

「論 文」

全国の水道原水中における 2-メチルイソボルネオールの 粉末活性炭への非平衡吸着

井 上 拓 也

阪神水道企業団 総務部総務課
技師

浅 田 安 廣

国立保健医療科学院
生活環境研究部
主任研究官・博士 (工学)

田 代 新

新潟市水道局
水質管理課水質第3係副主査

船 橋 康 史

大阪市水道局 工務部工務課
担当係長 (送水管設計)

岡 本 朗

和歌山市企業局 工務部
水道企画課技術主査

下ヶ橋 雅 樹

特別会員・博士 (工学)
(元国立保健医療科学院
生活環境研究部 席主任研究官)

秋 葉 道 宏

国立保健医療科学院
生活環境研究部部長・博士 (工学)

要旨：全国21か所の浄水場原水中での2-メチルイソボルネオール (2-MIB) の粉末活性炭への非平衡状態における吸着除去性を明らかにし、原水中の天然有機物 (NOM) に含まれる吸着競合物質を推定した。本研究の実験条件では2-MIB除去率は超純水中で84%であったのに対し、原水中では26%~55%に低下した。3次元蛍光分析により抽出したNOMの主要成分と2-MIB除去率との関係性より、競合吸着への寄与の大きい物質としてフルボ酸様物質を抽出した。さらに非平衡状態における競合吸着では、1kDa未満の成分による寄与が大きいと推定した。また注入量の予測指標として全有機炭素及び溶解有機炭素の有用性が確認できた。

キーワード：粉末活性炭、2-MIB、非平衡吸着*、天然有機物 (NOM)、原水

分類項目：活性炭処理 (050802)、臭気除去 (050908)、水質管理一般 (120101)、処理に関する調査研究 (120710)

1. はじめに

水道における異臭味の代表的な原因物質として、カビ臭物質2-メチルイソボルネオール (2-MIB) とジェオスミンが挙げられ、両物質ともに水質基準値が設けられている。その対策として、古くからおこなわれている粉末活性炭 (粉炭) 処理¹⁾は、恒久的な処理設備を導入する粒状活性炭処理と比較して初期設備投資が低い。その反面、計画的な備蓄や、限られた既存設備中での合理的な接触操作を検討しなければならない。さらには、使用する粉炭のライフサイクルでの環境負荷の低減²⁾や、コストの軽減³⁾も含め、効果を維

持できる最適な粉炭注入率を把握することが、水道事業の持続性を高めるうえで今後ますます重要となるであろう。

ここで活性炭による吸着処理では、上記2種のカビ臭原因物質のうち、ジェオスミンに比べて2-MIBの方が活性炭に保持されにくい⁴⁾。そのため本研究では、これら2つのカビ臭原因物質のうち、特に2-MIBに注目する。

水道原水中での2-MIBの活性炭吸着を検討する際には、原水中に含まれる天然有機物 (NOM) 等の共存物質との相互作用を検討する必要がある⁵⁾。粉炭において、十分な接触時間をとった後

の平衡吸着状態における相互作用は多数報告されており⁶⁾⁻¹⁴⁾、最適な粉炭注入率の決定に向けて簡便な予測法確立の試みも行われている^{15),16)}。

一方で、実運用上の粉炭の接触時間は1時間程度以内と推定され^{17),18)}、非平衡吸着、すなわち速度論的な操作と考えられる。粉炭への2-MIB吸着の速度論的検討については、いくつか報告されている。例えば、2-MIBのみの単成分水溶液では、Panら¹⁹⁾の、粒子凝集の程度が異なる微粉炭による吸着速度を細孔拡散モデルとフラクタル凝集モデルによって表現した例がある。NOMが共存する条件下での検討例として、Gilloglyら⁶⁾は、湖水を用いた実験において、低濃度域ではいかなる接触時間においても、ある粉炭注入率での2-MIB除去率は初期濃度に無関係であることを示した。Yuら²⁰⁾は純水、及び湖沼、貯水池水中での2-MIBの粉炭吸着を、均一表面拡散モデルを用いて表現した。Matsuiら²¹⁾は、湖水中での微粉炭による2-MIBおよびジェオスミンの吸着を、分岐細孔動態モデルとシェル吸着モデルの組み合わせによってシミュレートした。

一方で、水道原水中には、天然由来成分や、農業排水、下水処理水などが混入し、そのNOMの化学的性質は空間のみならず季節によっても変動するものと考えられる。したがって、2-MIB除去のための粉炭注入率の簡便な予測法を開発するためには、多種多様な水道原水中での2-MIBの吸着速度を一斉観測し、その競合の程度と機構を一般化する俯瞰的な方法も考えられる。そこで本研究では、日本全国の水道原水を、水温の異なる2時期に入手し、水道原水中での2-MIBの粉炭への非平衡吸着挙動の一般的傾向を実験的に明らかとすることを目的とした。

