

〈ノート〉

下水処理水中の残留医薬品類を対象とした光触媒層 / セラミック平膜ろ過処理システムの分解モデルの構築

本間 亮介¹⁾, 竹内 悠²⁾, 鮫島 正一³⁾
丹後 元秀⁴⁾, 西村 文武⁵⁾, 新井 喜明⁶⁾

¹⁾ 京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター
(〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2 E-mail: homma.ryosuke.6j@kyoto-u.ac.jp)

²⁾ 京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター
(〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2 E-mail: takeuchi.haruka.6m@kyoto-u.ac.jp)

³⁾ 株明電舎
(〒141-6029 東京都品川区大崎2-1-1 E-mail: sameshima-s@mb.meidensha.co.jp)

⁴⁾ 京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター
(〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2 E-mail: tango.motohide@gmail.com)

⁵⁾ 京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター
(〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2 E-mail: nishimura.fumitake.3n@kyoto-u.ac.jp)

⁶⁾ 株明電舎
(〒141-6029 東京都品川区大崎2-1-1 E-mail: arai-yo@mb.meidensha.co.jp)

概要

近年、下水処理水の再利用が注目されており、下水処理で分解しにくい化学物質(医薬品類)を効率良く分解する促進酸化処理の導入が期待されつつある。筆者らは、セラミック平膜上にTiO₂を保持させ、薬剤の添加を必要としないUV/TiO₂による促進酸化処理システムを考案した。本研究では、UV照射と・OHによる医薬品類の処理特性を定量的に評価し、UV照射強度を操作因子として、医薬品類の光分解速度と・OHによる酸化分解速度を定量的に評価した。また、医薬品類の分解効率の数理モデルを構築し、本処理システムの有用性を明らかにした。

キーワード: TiO₂, セラミック平膜, 医薬品類, 低圧水銀ランプ, シミュレーション解析

原稿受付 2022.6.7 原稿受理 2022.8.19

EICA: 27(2・3)9-18

1. はじめに

地球温暖化に伴う気候変動に伴い人類の活動に必要な水量の確保が困難となりつつある中、人類の活動が引き起こした環境汚染による水質の劣化から高度に処理された再生水の利用が注目されている。再生水の原水である下水処理水には、低濃度で生物体内にて効果を発揮する医薬品類が、下水処理場で十分に除去されずに残留している¹⁻³⁾ため、下水処理場を通じて水環境中に放流される医薬品類は、水域の生態系の健全性に影響を及ぼすことが指摘されている⁴⁾。そのうえ、今後の世界人口増加に従い、医薬品類の種類および使用頻度も増えていく一方である。従って、現在の排水処理方式として主流である生物処理では分解除去が困難な医薬品類に対しては適切な処理システムの構築が期待されている。

生物難分解性有機物の処理方式として、促進酸化処理の導入が期待されている⁵⁾。促進酸化処理とは、O₃やH₂O₂、光触媒などの物理化学的な処理を併用する

ことにより、活性酸素の中で酸化力と反応性が最も高い・OHを生成し、生物処理では分解が難しい難分解性物質を酸化分解処理する手法である⁶⁾。しかし、O₃やH₂O₂を使用する処理システムでは、連続的な薬剤の添加が必要であるため、ランニングコストが高いことが問題点として挙げられる⁷⁻⁹⁾。一方、光触媒を使用した処理システムでは、薬剤の添加を必要としないが、粉末の光触媒の流出や回収が困難であることが問題となっている¹⁰⁾。そのため、下水処理場をはじめとする水処理分野では、ランニングコストをはじめとした促進酸化処理の改善が強く求められている。

そこで筆者らは、半永久的に使用可能なTiO₂と、UVランプの組合せによる促進酸化処理に注目し、セラミック平膜上に粉末TiO₂のケーキ層を形成させ、TiO₂の保持と回収を可能としたUV/TiO₂層/セラミック平膜処理システムを考案した^{11,12)}。本処理システムでは、セラミック平膜ろ過と同時にTiO₂層上で・OHを生成し、効率的に医薬品類を分解することが期待できる。本研究では、実用化に向けた効率的な本

処理システムの実現に向けて、処理効率の可視化を目指し、はじめに、本処理システムにおける UV 照射および・OH による医薬品類 (Trimethoprim: TRI, 2-quinoxaline carboxylic acid: 2QCA, cyclophosphamide: CYC) の処理特性を定性的に評価した。

2. 実験方法

2.1 本処理システムの実験装置の概略と対象物質

UV/TiO₂ 層/セラミック平膜の実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。既往研究¹³⁾を参考に作成したセラミック平膜型反応器と TiO₂ 層/セラミック平膜型反応器 (TiO₂ 層の集積密度 12 g/m²) に、実験原水を流量 5.0 mL/min にて送液し、反応器内はデッドエンドろ過にて実験を行った。実験原水および実験装置内の水温は、恒温装置を用いて 25±1 °C の条件下とした。光源は、主波長 254 nm の低圧水銀ランプ UV254 (QCGL4W-21, 岩崎電気株式会社) を 4 本用いて、有効膜面に均一な照射強度で照射されるように設置した。また、UV 照射強度を安定させるために、実験開始 30 分前から実験装置外で予備点灯を行った。UV 照射強度の調整は、UV ランプと水槽水面の距離を変えることで行った。TiO₂ 層上の UV 照射強度は、UV-PadE (アルゴ社) にて水槽水面の UV 照射強度を測定し、Lambert-beer の法則より吸光度を考慮して推算した。水中の吸光度の測定には、紫外可視分光光度計 Aqualog (HORIBA 製) を使用した。また、原水中の溶存酸素 (DO) 濃度の測定は、溶存酸素メーター DO-5509 (マザーツール製) を用いた。

対象の医薬品類は、既往研究^{14,15)}より、UV 照射による光分解性、TiO₂ 吸着性の異なる TRI (抗生物質、分子量: 290.32, モル吸光係数 (254 nm): 7,809 M⁻¹ cm⁻¹, TiO₂ への吸着性: 高い), 2QCA (カルバドックス代謝物、分子量: 174.15, モル吸光係数 (254

nm): 7,227 M⁻¹ cm⁻¹, TiO₂ への吸着性: 低い), CYC (抗悪性腫瘍剤、分子量: 261.08, モル吸光係数 (254 nm): 394 M⁻¹ cm⁻¹, TiO₂ への吸着性: 低い) を対象とした。

2.2 実験原水の調整方法と分析方法

本研究で使用した各医薬品の原液は次の通り調製した。各医薬品を約 20 mg ずつ採り、メタノール (5000 倍濃縮残留農薬試験用, 富士フィルム和光純薬) で 200 mL に定容・希釈し、-30 °C にて暗所保管した (100 mg/L)。各実験で使用した実験原水は、2 L ガラス瓶に医薬品原液を 2 mL 分取し、窒素パージによりメタノールを揮発させた後、超純水 (Milli-Q 水) で 2 L に定容した。医薬品の各濃度は、実験原水のタンク内での吸着の影響を受けるため、100±50 μg/L の範囲になるように調製した。pH 自動コントローラーと NaOH, H₂SO₄ を用いて、pH 6.5 に調整した。

