

(続紙 1)

京都大学	博士 (工 学)	氏名	Songkeart Phattarapattamawong
論文題目	CONTROL OF CHLORINOUS ODOR IN DRINKING WATER BY OXIDATION PROCESSES AND CHARACTERIZATION OF CHLORINOUS ODOR PRECURSORS BY FRACTIONATION TECHNIQUE (酸化処理による水道水中のカルキ臭の制御と分画手法を用いたカルキ臭原因物質前駆体の特性解析)		
(論文内容の要旨)			
<p>本研究は、ライフラインの一つである水道システムを対象とし、その中でも消費者の顧客満足度に大きく影響する水道水のカルキ臭問題を取り上げている。浄水処理プロセスのうち、オゾン処理および促進酸化処理といった酸化処理によるカルキ臭制御の可能性とその限界について評価するとともに、包括的分画手法を用いてカルキ臭生成に関与する溶存有機物の化学的特性を明らかにすることを目的として検討を行っている。論文は7章からなり、その概要は以下の通りである。</p> <p>第1章は序論であり、研究の背景、目的および概要を示した。我が国の水道水の快適性に関わる諸問題のうち、カルキ臭問題が特に重要であることをこれまでの統計調査結果に基づいて指摘し、カルキ臭の生成機構の解明とその制御法の確立の必要性を指摘した。</p> <p>第2章では、文献考察によってカルキ臭問題に関わる既存研究の課題をまとめ、本研究で焦点をあてるべき事項について整理している。カルキ臭には、アンモニウムイオン由来のトリクロラミンと溶存有機物に由来する有機の塩素処理生成物が寄与しうることを示し、トリクロラミンの高感度分析と、未知の塩素処理副生成物を含めた臭気全体を評価する官能試験を併用したカルキ臭評価の必要性について述べている。このための具体的な手法として、ヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー/質量分析法と三点比較式官能試験の併用を提案している。あわせて、促進酸化処理がカルキ臭生成に及ぼす影響を評価することの必要性を述べている。また、未知のカルキ臭原因物質前駆体の特性解析手法として包括的分画手法を提案している。</p> <p>第3章では、様々な処理条件下で回分式オゾン処理および促進酸化処理（オゾン/過酸化水素処理）実験を行い、これら処理水の塩素処理後のカルキ臭をヘッドスペース・ガスクロマトグラフィー/質量分析法と三点比較式官能試験により評価した。その結果、塩素処理開始24時間後の残留塩素濃度が1 mg/Lとなるように塩素処理した場合には、オゾン処理またはオゾン/過酸化水素処理を行うことにより塩素処理単独の場合よりも臭気強度はおよそ50%減少することを示した。その一方で、酸化処理を行った場合でも塩素処理後の臭気強度は30 TON程度でありカルキ臭原因物質の前駆体が完全には酸化・分解されないという酸化処理の限界を提示した。さらに、臭気強度とトリクロラミン濃度との比較から、トリクロラミン以外の有機のカルキ臭原因物質の寄与が大きい場合があることを指摘している。</p> <p>第4章では、実際の浄水場の急速砂ろ過水を原水とした連続式酸化処理装置によるパイロットプラント試験を行ない、より実際の浄水処理に近い条件下で酸化処理がカルキ臭生成能に及ぼす影響を評価した。その結果、連続系における酸化処理は回分式の場合と同程度のカルキ臭の低減効果があることを確認した。さらに、オゾン処理とオゾン/過酸化水素処理のカルキ臭低減効果の間には差異が認められないこと、低オゾン注入率でも一定のカルキ臭低減効果がある一方で、オゾン注入率を</p>			

