

氏名	つぐら ひろし 津 倉 洋		
授与学位	博士(工学)		
学位授与年月日	平成11年3月25日		
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項		
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)土木工学専攻		
学位論文題目	水道原水のオゾン・生物活性炭処理プロセスにおける 水質制御に関する研究		
指導教官	東北大学教授 須藤 隆一		
論文審査委員	主査	東北大学教授 須藤隆一	東北大学教授 野池達也
		東北大学教授 大村達夫	東北大学助教授 西村修

論 文 内 容 要 旨

1. 研究の背景

わが国における水道水源の1/3以上が湖沼・ダム湖に依存し、その水質環境基準の達成率は40%程度の横ばい状態が続いている。水道水源であるダム湖等の湖沼の富栄養化が深刻化し、1980年代以降年間1000万人を越える異臭味被害が大都市圏の水道事業体で発生するようになった。1990年には年間2000万人を越えるかび臭等による異臭味被害が多く報告された。これに対して、90年代から、厚生省による高度浄水施設の補助金制度の創設や93年の新水質基準の施行と相まって、特に大都市圏の水道事業体においてオゾン・生物活性炭処理施設の導入が進んでいる。その導入目的は、かび臭等の異臭味対策とトリハロメタン対策がその中心であった。

しかし、微量化学物質に関する分析技術の飛躍的な進歩と相まって、水道原水や水道水中に種々の有害物質が日常的に発見される状況となった。最近では、1995年の外因性内分泌かく乱物質、いわゆる環境ホルモン物質の問題が起これ、水道事業体でもダイオキシン、農薬、界面活性剤等に関して、水源、浄水場、配水施設等で水道水の環境ホルモン物質に関する現状調査が必要となってきた。このような状況の中、1993年から施行された新水質基準も基準・監視項目について追加・削除が実施し、新たなリスクに対応すべく水質基準の改訂作業も活発化している。埼玉県越生町で発生したクリプトスポリジウム感染症は、浄水処理の徹底・強化やろ過水濁度の常時監視等により、浄水場における浄水処理の管理強化を求めた。水道水源の水質悪化、水質基準の強化、クリプトスポリジウムや環境ホルモン物質等の新規汚染リスクの増大は、今後、膜処理等の新規の浄水処理プロセスの導入検討を水道事業体に迫る要因と考えられる。これに伴い、新たな処理エネルギーが必要となり、地球環境問題が深刻化する中、処理効率を向上させつつエネルギー消費量を現状以下に抑制する新た

な浄水処理技術が求められている。現在の高度浄水施設（オゾン・生物活性炭処理プロセス）についても、除去対象物質の拡大、処理水質の低濃度化等の課題に対応していかなければならない。

2. 研究の目的

前節の状況を踏まえて、高度浄水施設、特にオゾン処理プロセスにおける省エネルギー化を目指した水質制御運転は、これからの重要な課題である。しかし現状のオゾン処理プロセスの運転制御方法は、操作員が人為的に設定したオゾン注入率（D）一定制御、オゾン吸収効率（ η ）を重視した排オゾン濃度一定制御、後続の生物活性炭処理プロセスへの溶存オゾン濃度の影響を押さえる溶存オゾン濃度（ DO_3 ）管理が、現実的に実施されている。この場合も、信頼できる水質計測器が少ないため、現実には実施されているオゾン処理プロセスの運転制御は、オゾン注入率手動設定による一定値制御や排オゾン濃度一定制御が多い。また、オゾン処理水中の有機物濃度の連続測定が困難なため、変化するオゾン要求量を連続推定することは難しい。従って、オゾン処理水中に共存する溶存オゾン量と紫外外部吸光度で表される有機物量の分離測定ができないため、オゾン処理効果が連続把握できない。同時に、生物活性処理プロセスの浄化性能も連続的に把握できず、オゾン・生物活性炭処理プロセスを一体の単位操作としてしか評価できない。故に、この2段処理プロセスにおいて個別に浄化性能を連続把握できる水質計測・制御システムを構築することが高度浄水処理システムにおける課題である。

現在、浄水場に導入が始まったオゾン・生物活性炭処理による高度浄水施設は、処理施設のコンパクト化（処理時間の短縮）、処理水質の向上、処理エネルギーの低減を目標に日々運転されている。しかし、将来の除去対象物質の増加・基準値の低濃度化に対応し、上記3課題を満たした処理施設の運転は困難を極めると思われる。そこで本研究では、エネルギー消費量が相当大きいと思われるオゾン処理プロセスに着目し、被処理水の水質変動に対応した必要最低限のオゾン注入制御を実現する方法について研究を行った。被酸化物質と無差別な反応を進めオゾン酸化の特性上から、被オゾン処理水から正確なオゾン要求量を推定するのは困難である。従って、オゾン接触槽における実際のオゾン消費量からオゾン要求量を推定する方法について研究を進めた。