医薬品の濃度は、既往研究¹⁶⁾を参考に、液体クロマトグラフ UPLC (AQUITY, Waters) - タンデム質量分析計 MS/MS (Quattro micro API, Waters) を用い、絶対検量線法¹⁷⁾により定量した。Table 1 に、LC-MS/MS の測定条件を示す。

2.3 UV 照射強度の異なる実験系の検討方法

本処理モデルの構築に向けて、UV 照射強度に応じた k_{UV} と k_{OH} を把握するために、TiO₂ 層の集積密度 12 g/m², ろ過流量 5.0 mL/min の条件にて、水槽水面の UV 照射強度 0.05, 1.39, 9.20 mW/cm² における医薬品類の分解効率を評価した。採水は、ろ過開始後 10 分ごとに 60 分まで実施した。本検討では、光分解の処理効果を把握するために、TiO₂ を担持していない UV/セラミック平膜処理を対照実験として実施した。

液相中の平均 UV 照射強度 (0.05, 1.30, 8.62 mW/cm²) は、水槽水面の UV 照射強度 (0.05, 1.39, 9.20 mW/cm²) とセラミック平膜上の UV 照射強度 (0.04, 1.21, 8.04 mW/cm²) の値を足して 2 で割ることで求めた。

2.4 医薬品類の除去率, 反応速度定数の算出方法

実験原水および処理水中の医薬品類は、LC-MS/MS を用いて定量し、液相からの除去率を評価した。各処理水の液相から医薬品類の除去率は、式 1 により算出した。

$$\text{液相から医薬品類の除去率 (\%)} = (1 - Ct/C_0) \times 100 (\%) \quad (t = 10, 20, 30 \dots) \quad \text{式 1}$$

ここで、 C_t は採水時間 t (min) における処理水中の医薬品類の濃度 (μg/L) であり、 C_0 は実験原水の

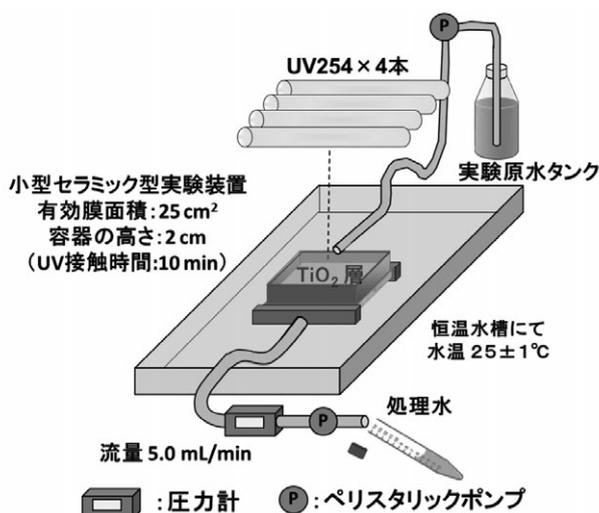


Fig. 1 UV/TiO₂ 層/セラミック平膜の実験装置の概略図

Table 1 LC-MS/MSによる TRI, CYC, 2QCA の分析条件

LC				MS/MS		
測定機器	Waters UPLC AQUITY			測定機器	Waters Quattro micro API	
カラム	Waters AQUITY UPLC BEH C18 (2.1 mm×100 mm, 1.7μm)			イオン化法	Electrospray Ionization (ESI)	
カラム温度	60℃				Positive Ion	Negative Ion
流速	0.35 mL/min			キャピラリー電圧	1.0 kV	1.0 kV
注入量	10μL			ソース温度	120℃	120℃
移動層	A: 0.1% ギ酸, B: メタノール			脱溶媒ガス温度	400℃	350℃
グラジエント	Time (min)	A (%)	B (%)	脱溶媒ガス流量	900 L/hr	600 L/hr
	0.00	90	10	カラムガス流量	50 L/hr	50 L/hr
	7.00	90	10			
	7.10	80	20			
	8.00	80	20			
	13.00	50	50			
	16.00	50	50			
	16.10	40	60			
	20.00	30	70			
	21.00	5	95			
	23.00	5	95			
	23.01	90	10			
	26.00	90	10			

物質名	RT (min)	Native			
		Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	CV (V)	CE (eV)
trimethoprim	4.95	291.04	123.07	42	26
cyclophosphamide	11.3	260.93	139.98	34	20
2QCA	7.77	174.94	101.99	26	28

液相中医薬品類の初濃度 (μg/L) である。

UV 照射による医薬品類の光分解は押し出し流れモデルとし、TiO₂ 層上の・OH による医薬品類の分解は完全混合モデルと仮定した (Fig. 2)。UV 照射による光分解速度定数 k_{UV} 、・OH における反応速度定数 k_{OH} は、Kim *et al.* と Yang *et al.*, Giri *et al.* の研究報告¹⁸⁻²⁰⁾ より、反応次数を擬一次反応とした。 k_{UV} と k_{OH} は、式 2、式 3 を用いて、実験原水と処理水中の医薬品の濃度とそれぞれの水理学的滞留時間 θ (s) から算出した。

$$C_t = C_0 \times \exp(-k_i \times \theta) \quad (t = 10, 20, 30\dots) \quad \text{式 2}$$

$$k_i = -1/\theta \times \ln(C_t/C_0) \quad (t = 10, 20, 30\dots) \quad \text{式 3}$$

ここで、 k_i (k_{UV} , k_{OH}) は、UV 照射による光分解速度定数 (s⁻¹) および・OH による医薬品類の反応速度定数 (s⁻¹) を示す。

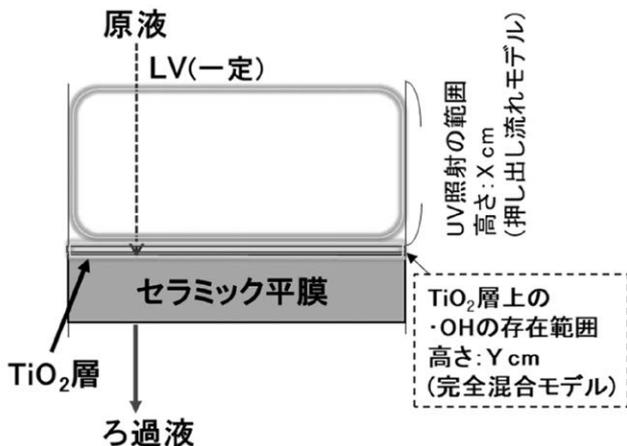


Fig. 2 本処理システムによる医薬品類の分解モデル

2.5 仮想リアクターによる本処理システムの分解モデル

本シミュレーションモデルでは、デッドエンドろ過方式の直方体型の反応器を想定し、反応器の左側に UV254 を設置し、反応器の右側に TiO₂ 層を形成させたセラミック平膜を垂直に設置した系を仮定した。水の流れは、光源側より実験原水が供給され、ペリスタリックポンプによって処理水が吸引される仕組みとなっている。本シミュレーションモデルでは、UV 照射による医薬品類の光分解モデルは押し出し流れモデルとし、TiO₂ 層上の・OH による医薬品類の分解モデルは完全混合モデルと仮定した。

