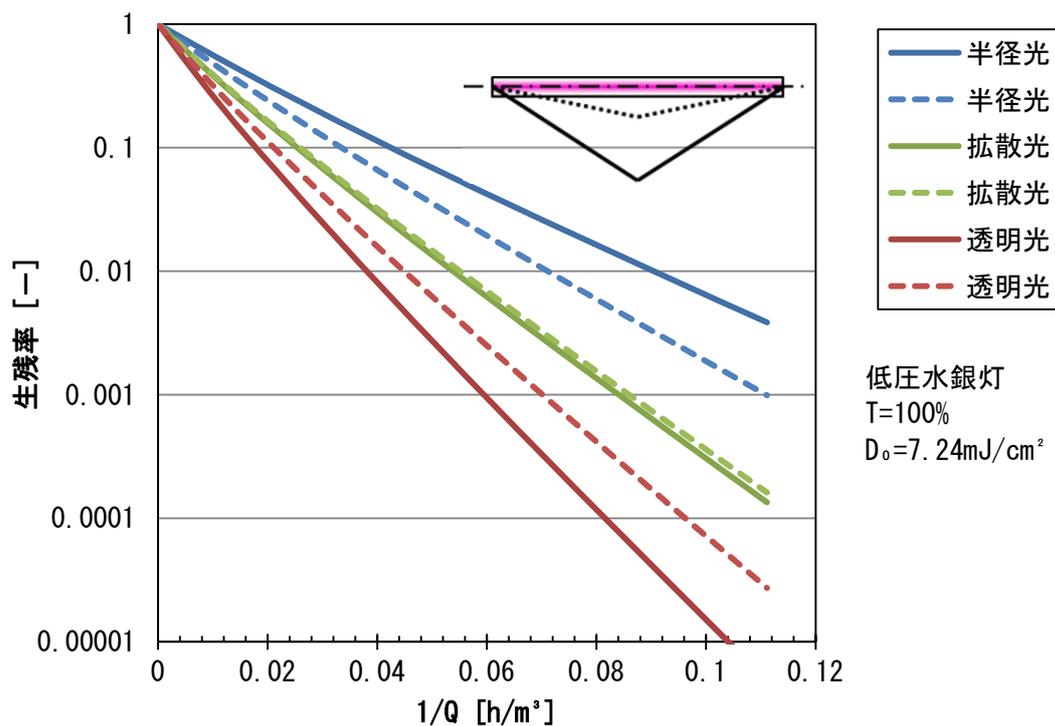


図3-22 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生存率比較

### 3.3.2.2 高圧水銀灯の場合

水の透過率が70%の場合について、各配光特性で計算した。その結果を図3-23に示した。透明光モデルと拡散光モデルでの計算結果は近似しているが、透明光モデルの方が高い不活化性能であった。また、半径光モデルでは実線、点線ともに他のモデルより不活化性能が低かった。

水の透過率が95%の場合について、各配光特性で計算した。その結果を図3-24に示した。図3-23と3-24はほとんど同様の傾向であった。

水の透過率が100%の場合について、各配光特性で計算した。その結果を図3-25に示した。先と同様に、図3-25は図3-23、3-24とほとんど同様の傾向であった。

このような傾向が得られることは、図3-17、3-18から類推できる。

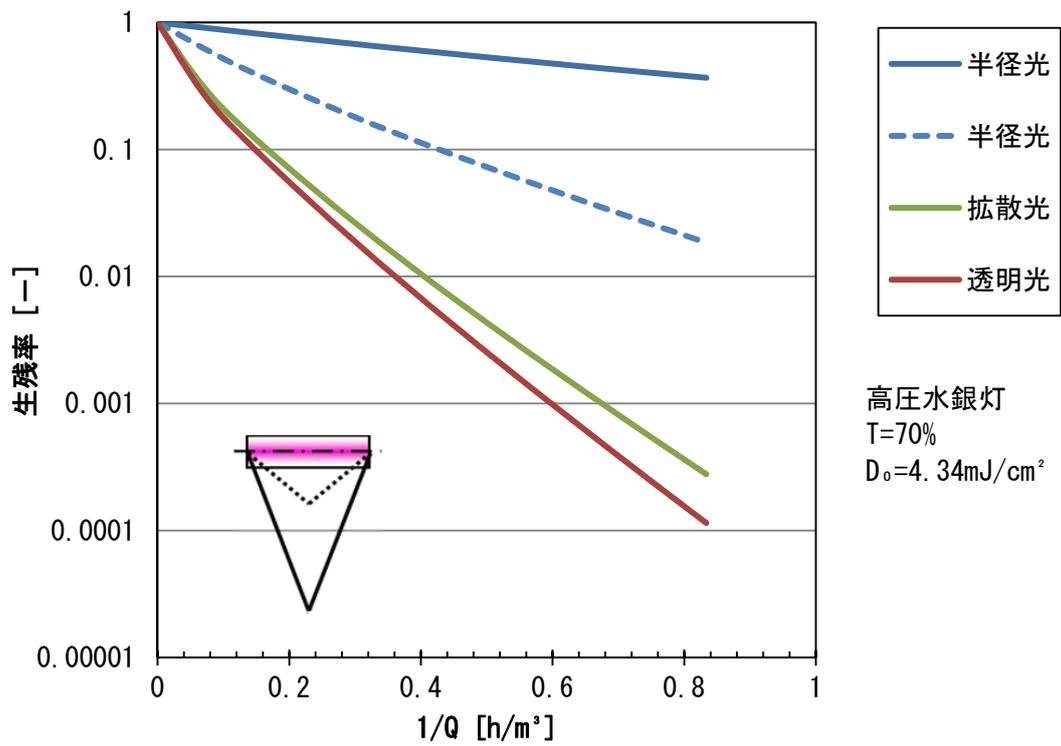


図3-23 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生存率比較

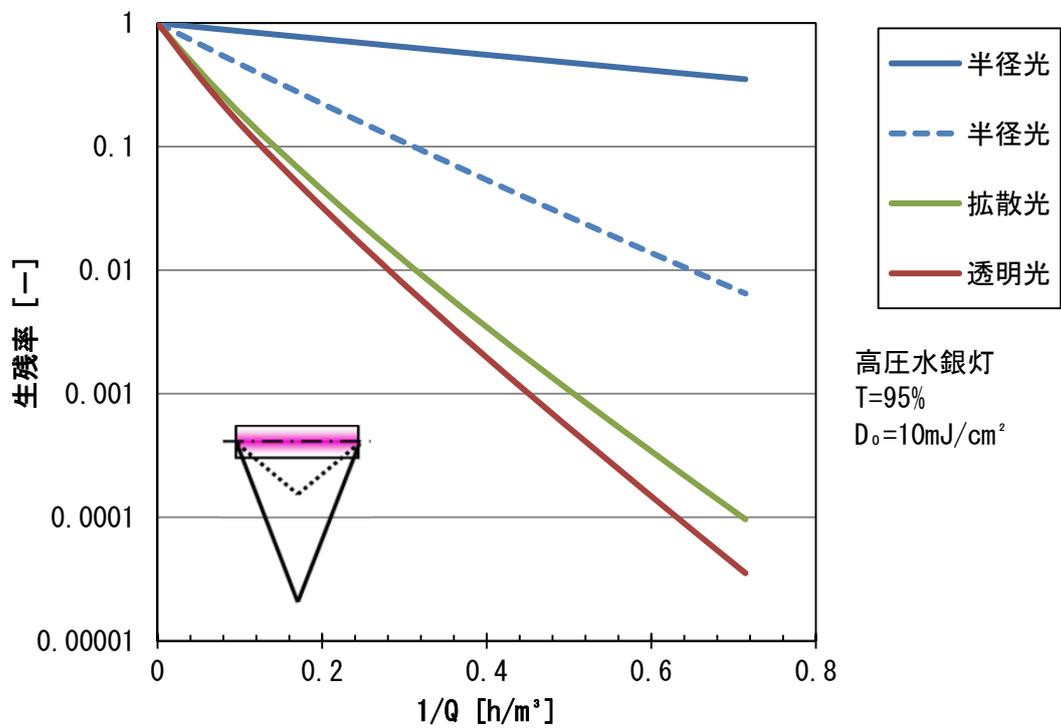


図3-24 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生存率比較

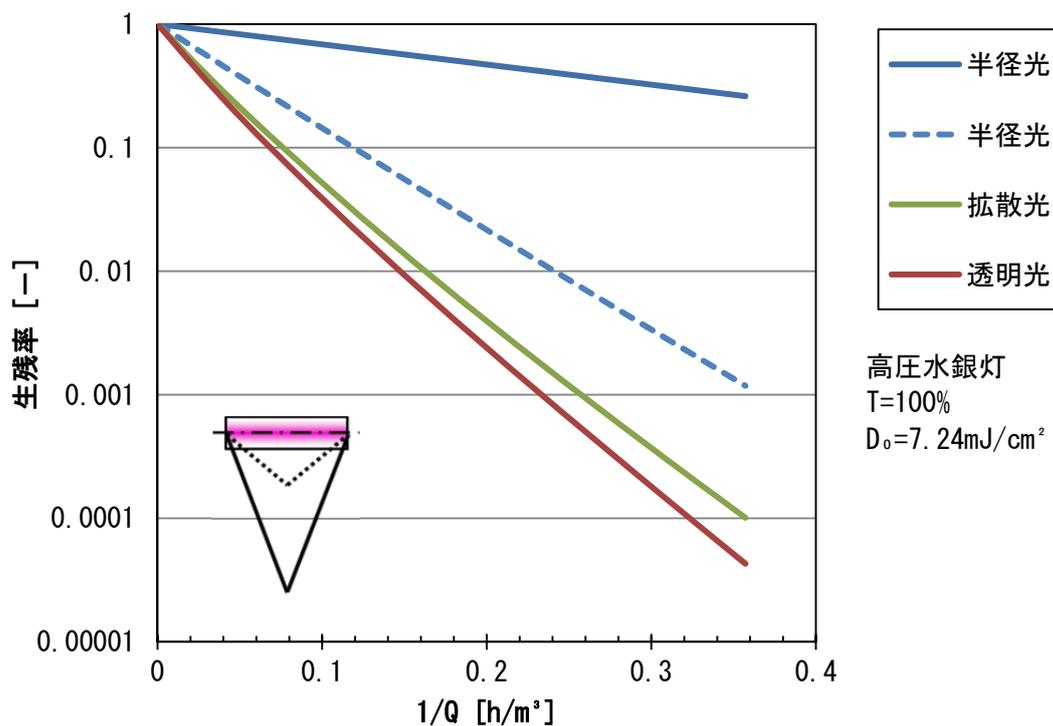


図3-25 各配光特性で計算した流量の逆数に対する生存率比較

### 3.3.3 水中での配光特性に関するまとめ

水中での UV 照度分布について一般化するために、拡散光モデルでの計算結果が  $0.001\text{mW}/\text{cm}^2$  まで、もしくはランプ中心から直角方向の距離が  $1\text{m}$  までの範囲で計算した。その結果を、拡散光モデルに対する半径光モデルと透明光モデルで比較した。ランプの仕様には気中での UV 照度測定に使用した低圧水銀灯と高圧水銀灯の値を用いて、 $1\text{cm}$  あたりの UV 透過率  $T=100, 95, 70\%$ 、ランプ軸方向にはランプ端部と発光長の中心の 2 点を選んだ。

次に、流動状態として層流栓流モデル、反応速度として 1 次反応の微生物不活化を条件に、流水式光反応器の生存率を各配光特性による UV 照度計算から求めた。ランプの仕様は気中での UV 照度測定に使用した低圧水銀灯と高圧水銀灯とし、UV 透過率は  $1\text{cm}$  あたり  $T=100, 95, 70\%$  とした。反応器の寸法は内径が  $75\text{mm}$  で長さが  $2\text{m}$  の円筒形反応器で、流路は両端の円を出入口とした。低圧水銀灯の場合には外径  $25\text{mm}$ 、長さ  $2\text{m}$  のランプスリーブを円筒軸の中心に置き、高圧水銀灯の場合には同じ外径で長さ  $75\text{mm}$  のランプスリーブを反応器の長手方向の中心に直角に置いた形状とした。低圧水銀灯を用いた反応器では、水の透過率が低い場合は配光特性による差異が小さくなり、その透過率が高い場合は透明光、拡散光、半径光モデルの順で不活化性能が高くなった。高圧水銀灯を用いた反応器では、半径光モデルの場合は不活化性能が低い結果となり、透明光モデルと拡散光モデルとはその効果が近似した結果となった。このような傾向が得られることは、先に示

した拡散光モデルに対する半径光モデルと透明光モデルの比較と、反応器の寸法から、類推できる結果であった。高圧水銀灯を用いた反応器での微生物の不活化性能が、配光特性に透明光モデルを用いた場合と拡散光モデルを用いた場合で類似したことから、反応器形状によってはどちらの配光特性を用いても良い場合があることを示すことができた。

### 3.4 まとめ

本章では、UVによる微生物の不活化を目的に一般的に使用されている光源について、気中と水中での波長 254nm 付近での配光特性について考察した。一般的な低圧水銀灯は拡散光モデルが適用できることが知られていたが、内面に無機物が塗布された低圧水銀灯及び一般的な高圧水銀灯については情報が少なく、これらの配光特性を確認する必要があった。

両光源の UV 照度を気中で測定し、ともに拡散光モデルが適用できることを確認した。透明光モデルと拡散光モデルは、発光点と受光点を結ぶ長さに対するランプ中心から受光点までの鉛直距離の比が 1 のとき、気中、水中ともに同じモデルとなる。そのため、照度分布を計算するとほぼ同値になる領域がある。そこで、水中での配光特性と 4 章で示す層流栓流モデルを用いて微生物の不活化性能で比較した結果、光源を流れと直角に設置した反応器形状では透明光モデルと拡散光モデルに大差が生じないことを確認した。

参考文献

(アルファベット／五十音順)

EPA: Ultraviolet Disinfection Guidance Manual. EPA 815-D-03-007 USEPA (2003)

Oliver Lawal, Bertrand Dussert, Craig Howarth, Karl Platzer, Mike Sasges, Jennifer Muller, Elliott Whitby, Richard Stowe, Volker Adam, Dave Witham, Stuart Engel, Phyllis Posy, and, Argan van de Pol: Proposed method for measurement of the output of monochromatic (254 nm) low pressure UV lamps, IUVA News 10(1) p.14-17 (2008)

Orlando M. Alfano, Roberto L. Romero and Alberto E. Cassano: Radiation field modeling in photoreactors-I. Homogeneous media, Chemical Engineering Science, 41(3) p.421-444 (1986)

Sugawara T., M. Yoneya and H. Ohashi: Performance of annular flow sterilizer irradiated by a germicidal lamp, Journal of Chemical Engineering of Japan, 14(5) p.406-411 (1981)

大瀧雅寛、廣戸裕子：紫外線量の化学光量計による計測、第10回日本水環境学会シンポジウム要旨集(2007)

電気学会：照明工学、p.200 (1963)

トプコン社、紫外線強度計 UVR-2 カタログ

船山 齊、荻原宏二郎、菅原拓男、大橋弘保：低圧水銀灯を照射した光反応器内の光強度分布—光源の波長分布の影響—、化学工学論文集、3(4) p.354-358 (1977)

## 第4章 流水式 Annular 型 UV 照射反応器の流動特性解析

### 4.1 緒言

流水式 UV 照射反応器を設計するには、反応器内の UV 照度分布と流動様式を把握する必要がある。UV 照度分布については第3章で配光特性を示し、検証した。流動様式については層流であればモデル化されており、配光特性と組み合わせた報告がある (Sugawara et al, 1981)。しかしながら、市場で使用されている反応器内の水流はほとんどが乱流であるため実用的ではない。また、混合拡散モデルを用いて流れ解析する手法があるが、ペクレ数は実験により求める必要がある (安井他、2008)。つまり、反応器の性能を評価するには、反応器製作と通水実験をすることが前提となっている。近年ではコンピュータを用いた数値解析ソフトにより流動様式を計算する手法(CFD)がある。ただし、この CFD ソフトは第三者が検証できないという問題がある。

このように、流水式 UV 照射反応器はその設計法が十分に定まっていない。そこで、本報ではその設計法を開発することを目的に、一つの流水式 UV 照射反応器内の UV 照度計算と一般的な流れモデル及び菌の流れ分布が流れ方向に均一で半径方向に移動がないと想定したモデル (山越他、1998) を用いた計算を組み合わせて反応器性能を解析し、通水実験の結果と比較した。特に、その比較においては反応器性能に大きく依存する処理水の UV 透過率を因子とした。

### 4.2 微生物不活化実験

回分式照射実験で微生物の UV 照射量に対する生残率から不活化速度を確認し、いくつかの UV 透過率の実験水を用いて流水式照射実験を行った。

使用した微生物及びその分析方法と、各照射実験の方法と結果を以下に示す。

#### 4.2.1 指標菌とその分析方法

指標菌株には *Bacillus subtilis* ATCC 6633 (枯草菌) の芽胞体を用いた。枯草菌芽胞体は他の細菌に比べて UV 耐性が比較的強い (平田他、2008) ので、UV 照射量の高い実験条件であっても生菌数を測定できる利点があるため、この菌を指標として選択した。普通寒天培地 (栄研化学) を用いて培養した菌体を滅菌精製水に懸濁させ、遠心分離により菌体の洗浄を行った後、65 °C、30 分間加熱処理して栄養細胞を殺滅した。

生菌数の測定は、標準寒天培地 (栄研化学) を用いた混積平板培養法 (35 °C、48 時間培養) とした。

#### 4.2.2 回分式照射

以下の回分式照射によって、指標菌の不活化速度を求めた。直径 100 mm の時計皿に指標菌実験液  $3.5 \times 10^6$  個/ml を 5 ml 入れ、上部から UV を照射した。このとき、時計皿中心の液厚さは約 5 mm であった。UV を照射する光源として低圧水銀灯 GL-30 (NEC 製、発

光長：825 mm) を用い、ランプから液面までの距離を 500 mm とした。回分式照射実験の概略図を図 4-1 に示す。液面での UV 照度はシュウ酸第二鉄カリウム化学光量計 (Parker, 1953) を用いて測定した。その結果、 $0.300 \text{ mW/cm}^2$  であった。指標菌試験液に一定時間 UV を照射し枯草菌芽胞体の生菌数を測定した。

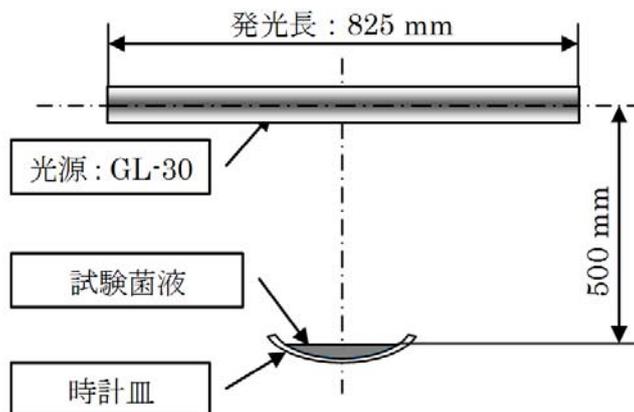


図 4-1 回分式照射実験の概略図

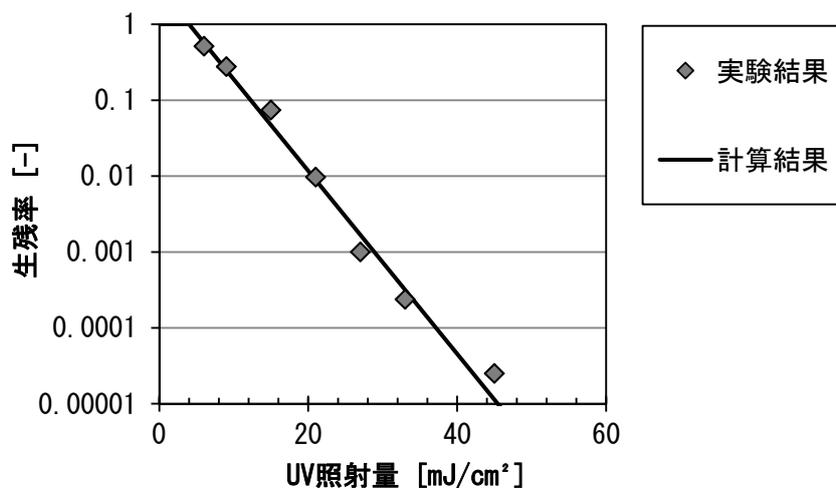


図4-2 枯草菌芽胞体の不活化速度

回分式照射実験の結果を、測定した UV 照度と照射時間の積による UV 照射量と生残率との関係で整理した。その結果を図 4-2 に示した。本実験結果を次式 (水道技術研究センター、2008) で近似させて、その計算結果を同図に示した。

$$S = \exp\left\{-\frac{(D - D_s)}{D_0}\right\} \quad \text{at } D \geq D_s \quad (12)$$

$$S = 1 \quad \text{at } D < D_s \quad (13)$$

ここで、 $S$  は生残率、 $D$  は UV 照射量 [ $\text{mJ/cm}^2$ ]、 $D_0$  は不活化速度定数 [ $\text{mJ/cm}^2$ ] であり、 $D_s$

は不活化遅れ定数[mJ/cm<sup>2</sup>]と称することとする。D<sub>s</sub>、D<sub>0</sub> は、それぞれ 4.0 mJ/cm<sup>2</sup>、3.6 mJ/cm<sup>2</sup>であった。

#### 4.2.3 流水式照射

流水式反応器に使用したランプは日本フォトサイエンス製低圧水銀灯 AY-4 (ランプ電力 65 W、発光長 1,470 mm)、反応器は内径 83 mm 長さ 1,500 mm の円筒形で、円筒軸の中心に外径 25 mm のランプスリーブがある。水道水を 1 t のタンクに貯留し、残留塩素をチオ硫酸ナトリウムで中和した。枯草菌芽胞体が 3,000 個/ml 程度になるように調製した。透過率の調整には紫外線吸収剤と類似の p-ヒドロキシ安息香酸を用い、波長 254 nm 液厚 1 cm の透過率 5 条件を 50~100%の範囲で変化させた。通水流量は各透過率で 3 条件とした。実験設備の概略図を図 4-3 に示した。光源が十分に安定するまでは少量の水を流すことで、反応器内の水温上昇を抑えた。流量調整後、平均滞留時間の 3 倍以上が経過してから反応器出口で採水した。流入菌数測定のための採水は、光源を消灯して反応器出口で行った。被処理水の指標菌濃度[個/ml]は  $2.7 \times 10^3 \sim 3.4 \times 10^3$  であった。光路長 1 cm における透過率 [%]5 条件は調整の結果 98.0、91.7、83.0、73.7、51.4 となった。流量[m<sup>3</sup>/h]は 2.5、5.0、9.4 の 3 条件とした。これらの流量における反応器内の平均滞留時間[秒]は、それぞれ 10.4、5.2、2.8 である。また、レイノルズ数は、それぞれ概ね 15,000、30,000、57,000 であり、乱流領域である。本実験での水温は 20 °C であった。

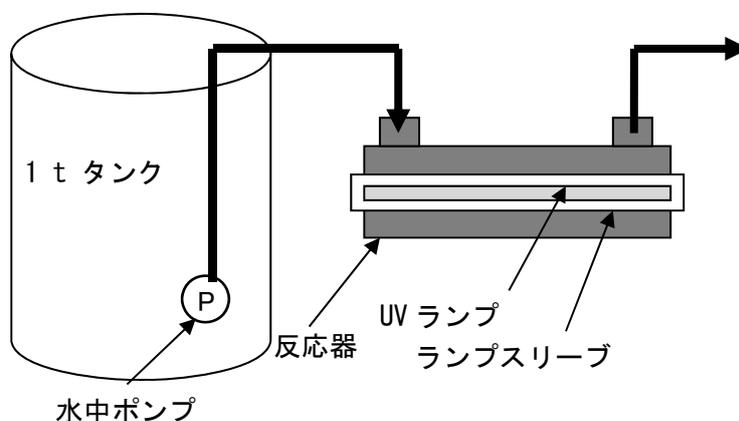


図 4-3 通水実験設備の概略図

生残率と平均滞留時間との関係を各透過率で整理した。その結果を図 4-4 に示す。処理水の透過率は図中に UVT で示した。生菌数は 3 個/10ml までを測定の最低値として有効とした。滞留時間が長くなれば生残率が低くなり、透過率が高くなれば生残率が低くなるのがわかる。

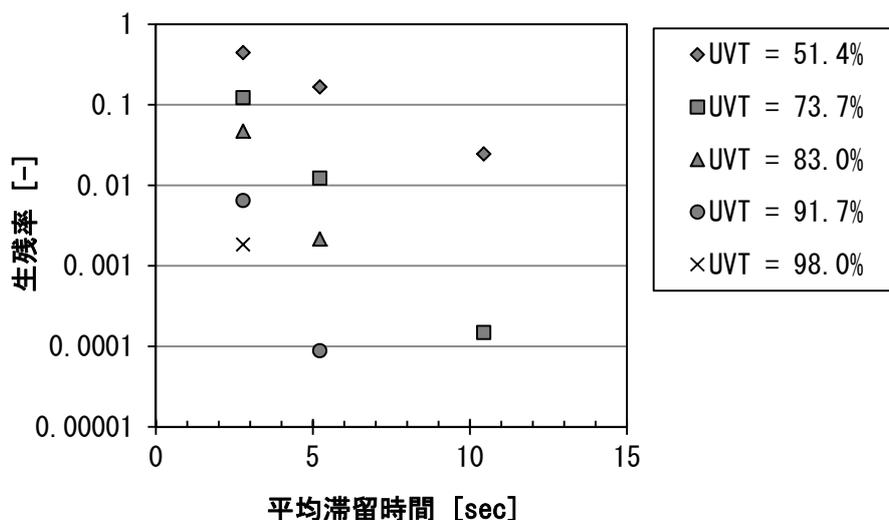


図4-4 通水試験での生残率と平均滞留時間との関係

### 4.3 モデル式を用いた検証

ここで得られた通水実験の結果を、UV 照度と流動様式についてモデル式を用いて検証することを試みた。まず、UV 照度については、反応器内 UV 照度分布を計算するための光源の配光特性に拡散光モデル (Akehata et al, 1972; Alfano et al, 1986; 水道技術研究センター、2008) を用いた。反応器内の流動様式については、複数に分かれた槽内で完全混合状態にある槽列モデル、流れ方向に均一で流れと直角方向に完全混合されている栓流モデル、及び菌の流れ分布が流れ方向に均一で半径方向に移動がないと想定したモデル (以下、層流栓流モデルと称す) を仮定した。

#### 4.3.1 光源の配光特性

低圧水銀灯の波長 254nm における配光特性は拡散光モデルに近似できることから、水による吸収を加味した反応器内の UV 照度は式(11)で示される (水道技術研究センター、2008)。式中の  $k_D$  を求めるために、通水実験に使用した低圧水銀灯 AY-4 を気中で点灯し、TOPCON 製照度計 UVR-2 (センサー部 : UD-25) を用いてランプ中心からランプ軸の直角方向に距離  $r$  が 1 m になるところで波長 254 nm の UV 照度を測定した。その結果、センサー部が受光した UV 照度  $I$  は  $0.200 \text{ mW/cm}^2$  であった。ここで用いたセンサーの角度特性が照度計のカタログより余弦則にほとんど一致することから、式(8)より  $k_D$  を求めた。その結果、 $k_D$  は  $17.9 \text{ mW/cm}$  であった。

式(11)で反応器内の各位置の UV 照度を、光源軸方向に発光長の端から端までを均等に 100 分割し、 $r$  軸方向に均等にランプスリーブから反応器内壁までをマカロニ型に 10 分割して数値計算により求めた。本実験系の場合、UV 照度は  $r$  軸方向に同心円上で同一の値と

なる。

#### 4.3.2 槽列モデルを用いた検証

流れモデルとして流水式反応器内が槽列モデルである想定し、段数を因子にして生残率を計算した。反応器を光源軸方向に発光長の端から端までを均等に  $n$  段に分割し、UV 照度を仮想の部屋ごとに平均して各段の平均 UV 照度  $I_{avi}$  を求め、 $i$  段目の生残率  $S_i(t)$  を照射時間  $t$  の関数として式(14)より求めた。ここで、仮想部屋には流れに直角方向に仕切り板が実在しないので、光源の発光長は全長を有効とした。

$$S_i(t) = \exp\{-(I_{avi}t - D_s)/D_0\} \quad (14)$$

反応器の平均滞留時間を段数  $n$  で割った 1 段の滞留時間  $\tau$  を用いて、式(15)で完全混合流での滞留時間分布関数  $E(t)$  が示される。

$$E(t) = 1/\tau \exp(-t/\tau) \quad (15)$$

式(14)と式(15)から  $i$  段目の平均生残率  $S_{avi}$  を式(16)より求めた。ただし、この計算結果では式(14)内の  $I_{avi}t$  の値が  $D_s$  の値未満になる場合がある。その場合、式(16)の生残率は 1 を超える。 $D_s$  が 0 の場合、反応器出口の生残率  $S_n$  は 1 段目から  $n$  段目までの生残率の積により求めることができるが、ここでは  $D_s$  があるのでその手法が使えない。そのため以下のように計算した。

式(16)から算定した UV 照射量である  $i$  段目の換算 UV 照射量  $RED_i$  を式(17)から求め、式(18)より反応器出口の換算 UV 照射量  $RED$  を算出し、式(17)を用いて  $n$  段目である反応器出口の生残率  $S_n$  を求めた。ここで式(17)の  $S_{avi}$  には式(14)で求めた  $S_i(t)$  を用いるが、この値は  $I_{avi}t$  が  $D_s$  よりも小さい場合に 1 より大きくなる。これを式(17)に入れることで、 $D_s$  よりも小さい UV 照射量を算出した。

$$S_{avi} = \int_0^{\infty} S_i(t)E(t)dt \quad (16)$$

$$RED_i = D_s - D_0 \ln(S_{avi}) \quad (17)$$

$$RED = \sum_{i=1}^n RED_i \quad (18)$$

$$S_n = \exp\{-(RED - D_s)/D_0\} \quad (19)$$

さて、まず段数を変化させた場合について考察した。一例として、処理水の UV 透過率 73.7% における実験結果と計算結果を図 4-5 に示した。計算は各流量条件での平均滞留時間

