

氏 名	いけ じま のり ひと 池 嶋 規 人
学位(専攻分野)	博 士 (地球環境学)
学 位 記 番 号	地 環 博 第 31 号
学位授与の日付	平 成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	地 球 環 境 学 舎 地 球 環 境 学 専 攻
学位論文題目	低圧逆浸透膜による微量汚染物質の分離に関する研究

論文調査委員	(主 査) 教 授 松 井 三 郎	教 授 杉 山 雅 人	助教授 松 田 知 成
--------	----------------------	-------------	-------------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、水中の微量汚染物質処理法として近年注目されている低圧逆浸透膜による汚染物質の分離特性及び分離機構について研究したものである。特に汚染物質の性質、膜の性質、汚染物質と膜との相互作用、共存する他の汚染物質との相互作用の視点から微量汚染物質の分離における影響因子の検討を行い、低圧逆浸透膜による微量汚染物質の分離機構を解明することを目的としており、全7章からなっている。

第1章は序論であり、研究の背景と低圧逆浸透膜による汚染物質の分離に対する従来の研究について説明している。

第2章では比較的高濃度、広範囲で検出されている内分泌攪乱物質、医薬品由来物質等の20種類の有機微量汚染物質を対象として3種の低圧逆浸透膜を用いて分離実験を行い、溶液 pH、対象物質の分子量、解離度などの汚染物質の特性が分離に及ぼす影響について検討を行っている。この章では、分離分子量以上の分子量を持つ微量汚染物質の分離阻止率は汚染物質の解離度に関わらずサイズによる排除が働くため90%を越える値を示し、分離分子量が微量汚染物質阻止における重要な影響因子である事を示した。また、分離分子量以下の微量汚染物質阻止には解離度が大きく影響するが、解離度の小さな微量汚染物質の阻止に分子量や分子幅以外の因子による影響が示唆された。

第3章では低圧逆浸透膜の汚染物質分離における膜による影響因子のうち、特に膜表面 ζ -電位に着目し、流動電位法による測定方法の確立と測定結果の妥当性の検討を行い、膜表面 ζ -電位が汚染物質分離阻止に与える影響について検討を行っている。この章では、従来使用されてきた電気泳動法ではなく流動電位法を用いて膜表面 ζ -電位の測定を行い測定結果の妥当性を示すとともに、膜表面 ζ -電位の大小に伴い分離阻止率も影響を受けることから、その絶対値も解離性の汚染物質阻止における影響因子である事を示した。

第4章では比較的ルーズなポリアミド系低圧逆浸透膜を用いて有機微量汚染物質20種の分離・収着実験を行い、膜と微量汚染物質との相互作用の影響について汚染物質の疎水性($\log K_{ow}$)を中心に検討を行った。また同時に低圧逆浸透膜における微量汚染物質の透過性に影響を及ぼす因子のうち見かけ上の膜内拡散係数に着目し、その測定を行うとともに汚染物質分離における影響について検討を行っている。この章では、解離度が0.5以下であり、双極子モーメントの値が1より小さな極性の低い微量汚染物質分離の阻止率は、 $\log K_{ow}$ の値が大きくなるほど阻止率が低くなる傾向を示し、汚染物質の疎水性が分離に大きく影響している事を示した。また、解離度が0.5以下であり、双極子モーメントの値が1よりも大きな極性の高い微量汚染物質の分離阻止率は、見かけ上の膜内拡散係数の値との間に比較的良好な相関が見られる事を示した。これに対し、解離度が0.5以上の物質における拡散係数や膜/水分配係数は疎水性よりも電気的反発力による影響をより強く受けていた。

第5章では低圧逆浸透膜を用いて無機多価イオン、フミン質などの共存する系における分離実験を行い、他物質の共存下における微量汚染物質分離機構について検討を行うとともに、蛍光消光法による微量汚染物質とフミン質の収着係数の測定を行うことにより微量汚染物質の共存系内における状態を把握した。また、低圧逆浸透膜による処理を適用する対象として

下水の高次処理を念頭におき、下水2次処理水における分離実験を行うことでその適用可能性について検討を加えた。その結果、無機イオンのうちカルシウムイオンの共存により、微量汚染物質の膜に対する収着阻害が起きるため、特に膜に収着しやすい4-Nonylphenolの阻止率が上昇することを示した。フミン質が共存する場合、微量汚染物質は分子量の比較的大きなフミン酸に収着しやすい傾向にあり、微量汚染物質とフミン質の存在比も微量汚染物質の分離に影響を及ぼすことを示した。下水2次処理水においては、比較的疎水性の強い4-Nonylphenolの阻止率は上昇したものの、他の物質では分離阻止率の顕著な上昇は見られなかった。

第6章では第2章から第5章までの結果を踏まえて微量汚染物質の膜分離に影響する因子について検討を行い、微量汚染物質を含む試料水に対して膜分離処理を行う場合における分離阻止率の予測を可能にすることを目的とし、比較的ルーズな低压逆浸透膜であるUTC60における分離阻止率予測の流れを示している。

第7章は結論であり、各章で示された主要な成果をまとめている。

論文審査の結果の要旨

人口の急激な増加と社会の発展に伴い、水不足の問題が今後一層深刻化することが懸念されている。高分子膜を利用した低压逆浸透膜処理方法は、下排水の再利用や浄水の高度化処理法として有効な処理法である。しかし、同法による微量有機汚染物質の分離性能と影響因子については複雑に関係しあっているために十分な解明がなされていなかった。

本論文は、低压逆浸透膜による微量汚染物質の分離機構を解明したものであり、以下に主な成果がまとめられる。

- (1) 低压逆浸透膜の分離分子量以上の微量汚染物質の阻止率は微量汚染物質の解離度に関わらず90%を超える値を示した。低压逆浸透膜の分離分子量が微量汚染物質の阻止における重要な影響因子である事を示した。また、分離分子量以下の微量汚染物質阻止には解離度が大きく影響するが、解離度の小さな微量汚染物質の阻止に分子量や分子幅以外の因子による影響も示唆された。
- (2) その影響因子のうち、膜表面 ζ -電位が微量汚染物質の分離に与える影響について検討を行った。その結果、従来の電気泳動法に代わり流動電位法を用いて膜表面 ζ -電位の測定を行い、測定結果の妥当性を示すとともに、膜表面 ζ -電位の絶対値も解離性の汚染物質分離における影響因子である事を示した。
- (3) 有機微量汚染物質20種の膜分離・膜収着実験を行い、膜と微量汚染物質との相互作用の影響について検討を行った。解離度が0.5以下で双極子モーメント値が1より小さな極性の低い微量汚染物質分離の阻止率は、 $\log K_{ow}$ の値が大きくなるほど阻止率が低くなる傾向を示し、汚染物質の疎水性が分離に大きく影響している事を示した。また、解離度が0.5以下で、双極子モーメント値が1よりも大きな極性の高い微量汚染物質分離の阻止率は、見かけ上の膜内拡散係数の値との間に比較的良好な相関が見られる事を示した。これに対し、解離度が0.5以上の物質における拡散係数や膜/水分配係数は疎水性よりも電気的斥力による影響をより強く受けていた。

以上要するに本研究は、低压逆浸透膜法による微量汚染物質の分離機構を解明し、水の再利用、高度浄化に資する高い成果をあげたことから、地球環境学の発展に大きく貢献した。よって本論文は博士（地球環境学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成19年1月19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。