定常状態時における本処理システムでは、医薬品類の物質収支は、“医薬品類の流入物質質量”に“光分解および・OH による医薬品類の反応量”を差し引くと、“医薬品の流出物質質量”が残る等式が成立する。従って、定常状態時における単位面積当たりの医薬品類の物質収支は、一定の流束であるため、式 4 のように示すことができる。

$$C_0 \cdot LV - K_{UV} \cdot dx - K_{OH} \cdot dy = C_P \cdot LV \quad \text{式 4}$$

$$K_{UV} = -dC_{UV}/dt = k_{UV} \cdot C_{UV} \quad \text{式 5}$$

$$K_{OH} = -dC_{OH}/dt = k_{OH} \cdot C_{OH} \quad \text{式 6}$$

- C_0 : 医薬品類の初濃度 (M)
- LV : 線速度 (m/s)
- K_{UV} : UV 照射による医薬品類の反応速度 (M/s)
- C_{UV} : UV 照射下における医薬品類の濃度 (M)
- C_{OH} : 酸化処理における医薬品類の濃度 (M)
- K_{OH} : ・OH による医薬品類の反応速度 (M/s)
- C_P : 処理水中の医薬品類の濃度 (M)
- x : UV 照射による光分解の範囲 (m)
- y : ・OH による酸化分解の範囲 (m)

本シミュレーション解析では、DO 濃度：8.26 mg/L、水温：25 °C、pH 6.5、光源：UV 254、医薬品類の実験原水濃度：100 µg/L、TiO₂ 層の集積密度：12 g/m²、ろ過流量 5.0 mL/min、有効膜面積 25 cm² の前提条件において、光源の UV 照射強度と液相中の波長 254 nm の透過率、光源と TiO₂ 層の距離を予め設定することで、UV 照射による光分解速度定数 k_{UV} と TiO₂ 層上の・OH による医薬品類の反応速度定数 k_{OH} をそれぞれ算出し、医薬品類の除去率を推算した。光源と TiO₂ 層の距離を変えた解析では、2~100 cm の範囲を設定した。光源の UV 照射強度を変えた解析では、0.50~100.00 mW/cm² の範囲を設定した。液相中の波長 254 nm の透過率を変えた解析では、既報の二次処理水 (72~90%) や、MBR 処理水 (61~94%)、二次処理水後の膜処理水 (61.0~99.9%)、MBR 処理水後の膜処理水 (71.1~99.9%) の透過率を用いて、60~100% の範囲を設定した²¹⁻²⁶。また、Kim *et al.* の報告を基に、促進酸化処理 (O₃/UV, O₃/H₂O₂, UV/H₂O₂) による 30 種の医薬品類の中でも、最も分解しにくい CYC を解析対象とした^{24,25}。そして、光源と TiO₂ 層の距離に応じた UV 照射と全過程による CYC の除去の寄与をそれぞれ明らかにし、光源と TiO₂ 層の距離の違いが、どのような影響を及ぼすのか考察した。なお、本モデルの実験条件は、UV254 の UV 照射強度：9.20 mW/cm²、光源と TiO₂ 層の距離 2~100 cm、液相の透過率 93.48% (実測値) とした。・OH による酸化分解の範囲は、都留らの報告²⁷ を参考にし、2.0 × 10⁻⁶ cm (接触時間：0.0006 s) と仮定して解析を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 UV 照射による医薬品類 3 種の処理特性の評価

液相中の平均 UV 照射強度 0.05, 1.30, 8.62 mW/cm² における定常状態時の各物質の除去率は、TRI が 1, 49, 85%, 2QCA が 4, 49, 92%, CYC が 0, 24, 32% であった (Table 2)。このことから、液相中の平均 UV 照射強度 0.05 mW/cm² では、十分にこれらの医薬品類を光分解できないことが明らかになった。なお、本実験の採水は定常状態時であることから、医薬品類の反応器内および TiO₂ への吸着は無視できる²⁸。

Table 2 液相中の平均 UV 照射強度 0.05, 1.30, 8.62 mW/cm² による TRI, CYC, 2QCA の除去率

		液相中の平均 UV 照射強度 (mW/cm ²)		
		0.05	1.30	8.62
医薬品類の除去率 (%)	TRI	1	49	85
	2QCA	4	49	92
	CYC	0	24	32

従って、液相中の平均 UV 照射強度 1.30, 8.62 mW/cm² の条件下では、どの医薬品類も UV 照射強度が大きくなると、その除去率は同様に大きくなることが明らかになった。

TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数は、式 3 に基づき、実験原水と処理水中の医薬品類の濃度と、UV 照射の接触時間 (10 分) から算出した (Fig. 3)。液相中の平均 UV 照射強度 0.05 mW/cm² における TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数は、どれも 0.00004 s⁻¹ 以下であり、光分解の効果は極めて低かった。TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数は、液相中の平均 UV 照射強度 1.30 mW/cm² の場合、それぞれ 0.0011, 0.0011, 0.0005 s⁻¹、液相中の平均 UV 照射強度 8.62 mW/cm² の場合、それぞれ 0.0027, 0.0033, 0.0007 s⁻¹ の値が導出された。

UV 照射による TRI および 2QCA の除去率は、全ての UV 照射強度において、同程度の除去率を示した。この理由は、TRI と 2QCA のモル吸光係数 (7,809, 7,227 M⁻¹ cm⁻¹) がほぼ同程度であったことが 1 つの要因として考えられる。2QCA が TRI よりも僅かに高い除去率を示したことは、化学物質の固有値である量子収率が TRI よりも高かったためであると思われる。次に、液相中の平均 UV 照射強度と TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数の関係性を考察した。その結果、液相中の平均 UV 照射強度と TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数の関係は、式 7 のように、Brosillon *et al.* の曲線の関数²⁹に従うことが明らかになった。

$$k_{UV}(I) = (a \cdot b \cdot I) / (1 + b \cdot I) \quad \text{式 7}$$

$k_{UV}(I)$: UV 照射強度 I における医薬品類の光分解速度定数 (min⁻¹)

a : 光分解速度定数に対する変換係数 (min⁻¹)

b : 平均 UV 照射強度に対する変換係数 (mW⁻¹ cm²)

