

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 石井 淑大

河川水は多くの国において最も重要な水道水源となっている。河川水中には多種多様な溶存有機物（Dissolved Organic Matter; DOM）が存在しており、自然由来の有機物と、下水処理水や産業排水、生活雑排水等に含まれる人為由来の有機物とで構成されている。人為由来の物質の中には、有害性を持つ物質も存在しており、その中で法規制等行政による管理監視の対象となっているのは一部にすぎない。したがって、循環的に水利用が行われている流域においては、未規制の物質も含めて人為由来の物質の消長について把握し、より高度な水質管理を行っていくことが理想と考えられる。近年、高分解能質量分析計により、特定の対象物質を定めずに DOM を網羅的に分析する、ノンターゲットスクリーニング（Non-Targeted Screening; NTS）分析が可能になり、DOM の管理監視への活用の可能性が検討されている。

このような背景のもと、本論文は「循環的な水利用における溶存有機物の起源と消長のノンターゲットスクリーニング分析による評価」としてまとめられたもので、以下 8 章からなる。

第 1 章では序論として、本論文の背景と目的について説明している。

第 2 章では、DOM の管理体制および既存の分析手法を整理するとともに、高分解能質量分析計を用いた NTS 分析の研究について、先行研究の知見をまとめている。

第 3 章では、本論文で用いた研究手法をまとめている。

第 4 章では、埼玉県荒川を対象とし、隔月で 4 回、上流から下流までの全 6 地点における河川水中の DOM を NTS 分析した結果を取りまとめている。合計で 9000 種類を超える DOM コンポーネントが検出されており、その特徴を解析

している。河川の流下過程で流入する DOM の中には、分子式中の炭素-水素比 (H/C) が高く炭素-酸素比 (O/C) が低いコンポーネントが含まれていることを明らかにしている。人為的な汚染が極めて少ない、荒川の最上流地点から検出される DOM コンポーネントを自然由来、それ以外の DOM コンポーネントを人為由来と定義することで、自然由来と人為由来とみなせる DOM の消長を評価している。人為由来の DOM は流下過程で種類数が増加するのに対し、自然由来の DOM はほとんど変化がないことを示している。人為由来の DOM は地点間で異なったものが検出され、さらに採水日が異なるとその組成は大きく異なることが明らかになっている。人為由来の DOM コンポーネントのうち、高検出頻度のものを抽出し、今後注視すべき DOM として整理している。さらに MS/MS 分析による構造推定を行うことで、3 物質について確度高く構造推定を行っている。

第 5 章では、荒川支流の入間川の 4 地点と、入間川へ放流される下水処理水、さらに下水処理水の流入後に入間川から取水する浄水場の工程水を 6 回採水して NTS 分析し、それぞれの DOM 組成を明らかにして比較している。その結果、入間川河川水中の DOM コンポーネント数は河川の流下に従い上昇し、特に下水処理水の流入後に大きく上昇することが明らかになっている。下水処理水流入後の地点においては、検出された DOM コンポーネントの 2~5 割が下水処理水由来と分類されている。浄水処理により、浄水場原水中の自然由来の DOM コンポーネントは平均で約 2 割減少したのに対し、下水処理水由来の DOM コンポーネントは 3~5 割減少しており、下水処理水由来の成分の方が除去されやすいことを明らかにしている。浄水中に残存する DOM コンポーネントは、約半数が自然由来、約 4 割が下水処理水由来、約 1 割が浄水場で新たに生成される DOM コンポーネントであったとしている。浄水中に存在する下水処理水由来の DOM コンポーネントの中で、複数回の採水で共通して検出されたものを重要な DOM であるとし、それらのうち 5 物質の構造推定を行っている。

第 6 章では、荒川より取水する 6 ヶ所の浄水場を対象とし、DOM の浄水処理による変化を分析している。その結果、人為由来の DOM コンポーネントは浄水処理により約 5 割除去されていたのに対し、自然由来の DOM コンポーネントの除去率は約 2 割であり、第 5 章と同様、人為由来の成分の方が除去されやすいとの結果を得ている。高度浄水処理を導入している浄水場では、特に O/C の値が小さい DOM コンポーネントが多く除去されていることを示している。浄水処理により新たに生成される DOM コンポーネントのうち、複数の採水で共通して検出されるものは約半数で、残りは各浄水場固有のものであって、生

成される DOM も多様であることを示している。

第 7 章では、第 4 章から第 6 章までで検出された DOM コンポーネントをまとめ直し、データベースとして整理している。荒川と入間川とで検出される自然由来の DOM コンポーネントが大きく異なることなどが明らかとなっている。本研究で検出された合計 2 万種類以上の DOM コンポーネントについて、データベース化しインターネット上に公開している。平常時に検出される DOM の一覧として異常発生時に原因物質を特定する際に活用されたり、新たな規制物質の過去の検出状況を確認する際に用いられったりすることが期待されるとしている。

第 8 章では結論として本研究の成果と今後の展望について記している。

本論文により、河川水から検出される DOM の起源を推定することができ、浄水処理における消長を評価することに成功している。河川流域における循環的な水利用において、網羅的に DOM を管理するために、NTS 分析の活用が有効であることを明らかにしており、より高度な水道水の水質管理に資する情報を提供している。したがって本研究は都市環境工学の分野においてきわめて高い意義を持つものである。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。