の値についてのみ行い、その計算結果を図中に実線で結んだ。段数  $n$  は 1、2、5 及び 10 を選んだ。段数が 5 段と 10 段の計算結果が実験結果と類似している。そこで、この 2 つの場合について、実験で行った処理水透過率ごとに計算して実験結果と比較した。その結果を図 4-6、図 4-7 に UVT 処理水透過率%Calc. で示した。両段数の計算結果とも実験結果と一致しなかった。特に、計算結果は実験結果より処理水透過率の変化に対する影響が小さくなっている。その理由は、生残率が仕切られた槽内で平均化していることが影響しているものと考えられる。

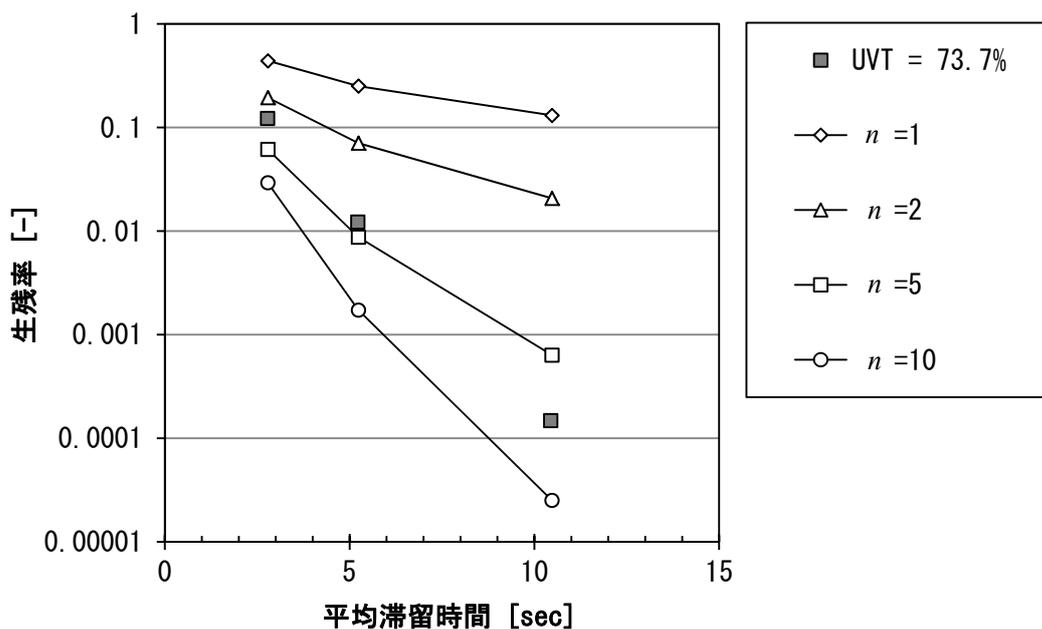


図4-5 実験結果と槽列モデル計算結果の比較

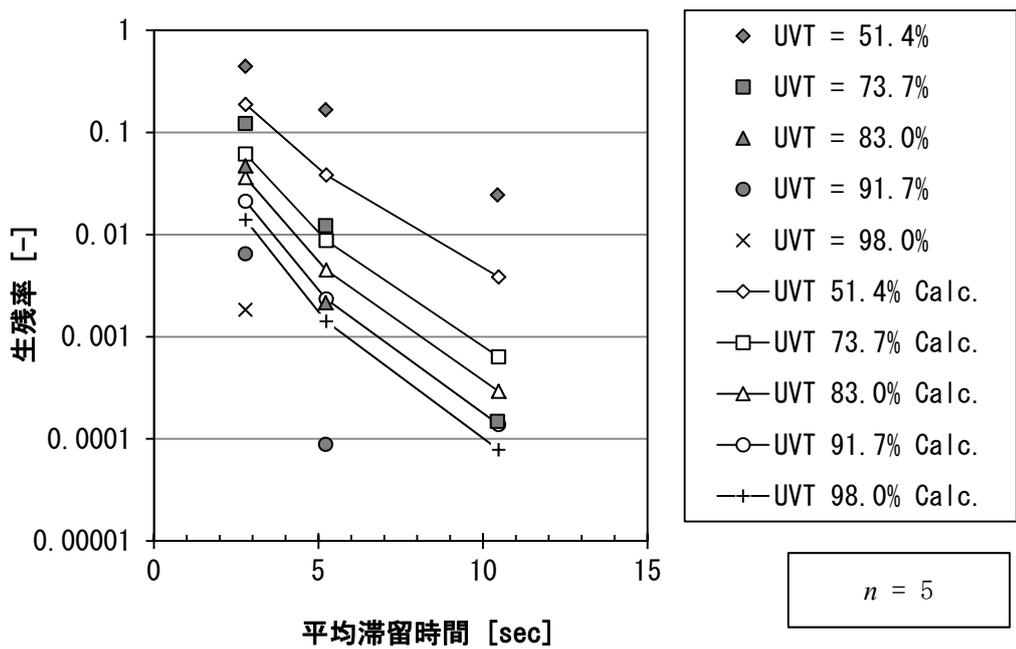


図4-6 実験結果と5段槽列モデルの計算結果の比較

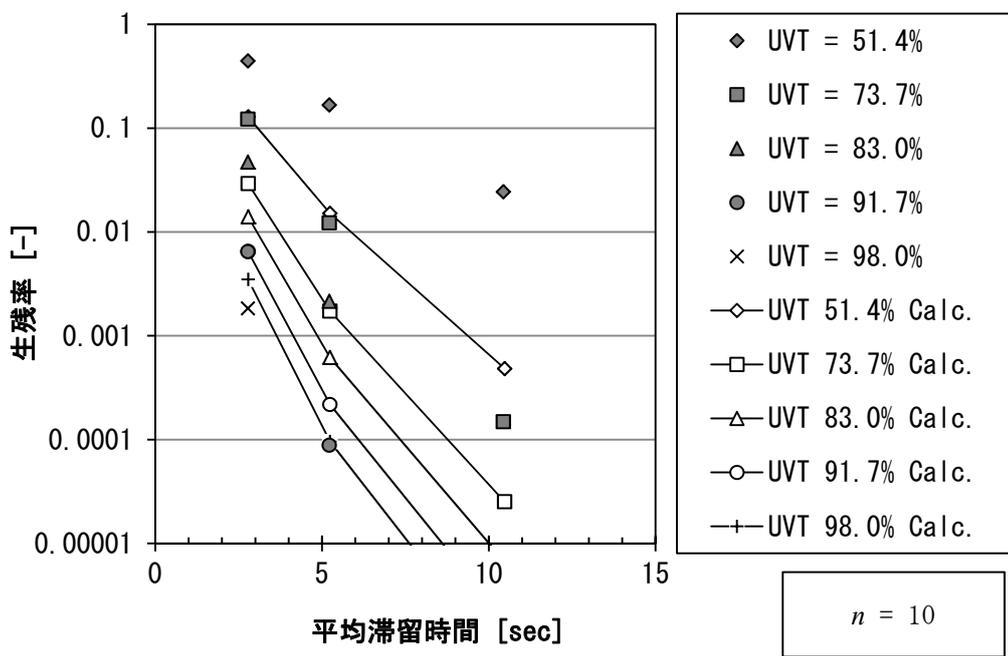


図4-7 実験結果と10段槽列モデルの計算結果の比較

### 4.3.3 栓流モデルを用いた検証

流れモデルとして流れ方向に均一でその直角方向に完全混合状態の栓流を想定した。すなわち、栓流モデルは多段完全混合流の段数を無限大にしたことと同義である。

ここでは段数 100 段の完全混合流として同様に計算した。その結果を図 4-8 に UVT 処理水透過率%Calc.で示す。槽列モデルの場合と同様に、栓流モデルにおいても実験結果と計算結果は一致しなかった。

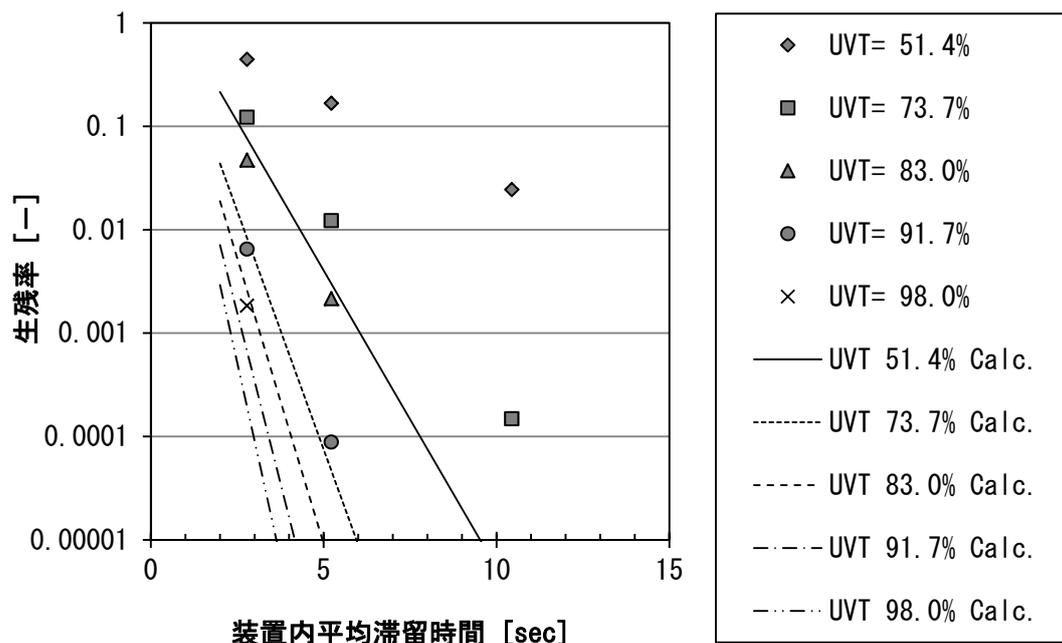


図4-8 実験結果と栓流モデル計算結果の比較

ゆえに、従来から示されている槽列モデルと栓流モデルでは実験結果を説明することができないことがわかった。

### 4.3.4 層流栓流モデルを用いた検証

ここでは、流れ方向には栓流のように均一で流れと直角方向には層流のように移動しないとする層流栓流モデルを用いて検証する。

UV 照度については  $r$  一定のもとで光源軸方向に発光長の端から端までの平均値をその  $r$  における代表 UV 照度  $I_r$  とし、その代表 UV 照度と滞留時間との積でそのマカロニ型の微小区間での UV 照射量とした。滞留時間は平均線速度  $v$  と発光長  $l$  から算出した。その微小区間の生残率  $S_i$  はその UV 照射量を式(20)に代入して求めた。反応器出口での生残率  $S$  は式(20)より各微小区間の生残率と存在確率  $P_i$  の積を総和して算出した。存在確率とは、反応器出口で同じ UV 照射量を受けた水の割合をいい、本実験条件では同心円上では UV 照射

量が一定であるので、式(21)で示すことができる。式(22)中の  $P_i S_i$  は反応器出口の生菌に対する  $i$  番目の微小区間における生菌の存在割合を意味する。

$$S_i = \exp\{- (I_r l/v - D_s)/D_0\} \quad (20)$$

$$P_i = r_i / \sum_{i=1}^{10} r_i \quad (21)$$

$$S = \sum_{i=1}^{10} P_i S_i \quad (22)$$

計算結果を UVT 処理水透過率%Calc. で図 4-9 に示す。計算結果は、いずれの処理水透過率の条件に対しても、実験結果とほぼ一致した。ゆえに、本反応器については層流栓流モデルを仮定することで実験結果を説明できることがわかった。

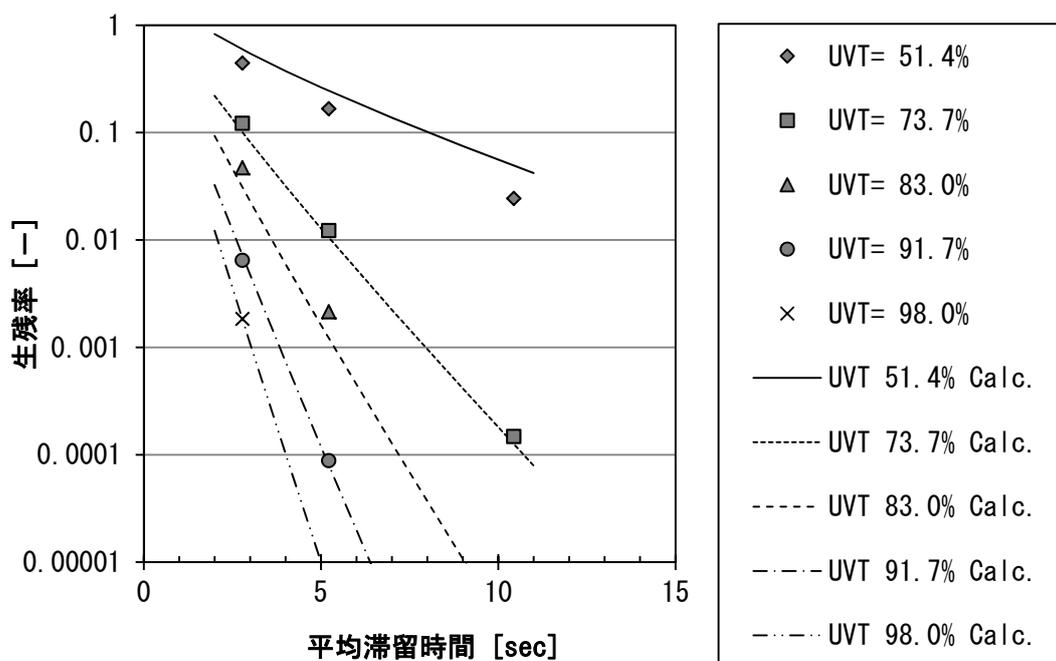


図4-9 実験結果と層流栓流モデル計算結果の比較

図 4-8 と図 4-9 の計算結果を比較すると、本反応器の場合、栓流モデルの方が層流栓流モデルより処理水の UV 透過率変化による影響が小さいことがわかる。層流栓流モデルでは流れに対して直角方向に UV 照度を平均化していないため、低照度領域である反応器内壁付近の生残率が高くなり、その影響が計算結果に大きく影響しているものと考えられる。

その確認のため、実験条件の一つである平均滞留時間 2.8 秒を例に、式(21)で得られるマカロニ型微小区間の生残率  $S_i$  をランプ中心からの距離ごとに計算した結果を UVT 処理水透

過率%Calc.で図 4-10 に示した。ランプスリーブ半径の 1.25 cm と反応器内壁位置の 4.15 cm を図中に縦の実線で示した。また、式(20)で得られた生残率  $S$  を各 UV 透過率について横線で  $S @ \text{UVT}$  処理水透過率%で示した。ランプ中心からの距離が離れるにしたがって、また、UV 透過率が高くなるにしたがって、マカロニ型微小区間の生残率が高い。微小区間の生残率と横線で示した全体の生残率は、ランプ中心からの距離が約 3.4 cm の位置で概ね一致した。他の平均滞留時間で調べた結果、滞留時間が長い方がその位置は反応器内壁に近かった。ここでは、その位置を 3.4 cm で一定として、平均滞留時間に対する生残率を求め、結果を UVT 処理水透過率%Calc.で図 4-11 に示した。反応器内平均滞留時間 2.8 秒で考察すると、UV 透過率 51.4%では実験結果より計算結果の方が高い生残率となったが、これを除けば両者は概ね一致した。ゆえに、図 4-9 で示したように層流栓流モデルが実験結果とはほぼ一致した理由として、反応器性能に大きく影響するのは、UV 照度が低く、かつ、存在割合の高い反応器内壁近傍を通過する処理水であり、その付近で生菌が流れに直角方向に大きく移動することなく、ある程度の平均滞留時間を保って流れたためであると考えられる。

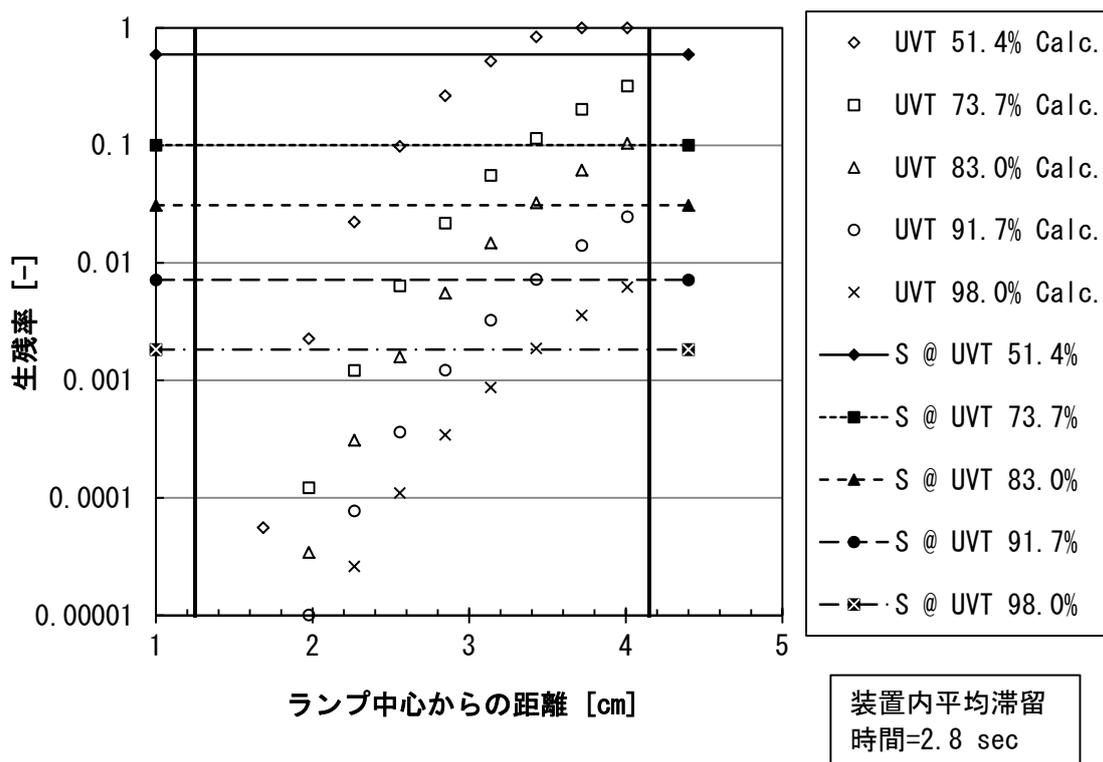


図4-10 式(22)で得られた計算結果の一例

UV 照度の計算をランプスリーブから反応器内壁まで求めることなく、反応器内壁近傍の代表値だけに簡略化して本反応器の生残率を説明することができ、効果の推算に用いることの有用性が示された。処理水透過率が小さい場合には、効果を大きく過小評価してしま

うものの、安全側の設計値として参照値にできる可能性が示された。

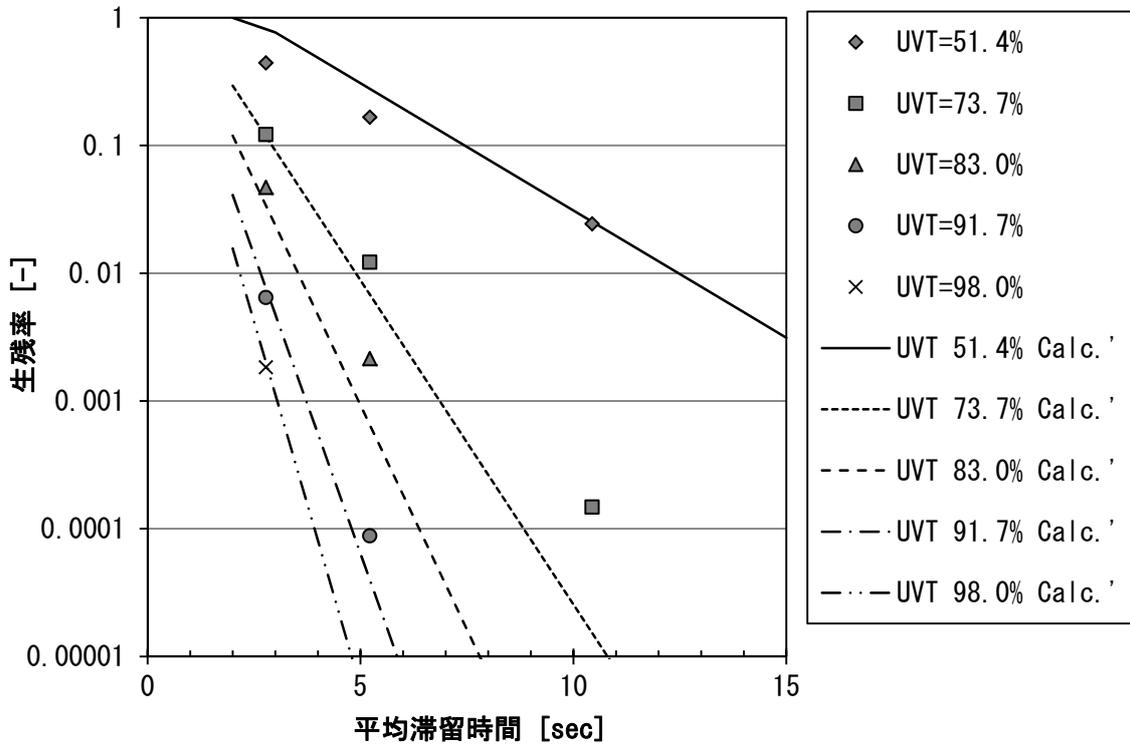


図4-11反応器内壁近傍のUV照度から算出した生残率特性

#### 4.4 半径光モデルを用いた検証

半径光モデルを用いて生残率を予測できれば、透明光モデル、拡散光モデルに比べて計算負荷が非常に少ない。ゆえに、半径光モデルである程度反応器性能を予測できることは意義がある。UV 照度を反応器壁面での計算値のみにした場合と、ランプスリーブ表面から反応器壁面までをマカロニ型に区切って計算した場合で、実験結果と比較した。

反応器壁面での UV 照度は式(9)の  $r$  に反応器の半径を代入すれば求まり、この照度により得られる生残率は式(22)となる。先に示した層流栓流モデルを適用して、マカロニ型に区切って算出する生残率は式(23)となる。 $j$  は  $r$  軸方向に均等にランプスリーブから反応器内壁までを 10 分割した 1 から 10 である。

$$I_p' = k_p \frac{1}{r} T^{r-q} \quad (9)$$

$$S' = \exp \left\{ \left( D_s - I_p' \tau \right) / D_0 \right\} \quad (23)$$

$$S'' = \sum_j r_j \exp \left[ \left\{ D_s - k_p T^{r_j-q} \tau / r_j \right\} / D_0 \right] / \sum_j r_j \quad (24)$$

ただし、 $\exp$  の括弧内が正の値になった場合はその値は 0 とし、負の値の場合だけ計算した。  
 それぞれの計算結果を図 4-12、4-13 に示した。

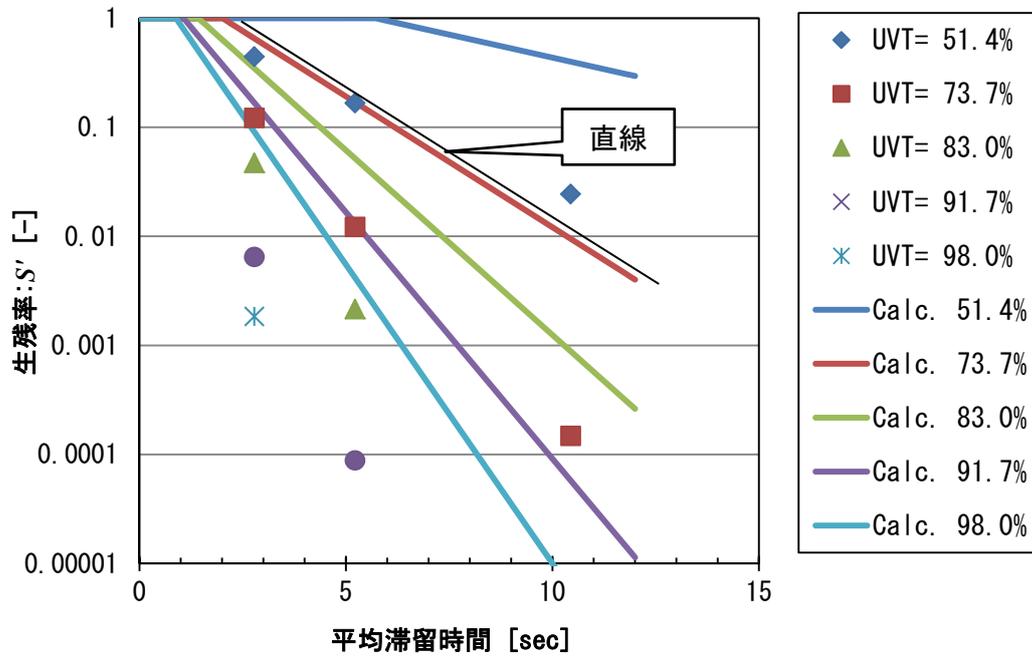


図 4-12 線光源半径光モデルを使用して反応器壁面 UV 照度を代表 UV 照度とした場合の解析結果

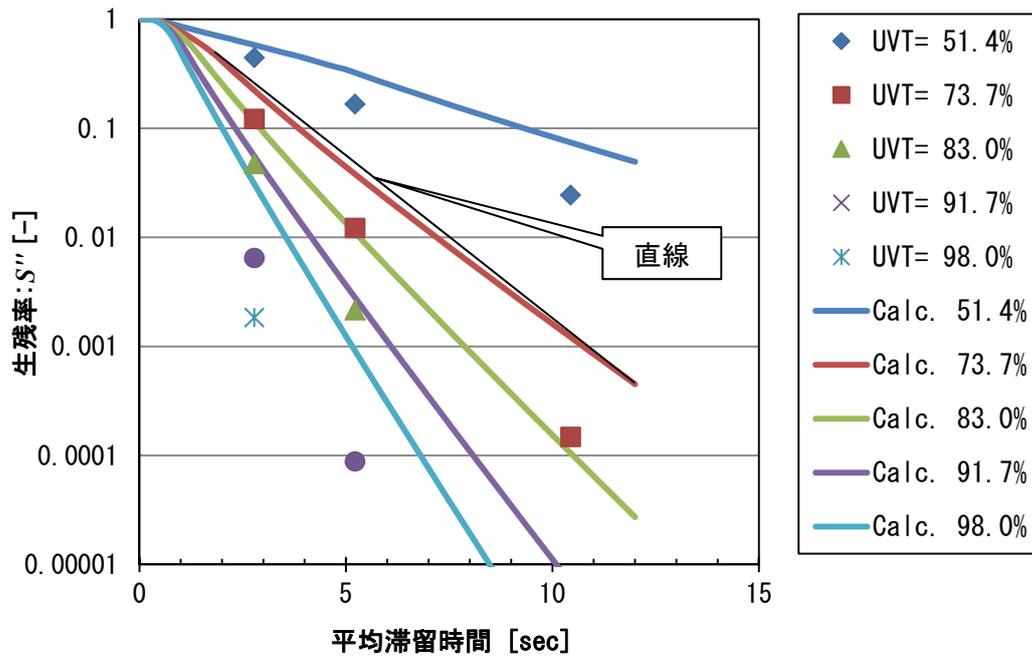


図 4-13 線光源半径光モデルを使用してマカロニ状に生残率を計算した場合の解析結果

2つの計算結果は、ともに実験結果より不活化性能が低い結果となった。半径光モデルを用いて計算した結果、不活化性能が実験結果より計算結果の方が低くなったことは、図3-15、3-16の実線では拡散光モデルより半径光モデルの方がランプ近傍ではUV照度が低い、という結果と反応器の寸法から類推できる。また、73.7%での計算結果に沿うように両図に直線を示したが、図4-12は計算結果が直線であるのに対して、図4-13は下に凸のテーリングする傾向を示した。このテーリングはUV照射量に分布が存在することが原因と考えられ、図4-5、4-6、4-9でも同様の傾向を示した。UV照射量分布が存在しない計算条件の図4-8と4-11ではこのような結果にはならず、不活化遅れ定数の影響を受けない領域では直線となった。実際の反応器においても、UV照射量には分布が存在するので、この分布を表現できる計算方法であることは重要である。

#### 4.5 まとめ

水処理用UV照射反応器の性能を考察するため、処理水のUV透過率を因子に、枯草菌芽胞体を用いて通水実験を行った。反応器は二重円筒管で、中心にランプスリーブが1本あり、その中に低圧水銀灯がある。実験結果を計算により算出するため、UV照度分布については拡散光モデルを用い、流れのモデルについては従来から示されている槽列モデルと栓流モデルを用いて、両者の計算結果からUV照射量及び生残率を求めた。その結果、本実験系では以下のことがわかった。槽列モデルでは仮想段数を1段、5段、10段で確認したが、実験結果とは一致しなかった。また、栓流モデルにおいても実験結果と一致しなかったことから、従来の流動特性では実験結果を説明することができないことがわかった。次に、反応器内での生菌の挙動が流れ方向には均一で直角方向には移動しないとする層流栓流モデルを用いて同様に計算した。その結果、実験結果と一致することが確認できた。すなわち、この層流栓流モデルを用いれば、実験に使用した反応器の性能を説明できることがわかった。また、層流栓流モデルが実験結果とほぼ一致した理由として、本反応器がUV照度の低い反応器内壁付近に処理水が多く存在していることと、流れの直角方向に移動が少なく、滞留時間を平均値程度に保っていることによるものと考察した。本報の成果として、反応器内壁近傍での平均UV照度と平均滞留時間との積で得られたUV照射量から計算した生残率で実験結果を説明でき、効果の推算に用いることの有用性が示された。加えて、半径光モデルを用いて平均滞留時間との積でUV照射量を計算し、生残率を求めた。UV照度については、反応器壁面の値だけを用いた場合と、半径方向の照度分布を考慮した場合について調べた。2つの計算結果は、ともに実験結果より不活化性能が低い結果となった。一連の計算において、UV照射量分布が生じる槽列モデル、層流栓流モデルで求めた生残率ではテーリングが生じたが、UV照射量分布が生じない栓流モデルで求めた生残率と一つの代表照度と層流栓流モデルで求めた生残率ではテーリングが生じなかった。

参考文献

(アルファベット／五十音順)

Akehata Takashi, T. Shirai; Effect Of Light-Source Characteristics On The Performance Of Circular Annular Photochemical Reactor, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 5 (4) p.385-391 (1972)

Alfano O. M., R. L. Romero and A. E. Cassano; Radiation Field Modelling In Photoreactors-I: Homogeneous Media, *Chemical Engineering Science*, 41 (3) p.421-444 (1986)

Parker C. A.: A New Sensitive Chemical Actinometer I. Some trials with potassium ferrioxalate, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 220 (1140), p.104-116 (1953)

Sugawara Takuo, Michio Yoneya and Hiroshi Ohashi; Performance Of Annular Flow Sterilizer Irradiated By A Germicidal Lamp, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 15 (5) p.406-411 (1981)

水道技術研究センター、紫外線照射装置 JWRC 技術審査基準 (低圧紫外線ランプ編)、平成 20 年 1 月 10 日 (2008)

平田 強、岩崎達行、大瀧雅寛、片山浩之、神子直之、木村憲司、土佐光司、松本直秀、本山信行、森田重光：紫外線照射－水の消毒への適用性－、技報堂出版 (2008)

山越裕司、石山栄一：流水型紫外線殺菌装置の下水二次処理水への応用、*医用衛生紫外線研究会誌*、17 (1) p.27-32 (1998)

安井宜仁、神子直之、岩崎達行：新たな紫外線強度分布推定法による紫外線照射槽の消毒効果予測への影響、*環境技術*、37 (9) p.671-677 (2008.)

