

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760427

研究課題名(和文)紫外発光ダイオードを用いた水処理装置の開発

研究課題名(英文)Development of water treatment devices using UV light emitting diodes (UV-LEDs)

研究代表者

小熊 久美子(Oguma, Kumiko)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・講師

研究者番号：00361527

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：無水銀光源として注目される紫外線発光ダイオード(UV-LED)を備えた小型浄水消毒装置を試作し、その性能を微生物不活化実験により評価した。実験の結果、UV-LEDは水中微生物(大腸菌、大腸菌ファージ)の不活化に有効であること、特に発光ピーク波長265nmおよび280nmのUV-LED素子が消毒光源として有望であること、UV-LED素子の自己発熱が発光効率を低下させるため装置設計において放熱性に配慮を要すること、流水式装置では水の流動条件が不活化効果に著しく影響すること、などが明らかとなった。本研究により、UV-LEDを用いた水消毒装置の有効性と将来の研究・開発へ向けた課題が明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：Light Emitting Diodes (LEDs) are getting more common as an innovative mercury-free light source, and LEDs emitting germicidal ultraviolet light (UV-LEDs) have become commercially available recently. To apply the new technology to water treatment systems, studies on the design of UV-LED reactors are particularly important. The challenges of this study were to develop a prototype of batch and flow-through water disinfection systems containing UV-LEDs and to examine the disinfection efficiencies for *Escherichia coli* and coliphage Qbeta. This study indicated that UV-LEDs with peak emissions at 265 nm and 280 nm are effective to disinfect water, and how to manage waste heat is an important factor at designing the device. Moreover, it was shown that the hydrodynamic conditions of target water is particularly important for flow-through water disinfection devices. This study provided key implications for the future application of UV-LEDs to water treatment.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・土木環境システム

キーワード：浄水処理 消毒 紫外線 発光ダイオード UV-LED

1. 研究開始当初の背景

下痢症を原因とする死亡者数は世界で年間 250 万人近くに上ると推計され、その約 90%は 5 歳以下の乳幼児であり、ほとんどは衛生的な飲み水へのアクセスが不十分な途上国で発生している (WHO 2011)。急速な都市化に直面する途上国の多くでは、経済的あるいは時間的な制約から、大規模集約型水道システムの建設だけで短期間に安全な水供給を達成することは困難である。そこで、水を飲用直前に消毒処理する Point-of-use (POU) 型小型浄水装置への期待が高まり、普及しつつある。また、途上国に限らず、遠隔地、被災地など水道給水が安定的に得られない地域での浄水装置や、水道水の安全性を高める目的で用いられる浄水器など、小型浄水装置に対する社会的ニーズは高い。

既存の POU 装置の多くは、ろ材や膜を用いて微生物を物理的に除去する方式か、使用者が塩素などの消毒剤を水に添加する方式であり、途上国の下痢症の低減に一定の効果を挙げている。しかしながら、ろ材や膜の維持管理が不適切なために除去率が著しく低下している事例や、消毒剤添加量の過不足や薬剤保管中の事故などの問題が多数報告されている。

紫外線照射による水の消毒が実用化されている。日本でも、2007 年施行の「水道におけるクリプトスポリジウム暫定対策指針」(厚生労働省)で紫外線消毒の浄水適用が認められて以降、浄水場での紫外線消毒の導入が増加傾向にある。紫外線消毒は、電源、光源、照射槽を基本構造としたシンプルな装置設計であり、小型化が比較的容易な技術である。薬剤添加が不要であり、使用者に求められる日常操作はランプのオンオフのみとなる。しかしながら、安価で広く普及している殺菌灯は蛍光管内に水銀を封入してあるため、輸送・保管中の破損や廃棄方法に特段の配慮が必要であり、途上国や遠隔地での装置普及の妨げとなりうる。加えて、万が一運転中にランプの破損事故が発生した場合、飲用水に水銀が混入するリスクを伴う。水俣条約の締結を受け、無水銀光源への移行が今後世界的に加速すると予想される。

近年、発光ダイオード (Light Emitting Diode, LED) 技術の躍進に伴い、殺菌紫外線を放射する紫外発光ダイオード (UV-LED) が市場に登場した。UV-LED は、エネルギー効率と寿命の面で未だ発展途上にあるものの、無水銀、超小型、堅牢、ウォームアップ不要、波長選択性が高いなどの優れた特徴を有し、従来の水銀紫外線ランプでは実現し得なかった利用方法や装置形状が可能になると期待される。小型浄水装置に UV-LED を組