2. 試料および方法

2.1 水道原水試料

水道原水は全国21浄水場(松井ら¹⁶⁾と同様)において、高水温期と低水温期に採水されたものを用いた(高水温期:平成30年9月22日~10月9日採水、低水温期:平成31年1月31日~2月6日採水)。各浄水場にてガラス瓶に水道原水を満水の状態で採取し、冷蔵便にて国立保健医療科学院に送付し、4℃にて使用時まで冷蔵保存した。実験

に際してはガラス繊維濾紙(GF/C、Whatman)で減圧濾過して使用した。

2.2 粉炭

使用する粉炭は、日本水道協会規格に適合した市販の木質系粉炭で、50%粒子径15 μ m、細孔表面積1,162 m^2/g (窒素吸着、BET)、ミクロ孔(孔径<2nm)0.472 cm^3/g 、メソ孔(孔径2~50nm)0.082 cm^3/g 、マクロ孔(孔径>50nm)0.016 cm^3/g 、0.41nmに細孔容積ピーク(窒素吸着、HKプロット)を有するものを使用した。前処理として、110℃にて3時間処理し、使用時までデシケータにて保管した。

2.3 試薬

超純水を用いた実験や試料の希釈には、超純水製造装置(MilliQ A10、Millipore)によって製造した水を用いた。2-MIBは、2-メチルイソボルネオール標準原液0.1 mg/mL -メタノール溶液(関東化学)を1,000 $\mu\text{g}/\text{L}$ となるように超純水で希釈し、2-MIB保存溶液とした。

2.4 水道原水の水質特性

原水水質に含まれるNOMの特徴を把握するため、各原水のpH、電気伝導率(EC)、全有機炭素(TOC)及び溶存有機物(DOC)の測定を行った。pH、EC及びTOCはガラス繊維濾紙による濾過前の原水を測定し、DOCは濾過後の原水を測定した。pH及びECはpH/ECメーター(WM-32EP、東亜ディーケーケー)、TOC及びDOCは全有機炭素計(TOC-L、島津製作所)を用いて不揮発性有機炭素(NPOC)を測定した。

2.5 速度論的2-MIB吸着実験

高水温期と低水温期に採水した全国21浄水場の原水を用いて、粉炭との接触時間を限定した中で2-MIB吸着実験を行った。

まず、各水道原水に2-MIB保存溶液を添加して濃度を1 $\mu\text{g}/\text{L}$ に調整した試料水を1Lデュラン瓶に入れ、20℃の恒温槽にて1晩静置し温度調整した。これを、容量50mLの茶透明摺合せ遠沈管(IWAKI)に50mL取分けた。次に、粉炭を超純水中に加え濃度を0.51 mg/mL に調整した粉炭懸濁液を作成し、試料水を入れた遠沈管に粉炭懸濁液を1mL加え、粉炭注入量を10 mg/L とした。粉炭注入後、速やかに往復振とう機(MMS-120

型、東京理科機械)に取り付け、150rpmの振とう速度で30分間水平振とうした後、孔径0.2 μ mのメンブランフィルター(Merck)を装着したシリンジ(TERMO)で汙過して、粉炭を除去した。粉炭を除去した汙過水をパージ&トラップガスクロマトグラフィ質量分析(PT-GCMS)システム(Agilent Technologies)を用いて表-1に示す条件により残留2-MIB濃度を測定した。また、対照として粉炭を添加せずに超純水1mLを加え、上記と同様の操作を行った。対象水の2-MIB残留濃度を初期濃度とし、粉炭処理後の2-MIB残留濃度から2-MIB除去率を算出した。なお、上記の実験は室温・水温を20℃に設定し実施した。

2.6 原水中の競合吸着成分の測定

水道原水中に含まれるNOM成分のうち、2-MIBの粉炭による吸着に影響を与える成分を明らかにするため、粉炭処理によるNOM指標の変化量と2-MIB除去率との関係性を評価した。変化前の試料は2.5の吸着実験に供した対照水を測定し、変化後の試料は粉炭処理後の試料を測定した。測定項目はDOC、254nm吸光度(UV254)及び3次元蛍光スペクトル(Excitation-Emission Matrix, EEM)を測定した。DOCは2.4と同様の方法にて測定し、UV254は分光光度計(UV-1800、島津製作所)を用いて、1cm石英セルで254nmの吸光度を測定した。EEM測定には3次元蛍光測定装置(Aqualog、堀場製作所)を用い、励起波長220~800nm、増分3nm、蛍光波長243.8~

