

# 極微小紫外線線量計の開発

## *Development of microcapsule UV actinometer*

森田重光

麻布大学大学院環境保健学研究科

Shigemitsu Morita

Graduate School of Environmental Health, Azabu University

**Abstract.** For evaluate the UV dose and its distribution with which individual microbes pass through the UV irradiation reactor, we encapsulated photochromic compounds, which are organic compounds that develop colors upon UV irradiation, in microcapsules, and prepared a microdosimeter whose diameter and specific gravity were identical with those of the microbes to be sterilized. We then measured the intensity of the color that was developed in individual capsules upon UV irradiation, and attempted to evaluate the distribution of the UV dose with which individual microbes were irradiated.

10-benzoyl-N,N,N',N'-tetramethyl-10H-phenothiazine-3,7-diamine (Benzoyl Leuco Methylene Blue : BLMB) was found to be the most sensitive to UV irradiation among the experimented 27 photochromic compounds, and its quenching speed was slow. Although BLMB developed a color upon UV irradiation regardless of the solvent in which it was dissolved, the color was intense and the quenching speed was slow particularly when it was dissolved in 2-propanol (isopropyl alcohol) or toluene.

Capsules made of urea resins were more spherical than those made of gelatin. The diameter of the capsules made of urea resins had a smaller width of the distribution than that of capsules made of urea resins.

The side scatter increased with increase in UV irradiation dose; a highly linear relation was observed. This result suggests that the distribution of UV irradiation dose can be measured with the microcapsule UV actinometer developed.

### 1. 研究の目的

紫外線消毒は微生物を不活化する力が非常に強く、また、システムの維持管理が容易で、定常の消毒で用いられる照射線量レベルでは実質上毒性を示す副生成物を産生しないなど優れた特徴を有する。欧米では浄水場及び下水処理場で紫外線消毒システムが稼動しており、わが国でも一部の下水処理場にすでに導入されている。紫外線は塩素に対して強い耐性を示す *Cryptosporidium parvum* オーシストの不活化にも有効であることが動物感染法や培養細胞感染法を

用いた最近の研究から明らかとなっており、紫外線照射は原虫汚染の可能性のある水道原水の消毒に効力を発揮するものと考えられている。

紫外線の微生物不活化力は照射線量率に依存せず、また、水温は紫外線ランプの発光効率に影響を及ぼすものの、単位線量あたりの微生物不活化力には影響を及ぼさないことが実験的に明らかにされている。つまり、紫外線の微生物不活化力は紫外線照射線量率と照射時間との積である紫外線照射線量に依存すると言える。

紫外線照射槽を通過してきた微生物の不活化レベ

ルを評価することを目的として、紫外線に感受性を示す大腸菌フェージや枯草菌芽胞などのいわゆる生物線量計を用いた線量測定が行われている。また、ベンチスケールの紫外線照射実験ではフリッケ鉄やヨウ化カリウムなどの化学線量計が用いられることもある。

しかし、これらの方法では紫外線照射槽を通過してきた微生物あるいは化学物質に照射された線量の平均値しか求めることができず、照射線量の分布や最低線量の評価は流体中における微粒子の挙動を動力学的に計算するコンピュータシミュレーション (Computational Fluid Dynamics) で推定するほかに方法はない。

そこで、本研究では紫外線によって発色する有機化学物質であるフォトクロミック化合物を消毒対象微生物と同一の径に調製したマイクロカプセルに封入した極めて微小な紫外線照射線量計を開発した。そして、開発した紫外線照射線量計に紫外線を照射し、照射線量に比例して変化する個々のカプセルの散乱光をフローサイトメータで計測することにより、個々の微小粒子 (微生物) に照射される紫外線線量

