

(論文内容の要旨)

本論文は、下水処理水中の医薬品類 (PPCP) の物理化学的処理法として、紫外線 (UV) 処理、オゾン ( $O_3$ ) 処理、およびそれらを組み合わせた促進酸化処理 (AOP) を検討するため、UV については回分実験および  $O_3$  については半回分実験を行い、水中からの PPCP 除去機構を解明し、その結果を基に、実処理に近いベンチスケールの連続処理装置で、下水処理水中の医薬品類を除去するために必要な条件の確認と処理プロセス間の相違を除去性能、消費電力量、副生成物、消毒効果、生態影響などの視点から比較した一連の研究であり、8 章からなっている。

第 1 章は序論であり、研究背景として水環境における医薬品類汚染と下水処理水再利用での位置付けについて述べた後、本研究の目的と論文の構成を述べている。

第 2 章では、水環境中に残留する医薬品類ならびに水の再利用について文献レビューし、下水道や水環境での実態や挙動、残留した医薬品類の生物影響、水再利用状況や技術など現状の研究状況をまとめている。これまで水に残留する医薬品類を除去するために、 $O_3$ 、UV、AOP の利用に関するラボスケールの研究が行われているが、研究対象物質は限定されており、また費用効果や消毒効果など実際に利用する際の多面的な評価が行われていないため、検出される様々な医薬品類の除去特性を把握し、現実的で多様な面から評価を行うことは、重要な研究課題であることを指摘している。

第 3 章では、水環境からの検出が報告されている 30 種類の医薬品類の UV 処理および UV/ $H_2O_2$  処理の分解特性を回分実験で検討している。UV 処理の場合、純水中の医薬品類を 90% 以上除去するためには、 $38\text{mJ}/\text{cm}^2$  から  $5,644\text{mJ}/\text{cm}^2$  の UV 照射量が必要と指摘している。UV/ $H_2O_2$  処理の場合には  $691\text{mJ}/\text{cm}^2$  の UV 照射量で殆どの医薬品類が有効に除去されることを明らかにしている。そして下水処理水中では、UV 単独処理の場合、 $2,768\text{mJ}/\text{cm}^2$  の UV 照射にもかかわらず、90% 以上除去された医薬品類は 18 種類に止まり、数多くの医薬品類の有効な除去のためには相当の UV 照射が必要と指摘している。

第 4 章では、30 種類の医薬品類の  $O_3$  処理および  $O_3/H_2O_2$  処理の分解特性を半回分実験で検討している。多くの医薬品類は  $O_3$  と非常に速やかに反応すること、 $O_3$  と UV あるいは  $H_2O_2$  との併用は医薬品類の分解反応をさらに促進することを明らかにしている。下水 2 次処理水を用いたベンチスケール実験では  $O_3$  単独処理の場合、 $6.3\text{mg}/\text{L}$  の  $O_3$  消費量で 90% 以上の除去がみられたとしている。また、 $O_3$  処理と UV 処理とを併用することで  $O_3$

処理時と同じ除去率を達成するために必要な O<sub>3</sub> 消費量を 4.5mg/L まで減らすことができるとしている。またエネルギー消費面では O<sub>3</sub>/UV 処理時は処理水 1m<sup>3</sup>あたり 1.1kWh が必要だったが、O<sub>3</sub> 単独処理時には 0.1kWh であり、消費エネルギー面では O<sub>3</sub> 処理が有利であることを示している。

第 5 章では、UV、UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 処理をベンチスケールの連続処理実験装置を用いて行い、2 次処理水から検出された 37 種類の医薬品類について除去性能を比較、評価している。この結果、下水処理水から検出された医薬品類全てが、923mJ/cm<sup>2</sup> の UV 照射量と 6.2mg/L の H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> との併用により 90%以上除去されることを示している。UV 単独処理の場合、2,768mJ/cm<sup>2</sup> の UV 照射にもかかわらず、90%以上除去された医薬品類は 18 種類に止まり、数多くの医薬品類の有効な除去のためには相当の UV 照射量が必要であると指摘している。