825.6nm、増分2.33nmとして測定した。測定したデータは硫酸キニーネ標準液(10 μ g/L)を用いて蛍光強度の相対化を行った。得られたEEMデータは、多変量解析法として知られているPARAFAC(Parallel Factor Analysis)により解析した。PARAFAC解析はEEMデータの重なり合った蛍光ピークを同じ挙動を示す成分のピークに分離することができる手法として、NOM分析に多く用いられている。

DOCについては2-MIB保存溶液を添加することにより、2-MIB及び標準原液の溶媒メタノールの影響で原水の値と比較して測定値が高くなるため、2-MIB及びメタノール分の値を控除して評価した。控除するメタノール分は、各原水において2-MIB保存溶液を添加することにより増加したDOCの平均値である2.76mg/Lを控除した。

また、低水温期に採水した原水については、NOMの分子量と2-MIB除去率の関係性を調べるため分子量分画を行った。分子量分画は遠心汙過デバイス(MAP001C38、PALL)を用いて、遠心分離機(テーブルトップ遠心機4200、久保田商事株式会社)により2,000 \times gの遠心加速度で30分間遠心分離を行い、1kDa以上の高分子試料と1kDa未満の低分子試料に分画した。これらの高分子試料と低分子試料をEEM-PARAFAC解析により含まれる主要成分量を測定した。

3. 結果と考察

3.1 非平衡吸着時における2-MIB除去率

超純水及び高水温期・低水温期の水道原水を用いた2-MIB吸着実験による2-MIB除去率を図-1に示す。超純水中での2-MIB除去率は84%であったのに対して、全ての水道原水中では超純水と比較して2-MIB除去率が低下することが確認できた。高水温期原水の除去率は26%~55%、低水温期原水の除去率は27%~51%であり、それぞれの平均除去率は43%と41%であった。

次に、2-MIB除去率の高水温期原水と低水温期原水の間関係を図-2に示す。全ての原水において、高水温期と低水温期の2-MIB除去率の誤差範囲は概ね10%程度の値を示しており、水源の種類の違いによる差は確認されなかった。

高水温期及び低水温期における水道原水水質の

表-1 PT-GCMS 測定条件

PT	
パージ・トラップガスサンプラー: Agilent 7890B	
ガスクロマトグラフ質量分析計: TELEDYNE TEKMAR Atomx	
トラップ管: TELEDYNE Trap9	サンプル量: 20mL
パージ時間: 12min	パージ流量: 100mL/min
サンプリングヒーター: ON (60℃)	ドライパージ時間: 0min
リンス回数: 2回	デソープ温度: 200℃
デソープ時間: 3min	
GC	
カラム: Agilent DB-1701 30m \times 250 μ m \times 1 μ m	
注入モード: スプリット	注入口温度: 250℃
圧力: 7.334psi	トータルフロー: 14mL/min
パージ流量: 3mL/min	スプリット比: 10:1
スプリット流量: 10mL/min	カラム流量: 1mL/min
オープン温度: 40℃ (1min) \rightarrow (10℃/min) \rightarrow 250℃ (1min)	
MS	
イオン源温度: 230℃	インターフェース温度: 250℃
測定モード: SIM	

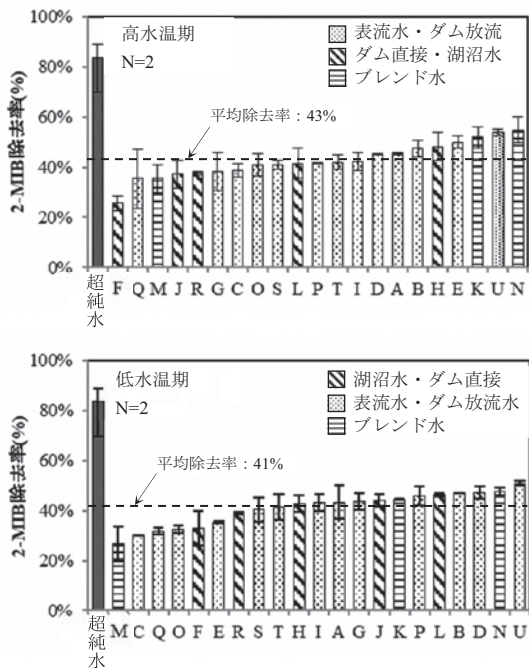


図-1 高水温期及び低水温期における 2-MIB 除去率

比較結果を表-2に示す。pH、EC、TOC 及び DOC については高水温期と低水温期に差異は見られないが、UV254と SUVA の値はダム直接・湖沼水から取水している原水において、高水温期に

