

## 審査の結果の要旨

氏名 藤田 洋崇

本論文は「Study on Adsorption and Decomposition of Water-dissolved Ozone and Organics on High Silica Zeolites (ハイシリカゼオライトにおける水中溶存オゾン・有機物の吸着と分解に関する研究)」と題し、水中に溶存しているオゾンと有機物が共にハイシリカゼオライトに吸着し分解する現象について、その物質移動と反応に関する基礎的な特性を明らかとすると共に、この現象を利用した新規な水処理法の提案を行ったもので、6章から成る。

第1章は序論であり、従来のオゾンを用いる水処理法は処理速度や有害副生成物の生成などの問題点を有していることを述べ、また近年それらの問題点が顕著化している現状について整理している。その上で、それらの問題点を解決する方法として吸着剤にオゾンと除去対象有機物を同時に吸着させて濃縮する新しいオゾン処理法を提案し、その提案の内容を詳細に述べている。そして、本論文の目的は、この提案が実用的な水処理プロセスにつながるかを現象の基礎的解明によって具体的に示すことであるとしている。

第2章では、提案した新しいオゾン処理法において最も重要な現象である水中溶存オゾンの吸着と吸着状態でのオゾンの分解について述べている。オゾンの吸着に関する既往の研究のほとんどは気相吸着に関するものであり、水中溶存オゾンの吸着に関する研究はほぼ皆無であったことから、まず水中溶存オゾンの吸着に適した吸着剤のスクリーニングを試み、ハイシリカゼオライトが極めて吸着容量が大きく可逆的物理吸着が可能な吸着剤であることを新たに明らかにしている。また、ハイシリカゼオライトの種類や、 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比（シリカ・アルミナ比）に吸着特性は大きく依存することを一連の実験を通して整理している。さらに、ハイシリカゼオライトに吸着されたオゾンの安定性は水中溶存状態でのオゾンと同程度であり、このことから細孔内に高濃度にオゾンが濃縮された反応場を形成することが可能であることを明らかにしている。

第3章では、実際の浄水処理において除去対象有機物のひとつであるトリクロロエチレンを、第2章で見出したハイシリカゼオライトを用いて除去する実験とその結果の解析について述べている。ハイシリカゼオライトを導入することにより、見掛けの反応速度はバルク水中と比べて著しく増大し、トリクロロエチレンおよびオゾンの吸着容量が大きいハイシリカゼオライトを用いるほど大きいことを実験的に明らかにしている。しかしながら、見掛けの反応速度には上限があり、これはトリクロロエチレンのハイシリカゼオライト外側液境膜の物質移動で決まることを解析的に導き実験結果との一致を示している。

第4章では、ハイシリカゼオライトの粒子内におけるオゾンと除去対象有機物の反応速度の解析について詳しく述べている。まず、アセトアルデヒドおよびエタノールをモデル除去対象有機物として選択し、第3章と同様にハイシリカゼオライトを用いた系における見掛けの反応速度を実験から求め、それらがバルク水中での反応速度に比べて $10^4\sim 10^6$ 倍となることを示している。また、吸着相での反応とバルク水中での反応の活性化エネルギーがほぼ同一であったことから、吸着相とバルク水中における反応の機構は同一と仮定して差支えなく、吸着によるオゾンと有機物の濃縮によって見掛けの反応速度が大きくなると結論づけている。

そこで、ハイシリカゼオライトの結晶が凝集した2元構造を有する粒子において水中溶存オゾンと除去対象有機物が上述の機構で吸着・反応する系について、詳細な数理モデル

を作成し解析に用いている。水中に溶存する有機物がハイシリカゼオライトの結晶内のミクロ孔で分解される現象は、外側液境膜の物質移動、結晶間隙であるマクロ孔における拡散、結晶内のミクロ孔における拡散、結晶内のミクロ孔中でのオゾンとの反応に区分され、このうちのミクロ孔内拡散が律速段階となることはないことを明示した上で、マクロ孔内拡散支配として一連の実験結果を明解に説明している。

また、ここで展開した数理モデルを用いた解析は、本論文では対象としなかった有機物の吸着と反応に関する挙動の予測に有効であることを述べ、本論文で提案した新しいオゾン処理法の可能性と限界についても言及している。

第5章では、本論文で提案した新しいオゾン処理法と種々の水処理との比較を処理コストの概算も含めて行い、その実用性に関する考察を述べている。

第6章では、第2章から第5章に記載した内容を総括し、水中溶存オゾンの吸着を利用した新しい水処理が今後果たすであろう役割について整理している。まず、オゾンを用いる水処理法が一層さまざまな水処理に適用されるためには処理速度の向上と有害副生成物の抑制を同時に達成する必要があることを述べ、本論文での提案がこのことに大きく貢献できる可能性を有していると結んでいる。また、実用化に向けて今後検討されなければならない事項についても整理している。

以上を要するに本論文は、従来のオゾンを用いる水処理法の問題点を一掃する新しい方法としてオゾン吸着剤を用いる方法を提案し、その場合の除去対象有機物の吸着・分解機構を詳細に明示しており工学的に高い価値を有し、化学システム工学への貢献は大きいものと考えられる。

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。