の算出を試みた。

## 2. 方法

### 2.1 フォトクロミック化合物と溶媒の選定

#### 2.1.1 フォトクロミック溶液の調製

フォトクロミック化合物とは光照射により化学構造が変化し、それに伴い発色する化学物質の総称である。本研究では各種あるフォトクロミック化合物のうち、①紫外線照射による発色強度と紫外線照射線量との間に高い直線関係が認められる、②紫外線照射により発色した後、経時的に発色強度が変化しない、③可視光照射により発・消色しない、④熱により発・消色しない、という具備要件を満たす可能性があるものとして、スピロピラン類、ジアリールエテン類、ビオロゲン類、ロイコ染料等について、紫外線照射による発色特性と紫外線照射後の変色特性を評価した。本研究で試験したフォトクロミック化合物を Table 1 に示す。

フォトクロミック化合物は組み合わせる溶媒の種類によって紫外線を照射したときの発・消色特性が異なる。そこで各種フォトクロミック化合物と17種

Table 1 Tested photochromic compounds

Compound name	Abb. word	CAS registry	Acquisition
<b>Spiropyrans</b>			
1-(2-hydroxyethyl)-3,3-dimethylindolino-6'-nitrobenzopyrylospiran	S-1	16111-07-2	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolinobenzopyrylospiran	S-2	1485-92-3	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolino-6'-bromobenzopyrylospiran	S-3	16650-14-9	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolino-8'-methoxybenzopyrylospiran	S-4	13433-31-3	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolino- naphthopyrylospiran	S-5	1592-43-4	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolinonaphthospirooxazine	S-6	27333-47-7	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,3,3-trimethylindolino-6'-nitrobenzopyrylospiran	S-7	1498-88-0	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
<b>Diarylethenes</b>			
cis-1,2-dicyano-1,2-bis(2,4,5-trimethyl-3-thienyl)ethane	D-1	112440-46-7	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,2-bis[2-methylbenzo[b]thiophen-3-yl]-3,3,4,4,5,5-hexafluoro-1-cyclopen	D-2	137814-07-4	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
2,3-Bis(2,4,5-trimethyl-3-thienyl)maleic anhydride	D-3	112440-47-8	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
2,3-bis(2,4,5-trimethyl-3-thienyl)maleimide	D-4	220191-36-6	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
<b>Viologenes</b>			
4,4'-bipyridyl	V-1	553-26-4	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'-bis(2,4-dinitrophenyl)-4,4'-bipyridinium dichloride	V-2	41168-79-0	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'-dibenzyl-4,4'-bipyridinium dichloride	V-3	1102-19-8	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'-di-n-heptyl-4,4'-bipyridinium dibromide	V-4	6159-05-3	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'-dimethyl-4,4'-bipyridinium dichloride	V-5	1910-42-5	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'- di-n-octyl-4,4'-bipyridinium dibromide	V-6	36437-30-6	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
1,1'-diphenyl-4,4'- bipyridinium dichloride	V-7	47369-00-6	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
<b>Others</b>			
Azobenzene	AZO	103-33-3	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
2,5-Norbormadiene	NOR	121-46-0	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
Thioindigo	IND	522-75-8	Tokyo Chemical Industry Co. Ltd.
2-(2-chloroanilino)-6-dibutylamino fluoran	NCB	82137-81-3	Hodogaya Chemical Co. Ltd.
1,2-Bis(2-methoxy-5-phenyl-3-thienyl)perfluorocyclopentene	DAE	359863-61-9	Yamada Chemical Co. Ltd.
hexakis(isopropylammonium)heptamolybdate trihydrate	PMO		Tokyo Institute of Technology
10-benzoyl-N,N,N',N'-tetramethyl-10H-phenothiazine-3,7-diamine	BLMB	1249-97-4	Yamada Chemical Co. Ltd.
4,4',4''-tris(dimethylamino)triphenylmethan	LCV	603-48-5	Yamada Chemical Co. Ltd.
2-dibenzylamino-6-diethylamino fluoran	DCF	34372-72-0	Hodogaya Chemical Co. Ltd.