## 第 5 章 流水式円筒形光反応器の直径及び単純な照射場における流動状態による性能への影響

### 5.1 緒言

第 4 章では 1 つの Annular 型反応器を用いて、水の透過率を因子に微生物の不活化実験を行い、生残率と平均滞留時間との関係について計算により求めることを試みた。その結果、流動特性については層流栓流モデルを適用すると、実験結果を説明することができた。しかし、すべての反応器にこの層流栓流モデルが適用できるとは断定できない。同じ Annular 型であっても直径が異なれば、流動状態を再検討する必要がある。加えて、ランプ本数が 1 本以外の場合についても考察する必要がある。そこで、本章では水の透過率については一定の条件下で、ランプ本数が 1 本と 4 本の 2 つについて、円筒形反応器の直径と流量を因子に流動状態をモデル化することを試みた。

また、第 4 章では水の透過率を含む UV 照度分布を一般化できるように広範囲で計算し、拡散光モデルと他のモデルとの比較をした上で、層流栓流モデルが適用できる形状の反応器を想定して、流動状態一定の条件下で各配光特性による生残率への影響を 1 次反応で検証した。ここでは、照度が均一の条件下で、1 次反応とテーリング反応を仮定し、流動状態が生残率に及ぼす影響を調べた。実際の反応器内では照度分布が生じ、円筒形反応器に光源を円筒軸と並行に置いた場合と、直角に置いた場合では、照度分布が異なる。そこで、照度の一部に低い領域があると仮定して、その低い照度領域が流れ方向に対して並行にある場合と直角にある場合でも、同じ条件下での生残率への影響を調べた。

### 5.2 実験装置

不活化実験に使用したランプは日本フォトサイエンス製低圧水銀灯 AY-4 (ランプ電力 65 W、発光長 1470 mm)、反応器は直径の異なる 5 種類の円筒形で、円筒軸とランプ軸が平行になるように配置されており、ランプは外径 25 mm のランプスリーブ内に入っている。反応器の概略仕様を表 5-1 に示した。反応器の内径  $d$  は 54 mm から 260 mm とし、長さは 1500 mm で共通である。図 5-1 に示したように、出入口管の最端部は反応器端部より 50 mm のところから接続した。1 本の場合はランプが反応器の中心にあり、4 本は円筒軸を中心に同心円状に均等に並べた。出入口は反応器内径と同じとし、反応器の両端から直角に同一方向に横に出ており、長さは反応器内径の 5 倍とした。これらの反応器は横置きにして使用した。材質は透明アクリル製を用いた。

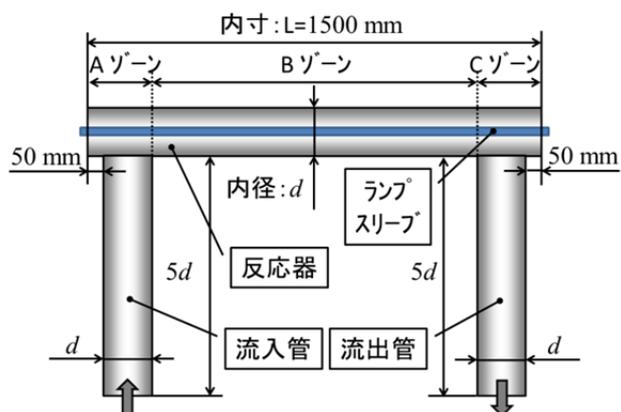


図 5-1 反応器と出入口管の寸法

表 5-1 実験に使用した反応器の概略仕様

反応器型式	内径 [mm]	長さ [mm]	ランプ本数 [本]	出入口内径 [mm]
50A	54	1500	1本	54
80A	83	1500	1本	83
100A	108	1500	1本	108
150A	158	1500	1本	158
250A	260	1500	1本	260
150A-4	158	1500	4本	158
254A-4	260	1500	4本	260

実験原水は、A 下水処理場の最終沈殿池から塩素混和池への開水路に流れている塩素消毒前の処理水を用い、その開水路からポンプで反応器へ圧送した。

### 5.3 実験方法

ここで使用した低圧水銀灯は実際の下水处理水の消毒用 UV 装置に使用している光源であり、その光源を 1 本だけでなく 4 本使用して実験することは大量の試験液が必要となる。そのため、連続的に処理されている下水処理水を使用し、指標菌はその処理水中に存在する大腸菌群とした。また、大腸菌群の UV 耐性が枯草菌芽胞体に比べて数分の 1 程度に低いことが予想されたことから、照度の低い光源を用いるために積算点灯時間が 12,000 時間に達したランプを使用した。

水質測定方法は、大腸菌群数についてはメンブランフィルター法、BOD、COD、SS については下水試験法に従った。UV 透過率は分光光度計を用い、波長 254 nm、液厚さ 1 cm で測定した。

ランプの照度が安定するまで経過した後、所定の流量に設定して反応器の滞留時間の 3

倍以上経過してから採水した。ランプ 1 本タイプの反応器への流量はすべて 5、7、9、12、18、25 m<sup>3</sup>/h とし、ランプ 4 本タイプの反応器への流量は 150A-4 の反応器では 20、25、30、40、60、70 m<sup>3</sup>/h、250A-4 の反応器では 25、30、40、50、60、80 m<sup>3</sup>/h とした。流量は東京計装製面積式流量計で測定した。

#### 5.4 実験結果

実験結果はランプ 1 本の場合と 4 本の場合について、不活化性能を考察するために、流量：Q [m<sup>3</sup>/h]の逆数と生残率との関係で整理した。

##### 5.4.1 ランプ 1 本タイプ

ランプ 1 本タイプの反応器を用いて、流量を変化させて大腸菌群の生残率を測定した。そのときの水質を表 5-2 に示した。水質は概ね一定していた。

表 5-2 ランプ 1 本タイプ反応器実験時の水質

反応器 型式	流入大腸菌 群数 [個/ml]	UV 透過率 [%]	SS [mg/l]	BOD [mg/l]	COD [mg/l]
50A	8,000	68.5	3	5.0	15
80A	600	74.1	3	9.5	15
100A	500	74.1	3	9.5	15
150A	1,000	70.0	3	8.2	14
250A	500	72.2	4	13	15

流量の逆数と生残率の関係を図 5-2 に示した。

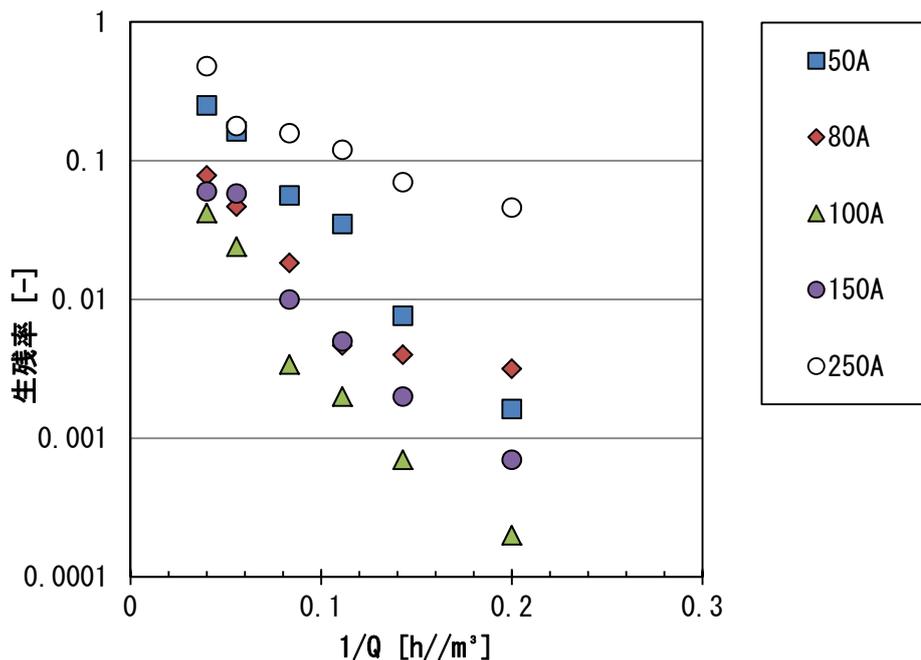


図5-2 ランプ1本タイプ反応器の流量の逆数と大腸菌群生残率の関係

生残率はUV照度と滞留時間の積で得られるUV照射量に依存する。250Aの反応器では内径が大きいことで滞留時間は長くなるが、円筒壁面でのUV照度が低くなる。その積であるUV照射量が結果として低くなったものと考えられる。一方、50Aの反応器では内径が小さいことで円筒壁面を含む反応器全体のUV照度は高くなるが、滞留時間が短くなる。その結果、ある程度のUV照射量を得られるが、これらの反応器の中では不活化性能が最大にならなかったものと考えられる。本実験条件では、100Aの反応器が最も高い不活化性能となり、最適な反応器内径が存在することを確認できた。

#### 5.4.2 ランプ4本タイプ

ランプ4本タイプの反応器を用いて、流量を変化させて大腸菌群の生残率を測定した。そのときの水質を表5-3に示した。水質は概ね一定していた。

表5-3 ランプ4本タイプ反応器実験時の水質

反応器 型式	流入大腸菌 群数 [個/ml]	UV 透過率 [%]	SS [mg/l]	BOD [mg/l]	COD [mg/l]
150A-4	400	71.2	4	32	13
250A-4	400	72.2	3	13	15

流量の逆数と生残率の関係を図 5-3 に示した。この 2 つの反応器では、不活化速度は 150A-4 の方が高かった。

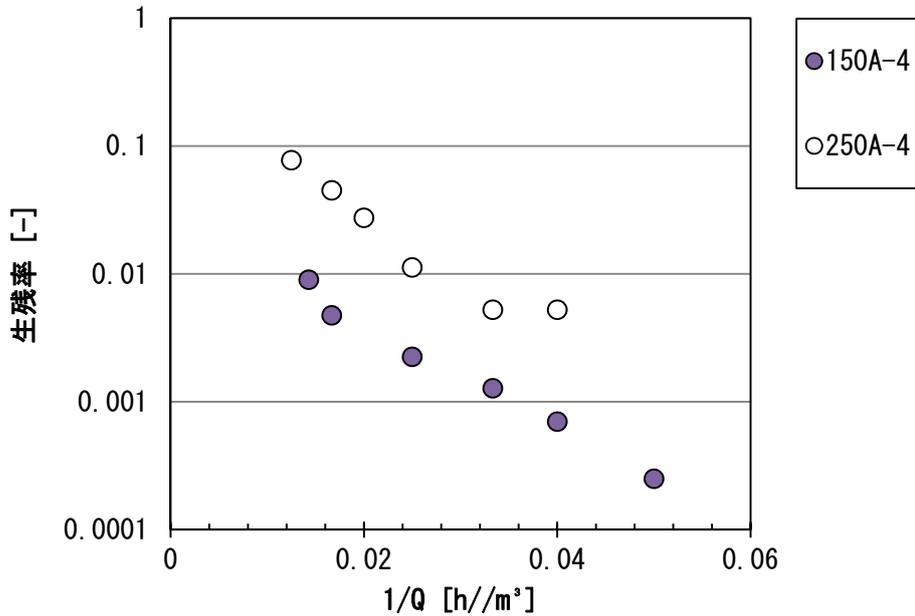


図5-3 ランプ4本タイプ反応器の流量の逆数と大腸菌群生残率の関係

## 5.5 考察

### 5.5.1 不活化速度

反応器 50A の流動特性を層流栓流モデルが適用できると仮定することで、実験結果が説明できるものと考えられるので、この流れ挙動を仮定して本実験における大腸菌群の不活化速度を求めた。

光源から発せられる UV の配光特性には拡散光モデルを適用した。実験に使用したランプを気中で点灯し、UV 照度が安定したことを確認して  $z$  が 735 mm、 $r$  が 1,000 mm の位置で UV 照度を測定した。測定には TOPCON 製照度計 UVR-2 (センサー部 : UD-25) を用いた。得られた結果は  $0.110 \text{ mW/cm}^2$  であった。この結果を用いて式(8)の定数  $k_D$  の値を求めた結果、 $9.85 \text{ mW/cm}$  であった。

処理水中に SS のような菌より十分大きな固形物が多く存在する場合、一部の菌がその固形物により UV の影になることが十分あり得る。その結果起こる現象として、回分実験を行うと不活化速度がテーリングすることが一般的である。しかしながら、本実験条件では SS が少なく、かつ、テーリングが顕著ではなかったため、本実験での不活化速度式は式(25)で近似することができるものとした。

$$S = \exp\left(-\frac{D}{D_0}\right) \quad (25)$$

$S$ は大腸菌群の生残率[-]、 $D$ はUV照射量[mJ/cm<sup>2</sup>]、 $D_0$ は不活化速度定数[mJ/cm<sup>2</sup>]である。 $D$ を求めるために反応器内を格子状に縦、横、高さ方向に100等分して、各位置のUV照射度を計算した。これらの反応器には第4章で示した層流栓流モデルが適用できると仮定して、円筒軸方向にUV照射度を平均し、反応器の体積 $V$ [m<sup>3</sup>]を流量 $Q$ [m<sup>3</sup>/s]で割った平均滞留時間 $\tau$ との積で、その位置でのUV照射量を計算した。式(25)にその結果を代入して得られた生残率を平均して、その反応器のその流量における生残率とした。UV透過率は表5-2に示したそれぞれの反応器での値を用いた。 $D_0$ を決定するために、反応器50Aの実験結果を用いて、生残率の実験結果 $S_d$ と計算結果 $S_c$ を自然対数にして、両者の差異の合計が最も小さい値となる不活化速度定数 $D_0$ を求めた。その結果、両者の差異の最小値は0となり、そのときの $D_0$ は1.53 mJ/cm<sup>2</sup>であった(図5-4)。その値を用いた計算結果を図5-5の実線で示した。

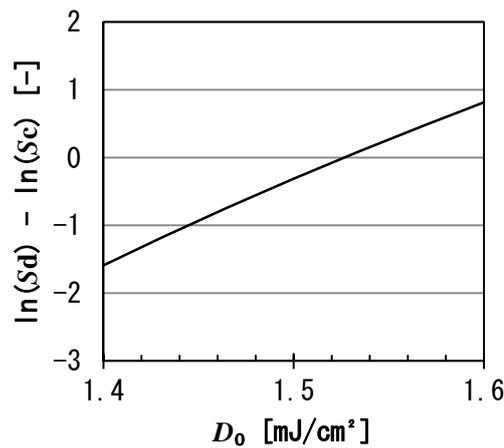


図5-4 不活化速度定数に対する生残率の実験結果と計算結果の自然対数の差の比較

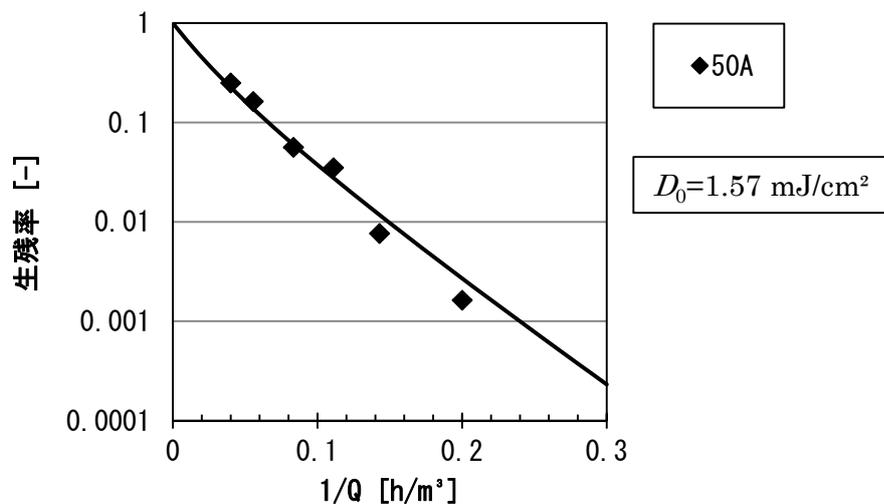


図5-5 層流栓流モデルで定めた本実験の大腸菌群の不活化速度定数

### 5.5.2 各反応器の流れ挙動

流動特性として考えられるモデルには槽列モデルと栓流モデルがある。そこで、ここでは各反応器に対していくつかの段数の槽列モデル、栓流モデル、及び第 4 章で示した層流栓流モデルを用いて実験結果と比較した。ここで求めた不活化速度式は本実験期間中の大腸菌群すべてに適用できると仮定した。

槽列モデルでは段数を 1~5 段の中から 4 つを選び、各槽の UV 照度を平均して次式から生残率を求めた。槽列モデルの 1 段とは連続完全混合流モデルを意味する。

$$S_i = \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{I_{avi}t}{D_0}\right) \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (26)$$

$$= \frac{D_0}{I_{avi}\tau + D_0} \quad (27)$$

$$S = \prod_{i=1}^n S_i \quad (28)$$

$$\tau = \frac{V}{nQ} \quad (29)$$

ここで、 $I_{avi}$  は  $i$  段目の平均 UV 照度 [ $\text{mW}/\text{cm}^2$ ]、 $S_i$  は  $i$  段目の生残率 [-]、 $\tau$  は 1 段目の平均滞留時間 [s]、 $n$  は段数 [-] である。栓流モデルでは槽列モデルと同様に段数  $n$  を 101 として計算した。UV 透過率は表 5-2、5-3 に示したそれぞれの反応器での値を用いた。

#### 5.5.2.1 ランプ 1 本タイプ反応器での計算結果

計算結果を反応器ごとに図 5-6 から図 5-10 に示した。すべての反応器が層流栓流モデルに一致するとはいえなかった。反応器 50A と 80A を除いて、それら以外の反応器について実験結果と計算結果を比較すると、反応器 100A は 5 段以上の槽列モデルに近似する可能性があり、150A は 5 段の槽列モデルに一致したが、ともに層流栓流モデルとは一致しなかった。反応器 250A では 1 段の連続完全混合流モデルと層流栓流モデルの間に実験結果があった。

計算結果だけを比較すると、以下のことが考察される。いずれの反応器においても流れ挙動が栓流モデルの場合に、最も不活化性能が高くなっている。不活化性能が高いことを最適とするなら、栓流モデルでは反応器径が大きいほど最適で、槽列モデルでは同じ段数で比較すると反応器径が大きいほど最適となった。層流栓流モデルでは水の透過率の影響を受けているので図示された結果をそのまま考察できないが、反応器径が 50A より大きく、150A より小さいところに最適が存在している。

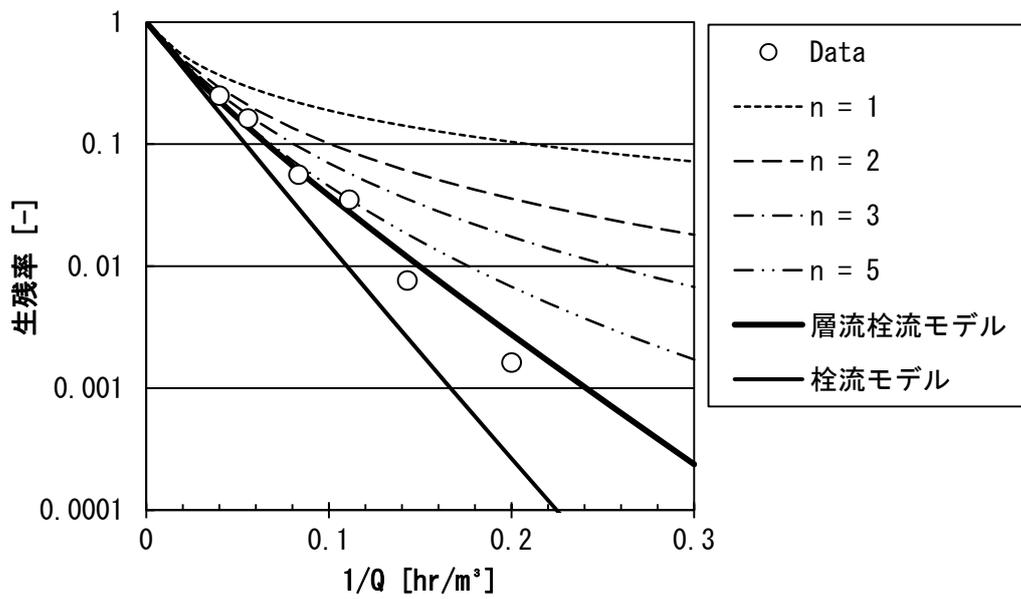


図5-6 反応器50Aの実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

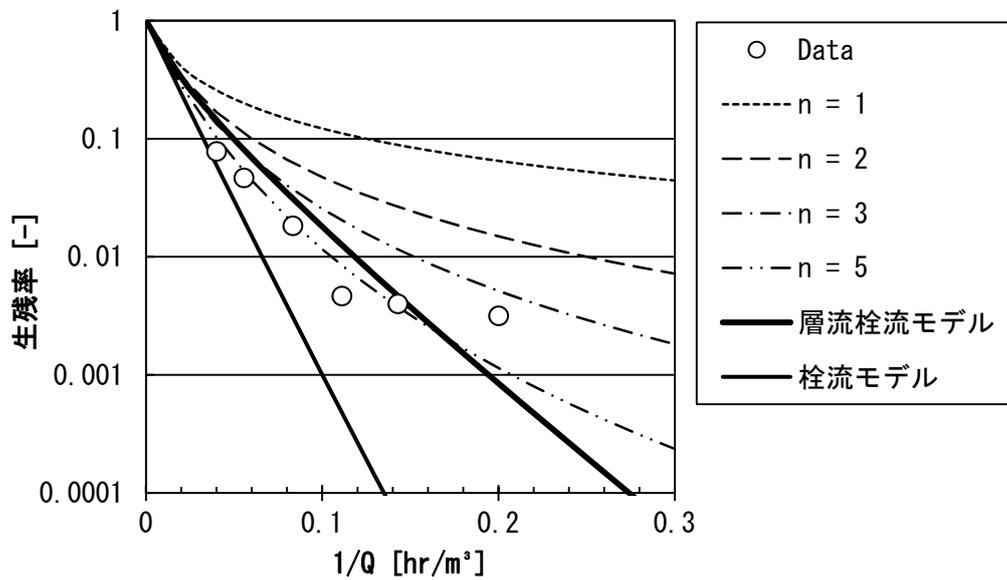


図5-7 反応器80Aの実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

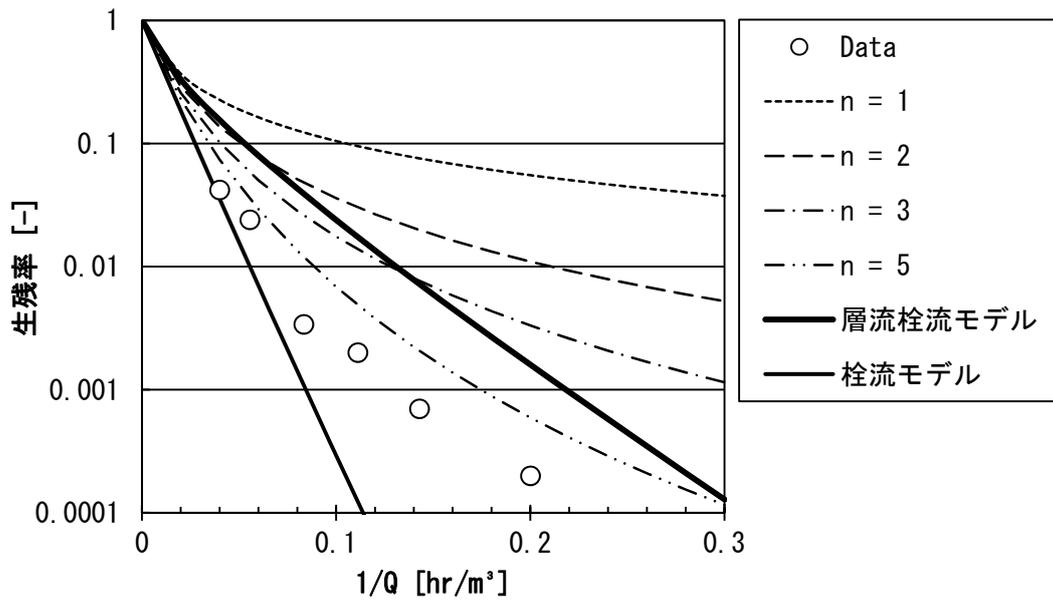


図5-8 反応器100Aの実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

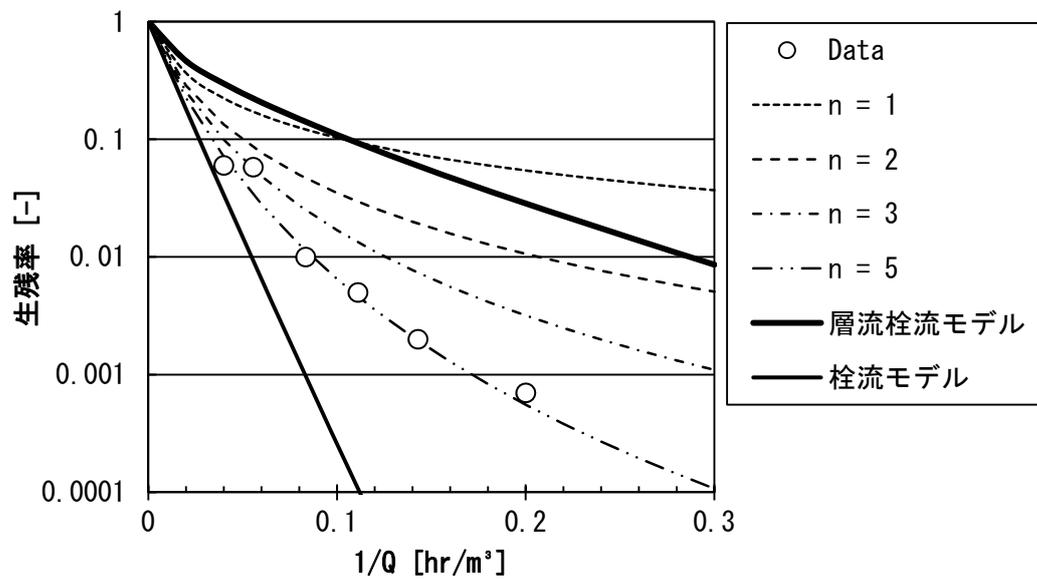


図5-9 反応器150Aの実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

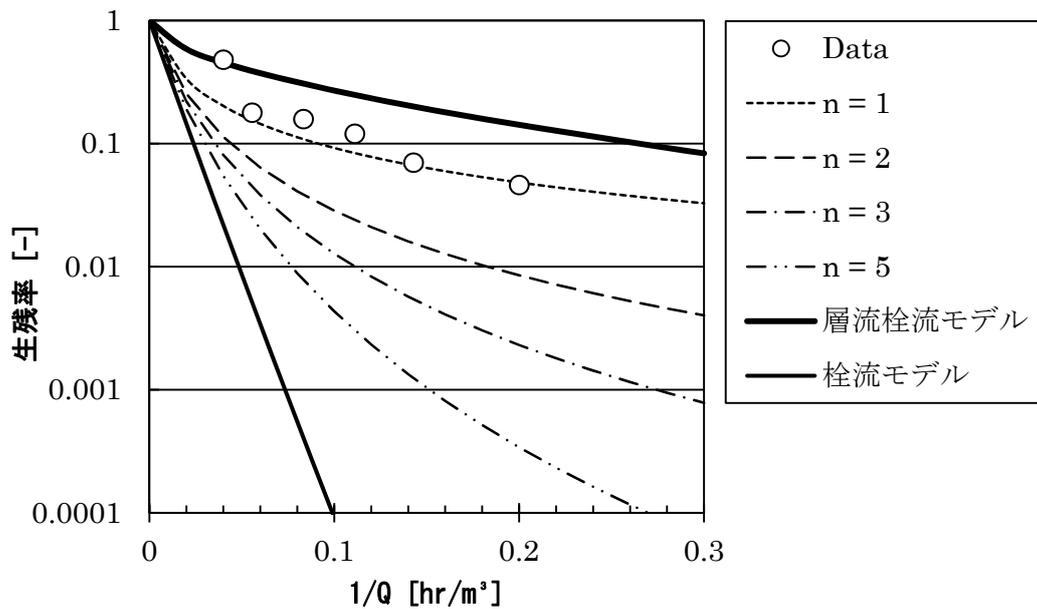


図5-10 反応器250Aの実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

### 5.2.2 ランプ 4 本タイプ反応器での計算結果

計算結果を反応器ごとに図 5-11 と 5-12 に示した。実験結果と計算結果を比較すると、両反応器とも層流栓流モデルとは一致しなかった。また、ランプ 1 本タイプ反応器での結果と異なり、反応器 150A-4 では横軸の値が大きくなるとともに栓流モデルから右へ外れていく傾向を示し、反応器 250A-4 では実験結果が 3 段の槽列モデルに一致する結果となった。