本研究の目的は、1) オゾン・生物活性炭処理実験プラントにおいて種々の除去対象物質と関連深い水質制御上重要と考えられる水質因子を選定・評価し、2) その水質を高精度で長期間連続測定可能な水質計測器を開発し、3) 実際のオゾン・生物活性炭処理プロセスにおいて本水質計測器の連続測定制御に関する評価試験を行い、4) 本水質計測器を用いてオゾン・生物活性炭処理プロセスの水質制御方法を構築・評価し、処理水質の向上、処理時間の短縮、処理エネルギーの低減について検討することである。

3. 研究の内容

第1章「総論」では、本研究に着手した背景であるわが国の水道水源である環境水域の水質汚濁の現状と、水道事業を取り巻く技術課題の抽出を行い、オゾン・生物活性炭処理プロセスにおける水質

制御システムの構築に関する研究対象を選定し、研究目的を明確にした。

第2章「高度浄水処理技術に関する既往の研究」では、オゾン処理プロセス、生物活性炭処理プロセスの処理方法、水質制御方法について既往の研究の整理を行うと共に、本研究の目的を達成するための具体的研究開発課題の抽出を行った。

第3章「オゾン・生物活性炭処理システムの処理性能評価と水質制御因子」では、高度浄水処理ベンチスケールプラント実験において、種々の除去対象物質と関連深いと考えられる両プロセスに共通する水質制御因子について評価・選定を行った。ベンチスケール高度浄水処理実験プラントを使ったオゾン処理および生物活性炭処理実験に関して以下の知見が得られた。

オゾン処理塔の諸特性を検討した結果、実験プラントの向流式オゾン処理塔は分散数=0.21の完全混合流れとプラグフローの中間的流動特性である。また、 $K_L a$ （移動容量係数）と a を求めた結果、良好な溶解特性が確認できた。色度・E260（260nm紫外部吸光度）は、オゾン処理において1次反応で近似していることが、回分処理および連続通水処理の各実験で確認できた。E260、色度、 $KMnO_4$ （過マンガン酸カリウム）消費量、THMFP（トリハロメタン生成能）について、各処理工程水の経時変化から、 $KMnO_4$ 消費量が一番変化が大きく、以下色度、E260の順であった。E260指標が、懸濁成分の影響を少なくすることで、一番安定した測定結果を示した。

高度浄水処理導入目的の1つであるトリハロメタンの低減化に関して、E260指標はトリハロメタン生成能に直接的に発現し、THMFP、TOXFP（全有機ハロゲン物質生成能）との相関が高く、これらの指標を推定管理する上でも有効であることが確認できた。また、活性炭処理塔内のろ床流下方向のTHMFP変化も推定可能である。

従って、E260指標がオゾン・生物活性炭処理プロセスの有効な共通水質制御因子であり、オゾン処理プロセスの水質制御因子としてばかりでなく、生物活性炭処理プロセスの破過監視としても重要な水質制御因子であると考えられる。

第4章「オゾン処理槽内有機物量と溶存オゾン量の同時測定システムの開発」では、溶存オゾン濃度と水質制御因子（E260指標）が共存状態にあるオゾン処理プロセスにおいて、両水質因子を分離測定する方法を検討し、それらを高精度で長期間連続測定可能な水質計測システムの開発を行った。

最初に、オゾン水中の有機物量（UVorg）と溶存オゾン量を同時に分離測定する方法について検討した結果、溶存オゾン濃度およびUVorgの算定式を導出した。次に、この測定方法を実現できる水質計測システムの開発検討を行い、オゾン水中の有機物量と溶存オゾン量を同時に分離計測可能な溶存オゾン濃度計を試作し、本同時測定方法の妥当性について検証を行い、以下の結論を得た。

溶存オゾン濃度指示値は、0.00~2.50(mg/L)の濃度範囲でインジゴ法による手分析値とよく一致する検量線が得られた。紫外部吸光度はばっ気法に見られるような脱オゾン時のUVorg減少はなく、手