類の溶媒との組み合わせについて検討した。フォトクロミック化合物は0.1 w/v%となるように各溶媒に溶解し、発色試験および変色試験に供した。

### 2.1.2 発色試験

φ59 mm ガラスシャーレにフォトクロミック化合物を溶解した溶液を10 ml入れ、鉛直上方より5 W 低圧紫外線ランプ (QCGL5W-14 97D ; 岩崎電気) で低圧紫外線を、また、330 W 中圧紫外線ランプ (荏原製作所) で中圧紫外線を照射した。照射線量率は溶液の水面高において紫外線積算光量計 (UIT-150 ; ウシオ電機) を用いて低圧紫外線の場合は $0.10 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、中圧紫外線の場合は $1.0 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ とし、照射時間を電磁シャッターで調節して紫外線照射線量が $100 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ となるようにした。紫外線を照射したフォトクロミック溶液は450~700 nm 領域で吸光スペクトルが変化することから、吸光度計 (UV-1700 ; 島津製作所) で450~700 nm の吸光度を0.5 nm 毎に測定し、その積算値 (以下、吸光度エリア) が200%以上変化したものを発色性大、100%以上変化したものを発色性有とした。

### 2.1.3 変色試験

フォトクロミック化合物は紫外線で発色した後に可視光の照射や加熱により変色するものが多い。そこで、2.1.2に示す方法で紫外線を照射したフォトクロミック溶液を15 mlのポリプロピレン製遠沈管2本に5 mlずつ移し、一方は実験室内に24時間静置した後に、また、もう一方は100℃に加熱した後に吸光度エリアを測定した。紫外線照射直後と比べ吸光度エリアが10%以上変化したものを変色性有、変化が5~10%のものを変色性小、5%以下のものを変色性無しとした。

### 2.1.4 線量反応試験

2.1.2及び2.1.3で発色強度が高く、かつ、発色後に変色しないフォトクロミック化合物と溶媒の組み合わせについて、 $10.0 \sim 120 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ の低圧紫外線を照射したときの紫外線照射線量と吸光度との関係を調べた。紫外線の照射方法は2.1.2に準ずる。

## 2.2 マイクロカプセル紫外線線量計の作製

### 2.2.1 マイクロカプセル化

発色強度が高く、かつ、変色しないフォトクロミック化合物と溶媒の組み合わせのうち、紫外線照射線量と吸光度との関係が直線的で、ダイナミックレ

ンジが広いものについてマイクロカプセルに内包した。粒径は*Cryptosporidium*の消毒を念頭に置き $5 \mu\text{m}$ とした。

カプセル化するにあたって必須条件となるのは膜材が紫外線を透過することと、膜材と溶媒とが安定して乳化することである。カプセル膜材としてはゼラチン、尿素樹脂、メラミン樹脂、ウレタン樹脂、ポリウレア樹脂などが有効であると考えられるが、予備実験の結果、メラミン樹脂、ウレタン樹脂、ポリウレア樹脂は紫外線透過性が低かったため対象膜材から除外した。また、ゼラチン壁カプセルは、溶媒の一部がゼラチン膜を透過してしまうため形状が経時的に変化してしまった。

以上の結果から、本研究では紫外線透過性および形状安定性が高い尿素ホルマリン樹脂壁マイクロカプセルにフォトクロミック溶液を内包させることにした。すなわち、5%エチレン-無水マレイン酸共重合体溶液70 gに、尿素5 g、レゾルシノール0.2 gを溶解し、15%水酸化ナトリウム溶液でpH 3.2に調整した。この水溶液75 gにフォトクロミック溶液60 gを添加し、ホモジナイザーで乳化分散させた。そして、37%ホルムアルデヒド溶液9 g、精製水8 gを添加し、55℃で2時間加熱攪拌した後、20℃まで冷却し、5%水酸化ナトリウム溶液でpH 4.0に調整して平均粒径 $5 \mu\text{m}$ のフォトクロミック溶液内包マイクロカプセルを作製した。