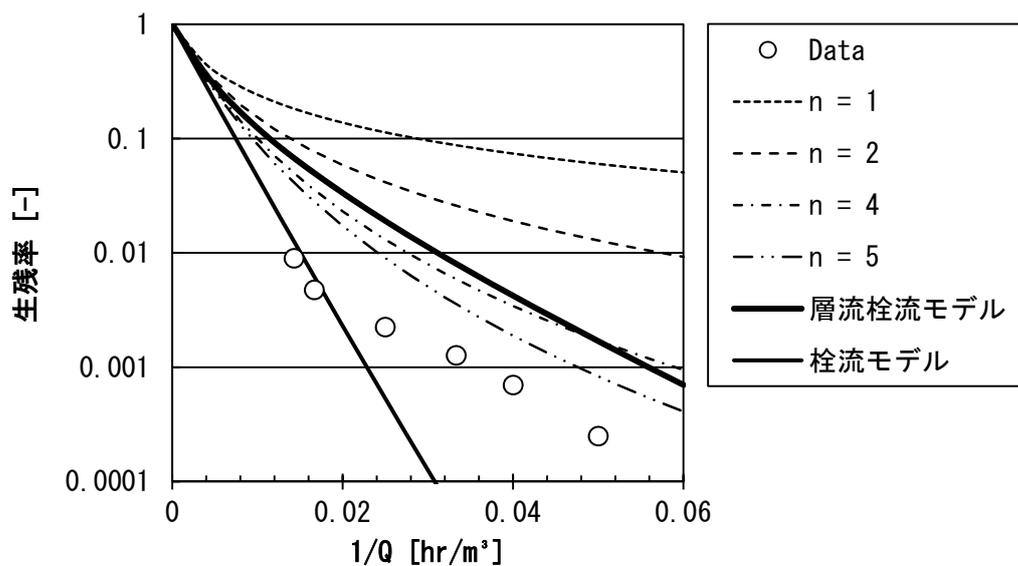


図5-11 反応器150A-4の実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

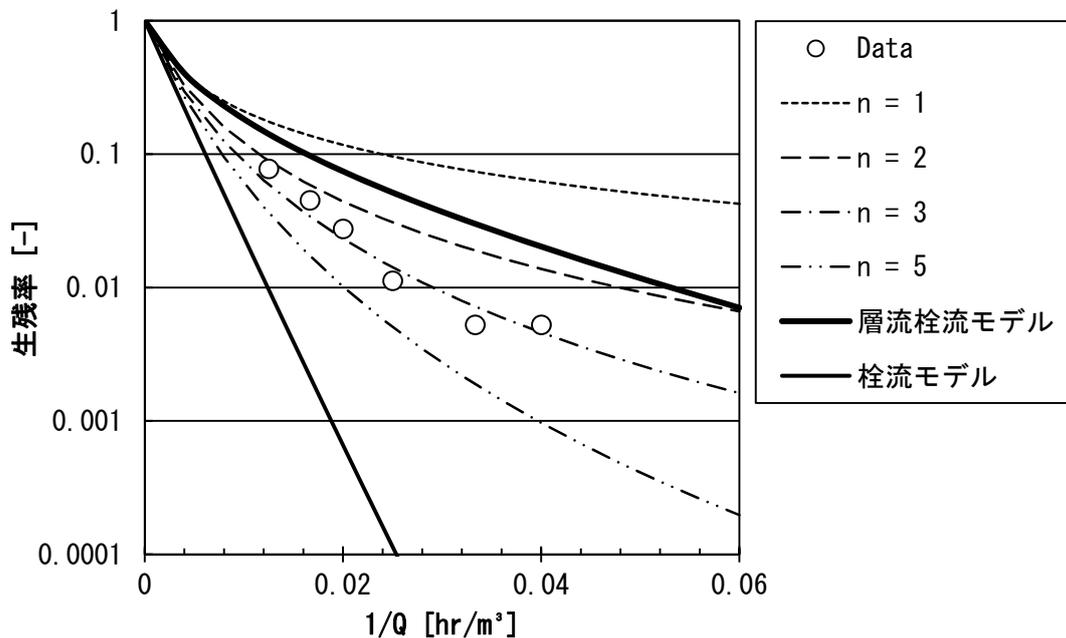


図5-12 反応器250A-4の実験結果と各流動特性で算出した計算結果比較

### 5.5.3 組合せモデルでの検証

本実験に使用した反応器の形状は、図 5-1 で示したように A ゾーンで直角に曲がり B ゾーンを流れて C ゾーンで再度直角に曲がる。水の流れはこの形状に影響を受けて反応器の直径が大きくなれば、流れ挙動は流れに直角方向の成分が無視できなくなることが予想される。そこで、ここでは流れの挙動が反応器の出入口に挟まれた内側である B ゾーンでは 50A、80A の反応器で仮定した層流栓流モデルで説明できる流れになっており、出入口のところの A ゾーンと C ゾーンでは栓流、または完全混合流になっていると仮定した。

#### 5.5.3.1 栓流と層流栓流の組合せモデルでその割合が変動する場合

ここでは流れの挙動が反応器の出入口に挟まれた内側である B ゾーンでは層流栓流モデルになっており、出入口のところの A ゾーンと C ゾーンでは栓流と層流栓流モデルがある割合で存在しているものと仮定した。

流れ方向に 100 分割したうち式(30)、(31)を用いて A ゾーン、C ゾーンの範囲での各段の生残率を求め、それらの積である式(32)で栓流での生残率  $S_p'$  を算出した。層流栓流で求める生残率  $S_{LP}'$  には、反応器全体の平均滞留時間から  $2\eta_p\tau$  を差し引いた時間を用いた。 $\eta_p$  は 0 から 1 までの値とした。

$$S_i' = \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{I_{avi}t}{D_0}\right) \frac{1}{\eta_p \tau} \exp\left(-\frac{t}{\eta_p \tau}\right) dt \quad (30)$$

$$= \frac{D_0}{I_{avi} \eta_p \tau + D_0} \quad (31)$$

$$S_p' = \prod_{i=1}^n S_i' \quad (32)$$

$$S_{PLP}' = S_p'^2 S_{LP}' \quad (33)$$

ここで、 $\eta_p$  を 1 と仮定して、反応器 50A の実験結果を用いて、生残率の実験結果  $S_d$  と計算結果  $S_c'$  を自然対数にして、両者の差異の合計が最も小さい値となる不活化速度定数  $D_0$  を求めた。その結果、図 5-13 に示したように、両者の差異の最小値は 0 であり、そのときの  $D_0$  は  $1.57 \text{ mJ/cm}^2$  であった。

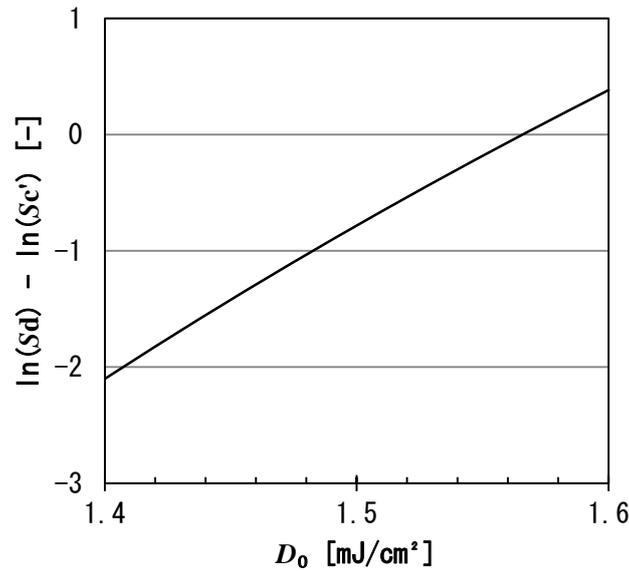


図5-13 不活化速度定数に対する生残率の実験結果と $\eta_p$ を1と仮定して計算した生残率の結果の自然対数の差の比較

この不活化速度定数を用いて、式(33)で生残率を算出し、実験結果と一致する  $\eta_p$  を求めた。その一例として、反応器 250A の場合を図 5-14 に示した。

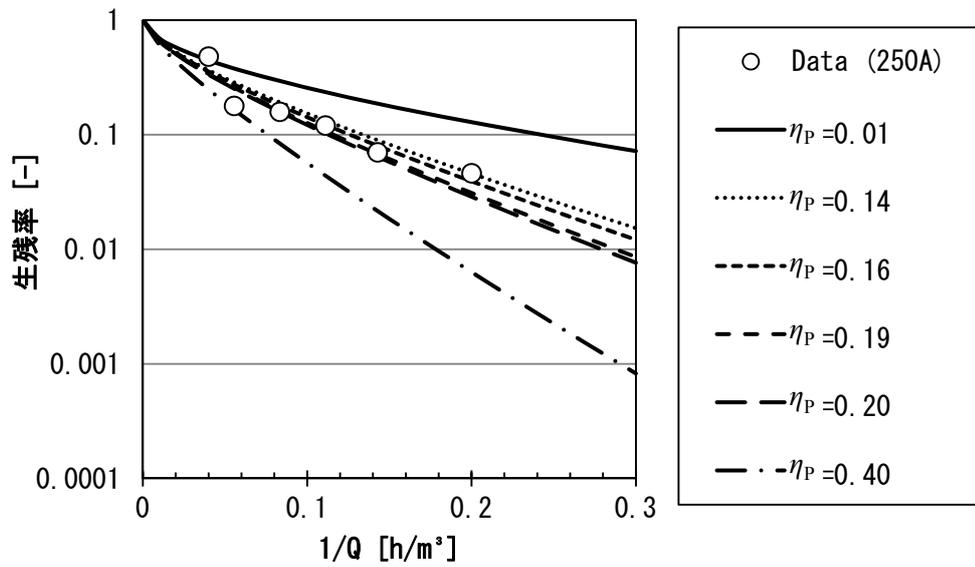


図5-14 実験結果と一致する $\eta_p$ を求める計算の一例

$\eta_p$  が大きいことは栓流の割合が高いことを意味する。栓流の割合は流入、流出の線速度が速いほど高くなり、反応器の直径が大きいほど低くなるものと想定される。反応器内にはランプスリーブが 1 本もしくは 4 本あることから、流れに直角断面での濡れ面積を濡れ辺で除して 4 倍した値をその反応器の代表直径  $d'$  [m] とし、出入口の断面積を処理流量で除した値である線速度  $u$  [m/s] として、この線速度を反応器の代表直径で除した値と  $\eta_p$  との関係調べた。その結果を図 5-15 に示した。

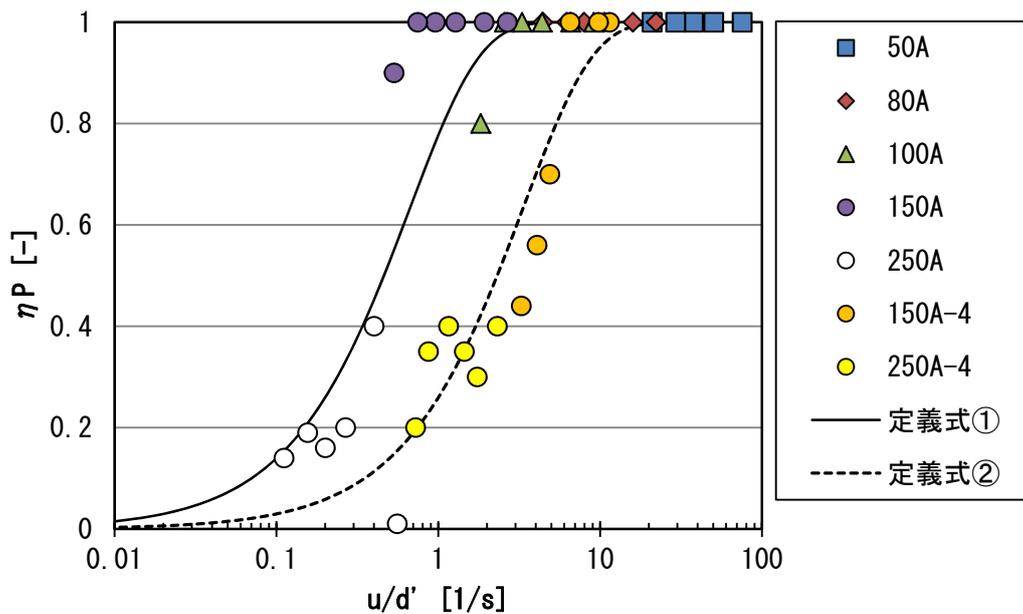


図5-15 各反応器の出入口線速度/代表直径と $\eta_p$ との関係

$\eta_p$ は  $u/d'$ が無限大では1となり、 $u/d'$ が0に近づけば0となると考えた。そこで、 $\eta_p$ は次式のように定義した。

$$\eta_p = 1 - \exp(-h_p u / d') \quad (34)$$

ここで、 $h_p$ は  $\exp$  の括弧内を無次元化するための定数[s]であり、図 5-15 の挙動を式(34)で表現するためのフィッティングパラメータである。式(34)の定義式の  $h_p$  を変化させて得られる  $\eta_p$  と、式(30)~(33)で実験結果と一致するように求めた  $\eta_p$  の、差異の絶対値の合計が最小となる  $h_p$  を、ランプ本数タイプごとに求めた。1 本入り反応器に対する定義式①では  $h_p$  は 1.5 s、4 本入り反応器に対する定義式②では 0.3 s が得られた。図中にその定義式①と②での計算結果を実線と点線で示した。

式(34)で計算された  $\eta_p$  を用いて、1 本入りでの本計算の結果を Calc. plp' 反応器型式で図 5-16 に、そのときの  $\eta_p$  の変化を図 5-17 に示した。また、4 本入りでの結果を同様に図 5-18、5-19 に示した。

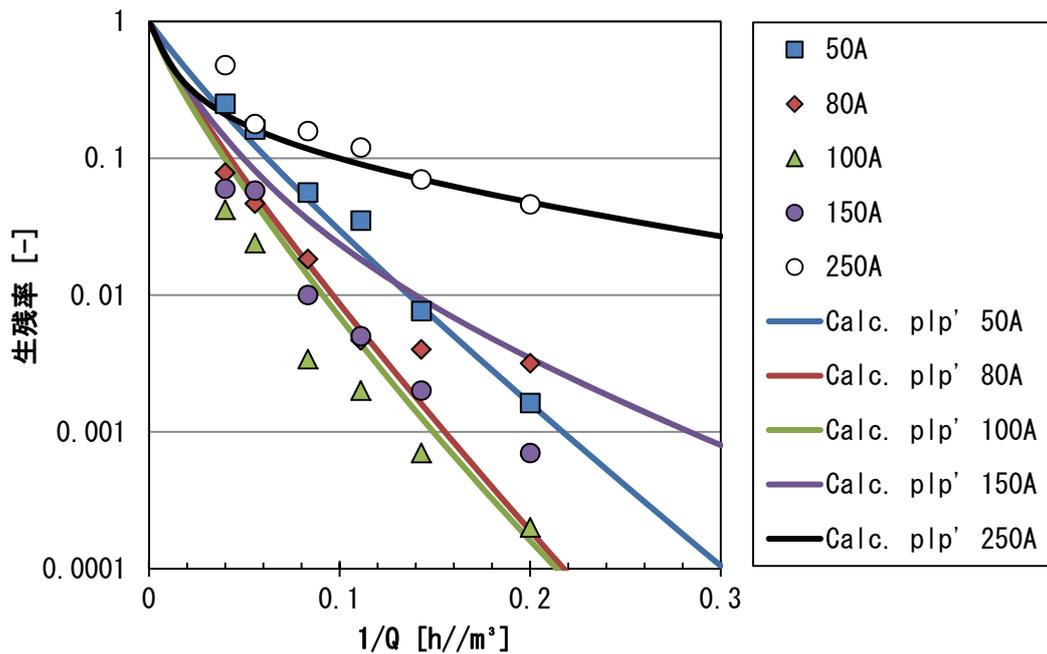


図5-16 栓流と層流栓流の割合が変動するモデルを用いたランプ1本タイプでの計算結果

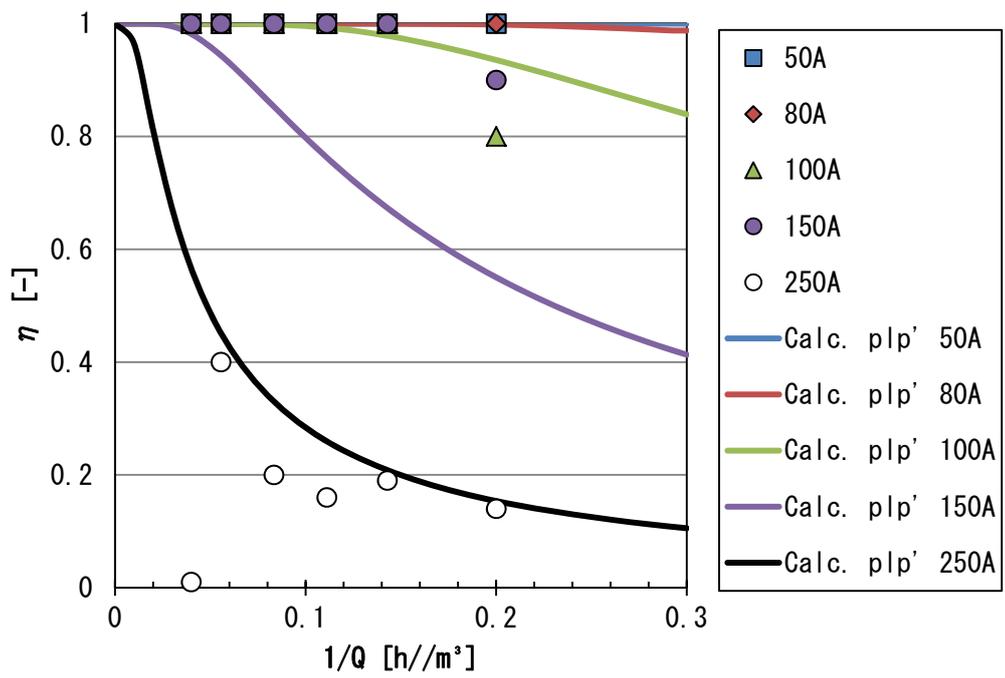


図5-17 栓流と層流栓流の割合が変動するモデルに用いた $\eta_p$ の変化  
(ランプ1本タイプ)

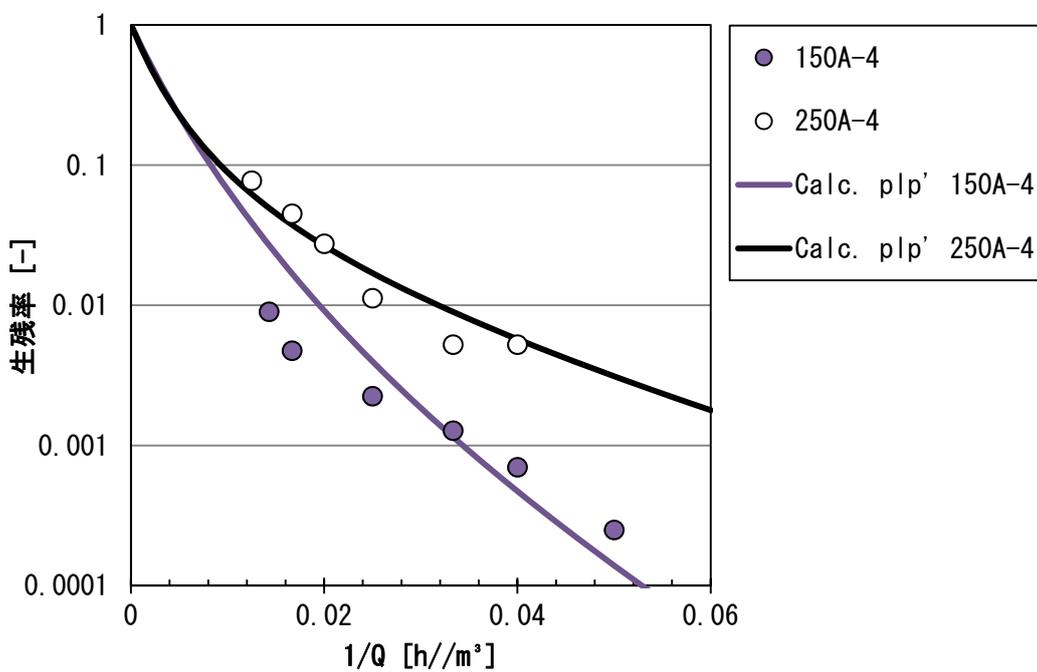


図5-18 栓流と層流栓流の割合が変動するモデルを用いた  
ランプ4本タイプでの計算結果

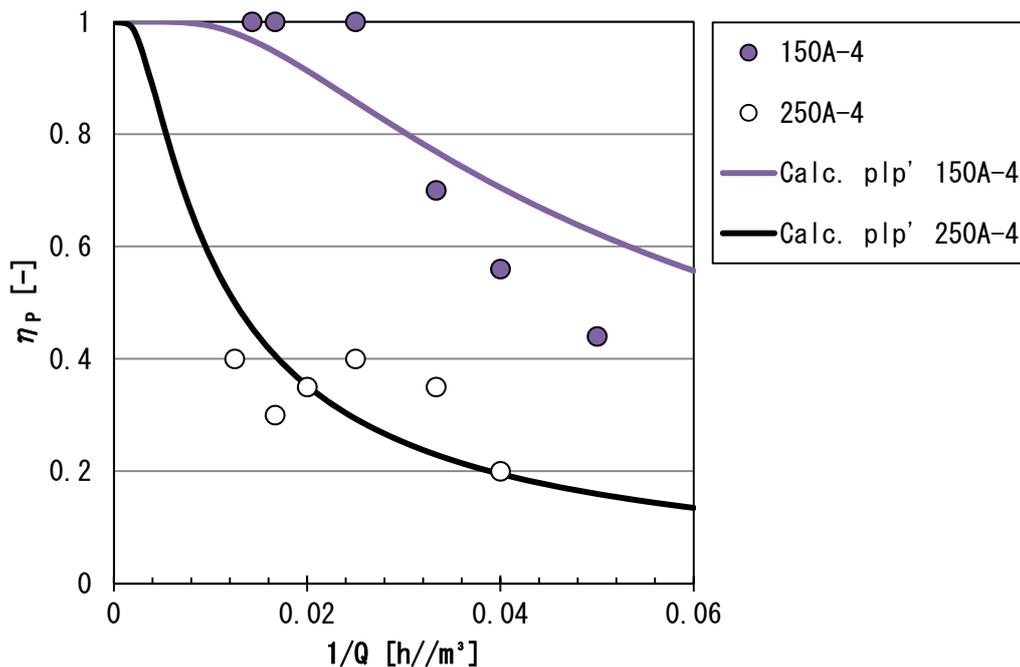


図5-19 栓流と層流栓流の割合が変動するモデルに用いた $\eta_p$ の変化  
(ランプ4本タイプ)

本計算条件での不活化速度定数を求めるために、反応器50Aにおける $\eta_p$ を1と仮定した。図5-17に示した反応器50Aの結果は、この仮定を満足するものであった。この計算方法では、以下のことが確認できた。ランプ1本タイプにおいて、反応器250Aについてはこれまでの組合せモデルに比べて実験結果を表現でき、反応器150Aについてはこれまでの計算結果に比べれば良好で、最も高い不活化性能については計算結果においても100Aとなった。ランプ4本タイプについては、実験結果と概ね一致した。よって、この計算方法で実験結果全体の傾向を表現することができた。

本反応器は流入と流出が反応器に対して直角であることから、流入流出部の線速度と反応器の代表直径に依存する変数で反応器内の流入部と流出部の一部が栓流になっており、かつ、それ以外の領域では層流栓流モデルが適用できると仮定したモデルを用いることにより、本実験条件下での設計手法として提案することができた。ただし、このモデルにはフィッティングパラメータ $h_p$ が存在するため、ランプ本数や反応器形状が異なる場合にはこのフィッティングパラメータを求める必要がある。

### 5.5.3.2 完全混合流と層流栓流の組合せモデルでその割合が変動する場合

ここでは流れの挙動が反応器の出入口に挟まれた内側であるBゾーンでは層流栓流モデルになっており、出入口付近のAゾーンとCゾーンでは完全混合流と層流栓流モデルがある割合で存在しているものと仮定した。

Aゾーンでの平均UV照度と、この領域の滞留時間 $\tau_A$ に $\eta_M$ を乗じた時間の積から、式(35)に示した生残率 $S_M'$ を求めた。層流栓流で求める生残率 $S_{LP}'$ には、反応器全体の平均滞留時間から $2\eta_M\tau_A$ を差し引いた時間を用いた。式(37)で生残率を算出し、実験結果と一致する $\eta_M$ を求めた。 $\eta_M$ は0から1までの値とした。その一例を図5-16に示した。

$$S_M' = \int_0^\infty \exp\left(-\frac{I_{av}t}{D_0}\right) \frac{1}{\eta_M\tau_A} \exp\left(-\frac{t}{\eta_M\tau_A}\right) dt \quad (35)$$

$$= \frac{D_0}{I_{av}\eta_M\tau_A + D_0} \quad (36)$$

$$S_{MLP}' = S_M'^2 S_{LP}' \quad (37)$$

ここで、 $\eta_M$ を1と仮定して、反応器50Aの実験結果を用いて、生残率の実験結果 $S_d$ と計算結果 $S_c$ を自然対数にして、両者の差異の合計が最も小さい値となる不活化速度定数 $D_0$ を求めた。その結果、図5-20に示したように、両者の差異の最小値は0であり、そのときの $D_0$ は $1.56 \text{ mJ/cm}^2$ であった。

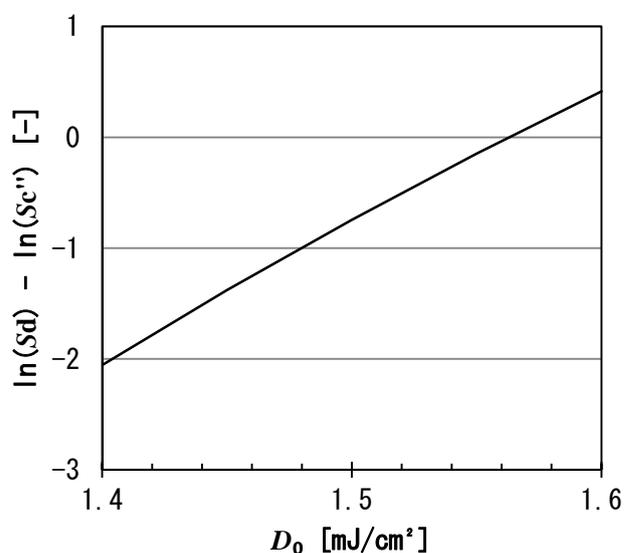


図5-20 不活化速度定数に対する生残率の実験結果と $\eta_M$ を1と仮定して計算した生残率の結果の自然対数の差の比較

この不活化速度定数を用いて、式(37)で生残率を算出し、実験結果と一致する $\eta_M$ を求めた。その一例として、反応器250A-4の場合を図5-21に示した。

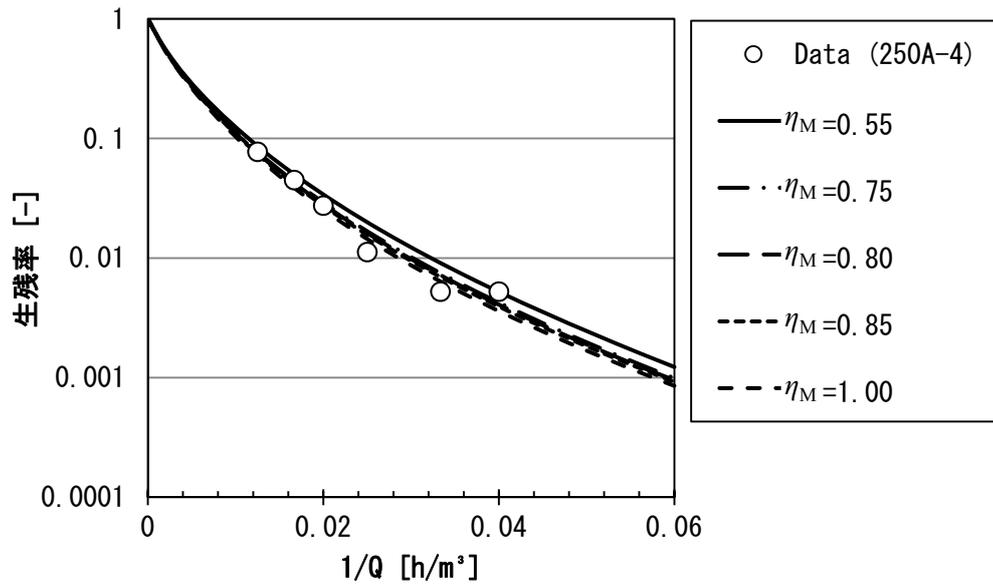


図5-21 実験結果と一致する $\eta_M$ を求める計算の一例

$\eta_M$  が大きいことは完全混合流の割合が高いことを意味する。ここでも同様に、出入口の断面積を処理流量で除した値である線速度  $u$  [m/s] を、反応器の代表直径  $d'$  [m] で除した値と、 $\eta_M$  との関係調べた。その結果を図 5-22 に示した。

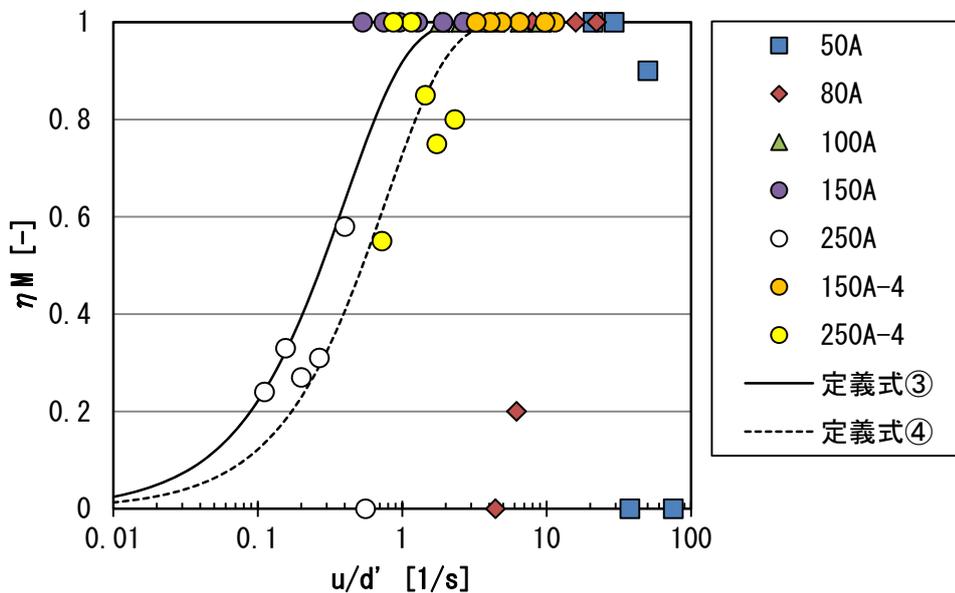


図5-22 各反応器の出入口線速度/代表直径と $\eta_M$ との関係

$\eta_M$  と  $u/d'$  の関係を次式のように定義した。

$$\eta_M = 1 - \exp(-h_M u / d') \quad (38)$$

ここで、 $h_M$  は  $\exp$  の括弧内を無次元化するための定数[s]であり、図 5-22 の挙動を式(38)で表現するためのフィッティングパラメータである。式(38)の定義式の  $h_M$  を変化させて得られる  $\eta_M$  と、式(35)~(37)で実験結果と一致するように求めた  $\eta_M$  の差異の絶対値の合計が最小となる  $h_M$  をランプ本数タイプごとに求めた。1 本入り反応器に対する定義式③では  $h_M$  は 2.5 s、4 本入り反応器に対する定義式④では 1.3 s が得られた。図中にその定義式③と④での計算結果を実線と点線で示した。