込むことで、新規性の高い POU 装置を開発できる可能性がある。

2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、本研究では、UV-LED を利用した小型浄水消毒装置を作成し、その性能評価を通じて、UV-LED を利用した浄水処理装置の有効性と将来の研究・装置開発へ向けた課題を整理することを目指した。具体的には、以下を研究目的とした。

- (1) UV-LED の微生物不活化効率を実験的に明らかにする。バッチ式装置と流水式装置をそれぞれ作成し、性能を比較する。(H24 年度)
- (2) 発光ピーク波長の異なる三種の UV-LED (265, 280, 310nm) の性能を比較する。さらに、これら波長の組み合わせの効果を検証する。(H24 年度)
- (3) 前年度に作成した UV-LED 照射装置の課題を踏まえ、新たな流水式装置を作成し、その性能を実験および計算流体力学 (CFD) 解析により評価する。(H25 年度)
- (4) 二年間の成果を総括し、UV-LED を用いた小型浄水装置の有効性と課題を整理し、更なる研究開発に資する知見を得る。(H25 年度)

3. 研究の方法

(1) H24 年度

バッチ式および流水式の UV-LED 照射装置を作成した。UV-LED として、発光ピーク波長 265、280、310nm の UV-LED (DOWA エレクトロニクス製) を用いた。バッチ式実験では、10mm × 10mm の正方形基盤に UV-LED 素子を 3 × 3 で配置したものを三波長それぞれについて作成し、滅菌シャーレ (35mm) 丈夫に固定し、試料をスターラーで攪拌しながら紫外線を照射した。通水式実験では、12mm × 135mm の長方形基盤に UV-LED 素子を 1 × 10 で配列したものを三波長それぞれについて作成し、それらを三角柱状に組み合わせて、石英ガラス製の試験管内に収め、円筒スリーブ内に設置した。三波長の電源は独立とし、各波長の組み合わせを任意に設定できる装置設計とした。

(2) H25 年度

流水式装置の改良に際し、表面実装型 (SMD 型) の UV-LED 素子 (DOWA エレクトロニクス製、発光ピーク波長 280nm) を環状アルミ基板に計 20 個設置し、外側から内側の水塊に向けて照射するリング型装置

とした(図1上)。溶融石英管(外径 52mm × 内径 48mm, 長さ 400mm, 280nm 光透過率 90.7%/mm)の中央を原点、流れ方向を X、断面方向を Y とし、X=-100mm、0mm、100mm の三地点にそれぞれモジュールを設置し(図1下)、流量を変化させながら試料を通水した。水は循環させず、一度の通過(シングルパス)で得られる不活化効果を測定した。管路内の流動条件を CFD ソフトウェア OpenFOAM でシミュレートした。解析には simpleFOAM(非圧縮、定常乱流ソルバ)の乱流モデル k- SST を用いた。

本研究で作成したバッチ式、流水式、流水式リング型の装置外観を図2に示す。なお、いずれの装置でも、入力電流は UV-LED 素子一つあたり 20mA で運転した。

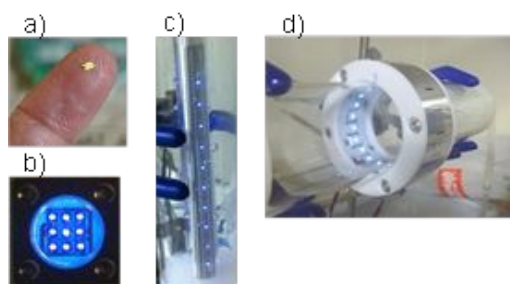
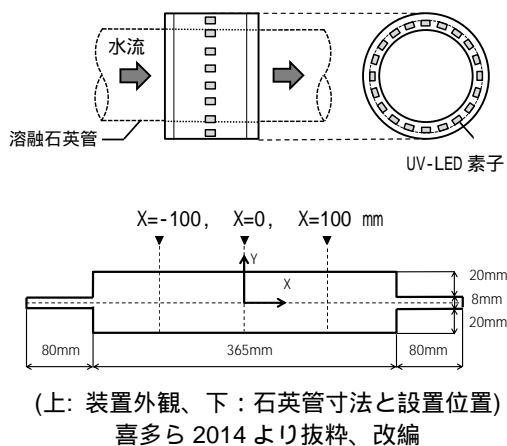