### 2.2.2 マイクロカプセル紫外線線量計への紫外線照射

作製したマイクロカプセル紫外線線量計を精製水に懸濁させ、血球計算板で濃度を算出し、精製水で $10^6 \text{ 個} \cdot \text{ml}^{-1}$ となるように希釈した。調製した試料はφ18 mmのプラスチックチューブに20 ml添加し、試料の吸光度は吸光度計 (UV-1700 ; 島津製作所製) で測定した。そして吸光度から水層全体が受ける平均紫外線照射線量率を算出し、平均紫外線照射線量が $10 \sim 120 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ となるように低圧紫外線を照射した。

### 2.2.3 フローサイトメータによる測定

紫外線照射前及び照射後のマイクロカプセル紫外線線量計をフローサイトメータ (COULTER EPICS ALTRA HyPerSort System Flow Cytometer ; ベックマンコールター社) に導入し、前方散乱光及び側方散乱光を測定した。

3. 結果および考察

3.1 フォトクロミック化合物と溶媒の選定

3.1.1 発色及び変色実験

低圧紫外線と中圧紫外線の発色及び変色特性に差

は認められなかった。各フォトクロミック溶液に低圧紫外線あるいは中圧紫外線を照射したときの発色実験結果を Table 2 に、また、変色実験結果を Table 3 に示す。

スピロピラン類のなかでは特に S-1 及び S-7 の発色

Table 2 Colored characterizes of photochromic compounds by ultraviolet irradiation

	tolene	hexane	2-propanol	dimethyl sulfoxide	methanol	methyl methacrylate	diethyl ether	benzyl alcohol	2-butanone	other solvents
S-1	◎	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	×	
S-2	×	×	○	○	×	×	×	○	×	
S-3	×	×	×	○	×	×	○	○	×	
S-4	×	×	○	×	×	×	×	◎	×	benzene ○
S-5	×	×	×	○	×	×	×	×	×	
S-6	×	◎	◎	◎	×	×	◎	×	×	
S-7	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	
D-1	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	benzene ○
D-2	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	benzene ○
D-3	○	○	○	×	○	◎	◎	○	○	benzene ○
D-4	○	○	○	×	○	◎	◎	○	○	benzene ○
V-1	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
V-2	NS	NS	×	NS	×	NS	NS	NS	NS	
V-3	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
V-4	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
V-5	NS	NS	×	NS	×	NS	NS	NS	NS	
V-6	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
V-7	NS	NS	○	NS	○	NS	NS	NS	NS	
AZO	×	×	×	×	×	×	×	○	×	
NOR	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
IND	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
NCB	○	○	NS	○	○	×	×	×	×	
DAE	◎	◎	◎	◎	○	◎	○	○	○	
PMO	—	—	—	—	—	—	—	—	—	deionized water ○
BLMB	◎	×	◎	○	◎	○	×	○	◎	ethyl acetate ○
LCV	×	NS	◎	◎	×	×	×	○	○	
DCF	○	×	×	○	○	×	○	×	○	

◎; colored vividly  
○; colored  
×; unfading  
NS; not soluble  
—; not tested

Table 3 Fading characterizes of photochromic compounds after ultraviolet irradiation

	tolene	hexane	2-propanol	dimethyl sulfoxide	methanol	methyl methacrylate	diethyl ether	benzyl alcohol	2-butanone	other solvents
S-1	×	×	×	×	×	×	×	×	—	
S-2	—	—	×	×	—	—	—	×	—	
S-3	—	—	—	×	—	—	×	×	—	
S-4	—	—	×	—	—	—	—	×	—	benzene ○
S-5	—	—	—	×	—	—	—	—	—	
S-6	—	×	×	×	—	—	×	—	—	
S-7	×	×	×	×	○	×	×	×	○	
D-1	○	×	○	×	○	○	×	×	○	benzene ×
D-2	○	×	○	×	×	×	×	×	×	benzene ×
D-3	○	×	○	—	×	×	×	×	×	benzene ×
D-4	○	×	○	—	×	×	×	×	○	benzene ×
V-7	—	—	○	—	○	—	—	—	NS	
AZO	—	—	—	—	—	—	—	×	—	
NCB	×	×	—	×	×	—	—	—	—	
DAE	×	×	×	×	×	×	×	×	×	
PMO	—	—	—	—	—	—	—	—	—	deionized water ×
BLMB	◎	—	◎	○	○	×	—	○	○	ethyl acetate ○
LCV	—	—	○	×	—	—	—	×	×	
DCF	○	—	—	○	○	—	○	—	○	