式(38)で計算された  $\eta_M$  を用いて、1 本入りでの本計算の結果を Calc. mlp' 反応器型式で図 5-23 に、そのときの  $\eta_M$  の変化を図 5-24 に示した。また、4 本入りでの結果を同様に図 5-25、5-26 に示した。

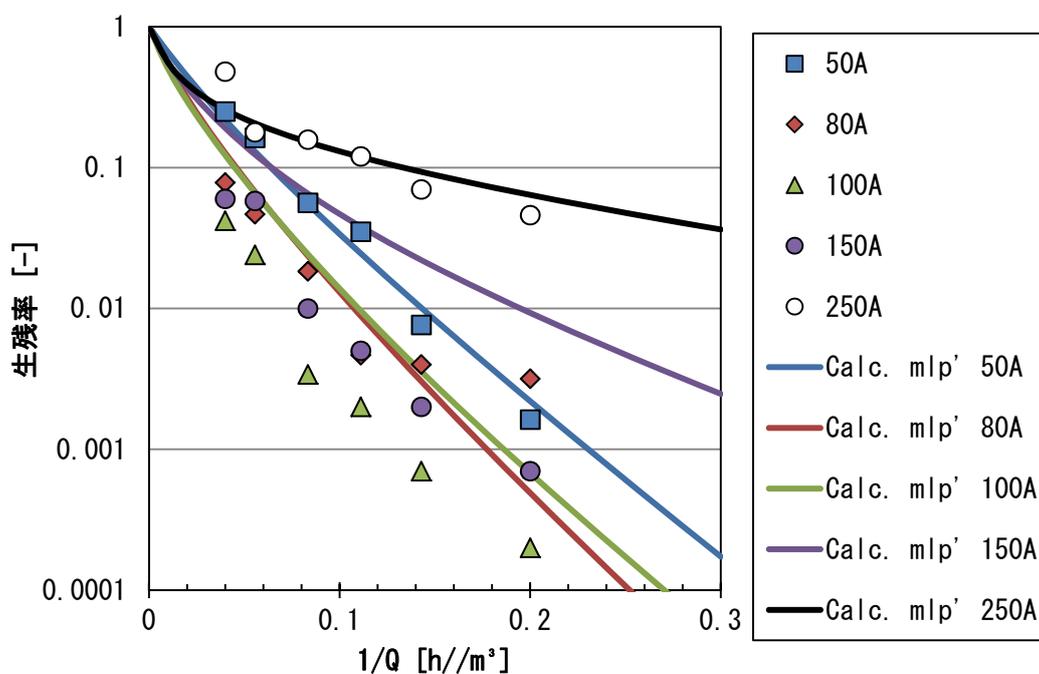


図5-23 完全混合流と層流柱流の割合が変動するモデルを用いたランプ1本タイプでの計算結果

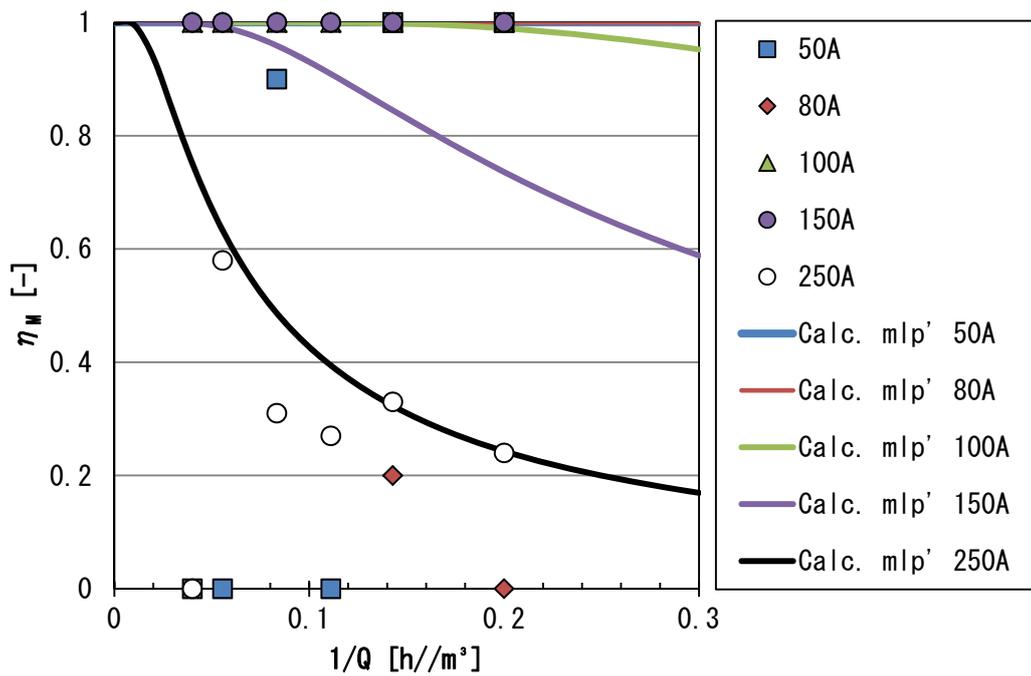


図5-24 完全混合流と層流栓流の割合が変動するモデルに用いた $\eta_M$ の変化 (ランプ1本タイプ)

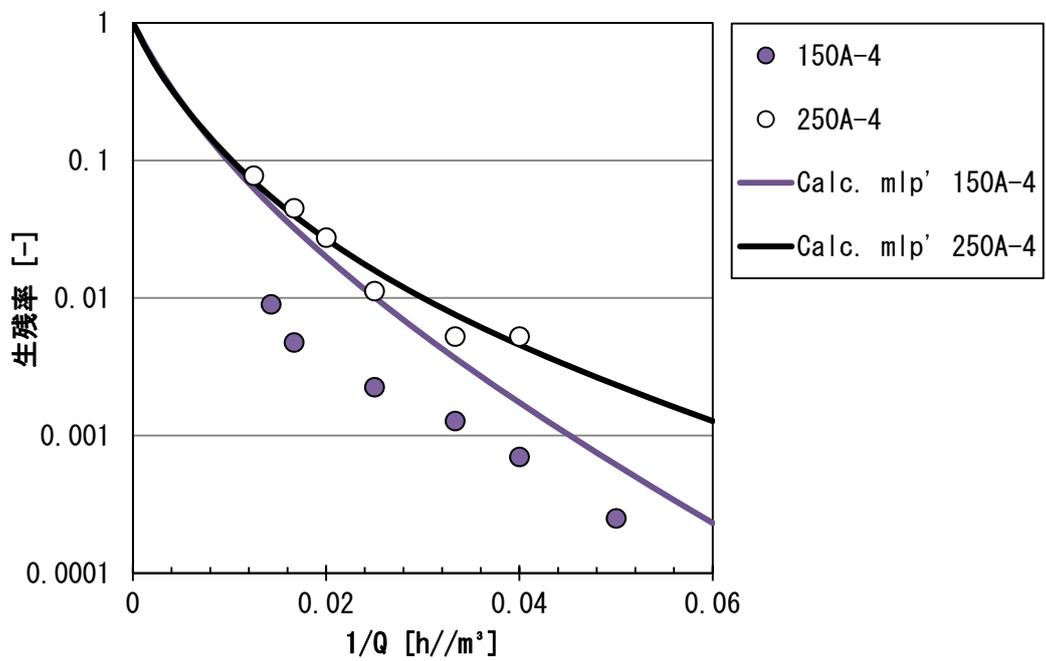


図5-25 完全混合流と層流栓流の割合が変動するモデルを用いた ランプ4本タイプでの計算結果

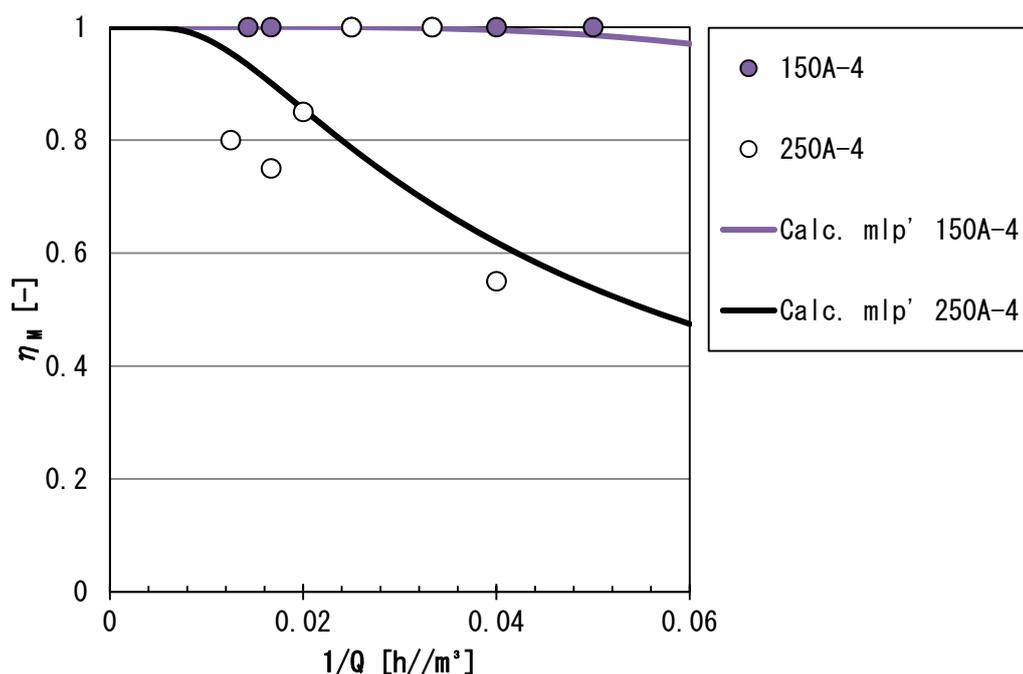


図5-26 完全混合流と層流栓流の割合が変動するモデルに用いた $\eta_M$ の変化  
(ランプ4本タイプ)

本計算条件での不活化速度定数を求めるために、反応器 50A における  $\eta_M$  を 1 と仮定した。図 5-24 に示した反応器 50A の結果は、この仮定を満足するものであった。ランプ 1 本タイプにおいて、反応器 250A についてはこれまでの組合せモデルに比べて実験結果を表現できたが、反応器 150A については計算結果が実験結果に一致しておらず、最も高い不活化性能については 80A となり、実験結果全体の傾向を表現できなかった。ランプ 4 本タイプでは、2 つの反応器の性能差について、実験結果のように顕著に表れなかった。このように計算結果が実験結果に一致しなかったが、層流栓流モデルで計算した結果よりは本計算結果の方が実験結果に近づいた。ゆえに、A ゾーン、C ゾーンでの流れと直角方向のモデルを適用した効果を確認できた。しかしながら、適用したモデルが完全混合ではその効果が不十分であることがわかった。そのため、実験結果全体の傾向を表現できなかったものと考えられる。

### 5.5.3.3 栓流と層流栓流の組合せモデル

出入口付近が栓流と仮定すると、UV 照度は反応器内の流れに直角方向の断面の平均値を用いることになる。ここではその方向に 100 等分して UV 照度を求めたので、そのうちの出入口付近の A と C のゾーンに入る領域での断面ごとに UV 照度の平均値を求め、反応器の平均滞留時間の 101 分の 1 をその区間の滞留時間として、式(26)~(28)に準じて生残率  $S_P$  を求めた。この組合せモデルによる生残率  $S_{PLP}$  を次式から求めた。ここでは  $\eta_P$  が 1 であ

ることを意味するので、 $D_0$ は  $1.57 \text{ mJ/cm}^2$ を用いた。

$$S_{\text{PLP}} = S_{\text{P}}^2 S_{\text{LP}} \quad (39)$$

ランプ1本タイプの計算結果を図5-27に、4本タイプの計算結果を図5-28に、Calc. plpで示した。

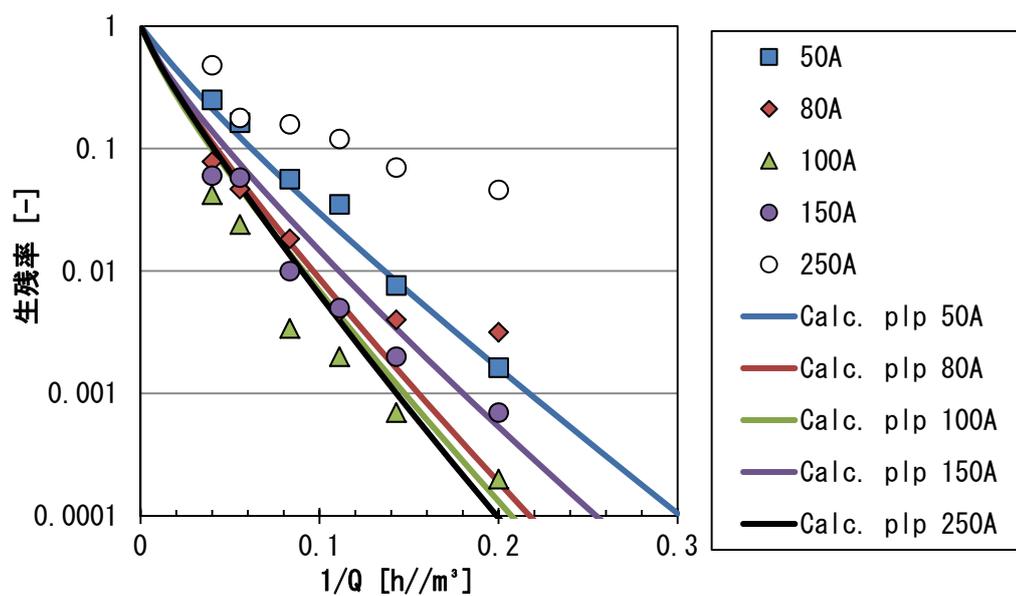


図5-27 栓流と層流栓流の組合せモデルによるランプ1本タイプ反応器での計算結果

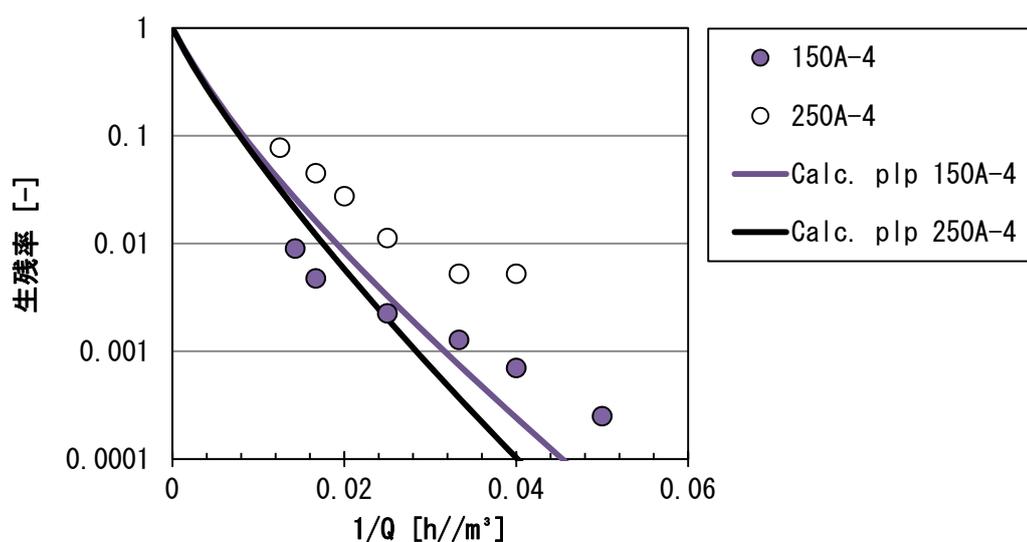


図5-28 栓流と層流栓流の組合せモデルによるランプ4本タイプ反応器での計算結果

両図とも、反応器 250A の計算結果が最も高い不活化性能を示す結果となったことから、A、Cゾーンをすべて栓流と仮定した場合は、不活化速度を高める効果が大き過ぎたものと考えられる。

#### 5.5.3.4 完全混合流と層流栓流の組合せモデル

出入口付近が完全混合流と仮定すると、その領域の UV 照度は平均値を用いることになる。式(26)に代入する値をこの条件に合わせて、1つの領域での生残率  $S_M$  を求めた。また、層流栓流領域での生残率  $S_{LP}$  は、式(21)~(23)に準じて求めた。それらの結果を用いて、この組み合わせによる生残率  $S_{MLP}$  を次式から求めた。

$$S_{MLP} = S_M^2 S_{LP} \quad (40)$$

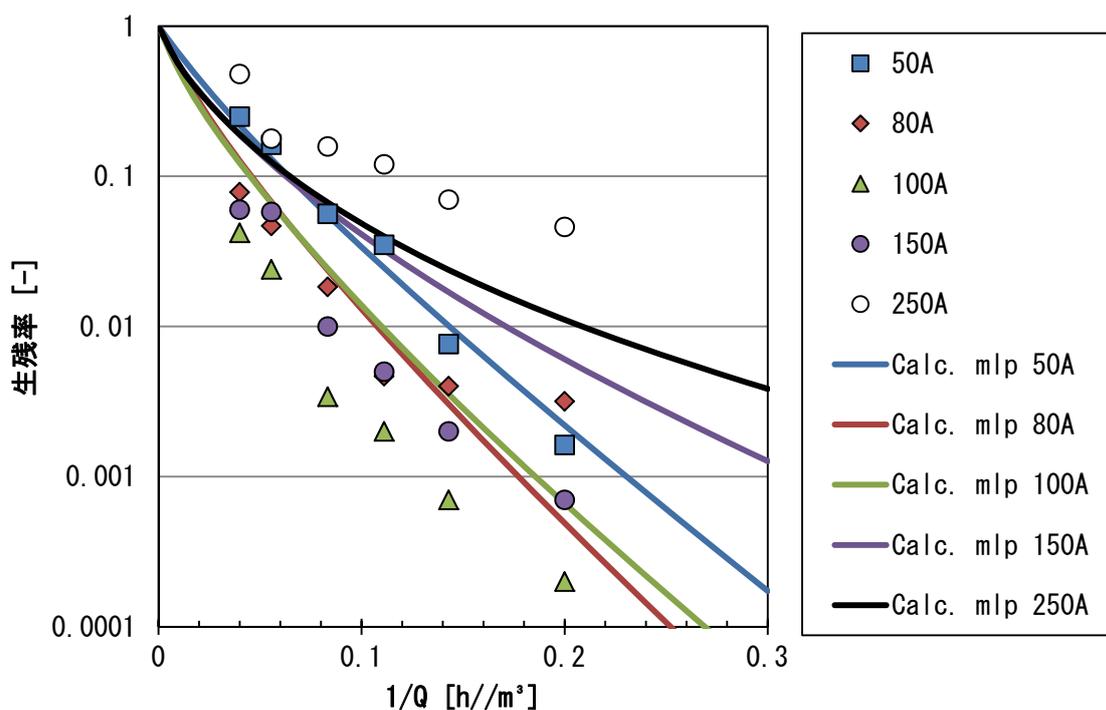


図5-29 完全混合流と層流栓流の組合せモデルによる  
ランプ1本タイプ反応器での計算結果

ランプ1本タイプの計算結果を Calc. mlp で反応器ごとに図 5-29 の図中に示した。反応器 50A は完全混合流の影響が少なく、図 5-5 とほとんど同じ結果となった。実験結果では反応器 100A が最も不活化性能が高かったが、この計算では 80A の場合が高性能となった。150A と 250A は実験結果と一致しなかった。150A では実験結果の方が高い性能を示

し、250A では計算の方が高い性能を示した。

ランプ 4 本タイプについては図 5-30 の図中に示した。250A-4 の計算結果は概ね実験結果と一致したが、150A-4 の方は一致しなかった。

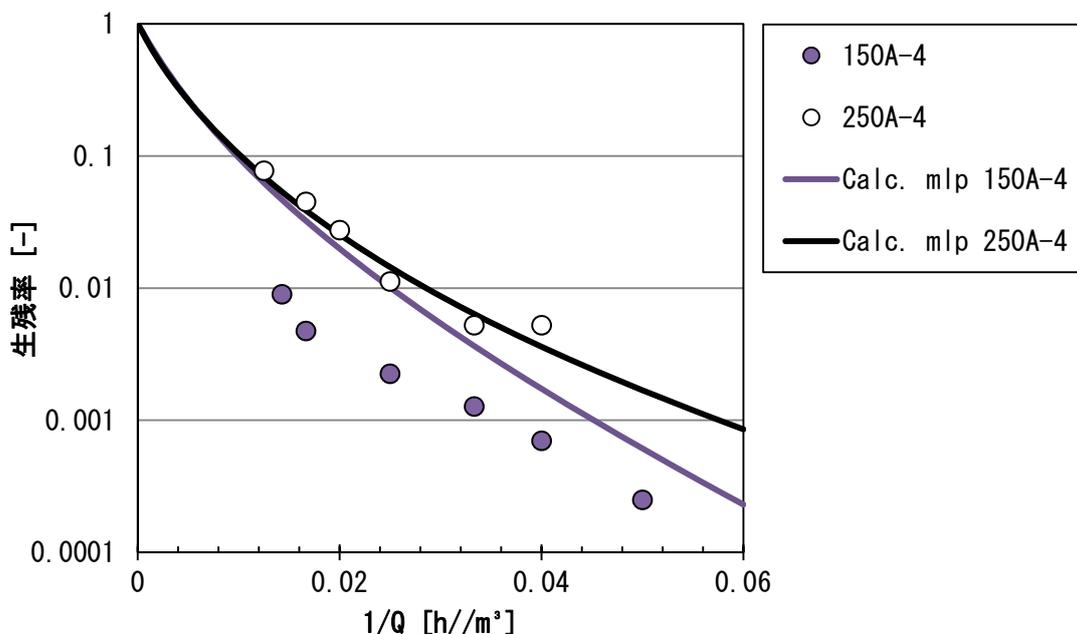


図5-30 完全混合流と層流栓流の組合せモデルによる  
ランプ4本タイプ反応器での計算結果

このように、この計算結果と実験結果が一致しなかった原因は、反応器の大きさ、出入口の線速度を因子とせず、この実験条件でのモデルを表現したからであると考えられる。

### 5.6 流動特性による生存率への影響

流通式反応器の流れモデルには、槽内が完全に混合されていると仮定する完全混合モデル、その完全混合が複数段の直列になっていると仮定する槽列モデル、第 4 章で示した流れの方向には速度分布がなく流れと直角方向には移動がないと仮定する層流栓流モデル、流れの方向には速度分布がなく流れと直角方向には完全混合されていると仮定する栓流モデルなどがある。

ここでは、これらの流れモデルが微生物の不活化挙動に与える影響について整理した。不活化速度は、回分系で 1 次反応の場合と、テーリングが生じる反応（以下、テーリング反応）の場合の 2 通りを選んだ。

反応器内の照度分布については、均一照射場である場合と、簡易的な計算として流れ方向と並行に、または直角に、2 つの照射場が存在する場合について考察した。計算結果はプロットとそれらを結ぶ曲線で示した。

### 5.6.1 均一照射場

ここでは、UV 反応器の微生物不活化挙動への流動特性による影響を調べるため、本来存在する反応器内の照度分布が均一になっていると仮定した。

#### 5.6.1.1 回分系での反応が 1 次反応の場合

回分系による微生物の不活化が、次式に示す 1 次反応であったと仮定する。

$$S_{B1} = \exp\left(-\frac{It}{D_0}\right) \quad (41)$$

ここで、 $S_{B1}$  は生残率、 $I$  は UV 照度、 $t$  は照射時間、 $D_0$  は不活化速度定数である。

以下に、この不活化特性を示す微生物を用いた条件で、種々の流れモデルを想定した場合の生残率を求めた。

#### (1) 完全混合モデル

反応器内の平均滞留時間を  $\tau$  とすると、反応器内の流れが完全混合になっている場合の生残率  $S_{M1}$  は次式となる。

$$S_{M1} = \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{It}{D_0}\right) \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (42)$$

$$= \frac{D_0}{I\tau + D_0} \quad (43)$$

#### (2) 槽列モデル

槽列モデルは、完全混合モデルが  $n$  段直列になった反応器である。よって、反応器を  $n$  段に分けて考えれば、槽列モデルでの生残率  $S_{S1}$  は次式となる。

$$S_{S1} = \left(\frac{D_0}{I\tau/n + D_0}\right)^n \quad (44)$$

#### (3) 層流栓流モデル

層流栓流モデルでは、反応器内を流れる水がすべて同じ時間照射を受けるので、その照射時間は平均滞留時間と同じになる。よって、層流栓流モデルでの生残率  $S_{LP1}$  は次式となる。

$$S_{LP1} = \exp\left(-\frac{I\tau}{D_0}\right) \quad (45)$$

#### (4) 栓流モデル

栓流モデルは槽列モデルの段数  $n$  が無限大になった場合に等しい。よって、層流栓流モデルでの生残率  $S_{LP1}$  は次式のように求めることができる。

$$S_{P1} = \lim_{n \rightarrow \infty} S_{S1} \quad (46)$$

$$= \lim_{n \rightarrow \infty} \left( \frac{D_0}{I\tau/n + D_0} \right)^n \quad (47)$$

$$= \exp\left(-\frac{I\tau}{D_0}\right) \quad (48)$$

式(48)は式(45)と同じになる。これは栓流モデルにおいても、反応器内を流れる水のすべてが同じ照射時間を受けるからである。

#### (5) 各流れモデルの計算比較

ここで得られた結果を計算し、各流れモデルを比較した。 $D_0$ に1を代入して、UV照射量  $I\tau$  と生残率の関係調べた。槽列モデルは、2、4、8段について計算した。その結果を図5-31に示した。

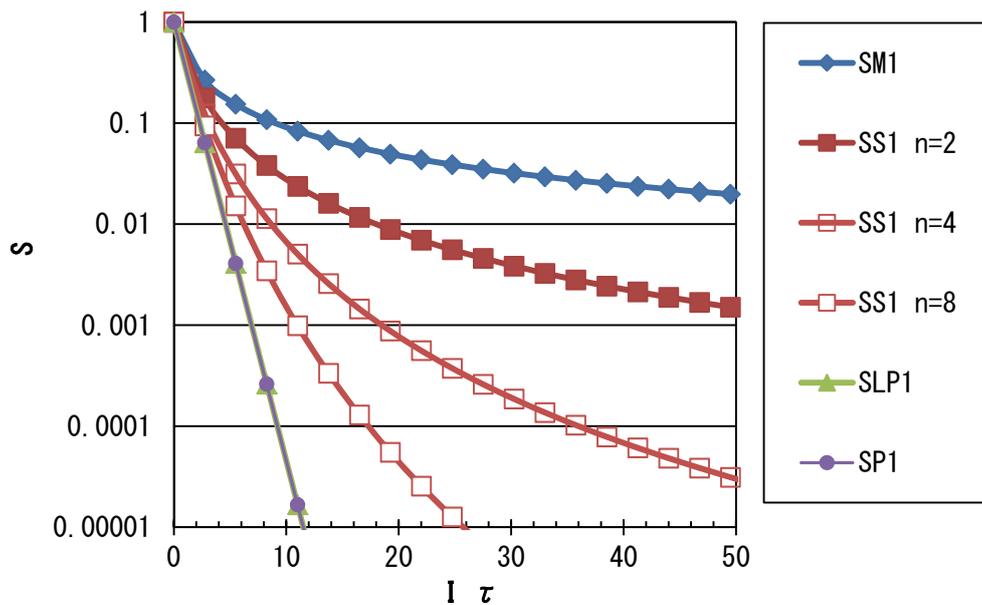


図5-31 均一照射場、1次反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

層流栓流モデルと栓流モデルは、式で示しているように図 5-31 で整理すると 1 次反応である。完全混合モデルと槽列モデルは、段数が少ないほどテーリング反応のような挙動を示した。すなわち、均一照射場の反応器において、回分系で 1 次反応であっても、照射時間が不均一であればテーリング反応のような現象が生じることを示している。

照射場が均一になるように工夫された流水式放射光反応器の場合は、流動特性が栓流か層流栓流かを判断することは困難である可能性がある。

### (6) 複合モデル

実際の反応器の形状には、流入口、流出口があるため、流れがその影響を受ける可能性がある。ここでは、図 5-32 に示すような L 型反応器と C 型反応器について考察する。反応器への流入と流出が流れに対して直角であれば、その出入口領域で流れに対して直角の流れが生じると想定する。

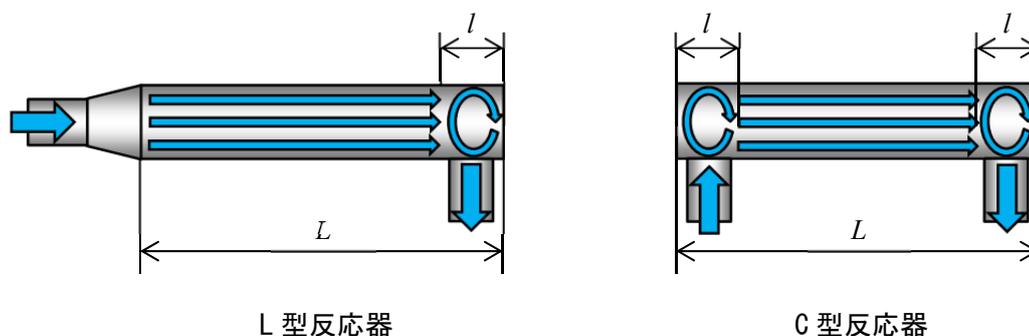


図 5-32 流入口、流出口が反応器に直角に位置する反応器形状

まず、L 型反応器について、反応器の照射場の長さ  $L$  に対して、流出口の長さが  $l$  であるとし、 $L-l$  の区間では層流栓流モデル、 $l$  の区間では完全混合モデルが適用できると仮定すると、各区間の生残率の積となるので、生残率  $S_{LIM}$  は次式となる。

$$S_{LIM} = \left( \frac{D_0}{I\tau l/L + D_0} \right) \exp \left\{ -\frac{I\tau(1-l/L)}{D_0} \right\} \quad (49)$$

