

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 吳 政益

本論文は、「Rejection characteristics of different species of arsenic compounds by low-pressure nanofiltration and its application to treatment of arsenic contaminated groundwater. (低圧ナノろ過プロセスによるヒ素化合物の形態別阻止特性及びヒ素汚染地下水処理への適用)」と題し、地下水等の他成分系におけるヒ素などの微量有害物質の挙動を予測するモデルの提示とその有効性の検証を行い、さらに低圧ナノろ過をバングラデッシュにおける地下水ヒ素汚染対策に適用した場合の処理特性の解析やプロセスの適用可能性を調べた研究である。

第1章は「緒論」である。研究の背景を述べた後、本研究の目的と論文の構成を示している。

第2章「文献レビュー」では、ナノろ過に関する既往の理論をまとめ、またバングラデッシュにおけるヒ素汚染の実態についての文献レビューを行っている。

第3章「理論的検討」では、ナノろ過膜による地下水中に含まれている形態別ヒ素化合物の阻止メカニズムを立体障害(steric hindrance)モデルによって検討している。特に分子量から求められる立体障害因子を用いたモデル系(simplified steric hindrance, 以下SSHと書く)と粒子と孔径サイズの比で表す従来の立体障害因子によるモデル系(conventional steric hindrance, 以下CSHと書く)について並列に検討している。両モデルとも荷電膜表面でのDonnan平衡を考慮しており物質ごとについてはそれぞれの分配係数 K_i を組み合わせていることが、オリジナルな点である。また、膜内の輸送については、拡散力、電気力及び対流が共に説明できるextended Nernst-Planck式にそれぞれのモデルについてSSH及びCSH因子を加えたのがSSH及びCSHモデルである。

第4章「実験材料と方法」では、使用したナノろ過装置や分析方法等についてまとめている。

第5章「微量有機/無機化合物の阻止実験結果」では、特にヒ素について、As(III)、As(V)及びDMAAについて形態別分析を行い、それらのナノろ過による阻止特性を調べた結果、As(III)についてはイオンの形で存在するpH範囲では阻止率が高かったが、イオンではない形で存在するpH範囲では阻止率が低かった。As(V)の場合は、pH3~pH10の範囲では常にイオンの形で存在するため、阻止率が高かった。しかし、DMAAはイオンではないpH範囲にあっても高阻止率を示し、膜と溶質との何らかの相互作用から阻止率が高くなったものと推定された。

第6章「ナノろ過の輸送パラメータの評価」では、次章での比較を行うための輸送パラメータの決定を非荷電粒子である糖類等を用いて行っている。また他成分系の有効荷電密度については、主成分である塩素イオンによって決定し、ヒ素等の微量成分については主成分により決定される有効荷電密度の下で挙動するという仮説のもとでモデル

化を行うことを提案している。これは独創的かつ実用的提案である。

第7章「形態別ヒ素化合物やその他の陰イオンの阻止におけるモデルと実測値の比較」では、種々のヒ素化合物、及び陰イオンについてナノろ過による阻止特性をSSHとCSHモデルによる計算値と実験から得られた阻止率を比較した。その結果をまとめると、陰イオンとなるヒ素形態、硝酸イオン、硫酸イオン、塩化物イオン及び炭酸塩成分(H_2AsO_3^- , H_2AsO_4^- , HAsO_4^{2-} , $(\text{CH}_3)_2\text{AsO}_2^-$, NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- , HCO_3^- , CO_3^{2-})については、SSHモデルとCSHモデルによる計算と実験値がほぼ一致する。Donnan平衡の分配係数 K_i を考慮しない場合は、SSHモデルとCSHモデルによる実験値の説明が不十分である。すなわち、イオン性物質の阻止には膜の荷電による影響が多かったと考えられる。なお、SSHモデルとCSHモデルで求められた K_i の値は両方モデルに置いてそれぞれの差異はなかった。従って、あるイオンに対する分配係数 K_i の値は、例えば、バルク濃度が一定の場合、 K_i が大きくなるほど荷電膜表面においてイオンの濃度勾配が低くなり、同じイオンに対して、分配係数 K_i を考慮しない場合より見かけ上の阻止率は低くなる。すなわち、分配係数 K_i の値が大きいほどそのイオンは膜を通り易い傾向を示す。特にDonnan平衡において導入した分配係数 K_i については、陰イオン溶質のモル体積(Molar volume)に対する相関があり、荷電膜を通す陰イオン性物質に関する K_i の実験式がES10、NTR729HF及びNTR7250の3種類のナノろ過膜について提案している。

第8章「低圧ナノろ過プロセスの地下水ヒ素汚染対策への適用ケーススタディー」では、低圧ナノろ過プロセスの水処理への適用に関する一例として自転車ポンプシステムを用いたナノろ過膜装置によるバングラデシュ井戸水中に含まれているヒ素の阻止特性を調べた。対象地域はバングラデシュのマニゴン(Manikgonj, 深井戸水)とソナルガオ(Sonargao, 浅井戸水)の2ヶ所であった。全ヒ素の濃度はマニゴンの井戸水では約 $400\mu\text{g/L}$ であり、ソナルガオの井戸水では約 $1000\mu\text{g/L}$ であった。ヒ素以外の物質としては、鉄、マンガンが多く含まれていた。ナノろ過膜実験はES10(日東電工)とHS5110(東洋紡)のスパイラル系モジュールを用いて行った。運転圧力は $0.3\text{MPa}\sim 0.7\text{MPa}$ であった。全ヒ素の阻止率はES10の場合は最大約91%であり、HS5110の場合は最大約95%であった。バングラデシュでのヒ素に対する環境基準は $50\mu\text{g/L}$ である。取水した地域では、T-Asが最大約 $1000\mu\text{g/L}$ であることを考えると安全な基準値までの飲料水を確保するためには、阻止率をもっと高める必要があると考えられる。そのためには、低い阻止率を示す亜ヒ酸[As(III)]のヒ酸[As(V)]へ酸化する前処理あるいは膜を2段に設置する方法が考えられる。特に、ヒ素以外に多く含まれている共存物質である鉄による酸化還元反応によって亜ヒ酸のヒ酸へ酸化が期待されるとしている。

第9章は「結論及び今後の課題」である。

以上要するに、実際の水処理において極めて重要となる多成分系での低圧ナノろ過プロセスの阻止性能を説明するモデルを確立し、ヒ素の形態別阻止特性を定量的に明らかにしたものであり、その学術面での成果は低圧ナノろ過の地下水等への工学的応用に際し極めて貴重な基礎情報を提供している。従って、本論文により得られた知見は都市環境工学の学術の進展に大きく貢献するものである。

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。