I : 液相中の平均 UV 照射強度 (mW cm⁻²)

本研究で得られた TRI, 2QCA, CYC の反応速度

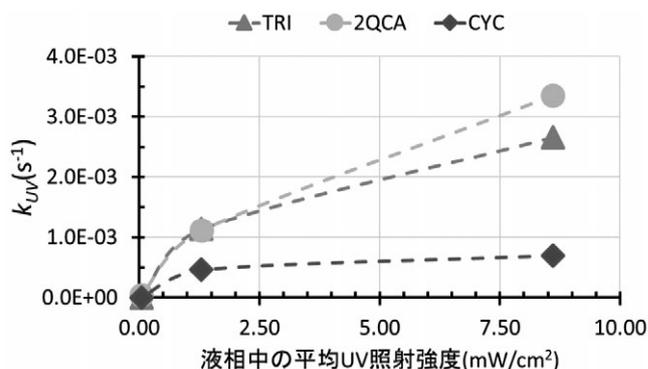


Fig. 3 UV 照射強度に応じた TRI, CYC, 2QCA の光分解速度定数の予測値

定数に対する変換係数 a および b は、実験条件である液相中の UV 照射強度 3 点 (0.05, 1.30, 8.62 mW/cm²) と、式 5 を用いて実験値から抽出した光分解速度定数の連立方程式の解を解くことで算出した。TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数と平均 UV 照射強度に対する変換係数 a および b は、それぞれ 3.50×10^{-3} , 5.21×10^{-3} , $7.73 \times 10^{-4} \text{ min}^{-1}$, 3.68×10^{-1} , 2.09×10^{-1} , $1.15 \text{ mW}^{-1} \text{ cm}^2$ の値を示した。本実験結果が曲線の関数を示した理由は、医薬品類の光分解速度定数が UV 照射強度と医薬品の濃度を含む関数であったためと考えられる²⁹⁾。従って、下水流入水や病院排水中に含まれる医薬品類の溶存濃度^{1,30-32)} (TRI : 0.12~10 $\mu\text{g/L}$, 2QCA : 0.02 $\mu\text{g/L}$, CYC : 0.02~22 $\mu\text{g/L}$) は、本実験で用いた数百 $\mu\text{g/L}$ 程度の医薬品類の濃度よりも極めて小さい値であるため、同じ UV 照射強度の値でも、より低い光分解速度定数となることが示唆される。

3.2 TiO₂ 層上の・OH による医薬品類 3 種の処理特性の評価

TiO₂ 層上の・OH による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数を算出するために、式 7 を用いて、TiO₂ 層上の・OH と反応する直前の TRI, 2QCA, CYC の濃度を推算した (Table 3)。・OH による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数は、Table 3 の結果、式 3 から算出した。その結果、TiO₂ 層上の・OH による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数は、TiO₂ 層上の UV 照射強度 8.04 mW/cm² の場合、それぞれ 2,160, 1,960, 1,040 s⁻¹, TiO₂ 層上の UV 照射強度 1.21 mW/cm² の場合、それぞれ 1,420, 977, 673 s⁻¹ が導出された。・OH による

医薬品類の反応速度定数は、式 5 と同様に、TiO₂ 層上の UV 照射強度が大きくなると、UV 照射強度に関わらず、一定の値になることが示唆された (Fig. 4)。なお、TiO₂ 層上の UV 照射強度 0.04 mW/cm² の条件は、医薬品類の十分な分解が確認されなかったことから、TiO₂ 層上の・OH による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数は導出できなかった。

次に、TiO₂ 層上の UV 照射強度と TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数の関係性を考察した。その結果、TiO₂ 層上の UV 照射強度と TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数の関係は、式 8 のように、Brosillon *et al.* や Montoya *et al.* の曲線の関数に従うことが明らかになった^{29,33)} (Fig. 4)。

$$k_{\cdot\text{OH}}(I) = (c \cdot d \cdot I) / (1 + d \cdot I) \quad \text{式 8}$$

- $k \cdot \text{OH}(I)$: UV 照射強度 I における医薬品類の反応速度定数 (min⁻¹)
- c : 反応速度定数に対する変換係数 (min⁻¹)
- d : TiO₂ 層上の UV 照射強度に対する変換係数 (mW⁻¹ cm²)
- I : TiO₂ 層上の UV 照射強度 (mW cm⁻²)

本研究で得られた TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数に対する変換係数 c および d は、実験条件である TiO₂ 層上の UV 照射強度 3 点 (0.04, 1.21, 8.04 mW/cm²) と、式 8 を用いて実験値から抽出した反応速度定数の連立方程式の解を解くことで算出した。TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数と TiO₂ 層上の UV 照射強度に対する変換係数 c および d は、それぞれ 2,380,

Table 3 TiO₂ 層上の・OH と反応する直前の TRI, CYC, 2QCA の濃度の推定

	UV/TiO ₂ 層/セラミック平膜における平均 UV 照射強度の寄与		
	TRI (8.62 mW/cm ²)	2QCA (8.62 mW/cm ²)	CYC (8.62 mW/cm ²)
UV/TiO ₂ 層 / セラミック平膜ろ過における医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	139.3	53.4	101.9
反応速度定数 k_{UV} (s ⁻¹)	2.66.E-03	3.35.E-03	7.02.E-04
TiO ₂ 層上の・OH と反応する前の医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	28.3	7.16	66.9
	TRI (1.30 mW/cm ²)	2QCA (1.30 mW/cm ²)	CYC (1.30 mW/cm ²)
UV/TiO ₂ 層 / セラミック平膜ろ過における医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	106	49.7	92.1
反応速度定数 k_{UV} (s ⁻¹)	1.13.E-03	1.11.E-03	4.63.E-04
TiO ₂ 層上の・OH と反応する前の医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	53.7	25.5	69.7
	TRI (0.05 mW/cm ²)	2QCA (0.05 mW/cm ²)	CYC (0.05 mW/cm ²)
UV/TiO ₂ 層 / セラミック平膜ろ過における医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	131	58.3	87.4
反応速度定数 k_{UV} (s ⁻¹)	N.A.	3.76E-05	N.A.
TiO ₂ 層上の・OH と反応する前の医薬品類の初濃度 ($\mu\text{g/L}$)	131 (光分解しないと仮定し、算出)	57	87.4 (光分解しないと仮定し、算出)