同様に、C 型反応器では中央の  $L-2l$  の区間では層流栓流モデル、両端の  $l$  の区間では完全混合モデルと仮定した場合、生残率  $S_{CIM}$  は次式となる。

$$S_{CIM} = \left( \frac{D_0}{I\tau l/L + D_0} \right)^2 \exp \left\{ -\frac{I\tau(1-2l/L)}{D_0} \right\} \quad (50)$$

$l/L$  に 0.1 と 0.3 を代入して、図 5-31 のいくつかの計算結果と比較した。その結果を図 5-33 に示した。

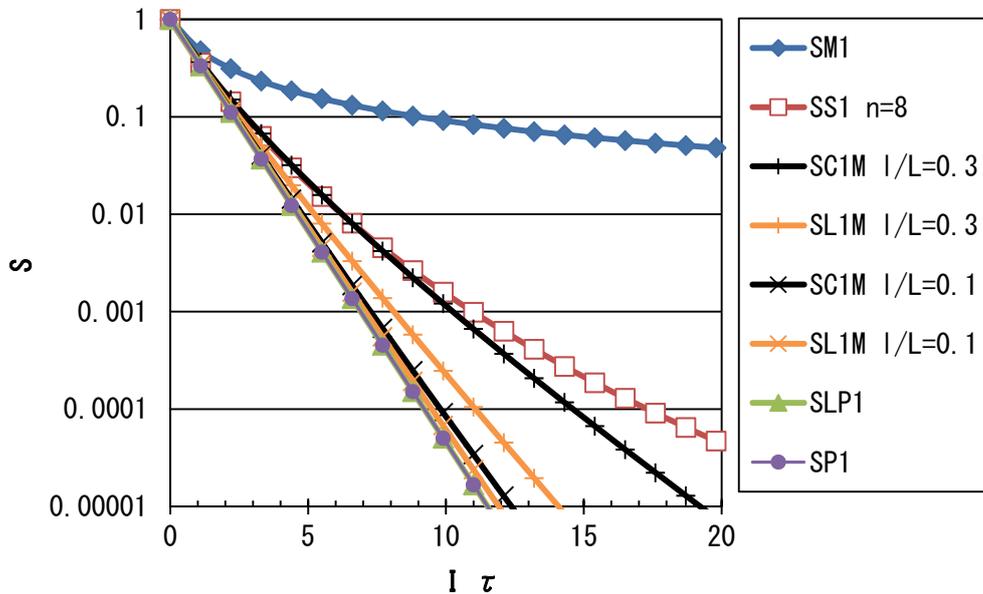


図5-33 均一照射場、1次反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-2

完全混合領域が多い C 型反応器の方が、L 型よりも不活化速度が遅くなるが、 $l/L$  が小さければその影響が少ない。

この組み合わせ以外に、 $l$  の区間を完全混合モデルから栓流モデルに置き換えた場合、ここでは層流栓流モデルと栓流モデルの式が同じであるため、式(45)に等しくなる。

照射場が均一になるように工夫すれば、出入口での流れによる影響を受けにくい。

#### 5.6.1.2 回分系での反応がテーリング反応の場合

USEPA では、下水二次処理水中には、微粒子の影響を受けて UV 照射の影響を受けない微生物が存在するとして、微生物濃度を算出する式を示している (EPA, 1986)。一方、Sugawara らは枯草菌芽胞体には UV 耐性の異なる 2 種類があるとして、不活化速度式を示している (Sugawara et al, 1981)。

ここでは、UV 感受性が 2 種類存在する微生物を考える。回分系による微生物の不活化が、次式に示すテーリング反応であったと仮定する。

$$S_{B2} = a \exp\left(-\frac{It}{D_1}\right) + (1-a) \exp\left(-\frac{It}{D_2}\right) \quad (51)$$

ここで、 $D_1$ 、 $D_2$ は不活化速度定数で、流入微生物数のうち、 $a$ は不活化速度定数が $D_1$ である微生物の割合を示す0以上1以下の定数である。

#### (1) 完全混合モデル

完全混合モデルでの生残率 $S_{M2}$ は次式となる。

$$S_{M2} = \int_0^{\infty} \left\{ a \exp\left(-\frac{It}{D_1}\right) + (1-a) \exp\left(-\frac{It}{D_2}\right) \right\} \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (52)$$

$$= \frac{aD_1}{I\tau + D_1} + \frac{(1-a)D_2}{I\tau + D_2} \quad (53)$$

すなわち、式(53)は、不活化速度定数の異なる微生物の生残率に、その存在割合を乗じて、その両者を足した値となる。

#### (2) 槽列モデル

不活化速度定数の異なる各微生物が独立して不活化する。1段の不活化速度式は完全混合モデルに等しいので、槽列モデルの不活化速度式は以下の式となる。

$$S_{S2} = a \left( \frac{D_1}{I\tau/n + D_1} \right)^n + (1-a) \left( \frac{D_2}{I\tau/n + D_2} \right)^n \quad (54)$$

#### (3) 層流栓流モデル

層流栓流モデルでは照射時間が平均滞留時間に等しいので、生残率 $S_{LP2}$ は次式となる。

$$S_{LP2} = a \exp\left(-\frac{I\tau}{D_1}\right) + (1-a) \exp\left(-\frac{I\tau}{D_2}\right) \quad (55)$$

#### (4) 栓流モデル

栓流モデルにおいても、層流栓流モデルと同様に照射時間が平均滞留時間に等しいので、生残率 $S_{P2}$ は次式となる。

$$S_{p2} = S_{LP2} \quad (56)$$

$$= a \exp\left(-\frac{I\tau}{D_1}\right) + (1-a) \exp\left(-\frac{I\tau}{D_2}\right) \quad (57)$$

### (5) 各流れモデルの計算比較

ここで得られた結果を計算し、各流れモデルを比較した。 $D_1$ 、 $D_2$ に1と10を、 $a$ に0.99を代入して、UV照射量  $I\tau$  と生残率の関係調べた。槽列モデルは、2、4、8段について計算した。その結果を図5-34に示した。

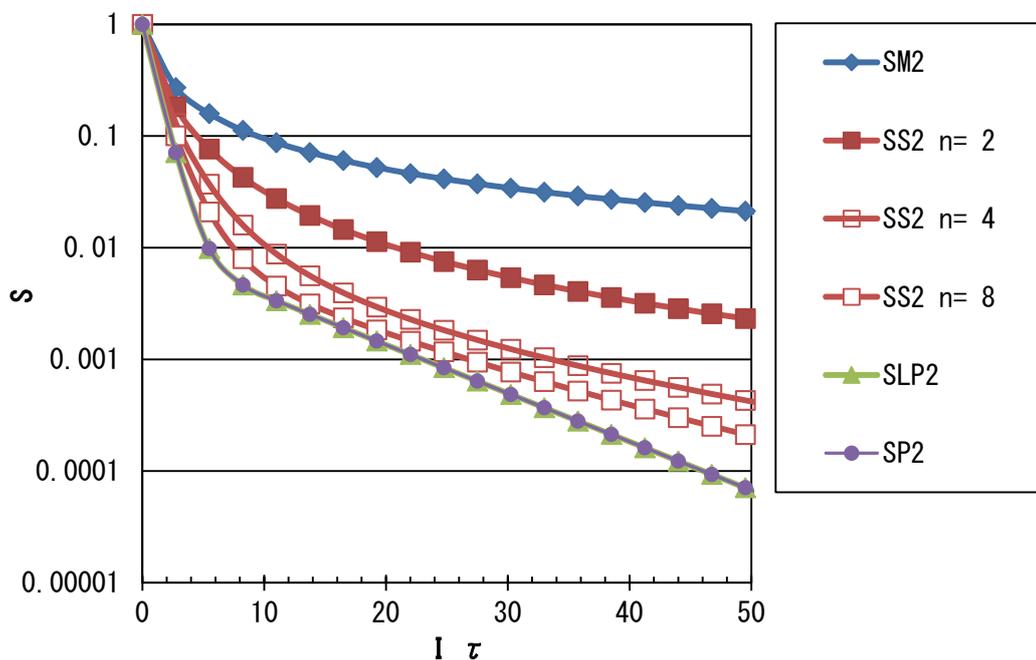


図5-34 均一照射場、テーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

$a$ が0.99であるため、層流栓流モデルと栓流モデルでは生残率が0.01以下になったところで折れ曲がったような挙動になっている。完全混合モデルでは、先の図5-28に示した挙動とほとんど差異がない。その理由は、この計算条件ではいずれのUV照射量においても不活化速度定数  $D_2$  の微生物の存在割合が少ないからである。ゆえに、完全混合モデルもしくは、槽列モデルで段数が少ない場合は、流動特性によるテーリング現象が顕著に表れにくい可能性があることを示唆している。

### (6) 複合モデル

先と同様に、L型反応器で  $L-l$  の区間では層流栓流モデル、 $l$  の区間では完全混合モデルが適用できると仮定すると、UV感受性の異なる微生物ごとに各区間の生残率の積となるの

で、生残率  $S_{L2M}$  は次式となる。

$$S_{L2M} = a \left( \frac{D_1}{H/L\tau + D_1} \right) \exp \left\{ - \frac{(1-l/L)\tau}{D_1} I \right\} + (1-a) \left( \frac{D_2}{H/L\tau + D_2} \right) \exp \left\{ - \frac{(1-l/L)\tau}{D_2} I \right\} \quad (58)$$

同様に、C型反応器では中央の  $L-2l$  の区間では層流栓流モデル、両端の  $l$  の区間では完全混合モデルと仮定した場合、C型反応器での生残率  $S_{C2M}$  は次式となる。

$$S_{C2M} = a \left( \frac{D_1}{H/L\tau + D_1} \right)^2 \exp \left\{ - \frac{(1-2l/L)\tau}{D_1} I \right\} + (1-a) \left( \frac{D_2}{H/L\tau + D_2} \right)^2 \exp \left\{ - \frac{(1-2l/L)\tau}{D_2} I \right\} \quad (59)$$

$H/L$  に 0.1 と 0.3 を代入して、図 34 のいくつかの計算結果と比較した。その結果を図 5-35 に示した。

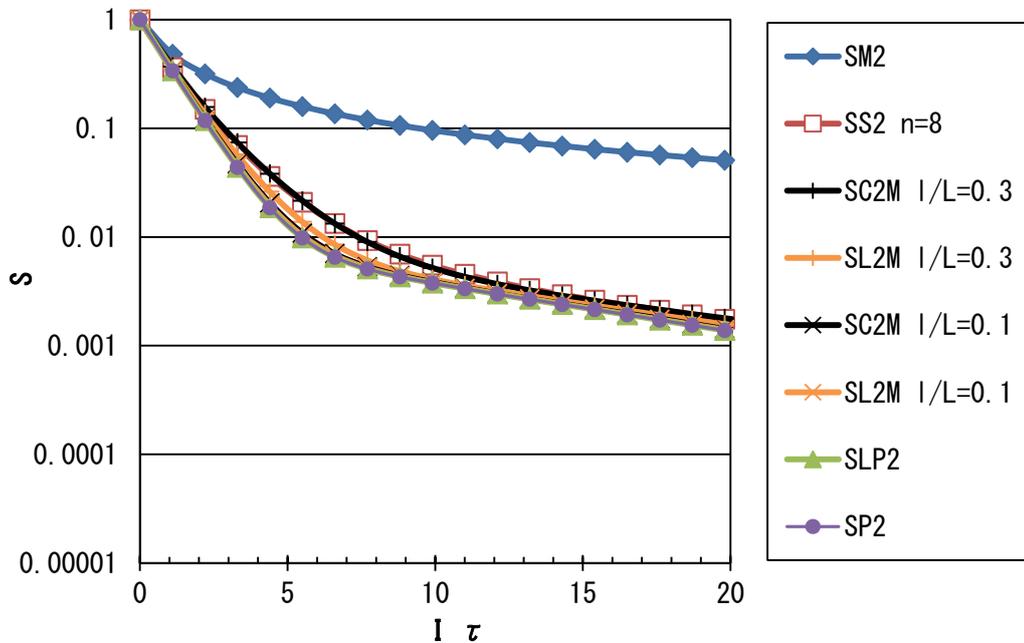


図5-35 均一照射場、テリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-2

先と同様に、 $l$ の区間を完全混合モデルから栓流モデルに置き換えた場合、ここでは層流栓流モデルと栓流モデルの式が同じであるため、式(55)に等しくなる。

### 5.6.2 流れ方向と並行に2つの照射場がある場合

これまでは均一照射場について考察したが、実際の光反応器内部は照度が不均一であることから、その不均一の最も単純な系として2つの照射場が存在する場合について同様の考察をした。実際の反応器の代表的なランプ配置を意識して、反応器内の流れ方向に対して光源を並行に設置した場合と、直角に設置した場合を想定した。そこで、2つの照射場が図5-36で示すように流れの方向に対して並行にある場合と、直角にある場合について流れによる影響を調べた。



▲ 2つの照射場が流れと並行にある場合

▲ 2つの照射場が流れと直角にある場合

図 5-36 2つの照射場の模式図

反応器内の照度が  $I$  である照射場の容積比が  $b$  ( $0 \leq b \leq 1$ ) で、照度が  $cI$  である照射場の容積比が  $1-b$  であるものとする。

まず、ここでは2つの照射場が流れと並行にある場合について以下に示した。

#### 5.6.2.1 回分系の反応が1次反応の場合

回分系による反応が、式(41)で示した1次反応を仮定する。

##### (1) 完全混合モデル

完全混合すれば照度は平均値となるので、生残率  $S_{2M1}$  は次式となる。

$$S_{2M1} = \int_0^{\infty} \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_0} It\right\} \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (60)$$

$$= \frac{D_0}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_0} \quad (61)$$

##### (2) 槽列モデル

槽列モデルは  $n$  段の完全混合モデルであるので、生残率  $S_{2S1}$  は次式となる。

$$S_{2S1} = \left\{ \frac{D_0}{\{b + (1-b)c\}I\tau/n + D_0} \right\}^n \quad (62)$$

### (3) 層流栓流モデル

層流栓流モデルでは 2 つの照射場が流れと並行にあるので、それぞれの照射場で得られた生残率を平均することになる。ゆえに、この場合の生残率  $S_{2LP1}$  は次式となる。

$$S_{2LP1} = b \exp\left(-\frac{I\tau}{D_0}\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{cI\tau}{D_0}\right) \quad (63)$$

この式はテーリング反応での層流栓流モデルの式(55)と同形である。すなわち、 $b$  と  $c$  に代入する値によってはテーリング反応のような結果となり得る。

### (4) 栓流モデル

栓流モデルは槽列モデルの段数が無限大になった場合であるので、生残率  $S_{2P1}$  は次式となる。

$$S_{2P1} = \lim_{n \rightarrow \infty} S_{2S1} \quad (64)$$

$$= \lim_{n \rightarrow \infty} \left\{ \frac{D_0}{\{b + (1-b)c\}I\tau/n + D_0} \right\}^n \quad (65)$$

$$= \exp\left\{-\frac{\{b + (1-b)c\}I\tau}{D_0}\right\} \quad (66)$$

### (5) 各流れモデルの計算比較

ここで得られた結果を計算し、各流れモデルを比較した。 $b$  と  $c$  にはそれぞれ 0.99 と 0.1 を代入して、平均 UV 照射量と生残率の関係で整理した。 $D_0$  と  $I$  は先と同様に 1 とした。槽列モデルは、2、4、8 段について計算した。その結果を図 5-37 に示した。図 5-31 と比較すると、層流栓流モデルの結果以外はすべて図 5-31 の結果と一致している。層流栓流モデルの結果は図 5-33 に示した層流栓流モデルの結果と一致している。つまり、全体の 1% でも UV 照度の低い領域があった場合は、層流栓流モデルで近似できる反応器ではその UV 照度が低い領域による生残率への影響が大きいことを示唆している。層流栓流モデル以外では流れと直角方向の混合があることにより UV 照度が平均化されるため、生残率の挙動が 1 次反応の均一照射場と同じ結果となった。

図 5-37 より、流れ方向と並行に不均一になっている場合、回分系で 1 次反応を示す被反応物を用いて流動特性を評価することが適切であることがわかった。

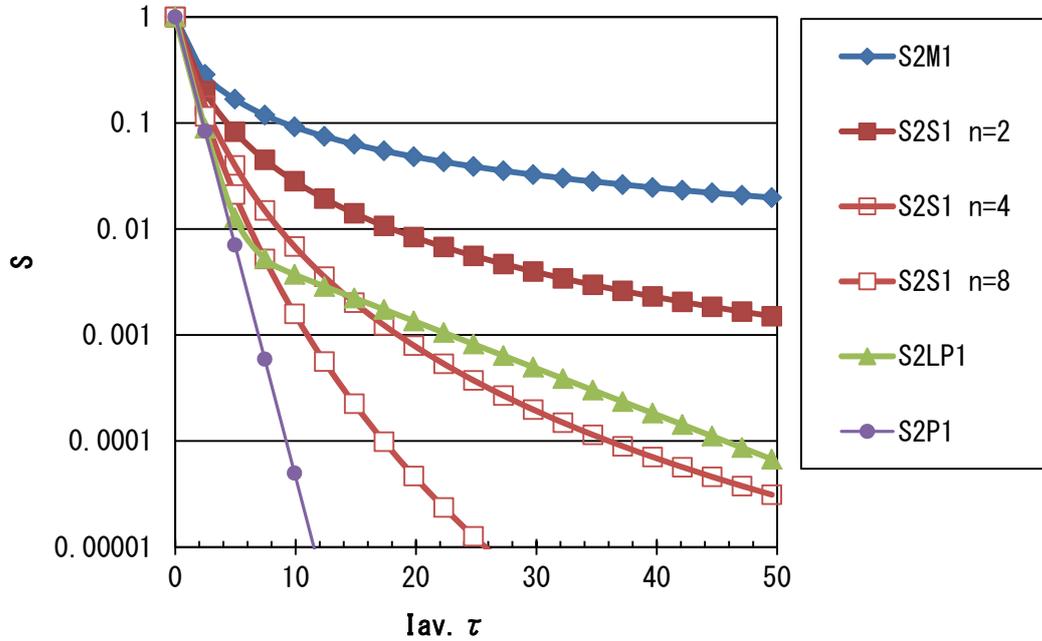


図5-37 2つの照射場が流れと並行にある場合の1次反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

### (6) 複合モデル

先と同様に、L型反応器で  $L-l$  の区間では層流栓流モデル、 $l$  の区間では完全混合モデルが適用できると仮定すると、各区間の生残率の積となるので、生残率  $S_{2L1M}$  は次式となる。

$$S_{2L1M} = \left[ \frac{D_0}{\{b+(1-b)c\}l/L\tau + D_0} \right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_0} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_0} cI\tau\right) \right\} \quad (67)$$

同様に、C型反応器では中央の  $L-2l$  の区間では層流栓流モデル、両端の  $l$  の区間では完全混合モデルと仮定した場合、C型反応器での生残率  $S_{2C1M}$  は次式となる。

$$S_{2C1M} = \left[ \frac{D_0}{\{b + (1-b)c\}l/L\tau + D_0} \right]^2 \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_0} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_0} cI\tau\right) \right\} \quad (68)$$

次に、 $l$ の区間を栓流モデルに置き換えると、L型反応器での生残率  $S_{2L1P}$  は次式となる。

$$S_{2L1P} = \exp\left[-\frac{\{b + (1-b)c\}l/L\tau}{D_0}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_0} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_0} cI\tau\right) \right\} \quad (69)$$

また、C型反応器での生残率  $S_{2C1P}$  は次式となる。

$$S_{2C1P} = \exp\left[-\frac{2\{b + (1-b)c\}l/L\tau}{D_0}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_0} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_0} cI\tau\right) \right\} \quad (70)$$

$l/L$  を 0.1 として、図 5-37 の結果の一部にこれらの計算結果を追加して図 5-38 に示した。

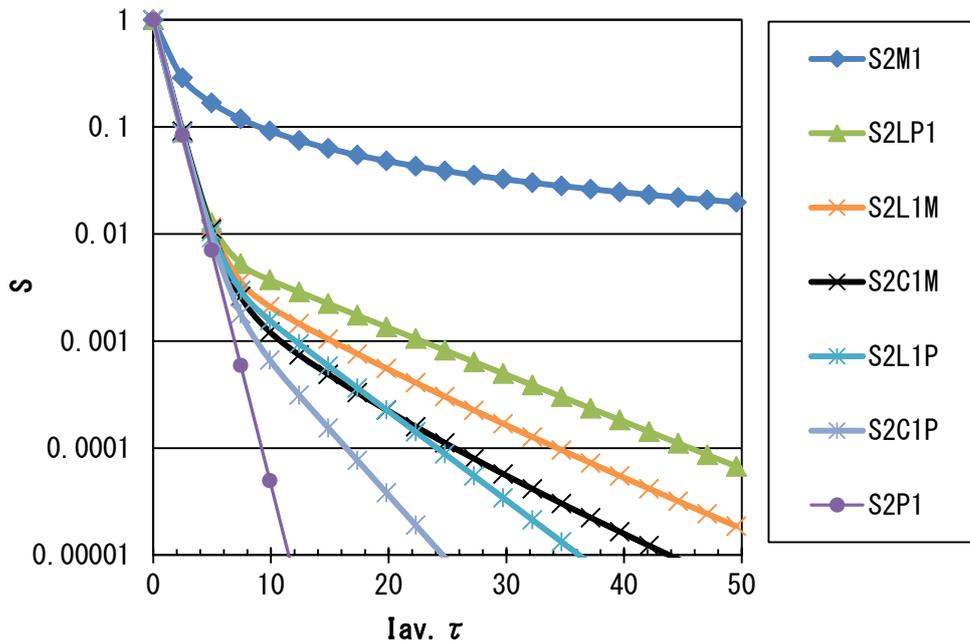


図5-38 2つの照射場が流れと並行にある場合の1次反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-2

層流栓流モデルの結果に比べて、一部を完全混合モデルにしたL型、C型反応器の結果は流れに直角方向の混合が入るため、その効果で不活化性能が高くなっている。同様に一部を栓流モデルにした場合は、さらに顕著に高い不活化性能が表れている。

#### 5.6.2.2 回分系の反応がテーリング反応の場合

2つの照射場が流れと並行にある場合で、回分系による反応が式(51)で示したテーリング反応を仮定する。テーリング反応の場合の不活化速度式は、UV感受性の異なるそれぞれの微生物について求めることになる。

##### (1) 完全混合モデル

UV照度は平均値を用いる。よって、完全混合モデルでの生残率  $S_{2M2}$  は次式となる。

$$S_{2M2} = \int_0^{\infty} \left[ a \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_1} It\right\} + (1-a) \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_2} It\right\} \right] \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (71)$$

$$= \frac{aD_1}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_1} + \frac{(1-a)D_2}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_2} \quad (72)$$

## (2) 槽列モデル

槽列モデルでは、1次反応で示した式(62)を各 UV 感受性の微生物について求め、それらの存在比を掛けて総和する。よって、その生残率  $S_{2S2}$  は次式となる。

$$S_{2S2} = a \left[ \frac{D_1}{\{b + (1-b)c\}I\tau/n + D_1} \right]^n + (1-a) \left[ \frac{D_2}{\{b + (1-b)c\}I\tau/n + D_2} \right]^n \quad (73)$$

## (3) 層流栓流モデル

層流栓流モデルでは、式(63)から上記槽列モデルと同様に算出するので、その生残率  $S_{2LP2}$  は次式となる。

$$S_{2LP2} = a \left\{ b \exp\left(-\frac{I\tau}{D_1}\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{cI\tau}{D_1}\right) \right\} \\ + (1-a) \left\{ b \exp\left(-\frac{I\tau}{D_2}\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{cI\tau}{D_2}\right) \right\} \quad (74)$$

## (4) 栓流モデル

栓流モデルでは、式(66)から同様に算出するので、その生残率  $S_{2P2}$  は次式となる。

$$S_{2P2} = a \exp\left\{-\frac{b + (1-b)c}{D_1} I\tau\right\} + (1-a) \exp\left\{-\frac{b + (1-b)c}{D_2} I\tau\right\} \quad (75)$$

## (5) 各流れモデルの計算比較

これらの結果を用いて各流れモデルでの平均 UV 照射量と生残率の関係を計算した。その結果を図 5-36 に示した。槽列モデルの段数は 2、4、8 段について計算した。 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $D_1$ 、 $D_2$ 、 $I$ にはそれぞれ 0.99、0.99、0.1、1、10、1 を代入した。

ここでも図 5-31 と図 5-37 を比較した場合と同様に図 5-34 と図 3-39 を比較すると、層流栓流モデル以外は同じ挙動であるが、層流栓流モデルの結果は  $c$  に代入した UV 照度の低い領域の影響を受けて図 5-34 の場合とは不活化性能が低くなる挙動を示した。ただし、図 5-31 に対する図 5-37 のような顕著な差は出なかった。ここでは  $D_2$  が  $D_1$  の 10 倍を例に図示したが、100 倍の場合はさらに顕著な差が表れにくい (図 5-40 参照)。この挙動は、図示しなかったが図 5-33 でも同様である。ゆえに、回分系でテーリング反応ではなく、1次反応になる反応系を選択して性能評価のための実験をした方が、流通系の流れモデル近似を

するのに適していると言える。

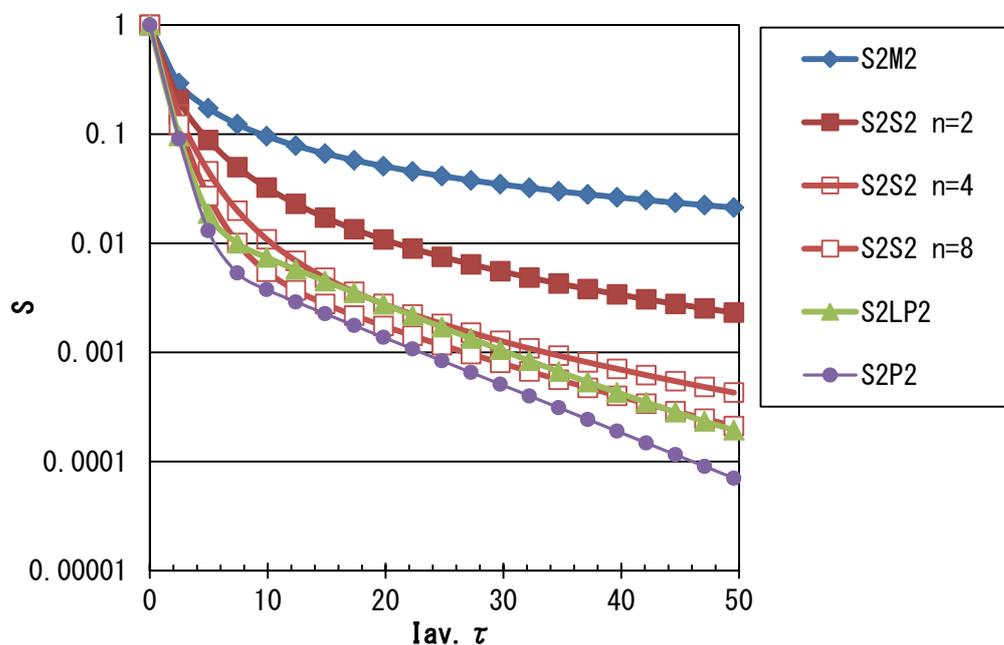


図5-39 2つの照射場が流れと並行にある場合のテーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

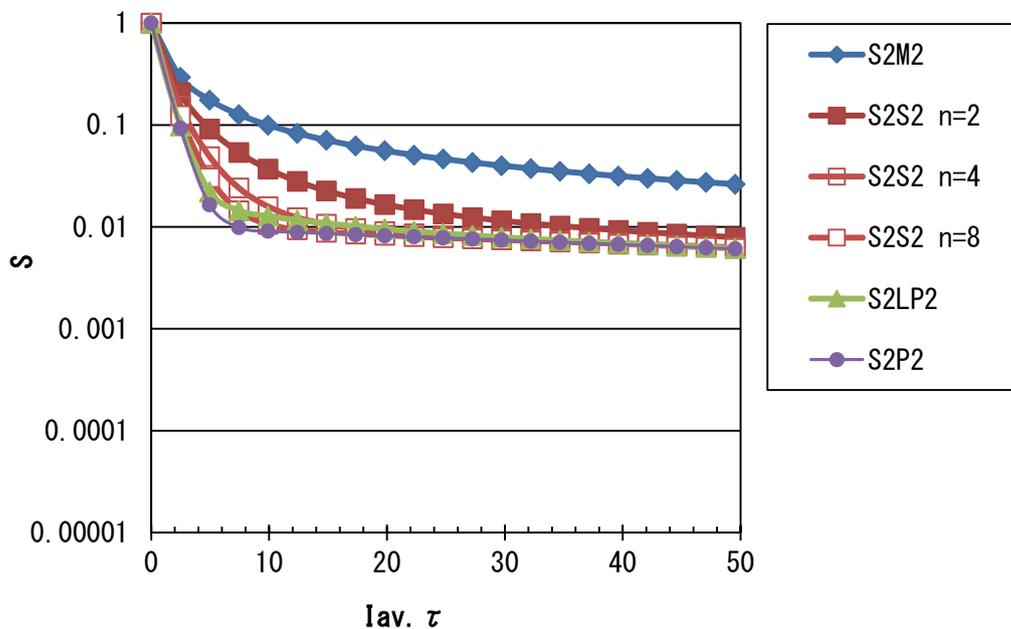


図5-40 2つの照射場が流れと並行にある場合のテーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-2 ( $D_1 : D_2 = 1 : 100$ の場合)

## (6) 複合モデル

先と同様に、L型反応器で $L-l$ の区間では層流栓流モデル、 $l$ の区間では完全混合モデルが適用できると仮定すると、各区間の生残率の積となり、かつ、それぞれのUV感受性の微生物に対して計算するので、生残率 $S_{2L2M}$ は次式となる。

$$S_{2L2M} = a \left( \left[ \frac{D_1}{\{b+(1-b)c\}l/L\tau + D_1} \right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_1} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_1} cI\tau\right) \right\} \right) \\ + (1-a) \left( \left[ \frac{D_2}{\{b+(1-b)c\}l/L\tau + D_2} \right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_2} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_2} cI\tau\right) \right\} \right) \quad (76)$$