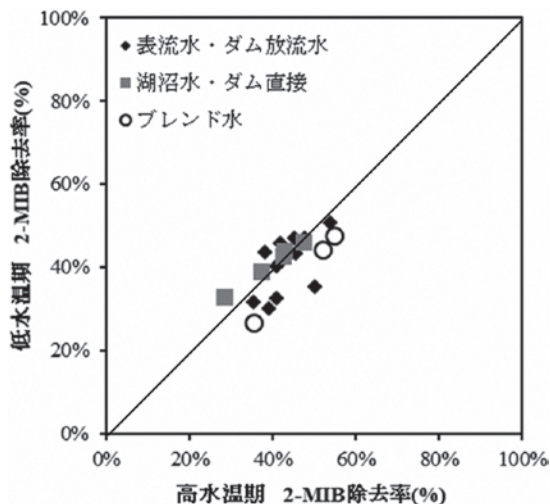


図-2 高水温期と低水温期における 2-MIB 除去率の関係

表-2 全国21浄水場の水道原水水質データ一覧

No.	水 源	高水温期							低水温期						
		採水時 水温 (℃)	pH (-)	EC (mS/m)	TOC (mg/L)	DOC (mg/L)	UV254 (Abs)	SUVA (L/mg・m)	採水時 水温 (℃)	pH (-)	EC (mS/m)	TOC (mg/L)	DOC (mg/L)	UV254 (Abs)	SUVA (L/mg・m)
A	表 流 水	21.8	8.0	22.7	0.91	0.88	0.025	0.027	13.0	7.8	23.2	0.96	1.15	0.021	0.019
B	ダ ム 放 流	13.1	7.3	16.0	1.35	1.32	0.042	0.032	3.0	7.3	13.1	1.32	1.34	0.025	0.022
C	表 流 水	22.5	7.4	16.0	1.49	1.70	0.030	0.023	8.5	7.6	17.2	1.91	1.76	0.026	0.013
D	ダム放流・表流水	19.5	7.8	14.3	1.06	0.94	0.023	0.025	7.6	7.4	15.5	0.89	0.90	0.011	0.013
E	表 流 水	17.0	7.4	13.9	1.23	1.31	0.031	0.028	0.5	7.5	16.6	1.90	1.53	0.035	0.023
F	湖 沼 水	24.2	7.8	30.4	3.87	3.68	0.083	0.023	7.3	8.1	32.8	4.37	3.56	0.062	0.019
G	表 流 水	15.7	7.5	18.8	1.73	1.76	0.070	0.042	0.2	7.3	17.8	1.22	1.45	0.028	0.025
H	ダ ム 直 接	18.9	7.4	9.1	1.48	1.54	0.060	0.045	6.6	7.8	15.4	1.60	1.46	0.028	0.019
I	表 流 水	22.4	7.5	22.6	1.04	1.35	0.024	0.025	7.2	7.6	22.9	1.65	1.53	0.022	0.017
J	湖 沼 水	23.9	7.6	10.9	1.45	1.50	0.022	0.016	6.7	7.5	13.7	1.54	1.57	0.016	0.010
K	ブ レ ン ド 水	20.1	7.5	9.8	0.90	1.12	0.023	0.029	9.4	7.2	8.7	1.19	0.79	0.018	0.021
L	ダ ム 直 接	19.0	7.4	9.3	1.41	1.51	0.045	0.037	2.3	7.4	13.4	1.28	1.02	0.019	0.025
M	ブ レ ン ド 水	26.1	7.7	33.7	1.96	2.02	0.050	0.025	19.2	8.0	29.4	1.63	1.45	0.028	0.017
N	ブ レ ン ド 水	26.0	7.5	16.5	0.91	0.84	0.024	0.029	11.0	7.7	14.1	1.43	1.38	0.024	0.018
O	ダム放流・表流水	22.5	7.6	23.3	1.19	1.45	0.028	0.023	6.7	7.9	27.6	1.96	1.63	0.028	0.014
P	表 流 水	21.8	7.5	13.3	1.05	1.50	0.025	0.027	9.7	7.7	17.7	1.20	1.67	0.019	0.015
Q	ダム放流・表流水	23.9	7.4	21.3	1.58	1.65	0.036	0.026	7.8	7.9	29.8	2.34	2.07	0.040	0.018
R	ダ ム 直 接	21.0	7.0	7.2	1.75	1.96	0.077	0.047	7.6	7.6	8.3	2.02	1.40	0.033	0.016
S	表 流 水	22.5	7.4	18.9	1.36	1.31	0.028	0.025	4.6	7.6	26.9	1.48	1.64	0.025	0.017
T	表 流 水	21.4	7.3	12.6	1.27	1.01	0.034	0.036	5.2	7.7	13.4	1.50	1.36	0.033	0.021
U	表 流 水	17.3	7.6	5.3	0.75	0.88	0.020	0.024	4.4	7.4	9.4	1.17	1.18	0.015	0.011

