

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 プンサイ パンワット

本論文は、「Investigating Molecular-Level Changes of Dissolved Organic Matter during Drinking and Reclaimed Water Treatment Processes Using Orbitrap Mass Spectrometry (浄水処理および下水再生水処理における溶存有機物変化の Orbitrap 質量分析計を用いた分子レベルでの評価)」と題したもので、浄水処理および下水再生水処理プロセスにおける溶存有機物(Dissolved Organic Matter, DOM)の除去と生成を、可能な限り網羅的に、化合物単位で評価することを試みたものである。浄水原水となる表流水や地下水、さらには下水再生水の原水となる下水二次処理水にはさまざまな DOM が含まれており、水処理工程における支障となったり、有毒な消毒副生成物の前駆体であったり、生分解性のあるものは微生物増殖の基質となったりすることが知られている。これらの支障を防ぐためには、原因となる DOM を知る必要があるが、既往の分析手法では DOM について包括的に評価するしかなく、問題解決に向けた直接的なアプローチを行うことが極めて困難である。

近年、高分解能・高質量精度を持つ質量分析計が開発され、有機物の化合物レベルでの網羅的分析が現実的になりつつある。本研究では、Kingdon trap 技術を用いた Orbitrap 型質量分析計を用いて未知スクリーニング分析を行うことで、水利用のための処理プロセスである浄水処理や下水再生水処理における DOM の除去と生成を、化合物レベルで行う手法の開発を行うとともに、本手法で明らかになる DOM の変化についてまとめたものである。本論文は以下の 9 章より構成される。

第 1 章では研究の背景と目的、および論文構成を記している。

第 2 章では、DOM について、DOM の分析方法、質量分析の方法、高分解能・高質量精度質量分析における分子式推定法や解析方法、また水環境分野における高分解能・高質量精度質量分析の応用について、既往の研究をまとめている。

第 3 章では、本論文中で用いた分析方法についてまとめている。

第 4 章では、Orbitrap 質量分析計を用いた未知スクリーニング分析において、処理プロセス前後の試料中の溶存物質の濃度変化を定量的に扱うための手法について検討している。同一試料の繰り返し分析によるピーク強度のばらつきと、希釈列における測定結果から、30%以上のピーク強度の違いがあれば、濃度に変いがあると有意水準 5%程度で示すことができること、また濃度にして 40–60%の違いに相当することが示されている。

第 5 章では、河川水、湖沼水、浄水、下水二次処理水、再生水について未知スクリーニング分析を行った結果をまとめている。いずれの試料においても、脱塩、濃縮を目的とした固相抽出における回収率はおおむね 5 割程度であること、炭素、水素、酸素から構成される化合物がもっとも多く含まれること、すべての試料に共通して存在している分子式が多く存在しており、天然の有機化合物として共通して見られるものがあること、などが示されている。

第 6 章では、下水再生水処理工程における DOM 変化を調べた結果がまとめられている。1 箇所の再生水処理場の工程水を 2 回採水して調べたところ、2 回とも極めて似た構成になっており、再現性があったこと、生物ろ過、オゾン処理、塩素消毒の各工程のなかではオゾン処理で極めて大きな変化が見られたこと、などが述べられている。

第 7 章では、浄水処理工程における DOM 変化を調べた結果がまとめられている。原水が異なるが、凝集沈殿砂ろ過に加えオゾン生物活性炭処理が導入されていて処理プロセスが類似している 2 箇所と、MIEX（帯磁性イオン交換樹脂）処理とオゾンと過酸化水素水による促進酸化法が用いられている 1 箇所について比較している。凝集沈殿処理および MIEX 処理では O/C（酸素／炭素）比の大きい化合物が選択的に除去されていることを明らかにしている。また、オゾン処理では不飽和結合の多い有機物が除去され不飽和結合の少ない有機物が生成していたとしている。さらに、数多くの塩素化化合物が塩素処理後の試料から検出され、消毒副生成物の種類は極めて多いことを示している。また、塩素化反応が付加反応や置換反応であったと仮定することで、前駆物質を推定することに成功し、前駆物質の処理プロセスにおける消長を明らかにしている。検出された前駆物質はすべて原水から含まれており、その多くはオゾン処理において増加していることが示されている。

第8章では、オゾン処理、およびオゾン-過酸化水素水の促進酸化処理における有機物組成について、実験室で管理された条件で実験を行って変化を見ている。7章でみられた傾向とまったく同様の結果が得られ、オゾン処理による物質変化の傾向が普遍的であることを明らかにしている。促進酸化処理では、オゾン処理と同じ物質が分解され、さらにより飽和した物質やより酸化された物質も除去されることがわかったとしている。

第9章では、本研究のまとめを示すとともに、今後の課題についてまとめている。

本研究は、浄水処理および下水再生水処理における DOM の変化を、化合物レベルで明らかにした研究であり、下水再生水においては世界でも他に類がなく、浄水処理においてもオゾン処理や促進酸化法における処理を持つ処理プロセスの分析は世界的に例がない。浄水や再生水にどのような有機物が含まれているか、またそれはどのような処理により除去・生成されてきたものか、といった情報も、消費者に提供する時期が遠くない将来に来るものと考えられ、そのための分析技術としても端緒を開くものである。以上のような観点から、本研究は都市環境工学の学術の発展に非常に大きく寄与するものである。

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。