同様に、C型反応器では中央の $L-2l$ の区間では層流栓流モデル、両端の $l$ の区間では完全混合モデルと仮定した場合、C型反応器での生残率 $S_{2C2M}$ は次式となる。

$$S_{2C2M} = a \left( \left[ \frac{D_1}{\{b+(1-b)c\}l/L\tau + D_1} \right]^2 \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_1} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_1} cI\tau\right) \right\} \right) \\ + (1-a) \left( \left[ \frac{D_2}{\{b+(1-b)c\}l/L\tau + D_2} \right]^2 \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_2} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_2} cI\tau\right) \right\} \right) \quad (77)$$

次に、 $l$ の区間を栓流モデルに置き換えると、L型反応器での生残率 $S_{2L2P}$ は次式となる。

$$S_{2L2P} = a \left( \exp\left[-\frac{\{b+(1-b)c\}l/L\tau}{D_1}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_1} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_1} cI\tau\right) \right\} \right) \\ + (1-a) \left( \exp\left[-\frac{\{b+(1-b)c\}l/L\tau}{D_1}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_2} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-l/L}{D_2} cI\tau\right) \right\} \right) \quad (78)$$

また、C型反応器での生残率 $S_{2C1P}$ は次式となる。

$$S_{2C2P} = a \left( \exp\left[-\frac{2\{b+(1-b)c\}l/L\tau}{D_1}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_1} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_1} cI\tau\right) \right\} \right) \\ + (1-a) \left( \exp\left[-\frac{2\{b+(1-b)c\}l/L\tau}{D_1}\right] \left\{ b \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_2} I\tau\right) + (1-b) \exp\left(-\frac{1-2l/L}{D_2} cI\tau\right) \right\} \right) \quad (79)$$

$I$ 、 $a$ 、 $D_1$ 、 $D_2$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $l/L$ にそれぞれ1、0.99、1、10、0.99、0.1、0.1を代入して、図5-38の結果の一部にこれらの計算結果を追加して図5-41に示した。

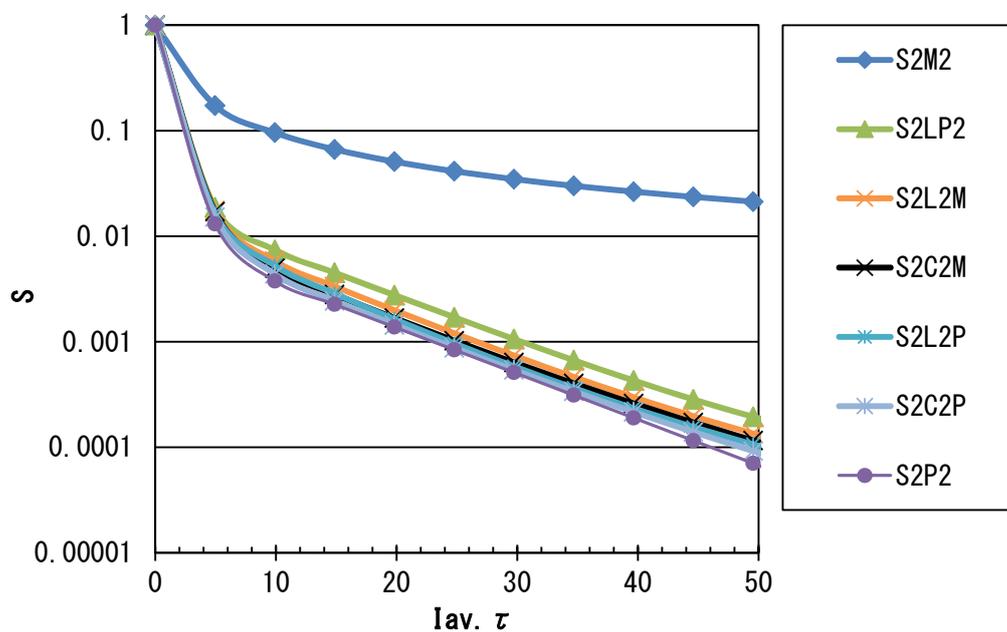


図5-41 2つの照射場が流れと並行にある場合のテーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-3

完全混合モデルの結果を除いては、それ以外の計算結果に顕著な差が生じなかった。つまり、反応器内の照度分布がほぼ均一であれば、流れによる生残率への影響が少ない。その確認のため、 $b$ に0.5を代入した場合を図5-42に示した。この場合、流れの影響は顕著であり、栓流モデルは不活化性能が高いので、層流栓流の中により多く栓流の領域がある方が不活化性能を高めることになる。

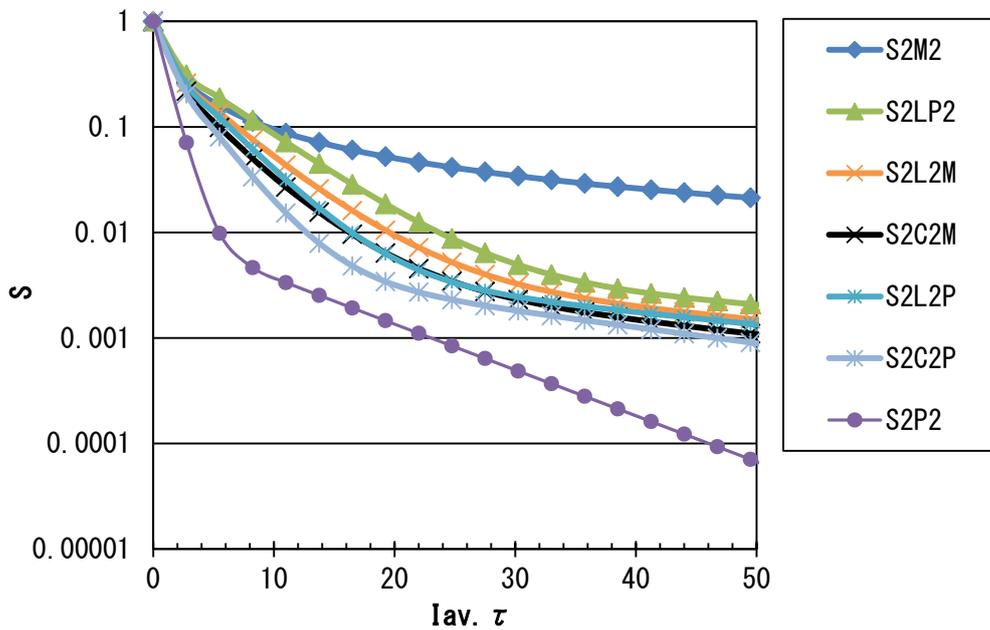


図5-42 2つの照射場が流れと並行にある場合のテーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響-4

### 5.6.3 流れ方向と直角に2つの照射場がある場合

ここでは、流れの方向に対して2つの照射場が直角にある場合の、流動特性が微生物不活化性能に与える影響について調べた結果をまとめる。この場合、通水するすべての水が照射場の強い領域と弱い領域を通過することになる。

#### 5.6.3.1 回分系の反応が1次反応の場合

回分系による反応が、式(41)で示した1次反応を仮定する。

##### (1) 完全混合モデル

完全混合すれば照度は平均値となり、生残率  $S_{2M1}'$  は式(60)、(61)と同じになる。

$$S_{2M1}' = \int_0^{\infty} \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_0} It\right\} \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (80)$$

$$= \frac{D_0}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_0} \quad (81)$$

##### (2) 槽列モデル

$n$  段の内、1段目から  $m$  段目までのUV照度が  $I$  で、 $m+1$  段目から  $n$  段目までのUV照度

が  $cI$  である場合、それぞれの照射場で求めた生残率の積となるので、生残率  $S_{2SI}'$  は次式となる。

$$S_{2SI}' = \left( \frac{D_0}{I\tau/n + D_0} \right)^m \left( \frac{D_0}{cI\tau/n + D_0} \right)^{n-m} \quad (82)$$

### (3) 層流栓流モデル

領域  $b$  での生残率と、残りの領域での生残率の積となるので、この生残率  $S_{2LP1}'$  は次式となる。

$$S_{2LP1}' = \exp\left(-\frac{b}{D_0} I\tau\right) \exp\left\{-\frac{(1-b)c}{D_0} I\tau\right\} \quad (83)$$

$$= \exp\left\{-\frac{b + (1-b)c}{D_0} I\tau\right\} \quad (84)$$

この式から、2つの照射場が流れと直角方向にある場合の層流栓流モデルでは、反応器内の平均 UV 照度を回分系の式に代入すればよいことがわかる。

### (4) 栓流モデル

栓流モデルは層流栓流モデルのように流れ方向には均一で、流れと直角方向には完全混合状態である。ここでは 2つの照射場が流れと直角方向にあるので、その完全混合状態は計算式に表れない。よって、生残率  $S_{2P1}'$  は層流栓流モデルと同じになる。

$$S_{2P1}' = S_{2LP1}' \quad (85)$$

$$= \exp\left\{-\frac{b + (1-b)c}{D_0} I\tau\right\} \quad (86)$$

### (5) 各流れモデルの比較

これらの結果を用いて各流れモデルでの平均 UV 照射量と生残率の関係を計算した。その結果を図 5-43 に示した。槽列モデルの段数  $n$  は 2、4、8 段について、そのうちの UV 照度が  $cI$  である領域の段数  $n-m$  は  $n$  の半分にして計算した。 $b$ 、 $c$ 、 $D_0$ 、 $I$  にはそれぞれ 0.99、0.1、1、1 を代入した。

完全混合モデル、層流栓流モデル、栓流モデルについては、図 5-31 と同じ結果である。その理由は、図 5.31 での計算式の UV 照度を平均 UV 照度に置き換えれば、各モデルが同じ式になるためである。

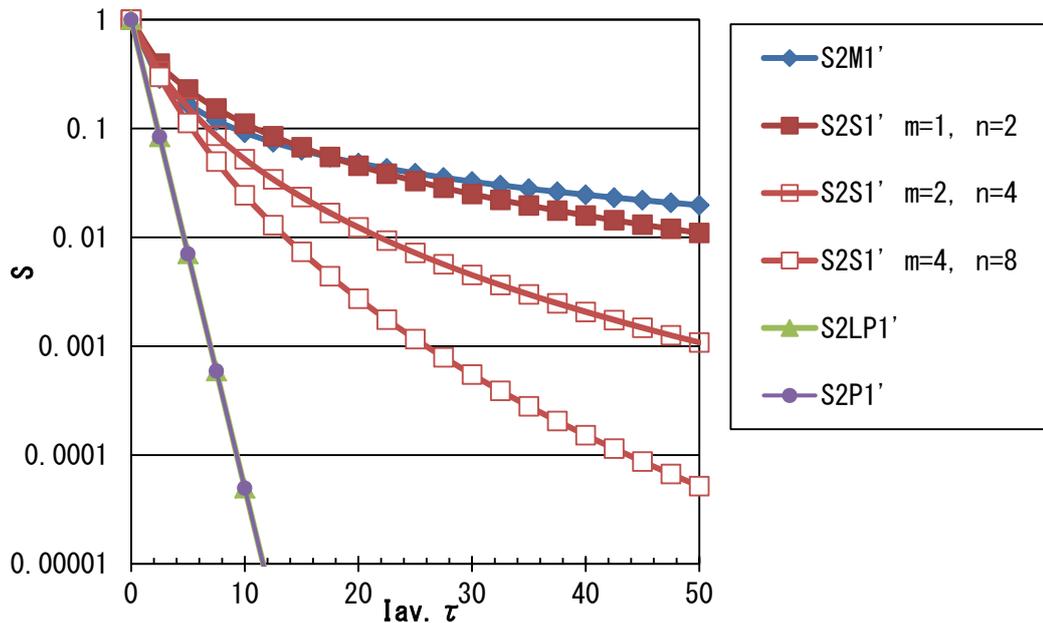


図5-43 2つの照射場が流れと直角にある場合の1次反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

### 5.6.3.2 回分系の反応がテーリング反応の場合

回分系による反応が、式(51)で示したテーリング反応を仮定する。

#### (1) 完全混合モデル

完全混合すれば照度は平均値となるので、生残率  $S_{2M2}'$  は式(81)、(82)と同じになる。

$$S_{2M2}' = \int_0^{\infty} \left[ a \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_1} It\right\} + (1-a) \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_2} It\right\} \right] \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (87)$$

$$= \frac{aD_1}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_1} + \frac{(1-a)D_2}{\{b+(1-b)c\}I\tau + D_2} \quad (88)$$

#### (2) 槽列モデル

$n$  段の内、1段目から  $m$  段目までの UV 照度が  $I$  で、 $m+1$  段目から  $n$  段目までの UV 照度が  $cI$  である場合、それぞれの照射場で求めた生残率の積となり、その生残率を各 UV 感受性微生物に対して計算するので、生残率  $S_{2S2}'$  は次式となる。

$$S_{2S2}' = a \left( \frac{D_1}{I\tau/n + D_1} \right)^m \left( \frac{D_1}{cI\tau/n + D_1} \right)^{n-m} + (1-a) \left( \frac{D_2}{I\tau/n + D_2} \right)^m \left( \frac{D_2}{cI\tau/n + D_2} \right)^{n-m} \quad (89)$$

### (3) 層流栓流モデル

領域  $b$  での生残率と、残りの領域での生残率の積となり、その生残率を各 UV 感受性微生物に対して計算するので、この生残率  $S_{2LP2}'$  は次式となる。

$$S_{2LP2}' = a \exp\left(-\frac{b}{D_1} I\tau\right) \exp\left\{-\frac{(1-b)c}{D_1} I\tau\right\} + (1-a) \exp\left(-\frac{b}{D_2} I\tau\right) \exp\left\{-\frac{(1-b)c}{D_2} I\tau\right\} \quad (90)$$

$$= a \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_1} I\tau\right\} + (1-a) \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_2} I\tau\right\} \quad (91)$$

ここで得られた式(91)も 1 次反応の場合と同様に、平均 UV 照度を回分系の式に代入した計算式となる。2 つの照射場が流れと並行にある場合に得られた式(84)では UV 照度の低い領域での生残率が全体の生残率低下を招いたが、2 つの照射場が流れと直角にある場合はその影響を受けない。

### (4) 栓流モデル

栓流モデルは層流栓流モデルのように流れ方向には均一で、流れと直角方向には完全混合状態である。ここでは 2 つの照射場が流れと直角方向にあるので、その完全混合状態は計算式に表れない。よって、生残率  $S_{2P2}'$  は層流栓流モデルと同じになる。

$$S_{2P2}' = S_{2LP2}' \quad (92)$$

$$= a \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_1} I\tau\right\} + (1-a) \exp\left\{-\frac{b+(1-b)c}{D_2} I\tau\right\} \quad (93)$$

### (5) 各流れモデルの比較

これらの結果を用いて各流れモデルでの平均 UV 照射量と生残率の関係を計算した。その結果を図 5-44 に示した。槽列モデルの段数  $n$  は 2、4、8 段について、そのうちの UV 照度が  $cI$  である京域の段数  $m$  は  $n$  の半分にして計算した。 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $D_1$ 、 $D_2$ 、 $I$  にはそれぞれ 0.99、0.99、0.1、1、10、1 を代入した。

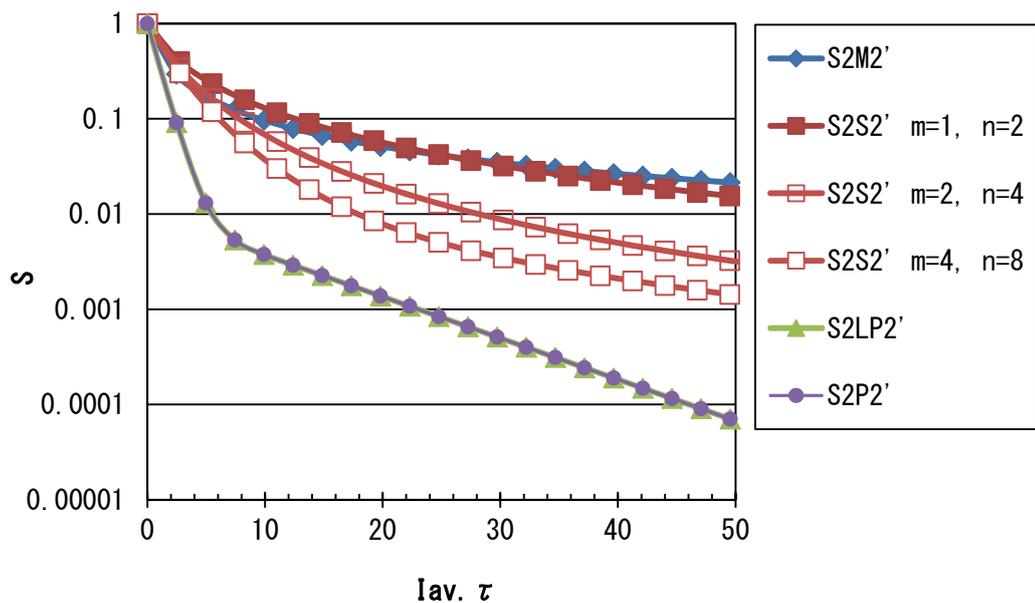


図5-44 2つの照射場が流れと直角にある場合のテーリング反応での微生物不活化に与える流動特性の影響

2つの照射場が流れと直角にある場合の1次反応と同じく、完全混合モデル、層流栓流モデル、栓流モデルは図5-34のUV照度を平均UV照度にすれば同じ結果であることを確認した。

### 5.7 まとめ

円筒形の流水式UV反応器を用いて、下水処理場で塩素消毒直前の処理水中の大腸菌群の不活化実験を行った。反応器には低圧水銀灯を1本使用したタイプと4本使用したタイプを用い、複数の反応器径で実験を行い、流量と生残率の関係を比較した。ランプ1本タイプでは反応器の内径が54mmから260mmを使用した。ランプ4本タイプでは158mmと260mmの内径の反応器を用いた。

54mmの反応器で得られた結果を用いて、拡散光モデルと層流栓流モデルを適用して、ここでの大腸菌群の不活化速度定数を求めた。槽列モデル、栓流モデル、層流栓流モデルを用いて実験結果と比較したが、これらの単一モデルでは実験結果は良好な一致が見られなかった。

そこで、2つの流れモデルを用いることを試みた。出入口付近の反応器内で一部が栓流で、それ以外の領域では層流栓流モデルが適用できると仮定した。その一部とは、出入口の線速度と反応器の代表直径に依存し、ランプ本数で異なるフィッティングパラメータが存在する。不活化速度定数はこのモデルで再度求めた。その結果、この複合モデルが実験結果全体を表現することができた。

微生物の不活化速度への流動特性による影響について調べた。流動特性としては、完全

混合モデル、槽列モデル、層流栓流モデル、栓流モデル、及びこれらの組合せモデルについて計算を試みた。光反応器内の照度には分布があるが、流れモデルによる差異を顕著に示すため、反応器内の照度分布は均一照射場と2つの照射場を仮定した。その2つの照射場については、流れ方向と照度分布が並行になっている場合と直角になっている場合について考察した。回分系での反応モデルとしては、1次反応とテーリング反応を選んだ。

均一照射場では、回分系での反応モデルに依らず、層流栓流モデルと栓流モデルは反応モデル式と同形の計算式となった。完全混合モデル、槽列モデルでは照射時間に分布が生じるため、回分系での不活化が1次反応であってもテーリングに類似した現象が生じた。流動特性で分布が生じれば、照射量分布が存在することから、テーリングが起こることが確認できた。

2つ照射場が流れ方向と並行している場合、1次反応での層流栓流モデルの計算式が、均一照射場でのテーリング反応における栓流モデルの場合の計算式と同形となった。その結果、UV照度が他の0.1倍となる領域を1%にただけで、生残率が照度の低い領域での影響を顕著に受けた。

2つ照射場が流れ方向と直行している場合、並行している場合と異なり、流れと直角方向に照度分布がないことから、均一照射場での式と同形になった。特に、層流栓流モデルでの計算式と栓流モデルでの式とが同じになったことから、回分系で1次反応となる反応系では1次反応速度式となり、テーリング反応のような挙動にはならなかった。

参考文献

(アルファベット／五十音順)

EPA: Design Manual Municipal Wastewater Disinfection, EPA/625/1-86/021 USEPA  
(1986)

Sugawara Takuo, Michio Yoneya and Hiroshi Ohashi; Performance Of Annular Flow  
Sterilizer Irradiated By A Germicidal Lamp, Journal of Chemical Engineering of  
Japan, 15 (5) p.406-411 (1981)

## 第 6 章 UV による微生物不活化に与える濁度の影響と流水式放射光反応器による不活化性能の検討

### 6.1 緒言

浄水用 UV 照射装置は、厚生労働省の水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針（厚生労働省、2007）により、地表水以外の水を原水とする浄水場で適用されるようになった。ただし、地表水を原水とする浄水場ではその指針以前に出された暫定対策指針の濁度 0.1 度以下となるようにろ過をすることとなっており、UV 照射設備の選択肢は示されていない。一方、アメリカでは 274 施設の浄水場で UV が採用されており、そのほとんどが地表水を原水とする浄水場である（Bolton, 2013）。

UV 照射反応器の性能は、UV の透過を阻害する濁質に影響を受けることは自明である。水道水質基準での濁度は 2 度以下とされている。UV 処理設備を採用する場合の被処理水についても、厚生労働省の対策指針では濁度 2 度以下を満たすこととしている。そこで、ここでは河川水を原水に濁度数度の被処理水が UV 照射反応器のクリプトスポリジウム不活化性能に及ぼす影響を調査することを目的とし、地表水を原水とした場合でのクリプトスポリジウム等の対する UV 照射設備の有効性を確認する。

クリプトスポリジウムは脊椎動物の腸内で増殖し、糞便とともに体外へ放出され、やがては浄水場の原水に入り込む恐れがある。ゆえに、原水中に含まれる耐塩素性病原生物や微生物は単独で存在するだけでなく、浮遊物や濁質などの固体に付着した状態で存在することも考えられる。クリプトスポリジウムを対象に UV による不活化を直接調査することは、クリプトスポリジウムの存在有無とその濃度が不確定であるため困難である。特に、ここでは河川水に自然の状態が存在するものを対象とすることが重要であるため、クリプトスポリジウムあるいは指標微生物を故意に添加しないこととした。

これを踏まえて、UV 照射反応器の微生物不活化性能の濁質による影響を調査するために被処理水に微生物を注入するのではなく、本調査を行う上で適した濃度で原水中に天然に存在する従属栄養細菌を用いることとした。濁度の高い水として河川水を使用し、濁度の低い水として浄水場で処理された工業用水を使用した。河川水と工業用水では水の透過率が異なるので、事前の調査として使用する UV 照射反応器性能の水の透過率の影響を調べた。

### 6.2 1 回目の調査

河川水を用いた実験を行う前に、使用する UV 照射反応器の性能評価をするため、水の透過率を変化させた通水実験と、通水実験に用いた微生物の不活化実験を行った。

#### 6.2.1 事前調査

##### 6.2.1.1 実験装置

通水実験には日本フォトサイエンス製 UV 殺菌装置 NPU-1/2N を用いた。本反応器の概略仕様は、内径 83.1 mm 長さ 290 mm、両端がキャップの形状になった円筒形反応器の中

心に、ランプ電力 16 W 発光長 276 mm の低圧水銀灯 1 本が外径 25 mm のランプスリーブ内に入っている。出入口管の内径は 15.7 mm で反応器と直角に位置し、その軸の中心は反応器の両端部より 30 mm にある。この反応器の概略図を図 6-1 に示す。

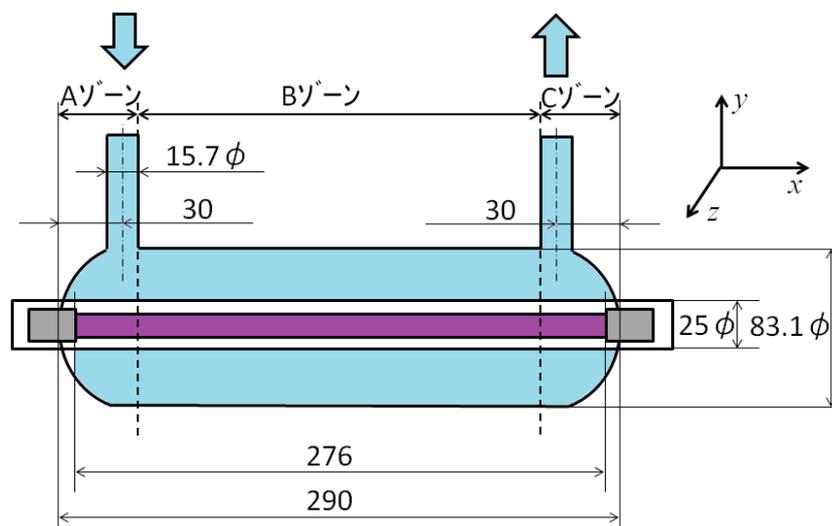


図 6-1 実験に使用した流水式反応器の概略図

### 6.2.1.2 実験方法

10 m<sup>3</sup>のタンクに水道水を約 3m<sup>3</sup>貯水し、チオ硫酸ナトリウムで次亜塩素酸ナトリウムを中和した後、MS2 フェージを 10<sup>6</sup> PFU/ml 程度になるように調整した。この水にネスレ日本製ネスカフェゴールドブレンドインスタントコーヒーを加えて水の透過率を変化させた。反応器が温まらない程度に少量を通水しながら点灯したランプが安定するまでの時間が経過した後、所定の流量を通水して反応器の容積の 3 回以上を放流した後採取した。この MS2 フェージの UV による不活化速度を調べるためにペトリ皿を用いて回分系での不活化実験を行った。その結果を図 6-2 に示した。MS2 の定量は環境微生物工学研究法に準じ、プラーク数を測定した。

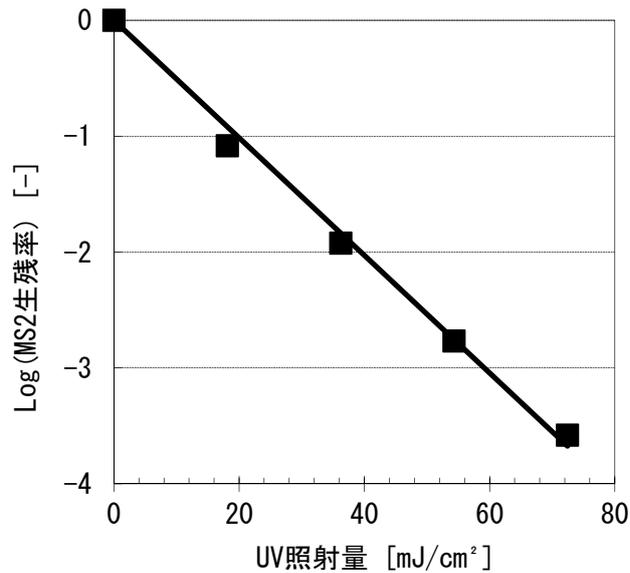


図6-2 1回目事前実験でのMS2を用いた回分系不活化実験結果

この回分系の不活化実験用反応器に用いたペトリ皿は液深さ 18mm で、上部液面を石英ガラス板で封じて満水にしてスターラーで被照射液を攪拌した。図に示した UV 照射量は照射時間と水の UV 透過率を考慮した平均 UV 照度の積である。UV 照度は液面位置で石英ガラス板がある場合とない場合を UV 照度計（ウシオ電機製紫外線積算光量計 UIT-250、受光部 UVD-S254）を用いて測定し、その平均値を用いた。図より 1 次反応であることから、次式で示される不活化速度定数  $D_0$  をその傾きから求めた。その結果、この不活化速度定数は  $8.55 \text{ mJ/cm}^2$  であった。

$$S_{B11} = \exp\left(-\frac{It}{D_0}\right) \quad (94)$$

ここで、 $S_{B11}$  は回分系の不活化実験での MS2 フェージの生残率、 $I$  は UV 照度、 $t$  は照射時間である。

### 6.2.1.3 実験結果

水の透過率は調整の結果、波長 254 nm 液厚さ 1 cm で 96.8%、89.9%、75.0% となった。各透過率での生残率を反応器内の平均滞留時間で整理して図 6-3 に示した。

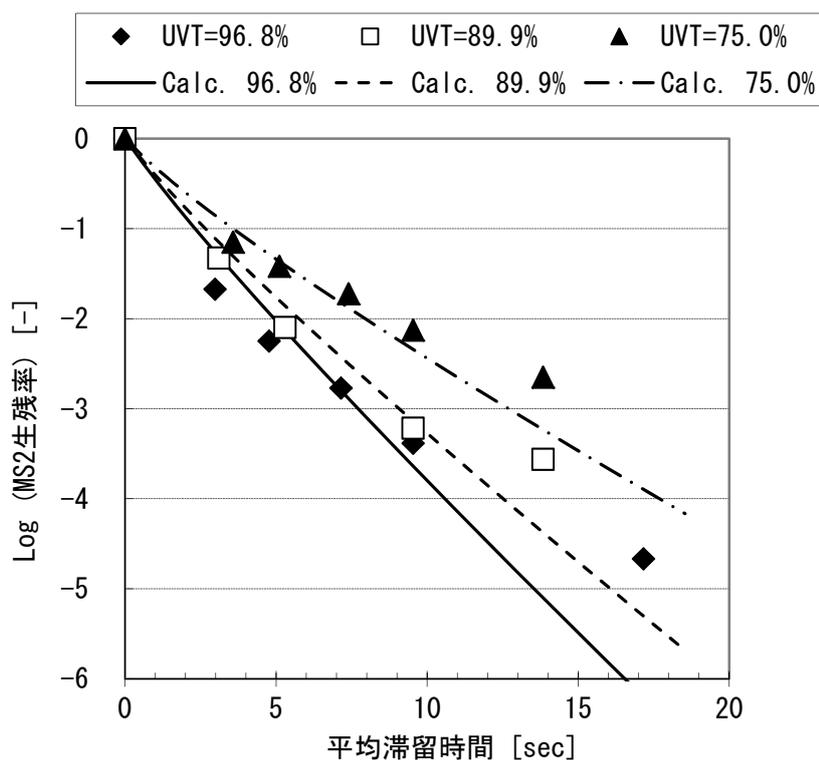


図6-3 1回目事前調査でのMS2を用いた通水実験結果

図中の Calc. 数値%は各水の透過率における計算の結果であり、これ以上も同様に表記した。本章の実験条件はランプ1本タイプであることから、5章で定義した式(34)の $h_p$ に1.5 sを代入して $\eta_p$ を算出した結果、0.99以上であった。よって、計算には流れモデルは図6-1に示したAゾーンとCゾーンは栓流モデル、Bゾーンは層流栓流モデルとし、配光特性は拡散光モデルを採用し、 $x$ 、 $y$ 、 $z$ 軸方向を100等分して計算した。式(8)の $k_D$ は17.0 mW/cmであった。計算では反応器の形状を両端にキャップのない円筒型とした。