第 6 章は O<sub>3</sub>、O<sub>3</sub>/UV 処理をベンチスケールの連続処理実験装置を用いて、2 次処理水から検出された 38 種類の医薬品類の除去性能を比較、評価している。下水 2 次処理水を用いたベンチスケール実験では O<sub>3</sub> 単独処理の場合、6mg/L の O<sub>3</sub> 注入量(O<sub>3</sub> 消費量：4.4mg/L)で医薬品類は 90%以上の除去がみられている。また、O<sub>3</sub> 処理と UV 処理とを併用することで O<sub>3</sub> 処理時と同じ除去率を達成するのに要する O<sub>3</sub> 注入量を 4mg/L(O<sub>3</sub> 消費量：3.4mg/L)まで減らすことができることを示している。医薬品類の 90%以上の除去のためには、O<sub>3</sub>/UV 処理時は処理水 1m<sup>3</sup>あたり 1.1kWh のエネルギー消費量が必要であったが、O<sub>3</sub> 単独処理時には 0.1kWh であり、消費エネルギー面では O<sub>3</sub> 処理が有利であることを示している。

第 7 章は、医薬品類の除去を考慮した下水 2 次処理水の再利用技術として O<sub>3</sub>、UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> および O<sub>3</sub>/UV 処理の適用性を検討している。O<sub>3</sub> 単独、O<sub>3</sub>/UV および UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 処理プロセスは、医薬品類の除去が有効であるだけでなく、消毒効果に優れ、生態リスク低減効果があることから、農業やレクリエーション用の再利用水などを確保するための処理プロセスとして有効であると指摘している。消費エネルギー量からは O<sub>3</sub> 単独が有利であるが、O<sub>3</sub>/UV および UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> は臭素酸物の生成の可能性が低く、放流先が水道水源である場合には有効であることを指摘している。

第 8 章は、まとめと結論である。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、下水処理水に残留する医薬品類を、紫外線 (UV) 処理、O<sub>3</sub> 処理、およびそ

れらを組み合わせた促進酸化処理（AOP）を回分実験で行い、水中からの医薬品類の除去機構を解明し、その結果を基に、ベンチスケールの連続処理装置で、下水処理水の PPC の除去に必要な条件の確認と処理プロセスを除去性能、消費電力量、生態影響などの視点から比較した一連の研究であり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 水環境中からの検出が報告されている 30 種類の医薬品類の UV および UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 処理での分解特性を回分実験で検討した結果、医薬品類は擬似 1 次反応で減少していくこと、また 90%以上を除去するためには UV 単独処理の場合、38~5,644mJ/cm<sup>2</sup> の UV 照射量が必要であるが、UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 処理の場合には 691mJ/cm<sup>2</sup> の UV 照射量で医薬品類が 90%以上除去されることを明らかにした。

2. 下水 2 次処理水を用いた UV および UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> のベンチスケール連続実験から、38 種類の医薬品類に対して、UV 単独処理の場合、2,768mJ/cm<sup>2</sup> の照射量でも 90%以上除去されるのは 18 種類にとどまるが、UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 処理では、923mJ/cm<sup>2</sup> の UV 照射量と 6.2mg/L の H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の併用により検出された全ての医薬品類は 90%以上除去できることを明らかにした。

3. 30 種類の医薬品類の O<sub>3</sub> 単独および O<sub>3</sub>/UV 処理の分解特性を半回分式実験で検討した結果、医薬品類は擬似 1 次反応で減少していくこと、また 90%以上を除去するためには、O<sub>3</sub> 単独処理では 6.3mg/L の O<sub>3</sub> 消費量が、また O<sub>3</sub>/UV 処理の場合には 4.5mg/L の O<sub>3</sub> 消費量が必要であることを明らかにした。

4. 下水 2 次処理水を用いた O<sub>3</sub> 単独および O<sub>3</sub>/UV 処理のベンチスケール連続実験から、O<sub>3</sub> 単独処理の場合、6mg/L の O<sub>3</sub> 消費量で、また O<sub>3</sub>/UV 処理では 4mg/L の O<sub>3</sub> 消費量で、90%以上除去できることを明らかにした。

5. O<sub>3</sub>、UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> および O<sub>3</sub>/UV 処理の適切なプロセス及び操作法を提示し、医薬品類の除去性、消費エネルギー性、生態リスク低減効果などの視点から総合評価した。

以上要するに、本論文は下水処理水に見出される 38 物質の医薬品類を除去するための効果的な UV あるいは O<sub>3</sub> を用いた物理化学処理法について、回分式あるいは半回分式実験装置で医薬品類の分解過程を解明し、連続処理実験装置でその除去効果を確認し、消費電力量、副生成物、生態影響などの視点からこれらの処理方法を評価したものであって、その成果は、学術上、実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 20 年 8 月 6 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、合格と認めた。