

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Elucidation and correction of fluorescence quenching for accurate prediction of chlorination by-products
著者(和文)	SaipetchKornravee
Author(English)	Kornravee Saipetch
出典(和文)	学位:博士(学術), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11239号, 授与年月日:2019年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:吉村 千洋,鼎 信次郎,中村 隆志,藤井 学,朝倉 則行,越後 信哉
Citation(English)	Degree:Doctor (Academic), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11239号, Conferred date:2019/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Kornravee SAIPETCH		
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名
	主査	吉村 千洋	准教授	審査員	朝倉 則行	講師
	審査員	鼎 信次郎	教授		越後 信哉	上席主任研究官
		中村 隆志	准教授			
		藤井 学	特任准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Elucidation and correction of fluorescence quenching for accurate prediction of chlorination by-products (塩素処理による副生成物を正確に予測するための蛍光消失の解明と補正)」と題し、英文により7章で構成されている。水処理プロセスでは消毒を目的として塩素処理が広く採用されているが、トリハロメタン (THM) などの一部の副生成物は毒性を持つ。このような副生成物の前駆体は主に芳香族化合物であり、その蛍光特性を簡易かつ高精度で検出できる蛍光励起発光マトリックス (EEM) は副生成物の予測に有効である。しかし、水中に一般的に含まれる天然有機物 (NOM) の中で腐植物質 (芳香族化合物) は、共存する芳香族性アミノ酸やタンパク質の蛍光強度を著しく小さくする (蛍光消光) するため、EEM に基づく予測モデルの精度向上や実用化を困難にしている。本研究は NOM の蛍光特性に着目して、主に腐植物質と芳香族性アミノ酸・タンパク質の分子間相互作用を解明し、その結果に基づき蛍光消失の補正手法を新たに提案することで、THM 濃度を予測するモデルの精度を高めることを目的としている。本論文は以下のように構成されている。

1 章「Introduction (序論)」では、塩素処理および消毒副生成物の制御に関してその意義や課題を整理しており、本論文の目的、意義、構成を述べている。

2 章「Disinfection by-products (DBPs) in drinking water and the current status on the application of fluorescence in DBPs predictive model: a review (飲料水中の消毒副生成物 (DBPs) および DBPs 予測モデルにおける蛍光特性の応用の現状: 文献レビュー)」では、水利用における消毒副生成物の主な生成反応やその課題、蛍光特性を用いた予測モデルの開発状況をまとめている。

3 章「Importance of correcting for fluorescence quenching in fluorescence-based prediction of trihalomethane formation potential (蛍光に基づくトリハロメタン生成能の予測手法に関する蛍光消失の補正の重要性)」では、Suwannee River NOM (SWNOM) とタンパク質 (BSA) を用いた蛍光滴定の結果を報告している。その重要な成果として、BSA 蛍光の消失が THM の予測精度に著しい影響を与えること、また複数の NOM 指標を用いるモデルの中で消光の無い蛍光強度に基づくモデルが最も精度を示した。

4 章「Mechanism of fluorescence quenching of protein by humic substances (腐植物質によるタンパク質の蛍光消失のメカニズム)」では、EEM の他に、吸光度、FTIR、Stern-Volmer 方程式などを組み合わせ、蛍光消失のメカニズムを解明している。滴定実験の結果、SWNOM と BSA が示す消光は静的消光であり、水中での両者の相互作用に起因していること、また、その相互作用として SWNOM が BSA の二次構造の水素結合に影響を及ぼし、それが BSA の立体構造を変化させることで、蛍光強度が減少することが示唆された。

5 章「Development of correction method for fluorescence quenching of protein by humic substances (腐植物質によるタンパク質の蛍光消失に対する補正法の開発)」では、SWNOM と BSA を用いた滴定実験を多くの組み合わせで行うことで、タンパク質が示す蛍光の補正式を導いている。この補正式は、実測されたタンパク質の蛍光 (励起 280nm、蛍光 344nm) と SWNOM の蛍光 (350nm、450nm) から蛍光消失の影響を精度良く除去することができる (決定係数 0.98、ラマン単位 0.33)。

6 章「Development of EEM-based models for predicting THM species formation based on the quenching correction (蛍光および消光補正に基づく THM 種の生成予測モデルの開発)」では、5 章の補正式を活用することで、3 種の THM (クロロホルム、ブロモジクロロメタン、ジブロモクロロメタン) の生成濃度を予測するモデルを提示している。これらのモデルは精度が高く (平均誤差 7.2~37.4µg/L)、臭化物イオンを含む原水にも応用できるため、このアプローチは SWNOM や BSA 以外の有機物を含む水にも適用できる可能性がある。

7 章「Conclusions and recommendations (結論および提言)」では、本研究の総括を行うとともに今後の研究の方向性を示している。

以上を要するに、本研究は EEM に基づく THM 予測モデルの推定精度を大きく向上することに成功しており、今後、他の有機物の挙動を同様に調べることで、THM のオンライン推定の実用化に貢献している。よって、本論文は博士論文として学術的・工学的に十分に価値があるものと認められる。