

審査の結果の要旨

氏名 ロウワチャリン ジェニユック

本論文は「表流水の膜ろ過処理におけるカーボンブラック粒子の影響」(Effects of Carbon Black Nanoparticles on Membrane Filtration of Surface Waters)と題し、有機物などを含む水道原水に対して、カーボンブラックを吸着材として用い、膜ろ過法と組み合わせた、新しい高度浄水処理法を提案したものである。本研究は8章から構成されている。

第1章は研究の背景と目的で、既存の高度浄水プロセスの課題や、吸着材と膜ろ過を組み合わせた処理技術について述べたのち、本研究の目的について述べている。

第2章は、本研究に関連する文献調査であり、カーボンブラックの基礎的な物性や、膜ろ過法に関する文献を整理収集し、吸着材と膜ろ過法とを組み合わせた、ハイブリッド処理に関する既存の知見を整理している。

第3章は実験方法であり、カーボンブラックの細孔分布、比表面積などの測定方法や、水中での分散状態の安定性に関する実験方法、表面の官能基の測定法、及び熱分析(TG/DTA)について述べている。また、有機物の分析方法として、UF膜によるろ過及びSECによる分子量測定法、親・疎水性画分の分析法、紫外線吸収特性、などについて述べている。また、カーボンブラックや活性炭を含む原水をろ過する方法について説明している。

第4章から第7章は実験の結果について述べている。第4章では、カーボンブラックを物理的または化学的な方法により修飾し、基礎的な物性について調べた結果について述べた。本研究で使用した(無処理の)カーボンブラックは、平均粒径約130nm、窒素吸着法により比表面積144 m²/g、平均孔径24.4nmであった。カーボンブラックは、通常、凝集体として存在しており、ここで測定されたマクロポアは、凝集体の粒子同士の空隙であることが示された。このカーボンブラックを3N NaOHによる化学的処理、窒素雰囲気下で1000°Cまでの高温処理などにより修飾した結果、高温処理によりミクロポアが増大し、カーボンブラックの比表面積が著しく高まることが確認された。

第5章では、カーボンブラックの分散と凝集に及ぼす影響因子について調べた。カーボンブラックの凝集にはイオン濃度やpHが影響しており、特にCaやMgなどの多価イオンの濃度が高まると、1mM程度でも容易に凝集し、数ミクロンの凝集体となることが示された。これに対して、Naのような一価のイオンでは凝集させるためには90mMといった高濃度にする必要があることがわかった。

また、カーボンブラックやマクロ有機物を含む原水をろ過する場合、膜表面近傍に濃度境界層が発達し、濃度分極によるろ過抵抗が大きくなることが示された。このような濃度分極によるろ過抵抗は、NaClを添加した場合著しく増大するが、CaやMgを添加した場合、凝集が進むことにより逆に極めて小さくなることが示された。

さらに、小櫃川の河川水を用いて、膜ろ過実験を行った。膜ろ過における、膜汚染機構を動的モデル

によって解析したところ、ろ過初期における膜汚染機構は、原水中の有機物が膜の細孔内部に吸着することにより起こり、その後は、濃度境界層の発達により、濃度分極抵抗が高まることが示された。このような濃度分極抵抗は、粉末活性炭により低分子有機物を除去しても変わらなかったことから、高分子有機物によって引き起こされていることがわかった。また、カーボンブラックの添加により濃度分極抵抗はなくなるものの、ケーキろ過抵抗が著しく増大した。このため、カーボンブラックを使用する場合は、適切な条件で凝集させることにより、ケーキろ過抵抗を低減できることが示された。

第 6 章では、有機物濃度が高いといわれるマレン湖の水を用いてろ過実験を行った。粉末活性炭を添加してろ過した場合に比べて、カーボンブラックを添加してろ過した場合は、有機物によるろ過抵抗の上昇が抑えられることが示された。これは、粉末活性炭が主に低分子の疎水性有機物を吸着するのに比べて、カーボンブラックは膜汚染を引き起こす高分子の親水性有機物を吸着するためであることが示された。

第 7 章では、多摩川の河川水を用いて、カーボンブラックと粉末活性炭による有機物の吸着除去特性、ならびに連続的な膜ろ過を想定した実験を行った。その結果、カーボンブラック粉末は、粉末活性炭よりも低濃度かつ短時間でより多くの溶存有機物を吸着することが示された。また、逆洗浄を繰り返す連続ろ過を行った場合、カーボンブラックを添加した実験では、ろ過抵抗の上昇が抑制された。

第 8 章は結論であり、本研究で得られた主な結論がまとめられている。カーボンブラックと膜ろ過を組み合わせたハイブリッド処理は、玉川河川水に見られるように、粉末活性炭処理よりも低濃度のカーボンブラック添加でより多くの溶存有機物を吸着除去できる可能性がある。しかし、他の河川水や湖水では、カーボンブラックの有機物吸着性が必ずしも高くないことから、原水中の有機物の特性に適合したカーボンブラックの開発が必要であることが示唆された。このように、カーボンブラックの有機物吸着量が必ずしも高くない場合でも、カーボンブラックの添加により膜汚染が抑制された。これは、カーボンブラックの親水性マクロポアに、膜汚染を引き起こす親水性のマクロ有機物が吸着除去されるためであることがしめされた。これらの結論により、今後、浄水処理において吸着法と膜ろ過法を組み合わせたハイブリッド式高度処理を実用化するために必要な重要な知見が得られた。

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。