図2 UV-LED 単一素子 (a: ペアチップ) と本研究で開発した UV-LED 装置 (b: バッチ式, c: 流水式, d: 流水式リング型)

4. 研究成果

(1) H24 年度

発光波長 265nm と 280nm の UV-LED を用いた実験では、バッチ式、流水式いずれの装置でも大腸菌不活化率 4log 以上を達成し(図3) 水の紫外線消毒の光源として利用できるポテンシャルが高いことを示した。流水式装置では、バッチ式に比べて総じて不活化効率が低下し、さらに不活化直線にテー

リングを生じた(図3)。本実験に供した3波長の UV-LED を比較すると、照射時間あたりの評価では 280nm の素子が、照射線量あたりの評価では 265nm の素子が最も高い不活化効率を示し、今後の装置開発における波長選定に資する成果を得た。また、各単一波長を照射した場合と2波長または3波長を組み合わせて同時照射した場合の不活化効率を比較した結果、波長を組み合わせた場合に効率が低下する傾向を認めた。この現象は、複数波長への暴露による生化学的な影響としては説明しがたく、多数の UV-LED 素子を同時点灯させたことにより LED が発熱し、素子一つあたりの出力が低下した影響が大きいと推察された(Oguma *et al.* 2013)。UV-LED を用いた水処理装置の設計に際し、LED 点灯時の廃熱処理がきわめて重要であることを示す重要な知見となった。

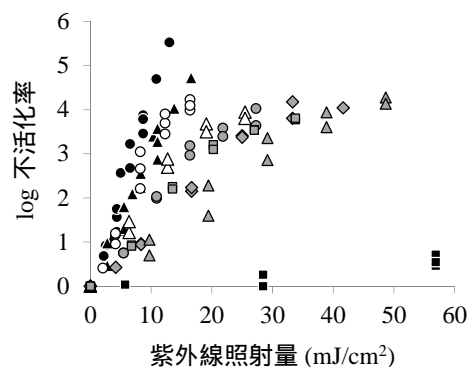


図3 バッチ式および流水式 UV-LED 装置による大腸菌の不活化

バッチ式: ピーク波長 ●265nm, ▲280nm, ■310nm, 流水式装置: ピーク波長 ○265nm, △280nm, ●265/280nm, ◆265/310nm, ▲280/310nm. /は組み合わせの意. Oguma *et al.* 2013 より一部改編

(2) H25 年度

H24 年度に作成した流水式 UV-LED 浄水装置では、ピーク波長 265nm および 280nm の UV-LED の有効性を確認したが、大腸菌の不活化直線にテーリングを生じ、装置内に滞留部分の存在が示唆された。よって、装置内の水の流動条件を考慮した装置形状の改良が望まれた。また、当該装置では UV-LED を石英スリーブ内に配置し照射槽内に浸漬したため、結果的に従来の水銀灯と類似の形状となり、小型で装置内配置の自由度が高いという LED の長所を十分に生かしきれていなかった。さらに、スリーブ内部に廃熱がこもりやすい形状であることも明らかとなった。そこで H25 年度は、光の照射方向について発想を逆転させ、円筒内の流水に対して外側

(壁面)から紫外線を照射するリング型装置を作成した(図2d)。

流水式リング型装置による大腸菌不活化実験の結果を図4に示す。流量600mL/minでX=100mmの位置で照射した場合、シングルパスで大腸菌の6log不活化を安定して達成した。一方、同条件における大腸菌ファージQBの不活化率はおよそ0.9logであり、水銀紫外線ランプを用いた既存研究における大腸菌と大腸菌ファージの紫外線感受性の差と同等であった。

また、装置の石英管への取り付け位置により不活化効果が異なり、大腸菌、大腸菌ファージQBともに、流入部から離れた箇所ほど不活化効果が高かった。CFD解析の結果、X=-100mmにおけるバックフローを伴う噴流が生じること、また、X=-100mmからX=100mmにかけて噴流から層流に遷移することが確認された。同様の傾向は、メチレンブルーを用いた水理実験によって目視でも確認された。すなわち、流入部近傍で短絡流が発生したためにX=-100mmでの不活化効果は低く、その後は流下に伴い短絡流の影響が小さくなったために不活化効率が次第に高くなった可能性が示唆された。