高くなる傾向が見られた (図-3)。SUVA 値は NOM 中に含まれる芳香族化合物の相対的割合を示す指標として用いられ、芳香族成分の大部分は腐植物質に由来するとされている²²⁾。このことか

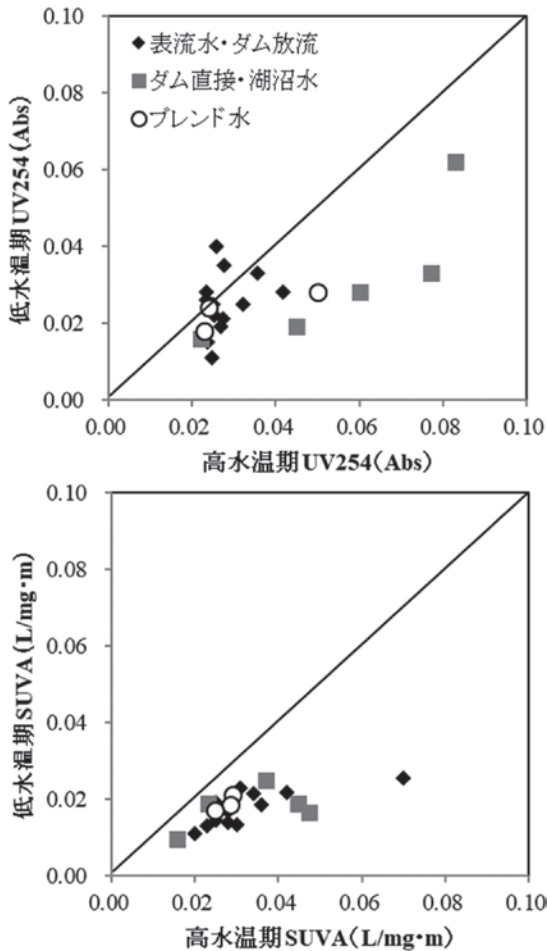


図-3 高水温期と低水温期の UV254及び SUVA の関係

ら、高水温期原水は低水温期原水と比較して DOC に対する腐植物質の割合が増加していることが推察できる。

3.2 NOM 成分と 2-MIB 除去率の関係

NOM に含まれる主要成分と 2-MIB 除去率との関係性について評価するため、EEM-PARAFAC 解析により抽出した主要成分と 2-MIB 除去率との関係を確認した。PARAFAC 解析は水道原水を測定した EEM の 209 データを使用し、波長の範囲は励起波長 250nm~550nm、蛍光波長を 300nm~600nm で解析を行った。解析の結果、抽出された主要成分は図-4 に示す 3 成分となった。それぞれの成分ピーク位置は、成分 1 が励起波長 [nm]/ 蛍光波長 [nm] (以下、EX/EM) : 250/410、成分 2 が EX/EM : 275/485、成分 3 が EX/EM : 280/340 であった。Chen ら²³⁾により示されたピーク位置の物質から、成分 2 をフミン酸様物質、成分 3 をトリプトファン様物質であると推定した。また、同論文ではフルボ酸様のピーク位置は励起波長 250nm 以下の位置であると示されており、今回の PARAFAC 解析の範囲外となるが、成分 2 の位置と比較して成分 1 のピークは励起波長が低波長側に位置しているため、フルボ酸様物質であると推定した。

続いて、これら各成分の吸着前蛍光強度と 2-MIB 除去率の関係を図-5 に示す。吸着前蛍光強度と 2-MIB 除去率の決定係数 R²はフルボ酸様物質及びトリプトファン様物質においてフミン酸様物質よりも高い値となった。