栓流モデルでの生存率 $S_{P1}$ は次式となる。

$$S_{P1} = \prod_{i=0}^n \left( \frac{D_0}{I_{avi} \tau / 101 + D_0} \right) \quad (95)$$

ここで、 $I_{avi}$ は円筒軸に直角方向断面でのUV照度計算結果の平均値、 $n$ はAゾーンもしくはCゾーンの $x$ 軸方向に100等分したうちの数で本反応器では13である。層流栓流モデルでの生存率 $S_{LP1}$ と、全体の生存率 $S_1$ は次式となる。

$$S_{LPI} = \frac{1}{101-2n} \sum_{j=n+1}^{100-n} \exp\left\{-\sum_{j=n+1}^{100-n} I_{avj} (101-2n)\tau / D_0\right\} \quad (96)$$

$$S_1 = S_{PI}^2 S_{LPI} \quad (97)$$

ここで、 $I_{avj}$ は図6-1で示したBゾーン流れ方向に対する断面のUV照度の平均値である。計算結果は実験結果と概ね一致した。ゆえに、5章で示した流動モデルは本反応器において、1つの検証を確認できた。

## 6.2.2 濁度の影響調査

### 6.2.2.1 回分系の不活化実験

本流水式反応器の濁度による影響を調査するため、荒川を取水源としている某浄水場で凝集沈殿処理された工業用水（以下、工水と称す）とその浄水場の原水である河川水（以下、原水と称す）を用いて通水実験を行うこととした。工水は前塩素、消毒用塩素が入っていないろ過水である。また、これらの工水と原水を孔径  $5\mu\text{m}$  のフィルターでろ過した水と無ろ過の水で、天然に存在する従属栄養細菌（以下、HPCと称す）について不活化速度を調べるための回分系の不活化実験を行った。この実験用反応器は先の実験と同様で、液深さ  $17\text{mm}$  のペトリ皿を使用した。その結果を図6-4に示す。実験に使用した水の濁度（カオリン）、UV透過率（波長  $254\text{nm}$ 、液厚さ  $1\text{cm}$ ）、HPC濃度を表6-1に示す。

表6-1 1回目濁度の影響調査で使用した水の濁度、UV透過率、およびHPC濃度

	工水無ろ過	原水無ろ過	工水ろ過	原水ろ過
濁度 [度]	0.70	3.9	0.63	1.3
UV透過率 [%]	94.4	89.9	93.3	90.4
HPC濃度 [CFU/ml]	21,000	75,000	8,700	13,100

HPCの定量はR2A培地を使用し、希釈はリン酸緩衝液で希釈倍率を10倍にして測定した。

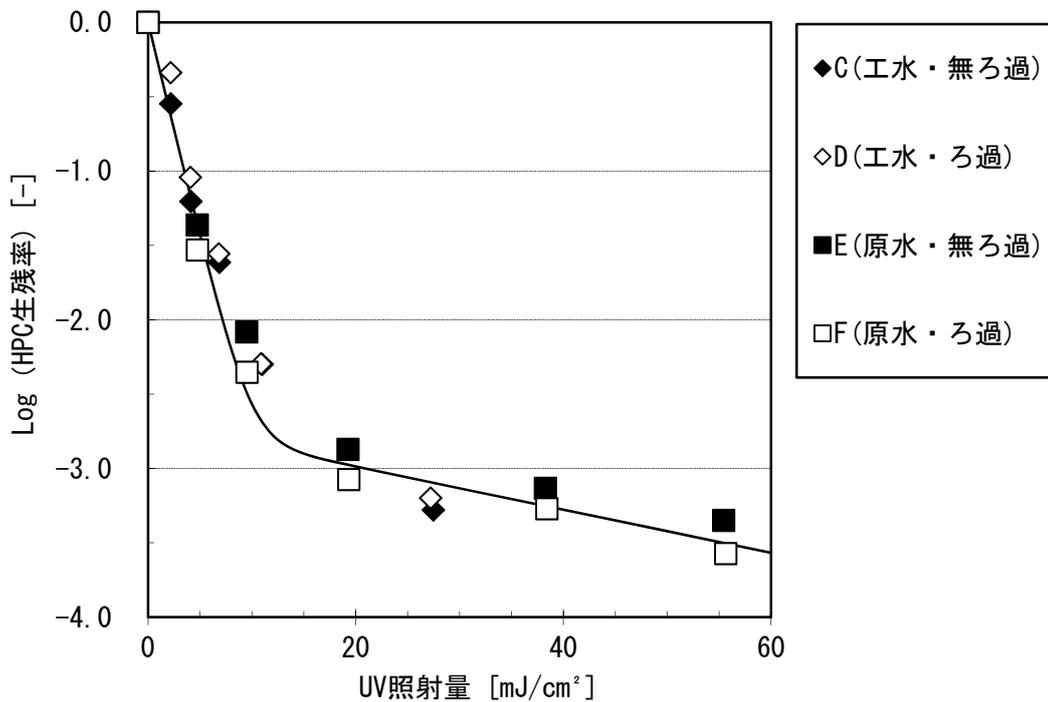


図6-4 1回目濁度の影響調査での従属栄養細菌を用いた回分系不活化実験結果

すべての実験結果でテーリングが観察され、かつ、不活化速度が一致した。この結果より、濁度が約4度以下においては処理水中に天然に存在するHPCのUVによる生残率が濁度の影響を受けないことが示唆された。つまり、少なくとも2種類のUV耐性の異なるHPCが存在することを意味する。図中に示した曲線は次式で示される本実験でのHPCの不活化速度式の計算結果である。

$$S_{B12} = a \exp\left(-\frac{It}{D_1}\right) + (1-a) \exp\left(-\frac{It}{D_2}\right) \quad (98)$$

ここで、 $D_1$ と $D_2$ は不活化速度定数でそれぞれ1.5、30 mJ/cm<sup>2</sup>、 $a$ は定数で0.998であった。

#### 6.2.2.2 通水実験

無ろ過の工水と原水を対象に本流水式反応器を用いて通水実験を行った。まず、被処理水を0.5 m<sup>3</sup>のタンクに満水になるまで貯水し、水中ポンプで流水式反応器に圧送し、ランプが安定するまでは反応器出口の水温が上昇しない程度の水量を流した。流量を調整して反応器容積の3倍以上を排水した後採水し、HPCの生残率を測定した。被処理水の水質は表6-1と同じで、水温は10.5°Cであった。結果を反応器内の平均滞留時間とHPC生残率で

整理して図 6-5 に示した。

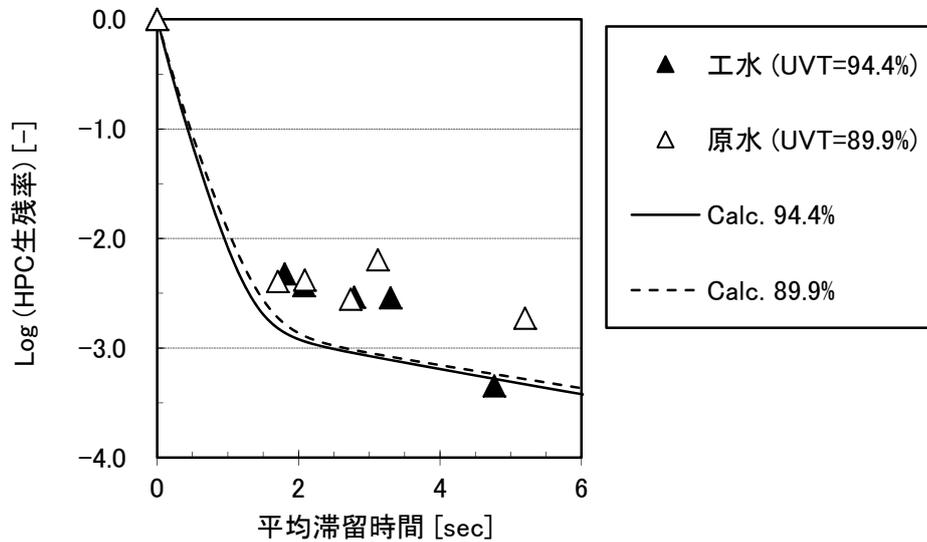


図6-5 1回目濁度の影響調査での従属栄養細菌を用いた通水実験結果

本実験でも濁度の影響は顕著に表れなかった。

先に示した計算方法と式(95)の回分系不活化実験の結果から、本通水実験の計算を行った。全体の生残率は次式で計算した。

$$S_2 = \frac{a}{101-2n} \prod_{i=0}^n \left( \frac{D_1}{I_{avi} \tau / 101 + D_1} \right) \sum_{j=n+1}^{100-n} \exp \left\{ - \sum_{j=n+1}^{100-n} I_{avj} (101-2n) \tau / D_1 \right\} + \frac{1-a}{101-2n} \prod_{i=0}^n \left( \frac{D_2}{I_{avi} \tau / 101 + D_2} \right) \sum_{j=n+1}^{100-n} \exp \left\{ - \sum_{j=n+1}^{100-n} I_{avj} (101-2n) \tau / D_2 \right\} \quad (99)$$

工水と原水で実験結果に顕著な差が生じなかったことは、本計算方法でも表現することができた。しかしながら、計算結果の方が実験結果より生残率が-1log程度低い場合があった。原因は不明であるが、実験汚染もしくは光回復があった可能性が考えられた。そこで、これらの影響を受けないように再度実験することとした。

### 6.3.2 2回目の調査

2回目の調査は1回目と概ね同様の実験を行った。

### 6.3.1 事前調査

本流水式反応器を用いて MS2 による通水実験を行った。ここで用いた MS2 の不活化速度は先と同じく 1 次反応であり、不活化速度定数  $D_0$  は  $9.25 \text{ mJ/cm}^2$  であった。

インスタントコーヒーによる処理水の UV 透過率は調整の結果 94.8% と 56.0% であった。その処理水を用いた通水実験の結果を図 6-6 に示す。ここでも先と同様に 5 章で提案した流れモデルで計算した結果、実験結果と概ね一致した。

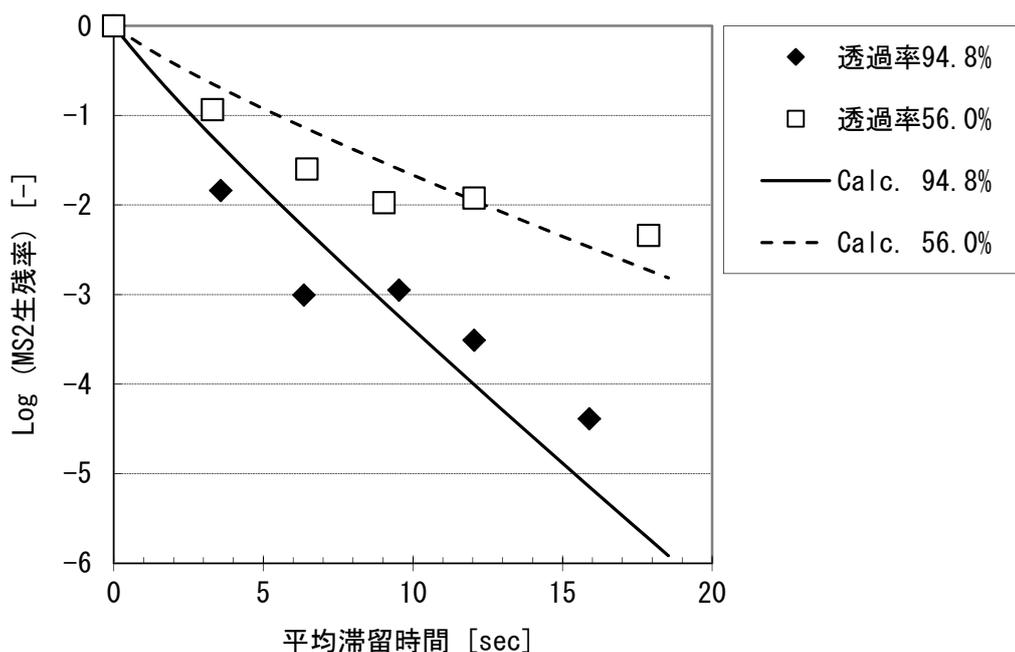


図6-6 2回目事前調査でのMS2を用いた通水実験結果

### 6.3.2 濁度の影響調査

#### 6.3.2.1 回分系の不活化実験

濁度の影響調査を目的とした某浄水場での 2 回目の回分系の不活化実験では、ろ紙によるろ過水を用いた実験は行わなかった。工水と原水の水質を表 6-2 に示す。

表 6-2 2 回目濁度の影響調査でで使用した水の濁度、UV 透過率、および HPC 濃度

	工水無ろ過	原水無ろ過
濁度 [度]	0.28	23
UV 透過率 [%]	93.3	67.6
HPC 濃度 [CFU/ml]	2,510	23,600

回分系の不活化実験は先と同様の方法で行った。その結果を図 6-7 に示す。前回と同様に工水と原水の不活化速度に顕著な差は見られなかった。よって、濁度が 20 度以上あっても

UV 照射による不活化速度には影響がないことが確認できた。図中に示した曲線は式(95)で示した  $D_1$  と  $D_2$  の不活化速度定数にそれぞれ 3.00、100  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ 、 $a$  に 0.99 を代入した結果である。

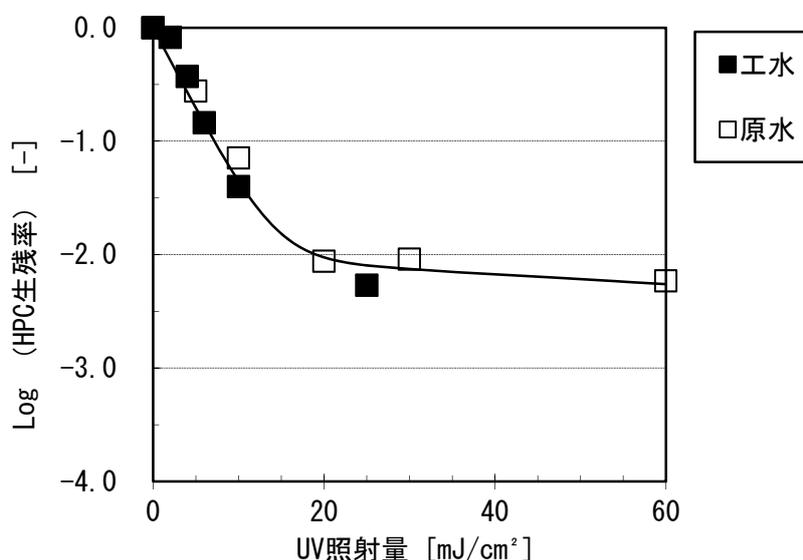


図6-7 2回目濁度の影響調査での従属栄養細菌を用いた回分系不活化実験結果

### 6.3.2.2 通水実験

先と同様の方法で表 6-2 の水を用いて通水実験を行った。水温は 23.5~24.2°Cであった。結果を反応器内の平均滞留時間と HPC 生存率で整理して図 6-8 に示した。図中の曲線は先と同様に計算した結果で、不活化速度定数は図 6-7 より得られた値を用いた。本実験条件での  $\eta_p$  は 0.99 以上であった。ここでは、1 回目より水の透過率の差が大きかったため、工水と原水の実験結果に顕著な差異が表れた。計算においても、工水の透過率と原水の透過率での計算結果に顕著な差異が表れた。しかしながら、実験結果と計算結果が一致せず、1 回目と異なり、計算結果より実験結果の方が低い生存率となった。この原因は不明であり、今後の課題である。

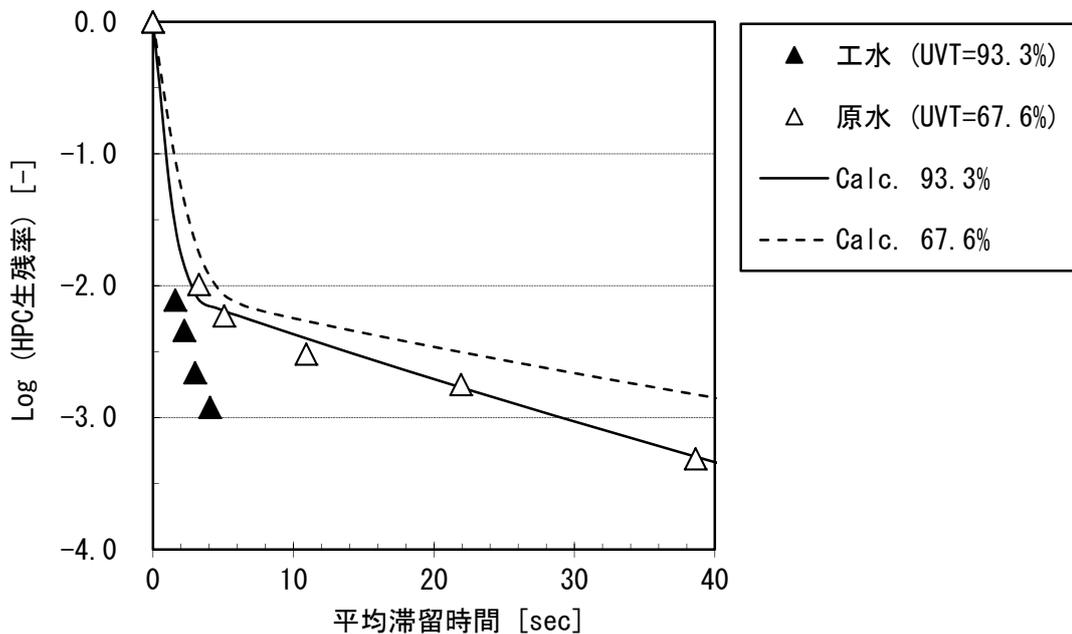


図6-8 2回目濁度の影響調査での従属栄養細菌を用いた通水実験結果

#### 6.4 まとめ

MS2 フェージを用いた通水実験による不活化実験結果と、5章で提案した流れモデルと拡散光モデルを用いた計算結果が、水の透過率が56.0～96.8%の範囲で概ね一致した。

濁度の異なる水として河川水と工業用水を用い、それらを5 $\mu$ mのろ紙でろ過した水を用い、ペトリ皿に入れて回分系のUV照射不活化実験を行った。その結果、濁度は0.63～3.9度の範囲となり、4つのサンプル水とも不活化速度がほとんど一致した。また、再実験で河川水と工業用水で同様の実験を行った結果、濁度は0.28度と23度となり、同様に不活化速度がほとんど一致した。よって、この濁度範囲では不活化速度に影響がないことが示唆された。

回分系の不活化実験で使用した無ろ過の水を用いて通水実験を行った。水の透過率に顕著な差があれば実験結果と計算結果はともに差異のある結果を示したが、計算結果は実験結果と一致しなかったため、この問題は今後の課題である。

参考文献

(アルファベット／五十音順)

Bolton James R.: Ultraviolet Treatment of Surface Waters to Control *Cryptosporidium*,  
JUVA ニュースレター, No.6, p2-8 (2013)

厚生労働省通知 健水発第 033005 号別添 :水道におけるクリプトスポリジウム等対策指針、  
平成 19 年 3 月 30 日 (2007)

## 第7章 結論

### 7.1 各章のまとめ

流水式放射光反応器は、UVにより微生物を不活化する用途に、水処理プラント内に広く用いられている。このような実装置規模の反応器に関して設計情報が得られることは、一定の価値があると考えた。そこで本研究では、実用的な流水式放射光反応器の性能評価と設計手法を確立することを目的に、UVによる微生物の不活化を評価手段に用いて、照度分布と流動分布による影響を調べた。照度分布は、光源の配光特性、水の透過率、及び微粒子によって変化する。流動分布は、反応器の形状と流量によって変化する。よって、これらを因子にして実験を行い、計算することを試みた。各章で得られた知見を、以下にまとめた。

#### 7.1.1 流水式放射光反応器の照度分布による性能への影響

照度分布による流水式放射光反応器の微生物不活化性能への影響を調べるために、流動分布が一定の条件で考察することを試みた。既存の配光特性には半径光モデル、透明光モデル、拡散光モデルがある。そこで、第3章では、UVを発する低圧水銀灯と高圧水銀灯の配光特性を調査した。その結果、両ランプとも拡散光モデルが適用できることを確認した。

また、水中において、光源を流れと直角に設置した反応器形状では透明光モデルと拡散光モデルでは、微生物の不活化性能に大差が生じないことを確認した。Annular型反応器で半径光モデルを用いて平均滞留時間との積でUV照射量を計算し、生残率を求めた。UV照度については、反応器壁面の値だけを用いた場合と、層流栓流モデルを適用して反応器全体のUV照度を加味した場合について調べた。ランプ近傍でのUV照度計算では拡散光モデルより半径光モデルの方が小さくなる。その影響を受ける反応器形状では、両者とも不活化性能が実験結果より計算結果の方が低くなる結果を示した。滞留時間に分布が生じない流動特性であっても照度分布が存在すれば、微生物の不活化性能にテーリング現象が起こることを示した。

#### 7.1.2 流水式放射光反応器の流動分布による性能への影響

第4章では、実装置規模のAnnular型反応器を用いて、水の透過率を変化させて微生物不活化の通水実験を行った。得られた結果を満足する流れモデルとして、槽列モデルと栓流モデルを用いた計算結果では実験結果と一致しなかった。そこで、流れ方向に均一で流れと直角方向に移動がないとする層流栓流モデルを用いて計算した結果、ここで使用した反応器での通水実験結果を説明することができた。

これ以外の計算として、反応器内壁近傍での平均UV照度と平均滞留時間との積で得られたUV照射量から計算した生残率で実験結果を説明でき、効果の推算に用いることの有用性が示された。

第5章では、水の透過率が一定の条件で、ランプ本数が1本と4本の低圧水銀灯を用いた実装置規模の円筒形反応器の直径を因子に、微生物の不活化性能を調べ、これらの結果を満足する流れモデルを検討した。4章で提案した層流栓流モデルを含む単一の流動モデルでは実験結果と計算結果が一致しなかったことから、2つの流れモデルを用いることを試みた。出入口付近の反応器内で一部が栓流で、それ以外の領域では層流栓流モデルが適用できると仮定した。その一部とは、出入口の線速度と反応器の代表直径に依存し、ランプ本数で異なるフィッティングパラメータが存在する。その結果、この複合モデルが実験結果全体を表現することができた。

また、流動特性による反応器性能への影響について一般的な情報を得るため、均一照射場における流動特性について計算により比較検討した。回分系の反応モデル式としては、1次反応と2つの1次反応を持つテーリング反応を選んだ。さらに、一部に低い照射場が存在する場合を仮定して、その照射場の低い領域が流水式反応器内で、流れ方向に対して並行している場合と直行している場合についても同様の比較検討を行った。

均一照射場では、反応モデルに依らず、層流栓流モデルと栓流モデルは回分系の反応モデル式と同形の計算式となった。完全混合モデル、槽列モデルでは照射時間に分布が生じるため、回分系での不活化が1次反応であってもテーリング現象が生じることを確認した。

2つ照射場が流れ方向と並行している場合、1次反応での層流栓流モデルの計算式が、均一照射場でのテーリング反応における栓流モデルの場合の計算式と同形となった。その結果、UV照度が他の0.1倍となる領域を1%にただけで、生残率が照度の低い領域での影響を顕著に受けた。

2つ照射場が流れ方向と直行している場合、並行している場合と異なり、流れと直角方向に照度分布がないことから、均一照射場での式と同形になった。特に、層流栓流モデルでの計算式と栓流モデルでの式とが同じになったことから、回分系で1次反応となる反応系では1次反応速度式となり、テーリング反応のような挙動にはならなかった。

第6章では、実用的な反応器としては小型のものを用いて、水の透過率を変化させて微生物の不活化実験を行い、その実験結果と5章で提案した流れモデルを用いて得られた計算結果を比較した。その結果、フィッティングパラメータとして5章で求めた値を用いて両者が一致したことから、この流れモデルの一つ検証ができた。

### 7.1.3 UVによる微生物不活化に与える濁度の影響

第6章では、UVによる微生物不活化について微粒子の影響を確認するため、濁度による微生物不活化への影響を調べた。濁度の異なる水として河川水と次亜塩素酸塩が入っていない工業用水を用い、それらを $5\mu\text{m}$ のろ紙でろ過した水を用い、ペトリ皿に入れて回分系のUV照射不活化実験を行った。その結果、濁度は0.63~3.9度の範囲となり、4つのサンプル水とも不活化速度がほとんど一致した。また、再実験で無ろ過の河川水と工業用水で同様の実験を行った結果、濁度は0.28度と23度となり、同様に不活化速度がほとんど

一致した。よって、この濁度範囲では UV による微生物不活化速度に影響がないことを示すことができた。

## 7.2 本研究のまとめ

流水式放射光反応器の性能評価と設計手法を確立することを目的に研究した結果、以下のことがわかった。

### 【性能評価方法】

- ・配光特性について、透明光モデルと拡散光モデルの計算結果が同等の値になる条件があるので、いずれの方が適当であるかを確認する場合、2つの測定点のうち1つは発光点と受光点を結ぶ長さに対するランプ中心から受光点までの鉛直距離の比が明らかに1より小さい位置を測定点として選ぶことである。
- ・反応器内の流動状態を説明できるモデルがあれば、その反応器を用いた通水実験の結果から不活化速度定数を求めることができる。
- ・円筒形反応器に光源を流れと直角に設置した反応器形状で、内径より発光長の方が同等以上の長さの場合、透明光モデルと拡散光モデルでは微生物の不活化性能に大差が生じない。
- ・照射場が均一になるように工夫された流水式放射光反応器の場合は、流動特性が栓流と層流栓流では顕著な差異が生じない可能性がある。
- ・回分系で1次反応になる反応系を選択して、流動特性を評価することが適当である。
- ・濁度 0.28~23 度の範囲で、UV による微生物の不活化に与える影響はない。

以上のことから、配光特性と流動特性の性能評価方法を示す主な成果として、以下の知見を得た。配光特性を確認するためには、光源に対する測定位置が光源の長手方向の中心付近で直角方向に発光長の 1/10 以上離れた位置での照度測定結果から各配光特性の式に含まれている係数を求め、発光点と受光点を結ぶ長さに対するランプ中心から受光点までの鉛直距離の比が明らかに1より小さい位置を選んで配光特性の各計算結果と比較して判断することが望ましい。流動特性を把握するためには、回分系で1次反応である反応系を選ぶことが望ましい。

### 【設計手法】

- ・流入と流出が反応器に対して直交している実装置規模の流水式放射光反応器について、流入流出部の線速度と反応器の代表直径に依存する変数で反応器内の流入部と流出部の一部が栓流になっており、かつ、それ以外の領域では層流栓流モデルが適用できると仮定したモデルを用いることにより、本実験条件下での設計手法として用いることができる。
- ・流水式放射光反応器から高い性能を得るには、栓流は理想的な流動特性である。

- ・照射場が均一になるように工夫すれば、流動特性が層流栓流であっても栓流と同程度の性能が期待できる。
- ・照射場が均一になるように工夫すれば、出入口が流れ方向に直角になっている反応器でも、その領域での流れの乱れによる影響を受けにくい。
- ・流れ方向と並行に不均一になっている場合、出入口が流れ方向に直角になっていれば、その影響が顕著に表れやすい。
- ・流れと直角方向に照度分布がある場合、層流栓流と栓流は同等の性能を持つ。
- ・設計条件の水の透過率とその反応器の容器寸法範囲で拡散光モデルと透明光モデルの比を求めれば、放射光反応器内の照度分布について両者が近似し得る条件を類推することができる。
- ・濁質による微生物不活化性能への影響は、原水中に天然に存在する微生物を用いて回分実験により確認できる。

以上のことから、実装置規模の流水式放射光反応器設計手法に関して得られた主な成果として、反応器内の一部に層流栓流モデルで説明できる流れが存在している可能性が高いので、その領域の照度分布が均一になるように光源の配列を工夫するか、栓流になるように反応器内の流れ分布を工夫することが、性能向上への期待とつながることを示すことができた。

本研究により、以上の成果が得られたことは、広い産業分野や公共事業に利用される実装置規模の流水式放射光反応器の性能評価と設計に役立つことが期待できる。

### 7.3 課題

ランプスリーブ 1 本もしくは 4 本を円筒軸と並行に取り付け、かつ、円筒軸に直交する出入口がある密閉された流水式円筒形放射光反応器について、光源の配光特性を確認した上で、栓流と層流栓流を組合せた流れモデルを適用すれば、性能を予想することができた。その流れモデルは、流入、流出の線速度と反応器の代表直径の関数であることを示した。しかしながら、その関数には定数が含まれており、ランプ本数が 1 本と 4 本では値が異なった。ランプ本数や反応器形状など条件が異なる場合は、同様の性能評価によりこの定数を求める必要がある。

## 謝辞

本研究の遂行にあたって、ご指導ご鞭撻いただきました多くの方々に、感謝の意を表します。

担当指導教官の神子直之教授には、論文作成にあたり直接ご指導を賜り、心より感謝いたしております。社会人である私がほとんど大学に足を運ぶことができなかつたことから、先生から助言をいただく場は、先生が出張で上京された機会に、あるいは夏のゼミ旅行の最中にと、場所も心境も選ばずご指導いただきました。

中島 淳教授、樋口能士教授には中間発表と公聴会でお世話になりました。その際、多岐にわたりご指導いただきました。心より感謝いたします。

立命館大学の研究室の学生諸氏とは、実験にご協力いただきこと、ゼミで議論できたこと、ゼミ旅行で一緒に過ごすことができたことなどあり、感謝いたします。

㈱日本フォトサイエンスのトーマ・キヨミツ・ケヴィン社長には、社会人としての大学への入学を理解いただき、推薦をしていただきましたことを感謝いたします。社員には実験面で協力いただき、感謝しております。また、初代中野浩二社長には、入社時からお世話になりました。深く感謝します。

私は学生 4 年間と修士の 2 年間は秋田大学で学びました。そこでの研究が本研究の基礎となりました。そこでご指導ご鞭撻いただきました当時の秋田大学菅原拓男教授と当時の秋田工業高等専門学校船山斎助手に心より感謝いたしております。

一般社団法人日本紫外線水処理技術協会では、同業者や有識者と技術面の議論をする機会をいただきました。皆様と出会い、刺激を受けて、社会人博士入学に挑戦することになりました。感謝しております。

最後になりますが、この入学を快諾し、応援してくれた家族に感謝いたします。

2013 年 8 月 20 日

山越 裕司