◎; unfading  
○; changed color a little  
×; changed color clearly  
—; not tested

が良好であった。しかしながら紫外線照射後の消色速度が速く、S-7をメタノールまたは2-ブタノンに溶解した場合以外は実験室内に静置して1時間以内に紫外線照射前の吸光度まで戻ってしまった。

ジアリールエテン類はスピロピラン類、ビオロゲン類に比べ紫外線に対する感度が高く、特にD-1及びD-2は強く発色した。また、紫外線で発色させた後のD-1及びD-2の変色速度はトルエン及び2-プロパノールに溶解した場合に緩やかで、吸光度はいずれも6%減少したに留まった。

ビオロゲン類のV-1, V-2, V-3, V-4, V-5, V-6はどの溶媒に溶解しても紫外線に反応しなかった。V-7は2-プロパノール及びメタノールのみで溶解し、紫外線を照射すると発色したが、いずれも室内に10分程度静置しただけで消色した。

BLMBはほとんどの溶媒に溶解することができ、紫外線照射によって強く青色に発色した。BLMBは2-プロパノール、メタノール、2-ブタノン、ジメチルスルホキシド、トルエンに溶解した場合に特に強く発色したが、紫外線照射後の室内静置による変色速度は溶媒によって異なることが確認された。すなわち、メタノールに溶解した場合は紫外線照射直後の溶液に比べ室内静置24時間後の溶液の吸光度はわずかに上昇したが、ジメチルスルホキシドに溶解した場合は、照射直後の溶液の吸光度に比べ室内静置24時間後の試料の吸光度はわずかに減少した。一方、トルエン、メタノールあるいは2-プロパノールに溶解した場合は24時間実験室内に静置しても吸光度は変化しないことが明らかとなった。また、100℃で5分間加熱した後の吸光度の変化は、加熱前と比較して最大で3%にとどまり、実質上熱によって変色しないと考えられた。

以上の結果から紫外線線量計として用いるフォトクロミック化合物としてはBLMBが最も適していると判断した。

### 3.1.2 BLMBの紫外線応答性

BLMBをトルエンに溶解した溶液に低圧紫外線を10.0～120 mJ・cm<sup>-2</sup>照射したときの線量反応関係をFig. 1に示す。紫外線照射線量が増加するに従って吸光度が直線的に増加した。また、紫外線照射後に24時間実験室内に静置して吸光度エリアを測定しても、紫外線照射直後に測定した場合との差は認められな

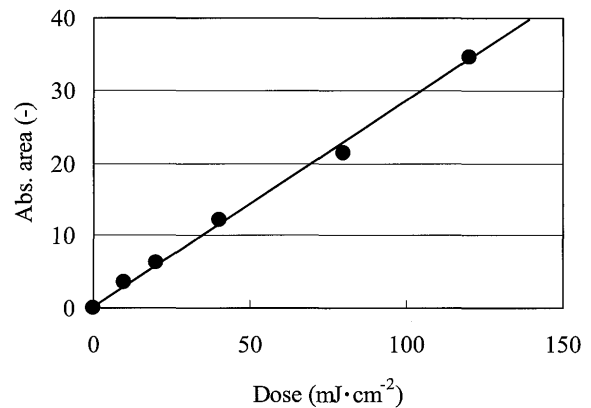


Fig. 1 Relationship between ultraviolet dose and absorbance area (450-700 nm) of BLMB/toluene solution