N.A : Not Available

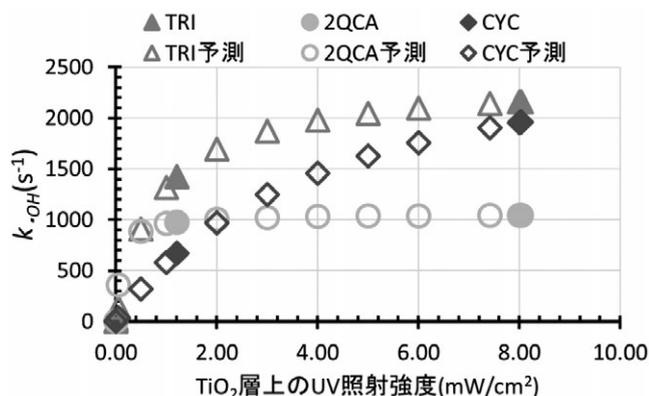


Fig. 4 UV 照射強度に応じた TiO_2 層上の $\cdot\text{OH}$ による TRI, CYC, 2QCA の反応速度定数の予測値

2,960, 1,060 min^{-1} , 1.23, 2.43×10^{-1} , $1.02 \times 10 \text{ mW}^{-1} \text{ cm}^2$ の値を示した。本実験結果が曲線の関数を示した理由は、 $\cdot\text{OH}$ による医薬品類の反応速度定数が UV 照射強度と医薬品の濃度を含む関数であったためと考えられる^{29,33)}。

次に、式 6 と TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数に対する変換係数 c , d を用いて、 TiO_2 層上の UV 照射強度 0.00, 0.05, 0.50, 1.00, 1.21, 2.00, 3.00, 4.00, 5.00, 6.00, 7.00, 8.00, 8.04 mW/cm^2 における $\cdot\text{OH}$ による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数を推算した (Fig. 4)。これらの推定値の結果から、本実験条件において、 TiO_2 層上の UV 照射強度を 8.04 mW/cm^2 よりも大きくしても、医薬品類の反応速度定数はどれも一定の値に近づくことが示唆された。そのため、UV 照射による医薬品類の光分解と同様に、エネルギー対効果が悪くなるものと予想される。

TiO_2 層上の $\cdot\text{OH}$ による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数は、既報の促進酸化処理 (O_3/UV , $\text{O}_3/\text{H}_2\text{O}_2$, $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$) の反応速度定数 ($2.7 \times 10^{-4} \sim 2.2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$)³⁴⁻³⁷⁾ と比較すると、約 10^6 倍以上の高い値を示した。この理由は、 TiO_2 層上に集中的に $\cdot\text{OH}$ を生成し、ろ過と同時に TiO_2 層上で医薬品類と $\cdot\text{OH}$ の接触効率が上がる処理システムとなっていたためと考えられる。しかし、本処理システムは、 TiO_2 層との接触時間を大きく改善するには、流束を遅くする必要があるので、現実的には TiO_2 層を何段階も透過するような連段型の処理システムであることが望ましいように考えられる。

以上のことから、本処理システムにおける TiO_2 層の形成は、分解しにくい医薬品類を短時間で効率良く分解できる特徴を持つことから、本処理システムが医薬品類の分解に対して有効であることが明らかとなった。さらに、 $\text{O}_3/\text{H}_2\text{O}_2$ や $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$ のような促進酸化処理でも分解されにくい CYC を、本処理システムでは効率良く分解できることが確認された。

3.3 仮想リアクターにおける光源と TiO_2 層の距離による分解効率への影響

光源と TiO_2 層の距離が 20 cm 以上ある場合には、全過程における CYC の除去率は、UV 照射による除去の寄与が大きくなった (Table 4)。また、光源と TiO_2 層の距離が 4 cm 以上ある場合には、CYC の除去は UV 照射のみで約 50% 以上を占めた。この理由は、光源と TiO_2 層の距離が広がるにつれて、UV 照射の接触時間が長くなったためである。一方で、光源と TiO_2 層の距離が 2 cm の場合には、UV 照射では CYC を 34% しか除去できず、UV 照射による除去の寄与が小さくなることが明らかになった。しかし、 TiO_2 層を併用すると、その CYC の除去が約 46% も向上することが明らかになった。以上より、押し出し流れ式の反応型を想定した際には、 TiO_2 層上の $\cdot\text{OH}$ の高い反応速度定数 k_{OH} を効率良い設計は、小型の実験装置にすることが望ましいと考えられる。さらに、高い反応速度定数 k_{OH} に対して、 TiO_2 層の接触時間を増やす方法としては、連段型の反応器に設計することが挙げられる。つまり、光源と TiO_2 層の距離を 10 cm にした反応器を用いなくとも、光源と TiO_2 層の距離が 2 cm の反応器を 2 台用意できれば、全過程における CYC の除去率は 96% 以上となる。従って、UV/ TiO_2 層/セラミック平膜処理システムは、とりわけ省スペース化を求められる施設や地域に対して、実用性があるものと考えられる。

次に、下水処理場の消毒槽における UV ランプの UV 照射強度と接触時間の観点から、本解析の CYC の除去率に対する考察を行った。既存の下水処理場における UV 照射装置の設計は、紫外線消毒ガイドラインに従って、「紫外線照射槽を通過する水量の 95% 以上に対して紫外線 (253.7 nm 付近) の照射量を常時 10 mJ/cm^2 以上確保できるものでなければならない³⁸⁾」と定められており、具体的な UV ランプの UV

Table 4 本シミュレーション解析における光源と TiO_2 層の距離が異なる場合の設定条件と CYC の除去率

光源と TiO_2 層の距離 (cm)	2	4	6	8	10	20	30	50	100
TiO_2 層上の照射強度 (mW/cm^2)	8.04	7.03	6.14	5.37	4.69	2.39	1.22	0.32	0.01
UV 照射の接触時間 (min)	10	20	30	40	50	100	150	250	500
UV 照射による CYC の除去率 (%)	34	57	71	81	87	98	100	100	100
全課程における CYC の除去率 (%)	80	86	90	93	95	99	100	100	100

照射強度と接触時間は定まっていない。従来の下水処理場のUV254による消毒(光源のUV照射強度:約10~30 mW/cm², 消毒槽内の任意地点での液相中のUV照射強度:2.5~7.5 mW/cm²)では、接触時間が数秒~数十秒程度である³⁹⁻⁴¹⁾。このことから、従来の下水処理場のUV消毒槽に本処理システムを設置しても、CYCのような分解しにくい医薬品類は、UV照射のみでは、十分に除去できないと示唆される。しかし、デッドエンド型の本処理システムをクロスフロー型として利用できれば、従来の下水処理場であっても光源近くに本処理システムを導入し、TiO₂層上の・OHによって、医薬品類の除去を効率良く行うことができるものと思われる。従って、クロスフロー型における本処理システムのTiO₂層の保持が今後の課題の1つとして挙げられる。