さらに、2-MIB 除去率に対して吸着競合する物質は、その物質自体も吸着することが想定でき

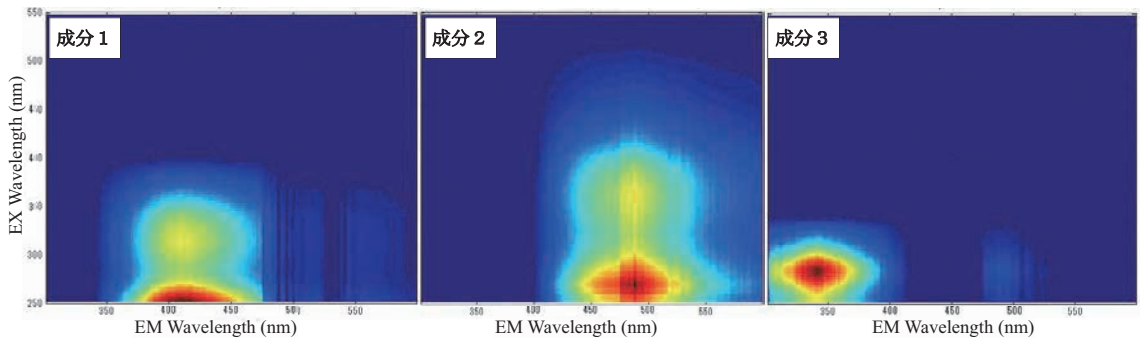


図-4 抽出された主要ピーク成分

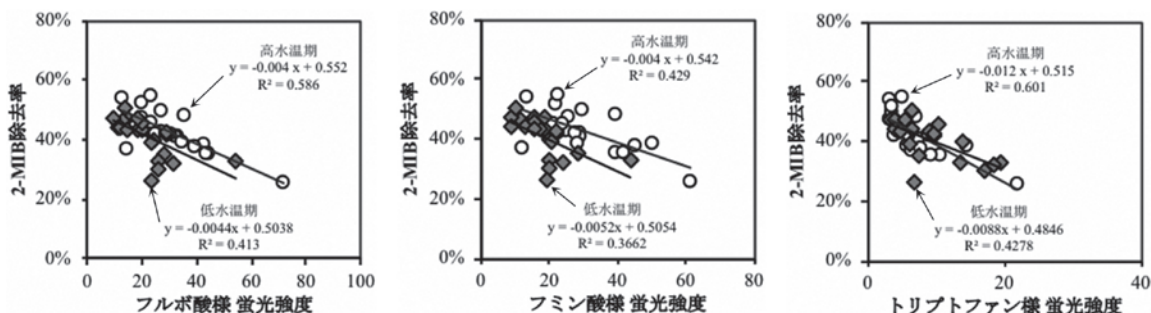


図-5 EEM 主要ピーク成分の吸着前蛍光強度と 2-MIB 除去率の関係

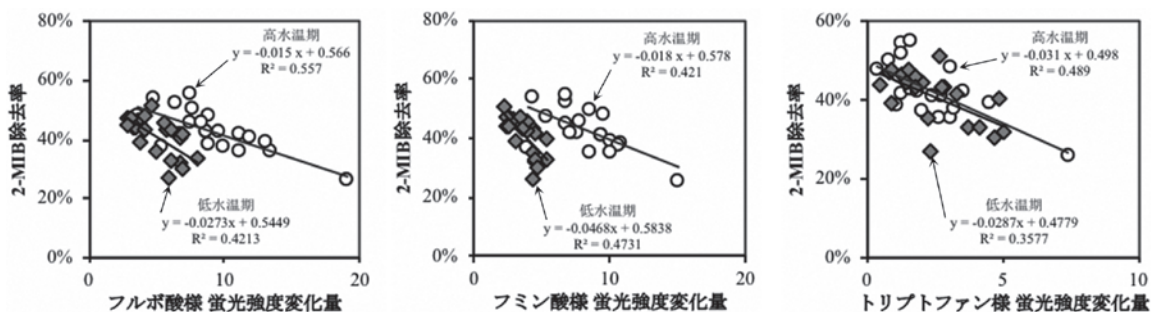


図-6 EEM 主要ピーク成分の吸着前後蛍光強度変化量と 2-MIB 除去率の関係

るため、吸着前後の蛍光強度変化量と 2-MIB 除去率との関係について調べた (図-6)。その結果、フルボ酸様物質は吸着前蛍光強度との決定係数と同等の値を得られたが、トリプトファン様物質は僅かに決定係数が低下した。このことから、2-MIB 除去率に対する吸着競合物質としての影響はフルボ酸様物質が最も大きく、次にトリプトファン様物質、そしてフミン酸様物質の順となることが推定できる。

続いて、NOM 成分の分子量と 2-MIB 除去率の関係について評価した。分子量分画試料が得られた低水温期の原水における NOM の低分子試料と高分子試料の DOC をそれぞれ測定し、その関係を図-7に示す。原水の違いにより低分子量/高分子量の比は0.47~1.85に分布することが確認できた。

さらに、分子量分画した試料を EEM-PARAFAC 解析により、フルボ酸様、フミン酸様及びトリプトファン様に分離しそれぞれの蛍光強度と 2-MIB 除去率の関係性を確認した。結果を図-8に示す。全ての成分において高分子試料と比較して