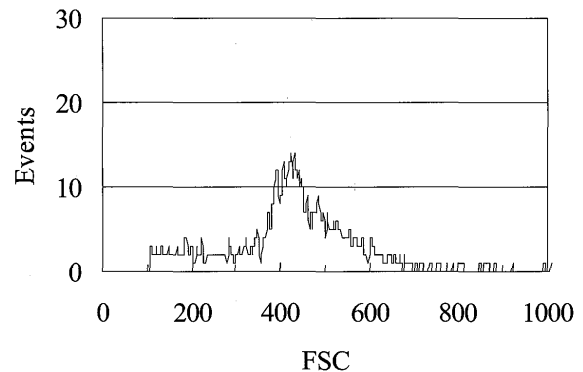


Fig. 2 A histogram illustrating the front scatter intensity of the untreated microcapsules contained BLMB/toluene solution

かった。

### 3.2 マイクロカプセルの特性

尿素樹脂壁カプセルはBLMBを溶解したトルエンまたは酢酸ブチルを内包したとき、いずれも紫外線照射によって強く発色した。しかしながら酢酸ブチル内包カプセルは真球性が低く、また発色強度もトルエン内包カプセルと比べると低かったため、カプセル膜材としては尿素樹脂を、また、BLMBを溶解する溶媒にはトルエンを用いることにした。

### 3.3 マイクロカプセル紫外線線量計による紫外線照射線量の測定

作製したマイクロカプセル紫外線線量計をフローサイトメータで測定した。紫外線を照射していないマイクロカプセル紫外線線量計の前方散乱光のヒストグラムをFig. 2に示す。平均粒径が5 μmとなるようにマイクロカプセル化したものの、粒径分布に幅があるため、ヒストグラムもブロードとなっている。

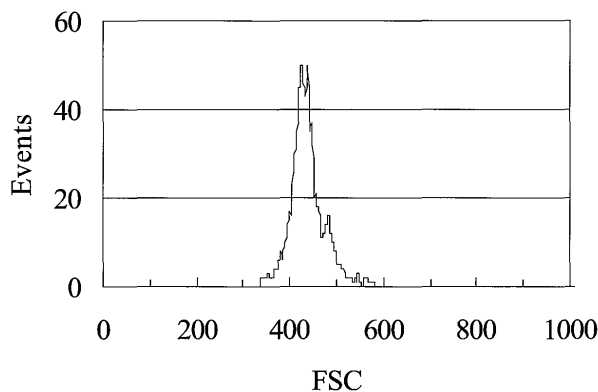


Fig. 3 A histogram illustrating the front scatter intensity of the sorted microcapsules contained BLMB/tolene solution

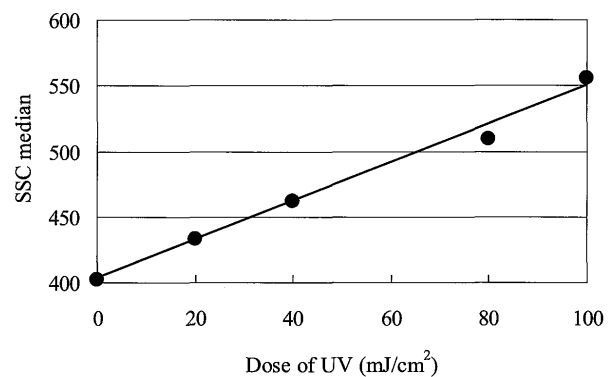


Fig. 4 Relationship between ultraviolet dose and SSC median of microcapsules contained BLMB/tolene solution

水中に懸濁している個々の粒子に照射された紫外線線量はマイクロカプセル紫外線線量計の散乱光の変化量から求めるため、紫外線を照射していないマイクロカプセル紫外線線量計の散乱光のヒストグラムがブロードであると線量分布を求めることはできない。