分析値とよく一致した。オゾン処理水の溶存オゾン濃度と紫外外部吸光度の同時測定が可能になった。

紫外外部吸光度（UV値）はトリハロメタン生成能等の有機物指標と相関が高い水質指標であり、オゾン処理・生物活性炭処理の両プロセスの処理性評価指標である。しかし従来から、オゾン水中の有機物量（UV値）と溶存オゾン濃度を連続的な自動計測は不可能であった。今回開発した本溶存オゾン濃度計を用いることで、溶存オゾン濃度だけでなく紫外外部吸光度もオゾン・生物活性炭両処理プロセスの水質制御指標として使えることが確認でき、オゾン処理および生物活性炭過程でより信頼性の高い水質制御が可能になると考えられる。

第5章「オゾン・生物活性炭処理プロセスにおける水質制御方法の構築」では、E260指標を用いたオゾン・生物活性炭処理プロセスの水質制御方法について検討を行い、以下の結論を得た。すなわち、オゾン処理実験プラントを利用して、低濃度UV計を用いた水質制御に関して、吸収効率、オゾン注入率、溶存オゾン濃度を用いたオゾン処理水のE260残存比推定が可能となった。連続測定用の溶存オゾン濃度計および低濃度UV計を用いて、オゾン消費量（ $= \eta D - DO_3$ ）の正確な把握によるE260指標を水質制御因子としたオゾン処理水質制御システムを構築した。オゾン・生物活性炭処理プロセスに、被オゾン処理水と生物活性炭処理水に低濃度UV計を、オゾン処理水に溶存オゾン濃度計を適用することで、オゾン処理過程の処理性能および生物活性炭処理過程の処理性能（残存比率）が連続信号として得られるので、実施のオゾン消費量に近似したオゾン要求量を連続設定し、活性炭処理過程のE260残存比からは連続監視を可能とする水質制御システムが構築できた。また、本水質計測器を用いてオゾン・生物活性炭処理プロセスの水質制御方法を構築・評価し、臭素酸を含むオゾン処理副生成物の発生を押さえるのに、本研究で構築したオゾン処理水質制御方法を実施することで、特に処理水質の安定化・向上及び処理エネルギーの低減が期待できることを確認した。

第6章「総括と展望」では、第1章から第5章までで述べた述べた内容について、章毎にその要点を述べ、論文の総括を行った。また、オゾン・生物活性炭処理に関する水質制御システムの適用に関して、今後の課題と展望について示した。

審査結果の要旨

水道水源である湖沼、河川、地下水等は水質改善がみられないまま、富栄養化の進行や新たな汚染物質の流入などを伴うようになり、従来の浄水処理では、安全で良質な水道水を得ることは難しくなっている。このため水道水質基準が強化されこれを満足する浄水処理操作の一つとしてオゾン・生物活性炭法の導入が始まっている。しかし本法の制御方法は未解決のまま残されている。

本論文は、これらの課題に対応するため、オゾン・生物活性炭処理プロセスの水質制御システムを目指したもので、オゾン処理工程および後続の生物活性炭処理工程に共通する、除去対象物質であるトリハロメタン前駆物質に関連した連続計測可能な水質制御因子について、その有効性を評価すると同時に水質制御因子を選定し、その水質連続測定システムを適用したオゾン生物活性炭処理プロセスの水質制御方法を確立し、その有効性を実証した成果をとりまとめたもので、全編6章より構成される。

第1章は総論であり、本研究の背景と目的を示している。

第2章では、オゾン処理プロセスおよび生物活性炭処理プロセスにおける水質管理方法、水質制御の研究に関する現況、および今後取り組むべき研究課題について示している。

第3章では、オゾン・生物活性炭処理プロセスの処理実験検討から、連続測定可能で、両処理過程に共通する有効な水質制御因子を選定した。これは有用な知見である。

第4章では、オゾン処理において、溶存オゾン濃度と共存する水質制御因子であるE 260指標を分離測定する方法を検討し、両者を高精度で長期間連続測定可能な水質計測システムを開発している。これも重要な成果である。

第5章では、オゾン・生物活性炭処理プラントに開発した連続水質計測システムを適用し、オゾン・生物活性炭法の水質制御システムを構築し、処理時間の短縮、処理水質の向上、動力費の低減等の効果について検討している。これは特に有用な成果である。

第6章は、総括と結論である。

以上要する本論文は、オゾン・生物活性炭処理プロセスにおける共通水質制御因子の水質連続計測システムを開発し、それを適用した水質制御システムの構築について検討した成果を示したもので、環境工学の発展に寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。