以上のことから、本解析では、押し出し流れ式の反応型を想定した処理システムであれば、連段型の設計が適していると考えられ、クロスフローろ過が適応可能であれば、実下水処理でのUV消毒槽内導入できる可能性が期待できることが示唆された。また、TiO₂層上の・OHによるCYCの分解効率が高かったことから、省スペース化を意識した施設や、分解しにくい化学物質を効率良く取り除きたい利用用途(水産用水、農業用水、家庭用飲料水利用等)にも実用性が見込まれるものと考えられる。しかし、下水処理水中には、溶存有機物や無機イオンなどのラジカルスカベンジャーが多く含まれているため、その影響を調査することは、今後の必要不可欠な課題になるものと考えられる。

3.4 仮想リアクターにおける光源のUV照射強度による分解効率への影響評価

光源のUV照射強度を大きくすると、UV照射および全過程におけるCYCの除去率は、理論通り向上した(Table 5)。UV照射および全過程によるCYCの除去率は、100.00 mW/cm²に近づくにつれて、それぞれ37, 88%に収束し、各々の限界があることが示唆された。この理由は、UV照射強度が高くなると、光分解速度定数と・OHによる反応速度定数が一定の値に収束するため、CYCの除去率に対する限界が生じたためと考えられる。

次に、光源のUV照射強度が異なる場合における、UV照射と全過程によるCYCの除去率の差に着目した。

本解析では、UV照射と全過程によるCYCの除去率の差は、光源のUV照射強度0.50, 1.0, 2.0, 5.0, 9.20, 20.0, 50.0, 100.00 mW/cm²の際に、それぞれ13, 21, 30, 39, 46, 49, 50, 51%であった。その結果、本実験条件の光源のUV照射強度0.50~9.20 mW/cm²の範囲では、光源のUV照射強度を約2倍すると、UV照射と全過程によるCYCの除去率の差は約7~9%向上した。しかしながら、光源のUV照射強度20.00~100.00 mW/cm²の範囲では、光源のUV照射強度を約2倍すると、UV照射と全過程によるCYCの除去率は約1%向上するのみであった。この理由は、これまで前述してきたことと同様に、UV照射強度が高い条件下では、光分解速度定数と・OHによる反応速度定数がほぼ変動しなかったためであると考えられる。

次に、既存の下水処理場における消毒槽内の光源のUV照射強度:約10~30 mW/cm²にて、デッドエンドろ過の本シミュレーション解析を実施すると、UV照射と全過程におけるCYCの除去率は、それぞれ34~36%, 80~85%となった³⁹⁻⁴¹⁾。また、消毒槽内の任意地点(液相中のUV照射強度:2.5~7.5 mW/cm²)を想定し³⁹⁻⁴¹⁾、本シミュレーション解析を実施すると、UV照射と全過程におけるCYCの除去率は、それぞれ33~36%, 66~80%となった。このことから、TiO₂層上の・OHは、UV照射よりもCYCを効率良く分解できることが示唆される。従って、既存の下水処理場の消毒槽内にTiO₂層を設置するメリットがあることが明らかになった。

以上の結果より、光源のUV照射強度の違いから、UV照射とTiO₂層上の・OHによる分解効率への影響を確かめることができた。また、本シミュレーション解析のような小型の反応器であれば、UV254のUV照射強度が20.00 mW/cm²以上の条件下では、全過程によるCYCの除去率は大きく変化しないことが明らかになった。従って、高強度のUVを照射可能な光源(UV-LEDなど)の開発を待たずとも、現在のUV消毒槽の光源、任意地点のUV照射強度で、医薬品類の中でも難分解であるCYCを十分効率良く分解できることが明らかになった。

3.5 仮想リアクターにおける実験原水中の透過率の影響評価

透過率100%を仮定した場合におけるUV照射と全過程によるCYCの除去率は、それぞれ35, 81%と

Table 5 本シミュレーション解析におけるUV254のUV照射強度が異なる場合の設定条件とCYCの除去率

光源の照射強度 (mW/cm ²)	100.00	50.00	20.00	9.20	5.00	2.00	1.00	0.5
TiO ₂ 層上の照射強度 (mW/cm ²)	87.39	43.69	17.48	8.04	4.37	1.75	0.87	0.44
UV照射によるCYCの除去率 (%)	37	37	36	34	32	27	21	15
全課程におけるCYCの除去率 (%)	88	87	85	80	73	57	42	28

Table 6 本シミュレーション解析における波長 254 nm の透過率が異なる場合の設定条件と CYC の除去率

	下水処理水 MBR+膜処理水の 透過率の範囲			MBR 処理水の 透過率の範囲		下水処理水の 透過率の範囲		
	100	93	90	85	80	75	70	60
液相中の UV254 の透過率 (%)	100	93	90	85	80	75	70	60
TiO ₂ 層上の照射強度 (mW/cm ²)	9.20	8.04	7.45	6.65	5.89	5.18	4.51	3.31
UV 照射による CYC の除去率 (%)	35	34	34	34	34	34	34	33
全課程における CYC の除去率 (%)	81	80	79	78	77	75	74	70

なった。一方で、透過率 60% を仮定した場合における UV 照射と全過程による CYC の除去率は、それぞれ 33, 70% となった。このことから、透過率 100% から 60% に小さくすると、UV 照射と全過程による CYC の除去率は、それぞれ 2, 11% 低下することが確認された (Table 6)。従って、本解析の実験条件では、透過率の低い二次処理水 (透過率: 72~90%) であっても、分解しにくい CYC を 70% 以上効率良く除去できることが示唆された。この理由は、光源と TiO₂ 層の距離を 2 cm と仮定した条件であったため、透過率の影響が小さくなり、UV 照射および全過程による CYC の除去は高い値を示したと考えられる。以上より、本処理システムは、小スケールな反応器の設計であれば、透過率の低い二次処理水などの環境試料であっても CYC をはじめとした医薬品類を効率良く分解できることが明らかになった。

しかし一方で、光源と TiO₂ 層の距離が大きい反応器を想定した際には、TiO₂ 層上の UV 照射強度は透過率の影響をより強く受けるため、TiO₂ 層上の UV 照射強度は著しく低下し、TiO₂ 層上の・OH による CYC の分解効率は期待できないと示唆される。さらに、光源の UV 照射強度が大きく低下した際には、透過率の影響を考慮すると、UV 照射および TiO₂ 層上の・OH による CYC の除去率は著しく低下することが予想される。そのため、反応器をスケールアップした際には、透過率の高い NF 膜処理水や UF 膜処理水を利用することが望ましいと考えられる。

4. 結 論

本研究では、以下の知見が得られた。

- UV 照射強度に応じた TRI, 2QCA, CYC の光分解速度定数と TiO₂ 層上の・OH による反応速度定数がそれぞれ明らかになった。TiO₂ 層上の UV 照射強度 8.04 mW/cm² の条件下では、TiO₂ 層上の・OH による TRI, 2QCA, CYC の反応速度定数は、それぞれ 2,160, 1,960, 1,040 s⁻¹ を示し、他の促進酸化処理 (O₃/UV, O₃/H₂O₂, UV/H₂O₂)^{24,25)} と比較して、極めて高い値を示した。また、反応速度論に