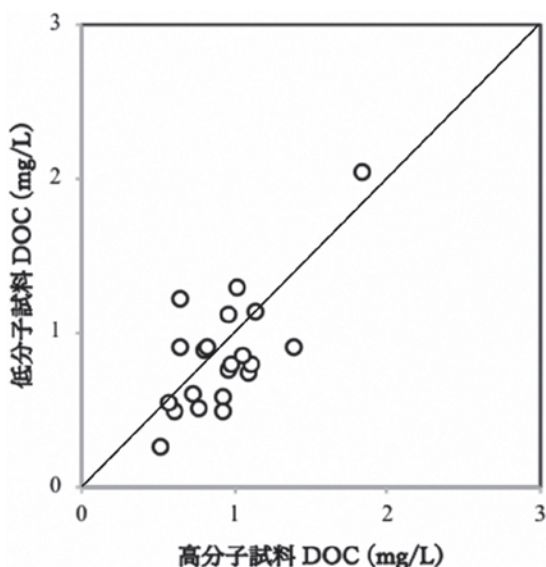


図-7 低分子試料と高分子試料の DOC の関係

低分子試料の決定係数が上昇しており、本研究で得られた低分子成分 (1 kDa 以下の分子量を有する成分) が非平衡吸着時の競合物質としての寄与が大きいことが確認できた。Tsuda²⁴⁾は日本で

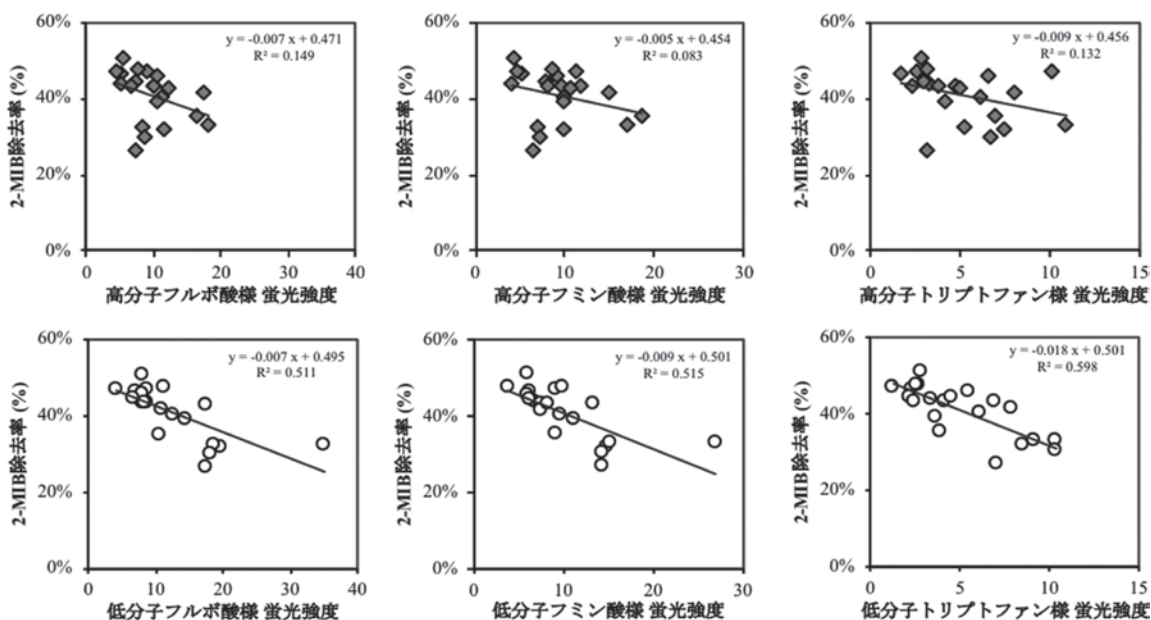


図-8 EEM 主要ピーク成分の高分子試料及び試料の低分子蛍光強度と 2-MIB 除去率の関係

の河川水、湖水中のフルボ酸の平均分子量を測定しており、その範囲は河川水（7 地点）で925～2,146Da、湖水（2 地点）で884～920Daである。フミン酸の分子量は Asakawa ら²⁵⁾による研究で 3.16～26.4kDa の範囲で存在していることが示されている。以上から、フルボ酸自体は吸着競合物質としての寄与が大きく、フミン酸自体は粉末活性炭に吸着はするものの、吸着競合物質としての寄与が小さいと考えられる。