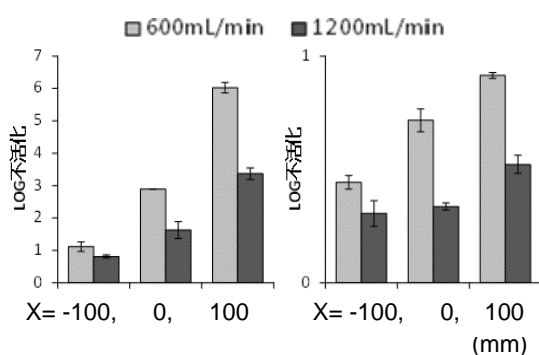


図4 流水式リング型UV-LED装置による不活化
(左:大腸菌、右:大腸菌ファージQ)
喜多ら2014より抜粋、改編

二年間の成果により、UV-LEDは水中微生物の不活化に有効であり消毒光源として有望な技術であること、特に発光ピーク波長265nmおよび280nmのUV-LED素子が微生物不活化に有効であること、UV-LED素子の廃熱が発光効率を低下させるため装置設計において放熱性に配慮を要すること、流水式装置では水の流動条件が不活化効果に著しく影響すること、などが明らかになった。本研究により、UV-LEDを用いた浄水装置の開発に資する有用な知見、および、今後の研究展開の方向性が示された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計6件)

Kumiko Oguma, Jatuwat Sangsanont, and Hiroyuki Katayama, Comparison between chlorination and UV disinfection of untreated wastewater after disasters, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, 2014, in press.

Hiroshi Sakai, Tatsuro Takamatsu, Kumiko Oguma, Michio Murakami, Koji Kosaka, Mari Asami, Satoshi Takizawa, Effects of Natural Organic Matter and Nitrate on the Behavior of NDMA during UV Irradiation and Chloramination, Journal of Water Supply: Research and Technology-AQUA, 査読有, 2014, in press.

An Thuan Do, Keisuke Kuroda, Takeshi Hayashi, Tran Thi Viet Nga, Kumiko Oguma, Satoshi Takizawa, Household Survey of Installation and Treatment Efficiency of Point-of-Use Water Treatment Systems in Hanoi, Vietnam, Journal of Water Supply: Research and Technology-AQUA, 査読有, 63(2), 154-161, 2014, doi:10.2166/aqua.2013.011

Kumiko Oguma, Ryo Kita, Hiroshi Sakai, Michio Murakami and Satoshi Takizawa, Application of UV light emitting diodes to batch and flow-through water disinfection systems, Desalination, 査読有, 328, 24-30, 2013.

Kumiko Oguma, Kentaro Izaki and Hiroyuki Katayama, Effects of salinity on photoreactivation of Escherichia coli after UV disinfection, Journal of Water and Health, 査読有, 11(3), 457-464, 2013.

高松達朗、酒井宏治、小熊久美子、小坂浩司、浅見真理、滝沢智、水中の共存物質がN-ニトロソジメチルアミンの紫外線分解と再生成に及ぼす影響、水環境学会誌、査読有、36(6)、175-181、2013。

[学会発表](計5件)

喜多諒、小熊久美子、酒井宏治、滝沢智、紫外発光ダイオード(UV-LED)を用いた外照式水処理装置の開発と性能評価、第48回日本水環境学会年会、2014年3月17日、東北大学、宮城県

小熊久美子、喜多諒、酒井宏治、滝沢智、紫外発光ダイオードを利用した水の消毒：研究動向と将来展望、第16回日本水

環境学会シンポジウム、2013年11月9日、
琉球大学、沖縄県

Kumiko Oguma, Ryo Kita, Hiroshi Sakai,
Michio Murakami, Satoshi Takizawa,
Evaluation of Water Disinfection
Systems using UV Light Emitting
Diodes, World congress of International
Ozone Association and International
Ultraviolet Association, 2013年9月24日,
ラスベガス, アメリカ合衆国

James R. Bolton and Kumiko Oguma, A
mathematical model to determine the
fluence rate distribution in a UV reactor
containing ultraviolet Light Emitting
Diodes, World congress of International
Ozone Association and International
Ultraviolet Association, Las Vegas, 2013
年9月22日, ラスベガス, アメリカ合衆国

Kumiko Oguma, UV disinfection :
Current Status and Future Perspectives,
IWA Aspire 2013 Workshop,
International Water Association, 2013年
9月11日, 大田, 韓国.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

小熊 久美子 (OGUMA, Kumiko)

東京大学・大学院工学系研究科・講師

研究者番号 : 00361527