基づいた UV 照射と TiO₂ 層上の・OH による医薬品類の分解モデルを構築した。

- 光源と TiO₂ 層の距離を変化させたシミュレーション解析では、その距離が開くほど、UV 照射の滞留時間が長くなり、UV 照射による除去の寄与が大きくなることが明らかになった。そのため、TiO₂ 層を有効活用した処理システムにするには、デッドエンド型の小型連段型の処理設計または、クロスフロー型の処理設計にすることが望まれることが示唆された。
- 光源の UV 照射強度を変化させたシミュレーション解析では、従来の下水処理場の消毒ランプがあれば、消毒槽内に照射される UV 照射強度 (2.5~7.0 mW/cm²) でも、光触媒反応により CYC を効率良く分解できることが明らかになった。
- 液相中の透過率を変化させたシミュレーション解析では、光源と TiO₂ 層の距離を 2 cm としたこと、透過率の低い二次処理水を対象としても、効率良く CYC を分解できることが明らかになった。従って、本条件のような小型かつ連段型のような処理設計では、透過率の影響が低いことが示唆された。しかし一方で、光源と TiO₂ 層の距離が広がると、その透過率の影響はより大きくなるため、光源と TiO₂ 層の距離、透過率の影響を含めた解析が今後必要になると示唆された。

以上の知見から、本シミュレーション解析を通して、3つの設計因子 (光源と TiO₂ 層の距離、光源の UV 照射強度、液相の UV 透過率) による医薬品類の除去率への影響を評価できるようになった。今後は、これらの因子のみならず、本処理システムへの分解効率に影響する可能性のある水温や pH, DO, 流束, 原水濃度などの因子についても同様に、解析を進めていく必要があると考えられる。

参考文献

- 成宮正倫, 奥田隆, 中田典秀, 山下尚之, 田中宏明, 佐藤和志, 末岡峯数, 大岩俊雄: 下水処理過程における医薬品類の

- 存在実態と挙動, 環境工学研究論文集, 46, pp.175-186 (2009)
- 2) Halling-Sørensen, B. N. N. S., Nielsen, S. N., Lanzky, P. F., Ingerslev, F., Lützhøft, H. H., & Jørgensen, S.: Occurrence, Fate and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment - A Review, *Chemosphere*, 36(2), pp.357-393 (1998)
- 3) Kasprzyk-Hordern, B., Dinsdale, R. M. & Guwy, A. J.: The removal of pharmaceuticals, personal care products, endocrine disruptors and illicit drugs during wastewater treatment and its impact on the quality of receiving waters, *Water Research*, 43(2), pp. 363-380 (2009)
- 4) 若林明子: 化学物質と生態毒性評価, 社団法人 産業環境管理協会: 丸善出版 (2003)
- 5) 山部長兵衛: オゾン発生技術とオゾン利用. 電気学会論文誌 A, 126(9), pp. 874-877 (2006)
- 6) 本多敏一, 廣辻淳二: プラズマの環境応用 5 オゾンによる水処理, 電気学会誌, 119(5), pp. 281-284 (1999)
- 7) 株式会社イガラシ: <http://www.igaden.com/comparison.htm> (最終アクセス日: 2020年3月15日)
- 8) 津野洋, 日高平: 高度水処理技術の変遷とオゾン処理技術, 電気学会誌, 129(4), pp. 245-248 (2009)
- 9) Mahamuni, N. N. & Adewuyi, Y. G.: Advanced oxidation processes (AOPs) involving ultrasound for wastewater treatment: a review with emphasis on cost estimation, *Ultrasonics Sonochemistry*, 17(6) pp. 990-1003 (2010)
- 10) 猪野大輔, 丸尾ゆうこ, 行天久朗: 水中に分散した TiO₂ 光触媒による水浄化, *Panasonic Technical*, 58(2), pp. 103-108 (2012)
- 11) 牧野樹生, 本間亮介, 中田典秀, 田中宏明, 鮫島正一, 土屋達, 打林真梨絵, 新井喜明: UV と TiO₂ を用いたセラミック平膜のファウリングの抑制, 第53回日本水環境学会年会講演集, p. 646 (2019)
- 12) 本間亮介, 竹内悠, 中田典秀, 鮫島正一, 丹後元秀, 新井喜明, 西村文武: UV/TiO₂ とセラミック平膜ろ過の組み合わせ処理による cyclophosphamide の除去性能の評価, 第26回シンポジウム「光触媒反応の最近の展開」要旨集, p. 35 (2022)
- 13) 本間亮介, 牧野樹生, 中田典秀, 鮫島正一, 田中宏明: 光触媒とセラミック平膜を用いた下水再生処理におけるファウリング抑制に関する研究, *EICA*, 24(2・3), pp. 32-39 (2019)
- 14) 金一昊, 田中宏明, 山下尚之, 小林義和, 奥田隆, 岩崎達行, 吉野潔, 田久保剛: 紫外線処理による30種類の医薬品の除去特性に関する回分実験, 環境工学研究論文集, 43, pp. 47-56 (2006)
- 15) 本間亮介, Sadudeewong Esara, 中田典秀, 鮫島正一, 清家聡, 新井喜明, 田中宏明: 下水再利用を目的とした残留化学物質における UV/TiO₂ / セラミック平膜処理の検討, SAT テクノロジー・ショーケース2017, つくば国際センター (2017)
- 16) Narumiya, M., Nakada, N., Yamashita, N., Tanaka, H.: Phase distribution and removal of pharmaceuticals and personal care products during anaerobic sludge digestion. *Journal of hazardous materials*, 260, pp. 305-312 (2013)
- 17) 茶山健二: 検量線, 環境計測のための機器分析法 第4章9節 (2004), http://kccn.konan-u.ac.jp/chemistry/ia/contents_04/09.html (最終アクセス日: 2022年5月31日)
- 18) Kim Ilho: Applicability of UV-based and O₂-based Processes for the Reduction of Pharmaceuticals and Personal Care Products (PPCPs), 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻博士論文 (2008)
- 19) YANG, Y., NAKADA, N., TANAKA, H.: Adsorption of fullerenes C60 on activated sludge: Kinetics, equilibrium and influencing factors, *Chemical engineering journal*, 225, pp. 365-371 (2013)
- 20) Giri, R. R., Ozaki, H., Ota, S., Takanami, R., Taniguchi, S.: Degradation of common pharmaceuticals and personal care products in mixed solutions by advanced oxidation techniques, *International Journal of Environmental Science & Technology*, 7(2), pp. 251-260 (2010)
- 21) 近藤展生, 加治正廣: 紫外線による下水処理水の滅菌, 神鋼パンテック技法, 40(1), pp. 48-53 (1996)
- 22) 大瀧雅寛, 鴻田真璃亜: 下水流入水および二次処理水中の大腸菌及び大腸菌群の紫外線耐性, 水環境学会誌, Vol.42, No.4, (2019)
- 23) Jacque-Ann Natacia Grant: UV-advanced oxidation treatment of micropollutants in secondary wastewaters, University of Toronto, Doctoral thesis (2015)
- 24) Ying-Xue Sun, Yue Gao, Hong-Ying Hu, Fang Tang, Zhe Yang: Characterization and biotoxicity assessment of dissolved organic matter in RO concentrate from a municipal wastewater reclamation reverse osmosis system, *Chemosphere*, 117, pp. 545-551 (2014)
- 25) Jacob, M., Guigui, C., Cabassud, C., Darras, H., Lavisson, G., Moulin, L.: Performances of RO and NF processes for wastewater reuse: Tertiary treatment after a conventional activated sludge or a membrane bioreactor, *Desalination*, 250(2), pp. 833-839 (2010)
- 26) Qu, F., Wang, H., He, J., Fan, G., Pan, Z., Tian, J., Yu, H.: Tertiary treatment of secondary effluent using ultrafiltration for wastewater reuse: correlating membrane fouling with rejection of effluent organic matter and hydrophobic pharmaceuticals, *Environmental Science: Water Research & Technology*, 5(4), pp. 672-683 (2019)
- 27) 都留稔了: ナノ多孔性酸化チタン膜を用いた光触媒膜型反応, 膜, 28(4), pp. 170-176 (2003)
- 28) 本間亮介, 中田典秀, 鮫島正一, 土屋達, 打林真梨絵, 新井喜明, 田中宏明: セラミック平膜上の TiO₂ ケーキ層への UV 照射による・OH 生成速度の評価, 第52回日本水環境学会年会, 北海道大学 (2018)
- 29) Brosillon, S., Lhomme, L., Vallet, C., Bouzaza, A., Wolbert, D.: Gas phase photocatalysis and liquid phase photocatalysis: Interdependence and influence of substrate concentration and photon flow on degradation reaction kinetics, *Applied Catalysis B: Environmental*, 78(3-4), pp. 232-241 (2008)
- 30) C. Miège, J.M. Choubert, L. Ribeiro, M. Eusébe, M. Coquery: Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants - Conception of a database and first results, *Environmental Pollution*, 157(5), pp. 1721-1726 (2009)
- 31) Verlicchi, P., Al Aukidy, M., Zambello, E.: Occurrence of pharmaceutical compounds in urban wastewater: removal, mass load and environmental risk after a secondary treatment—a review, *Science of the total environment*, 429, pp. 123-155 (2012)
- 32) Česen, M., Kosjek, T., Laimou-Geraniou, M., Kompare, B., Širok, B., Lambropoulou, D., & Heath, E.: Occurrence of cyclophosphamide and ifosfamide in aqueous environment and their removal by biological and abiotic wastewater treatment processes, *Science of the Total Environment*, 527, pp. 465-473 (2015)
- 33) Montoya, J. F., Velasquez, J. A., Salvador, P.: The direct-indirect kinetic model in photocatalysis: a reanalysis of phenol and formic acid degradation rate dependence on