氏名	Songkeart Phattarapattamawong
----	----------------------------------

通常の 1 mg/L から 4 mg/L に増加させても、カルキ臭生成能は大きく改善しないことを示した。このことから、酸化処理プロセスの選択にあたっては、通常はカルキ臭を制御することを主目的に低オゾン注入率のオゾン処理とし、カビ臭物質等原水中微量汚染物質の高効率処理と臭素酸イオンの同時制御が要求されるような状況では促進酸化処理に切り替えるという柔軟なシステムの構築と運用が合理的であるという結論を得ている。具体的に、代表的なカビ臭物質である 2-メチルイソボルネオールとジェオスミンについて、酸化処理のみに除去を担わせた場合、オゾン処理から促進酸化処理への移行の目安とすべき流入濃度として、それぞれ 40 および 77 ng/L と試算している。

第 5 章では、カラムクロマトグラフィーを用いた溶存有機物の分画手法により、急速砂ろ過水およびそのオゾン処理水を 6 画分に分画し、それぞれの画分を塩素処理することで、カルキ臭への寄与が高い溶存有機物の特性解析を行った。その結果、カルキ臭への寄与が高い画分として、急速砂ろ過水については、塩基性画分、オゾン処理水については親水性酸と親水性中性画分を特定した。このことから、現行の高度浄水処理プロセスをカルキ臭制御の観点からさらに高度化するためには、親水性・イオン性化合物の除去機能を強化することが重要であることを指摘し、具体的にはイオン交換処理の積極的な活用が重要であると提案している。

第 6 章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。

第 7 章は課題として、カルキ臭の更なる低減に向けて今後検討が必要な事項を整理している。

(論文審査の結果の要旨)

カルキ臭は水道水質に関する消費者の不満の大きな要因であり、その制御は持続的に水道システムを運営する上で、安全性の確保とあわせて重要な課題となっている。しかし、オゾン処理や促進酸化処理が塩素処理後のカルキ臭に及ぼす定量的影響、その際の反応生成物である臭素酸イオンとのトレードオフ関係、さらにはカルキ臭原因物質前駆体の化学的特性に関する詳しい知見は皆無である。本研究は、以上の状況を踏まえカルキ臭問題について、酸化処理によるカルキ臭制御の可能性とその限界について評価するとともに、カルキ臭生成に関与する溶存有機物の化学的特性を明らかにすることを目的として行ったものである。得られた主な成果は次の通りである。

- 1) 回分式実験により、塩素処理開始 24 時間後の残留塩素濃度が 1 mg/L となるように塩素処理した場合の臭気強度を三点比較法により評価した。その結果、オゾン処理または促進酸化処理（オゾン/過酸化水素処理）を行った場合には、塩素処理のみの場合よりも臭気強度はおよそ 50%減少することを示した。また、酸化処理を行った場合でも塩素処理後の臭気強度は 30 TON 程度であり、カルキ臭原因物質の前駆体が完全には酸化・分解されないという酸化処理の限界を示した。また、トリクロラミン濃度との比較から、トリクロラミン以外の有機のカルキ臭原因物質の寄与が大きい場合があることを指摘した。
- 2) パイロットプラント実験により、オゾン処理とオゾン/過酸化水素処理のカルキ臭低減効果の間には差異が認められないこと、低オゾン注入率でも一定のカルキ臭低減効果があることを示した。このことから、酸化処理プロセスの選択にあたっては、通常はカルキ臭を制御することを主目的に低オゾン注入率のオゾン処理とし、カビ臭物質等原水中微量汚染物質の高効率処理と臭素酸イオンの同時制御が要求されるような状況では促進酸化処理に切り替えるという柔軟な運用が合理的であるという結論を得た。
- 3) 溶存有機物の分画手法により、カルキ臭への寄与が高い画分として、急速砂ろ過水については、塩基性画分、オゾン処理水については親水性酸と親水性中性画分を特定した。すなわち、現行の高度浄水処理プロセスをカルキ臭制御の観点からさらに高度化するためには親水性化合物の除去機能を強化することが重要であることを指摘した。

本研究で得られた酸化処理によるカルキ臭低減効果とカルキ臭原因物質前駆体の化学的特性に関する知見は、今後の安全かつ快適な水道水供給のための技術的基盤を提供するものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また平成 22 年 8 月 23 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認められた。