

氏名	VO THANH HUY
授与学位	博士(工学)
学位記番号	理工博甲第643号
学位授与年月日	平成26年9月24日
学位授与の要件	学位規則第4条1項
研究科, 専攻の名称	理工学研究科(博士後期課程) 環境共生系専攻
学位論文題目	Study on Novel Disinfection Method of Water and Treated Wastewater by Using Pressurized Carbon Dioxide
論文審査委員	主査 山口大学 教授 今井 剛 山口大学 教授 関根 雅彦 山口大学 教授 新苗 正和 山口大学 教授 佐伯 隆 山口大学 准教授 山本 浩一

## 【学位論文内容の要旨】

There is increasing concern that conventional disinfection methods are being disadvantaged with hazardous by-products (chlorine, ozone), high cost, complicated setup and high maintenance (UV, membrane, advanced oxidation process)... Latest technologies of water disinfection must develop from exploiting of advantages of conventional methods and eradicating their handicaps. For this, our study relies on transferring the antiseptic of carbon dioxide effectively used in food preservation to wastewater and water disinfection as a novel finding. Accordingly, the inactivation effects of pressurized CO<sub>2</sub> microbubbles on disinfection efficiency against microorganisms (including bacteria and viruses) and other related aspects of the pH role by dissolved CO<sub>2</sub> in inactivation mechanism, temperature, pressure and environmental water samples were investigated.

These present results confirm previous findings in the field of food preservation and contribute additional evidence that suggests pressurized CO<sub>2</sub> may be applied in water treatment. For example, under identical treatment conditions at 0.7 MPa and room temperature, a greater than 5.0-log reduction in *E. coli* was achieved by CO<sub>2</sub>, while a nearly 4.0-log reduction for phage T4, over 3.3-log reduction for phage Q $\beta$  and approximately 3-log for phage MS2 and phage  $\Phi$ X174 were observed. The decrease of pH in water and high diffusivity of dissolved gas induced by treatment with CO<sub>2</sub> is considered to be the most effective factor leading to its microbicidal effects. In addition, intracellular release of proteins and nucleic acids and cell damage under SEM observation supported clearly to microorganism deaths. Increasing pressure and temperature leads to the adjustment of CO<sub>2</sub> state and have a strongly effect on the microbicidal efficiency. However,

the suitable operating conditions found in this study are the pressure of 0.7 MPa and a temperature range from 20 °C to 25 °C. Finally, a little difference of inactivation effect between the real wastewater and laboratory wastewater (distilled water and artificial wastewater) revealed that this method has the potential application for water treatment. A secondary disinfectant such as chlorine, chloramines or chlorine dioxide may be used with pressurized CO<sub>2</sub> for a complete disinfection system.

These findings were originally inherited from the discoveries of using high pressure CO<sub>2</sub> to inactivate pathogens in food industry. Carbon dioxide on the other hand is safe to handle (it becomes active only when dissolved in water, no special alloy or plastic distribution piping is required for CO<sub>2</sub> system, CO<sub>2</sub> leaks dissipate safely into atmosphere) easy to apply, efficient, relatively low toxicity and naturally abundant. Whilst the present disinfecting methods are facing to the problems with disinfection by-products, use of pressurized CO<sub>2</sub> for the target inactivation of pathogens does partially substantiate no forming the residual toxicity. The current research was not specifically designed to evaluate factor related to intracellular pH of inactivated cells as well the continuous system. The issue of successful inactivation by CO<sub>2</sub> treatment in this study is an intriguing one which could be usefully explored in further research.

## 【論文審査結果の要旨】

従来、水の消毒には塩素による方法が用いられてきた。しかしながら、塩素消毒による弊害（発ガン性物質であるトリハロメタン類の生成や生態系への悪影響）や塩素消毒が効かない微生物の出現（クリプトスポリディウム原虫やウイルス類など）によって、塩素消毒に代わるより安全・安心な消毒技術が必要とされている。そこで、本研究では、水の代替塩素殺菌技術として薬品を用いない新しい殺菌技術を考案し、これまでに例のない殺菌技術の開発、すなわち加圧二酸化炭素を用いた水及び排水の新規消毒方法の開発を行い、その有用性を検討した。

本論文の構成と内容は以下の通りである。

第1章では、研究の背景、目的および論文の構成について述べている。

第2章では、従来の研究についてまとめた。

第3章では、殺菌対象として、大腸菌及びウイルスを選定し、様々に圧力や温度等の運転操作条件を変化させて、最適な運転条件の検討を行った。また、殺菌のメカニズムを検討するために適用するガスの種類を変化させた実験や pH に着目した実験を行った。実験結果から、殺菌に適用するガスとしては二酸化炭素が最も適することが明らかとなった。また、最適な運転条件は室温で、0.7MPa の圧力条件+室温+運転時間 25 分であることが明らかとなった。

第4章では、本法は大腸菌のみでなくウイルス（モデルとして複数種のバクテリオファージ T4, ΦX174, MS2, Qβ を用いた）にも効果が発揮されるかを実験的に検討したところ、大腸菌にはやや劣るものの十分に殺菌できることが明らかとなった。また、本法による殺菌に重要な要素を把握するために、二酸化炭素、二酸化炭素に近い高い溶解度を持つが水への溶解で pH が低下しない亜酸化窒素、窒素、二酸化炭素と pH の低下を抑えるための緩衝剤を組み合わせたものの4ケースに関して殺菌実験を実施した。この結果から使用するガスの溶解度の高さのみでなく pH の低下も重要な要素であることが示された。

第5章では、浮遊性物質（SS）を含む実環境水（下水処理水）を用いて本法による殺菌実験を行ったところ、SS の存在は殺菌効果を低下させるため、SS を除去して殺菌処理を行う必要性が明らかとなった。

以上から、本法は薬品を用いない水及び排水の新規消毒方法としての十分な可能性を有することが示されたと考えられる。

第6章の結論では、本論文を総括しその成果と今後の研究課題について述べている。

公聴会には、学内外から46名の参加があり、活発な質疑応答がなされた。公聴会での主な質問内容は、①研究として大変興味深いのが、実際の水処理へ適用する場合に課題となる点は何か、②従来の研究で、これまでかなりの高圧下での二酸化炭素による殺菌が行われてきたことが述べられているが、本法で極めて低い圧力で殺菌が実現できた理由は何か、③亜酸化窒素と二酸化炭素とpHの低下を抑えるための緩衝剤を組み合わせたものの2ケースの殺菌実験では、ほとんど同じ効果であることを期待して実験を行ったと思うが、同様の結果にならなかった（亜酸化窒素の方が殺菌効果が高かった）のは何か理由があるのか、④ウイルスの殺菌のところでウイルスのサイズの違いを示しているが、サイズが殺菌に関係するのか？サイズではなく、細胞膜の構造の違いなどが関係するのではないのか、など多数であった。

以上のいずれの質問に対しても発表者からの的確で具体的な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性および完成度ともに非常に優れており、博士（工学）の学位論文に十分値するものと判断した。