- photon flow and concentration in TiO₂ aqueous dispersions, *Applied Catalysis B: Environmental*, 88(1-2), pp. 50-58 (2009)
- 34) Kim, I. H., Tanaka, H., Iwasaki, T., Takubo, T., Morioka, T., Kato, Y.: Classification of the degradability of 30 pharmaceuticals in water with ozone, UV and H₂O₂, *Water Science and Technology*, 57(2), pp. 195-200 (2008)
- 35) Kim, I. H., Kim, S. K., Lee, H. D., Tanaka, H.: Effects of adding UV and H₂O₂ on the degradation of pharmaceuticals and personal care products during O₃ treatment, *Environmental Engineering Research*, 16(3), pp. 131-136 (2011)
- 36) Lester, Y., Avisar, D., Gozlan, I., Mamane, H.: Removal of pharmaceuticals using combination of UV/H₂O₂/O₃ advanced oxidation process, *Water Science and Technology*, 64(11), pp. 2230-2238 (2011)
- 37) Miklos, D. B., Remy, C., Jekel, M., Linden, K. G., Drewes, J. E., Hübner, U.: Evaluation of advanced oxidation processes for water and wastewater treatment-A critical review, *Water research*, 139, pp. 118-131 (2018)
- 38) 水道技術研究センター：第1章 技術審査基準, <http://www.jwrc-net.or.jp/shien/uvkijun.pdf> (最終アクセス日: 2022年5月31日)
- 39) 堀尾明宏, 浅野秀昭, 中島淳: 生活排水処理施設における紫外線消毒効果, *日本水処理生物学会誌*, 38(3), pp. 137-143 (2002)
- 40) 松浦将行, 桐原隆, 水川泰一, 山本白: 下水道の汚水処理水を対象とした紫外線消毒技術に関する研究, *下水道新技術研究所年報*, 1(2), pp. 187-192 (2005)
- 41) 日本下水道新技術機構: 紫外線消毒設備マニュアル (2005), https://www.jiwet.or.jp/result/technical_manual/pdf/2005/waterpros/09/techm2006b_04.pdf, (最終アクセス日: 2022年5月31日)

Degradation Modeling of Photocatalytic Layer/ceramic Flat-sheet Membrane Filtration Treatment System for Residual Pharmaceuticals in Treated Wastewater

Ryosuke Homma^{1)†}, Haruka Takeuchi¹⁾, Shoichi Sameshima²⁾
Motohide Tango¹⁾, Fumitake Nishimura¹⁾ and Yoshiaki Arai²⁾

- 1) Research Center for Environmental Quality Management, Kyoto University
2) MEIDENSHA CORPORATION

† Correspondence should be addressed to Ryosuke Homma:
Research Center for Environmental Quality Management, Kyoto University
E-mail: homma.ryosuke.6j@kyoto-u.ac.jp

Abstract

In recent years, the reuse of treated wastewater has been attracting attention, and the introduction of advanced oxidation processes (AOPs) is expected to efficiently decompose chemical substances (pharmaceuticals) that are difficult to decompose in wastewater treatment. The authors have devised an AOPs system using UV/TiO₂, in which TiO₂ is held on a ceramic flat membrane, and which does not require the addition of any chemicals. In this study, we quantitatively evaluated the treatment characteristics of pharmaceuticals by UV irradiation and ·OH and quantitatively evaluated the photodegradation rate of pharmaceuticals and the oxidative degradation rate of pharmaceuticals by ·OH using UV irradiation intensity as the operating factor. In addition, a mathematical model of the degradation efficiency of pharmaceuticals was developed, and the usefulness of this treatment system was clarified.

Key words: TiO₂, ceramic flat sheet membrane, pharmaceuticals, low pressure mercury lamp, simulation analysis