そこでフローサイトメータのソーティング機能を用いてマイクロカプセルの粒径を均一にすることを試みた。フローサイトメータでソーティングする前にマイクロカプセル紫外線線量計を懸濁させた溶液を目開き 40  $\mu\text{m}$  および 20  $\mu\text{m}$  のナイロンメッシュ (NY-20HC; NYTAL) で濾して 20  $\mu\text{m}$  よりも大きな粒子を除去した。そしてフローサイトメータに導入し、分画分解能を優先するモードで前方散乱光および側方散乱光の 5  $\mu\text{m}$  粒子相当チャンネルにゲートをかけてソーティングした。ソーティング後の前方散乱光のヒストグラムを Fig. 3 に示す。前方散乱光および側方散乱光のヒストグラムの半値幅をソーティング前の約 10 分の 1 とすることができた。

ソーティング後のマイクロカプセル紫外線線量計に低圧紫外線を照射したときの側方散乱光チャンネルのヒストグラムの中央値と平均紫外線照射線量との関係を Fig. 4 に示す。紫外線照射線量が増加するに従って側方散乱光が増加し両者の間には高い直線関係が認められた。得られた側方散乱光のヒストグラムの半値幅は 10 チャンネルであり、100  $\text{mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  照射で SSC の中央値が 150 チャンネル増加することから、開発した紫外線照射線量測定法の分解能は  $7 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  と算出された。

#### 4. 要約

紫外線反応槽を通過してきた個々の微生物に曝露された紫外線照射線量を測定することを目標として極めて微小な紫外線照射線量計を開発した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 紫外線照射線量を測定するためのフォトクロミック化合物としては BLMB が最も適している。
- (2) BLMB を溶解する溶媒としては、発色性、消色性及びカプセル形成性の観点からトルエンが最も適している。
- (3) カプセルの膜材としては尿素樹脂が最も適している。
- (4) フォトクロミック化合物内包マイクロカプセルに紫外線を照射し、フローサイトメータで測定したところ、紫外線照射線量が増加するに従って側方散乱光も増加した。側方散乱光ヒストグラムのピークと紫外線照射線量との間には高い相関が認められた。
- (5) 開発したマイクロカプセル紫外線線量計による紫外線照射線量分布測定の分解能は  $7 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$  であった。

なお、得られた成果は特許として出願している (特願 2006-67511)。

#### 参考文献

- 1) Zimmer, J. L., Slawson, R. M. and Huck, P. M.: Inactivation and potential repair of *Cryptosporidium parvum* following low- and midium-pressure ultraviolet irradiation. *Wat. Res.*, 37, 3517-3523, 2003.
- 2) Morita, S., Namikoshi, A., Hirata, T., Oguma, K.,

- Katayama, H., Ohgaki, S., Motoyama, N. and Fujiwara, M.: Efficacy of UV irradiation in inactivating *Cryptosporidium parvum* oocysts. *Appl. Environ. Microbiol.*, 68(11), 5387-5393, 2002.
- 3) Sommer, R., Cabaj, A., Haider, T. and Hirschmann, G.: UV drinking water disinfection – Requirements, testing and surveillance: Exemplified by the Austrian National Standards M5873-1 and M5873-2. *Proc. 2<sup>nd</sup> Asia Conf. Ultraviolet Tech. Environ. Appl.*, 16-27, 2004.
- 4) Kamiko, N. and Ohgaki, S.: RNA coliphage Q $\beta$  as a bioindicator of the UV disinfection efficiency. *Wat. Sci. Technol.*, 21(3), 227-231, 1989.
- 5) 大島壮一：機能性インキの最新技術，シーエムシー出版，pp.63-88，東京，2002.
- 6) 日本化学会：有機フォトクロミズムの化学，219pp.，学会出版センター，東京，1996.
- 7) 市村國宏：クロミック材料の開発，301pp.，シーエムシー出版，東京，2000.