また、Matsui ら¹⁰⁾による微粉炭への 2-MIB の平衡吸着試験において低分子成分の中で 2-MIB と同程度の分子量を有する NOM が強い吸着阻害を起こすと示しており、本研究で得られた競合物質としての低分子成分の重要性と同様の結果を示している。さらに、松井ら¹⁶⁾は、原水中の 1～3 kDa 程度のフルボ酸様物質が 2-MIB の粉炭への平衡吸着と競合することを推測している。今回の検討では、詳細な速度論的検討は行っておらず、非平衡状態の吸着競合のメカニズムを詳細に議論するにはさらなる検討が必要であるが、以上から、30分程度の非平衡吸着で見られた 2-MIB の吸着競合物質は、平衡吸着時の競合物質と大きな違いはないと示唆された。

3.3 吸着競合影響を評価する指標

効率的な粉炭処理を行うためには、原水の水質を速やかに把握し、最適な粉炭注入量を決定する必要がある。そのため、簡易的に測定可能な水質指標により、粉炭注入量を予測することが求められる。簡易的に測定可能な水質指標として、TOC、DOC 及び UV254 を選定し、吸着競合物質の一つとして推定されるフルボ酸様物質の蛍光強度との関係性を図-9に示す。TOC 及び DOC については高い相関性を示しているが、UV254では高水温期においてバラつきが確認された。これは図-3に示した通り、高水温期のダム直接・湖沼水を水源とする原水において UV254の値が上昇する傾向がみられることが原因であると考えられる。同様に、前述の水質指標とトリプトファン様物質の蛍光強度との関係性についても確認したところ、TOC と DOC において、相関性が確認された ($R^2 > 0.50$)。以上のことから、30分程度の接触時間での 2-MIB 除去を目的とした最適粉炭注入量を予測するための水質指標として TOC 及び DOC が優れていることが確認できた。ただし、高水温期と低水温期において近似式の傾きが変化することが確認でき、季節の違いに応じて予測式を使い

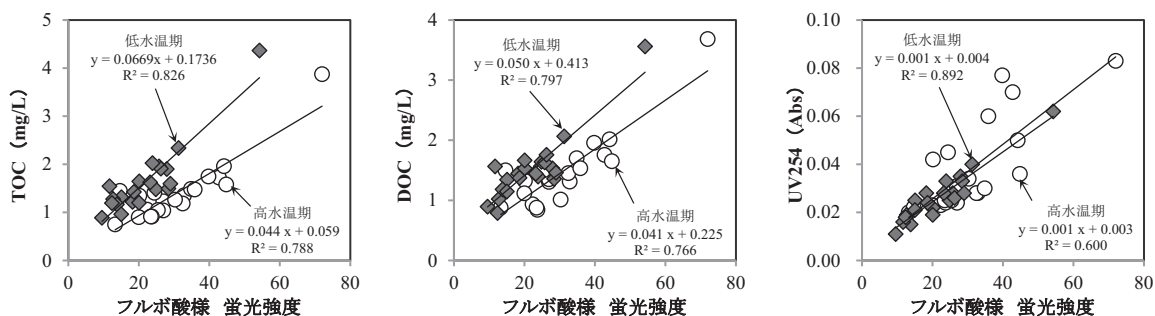


図-9 水質指標とフルボ酸様蛍光強度の関係

分ける必要がある。

4. まとめ

今回の検討結果は以下のようにまとめられる。

- (1) 全国21か所から、高水温期、低水温期の2時期に採取した水道原水中における 2-MIB (初濃度 1 μg/L) の木質系粉炭への30分吸着量を測定し、2-MIB 除去率で評価したところ、超純水中では84%の除去率が、原水中では26%~55%に低下した。また、採水時期の違いによる 2-MIB 除去率への影響は小さかった。
- (2) EEM-PARAFAC 解析により抽出した主要成分と 2-MIB 除去率との相関性を確認したところ、寄与の大きい順にフルボ酸様物質、トリプトファン様物質、フミン酸様物質となった。
- (3) 低水温期に採水した原水の 1 kDa 未満の DOC と 2-MIB 除去率の関係性から、高い相関性が確認できた。このことから、2-MIB の粉炭への非平衡吸着時の競合には、1 kDa 未満の成分による寄与が大きいと推定できた。
- (4) 簡易的に測定可能な水質指標と吸着競合物質の一つとして推定されたフルボ酸様物質との関係性から、TOC 及び DOC において高い相関性が確認でき、粉炭注入量を予測する指標として TOC 及び DOC が優れていることが確認できた。

謝辞

水道原水をご提供いただいた全国の水道事業者
に謝意を表す。本研究の一部は厚生労働科学研究
費補助金 (健康安全・危機管理対策総合研究事

業、H30-健危-一般-004) により行われた。

参考文献

- 1) D. R. Herzing, V. L. Snoeyink and N. F. Wood, Activated carbon adsorption of the odorous compounds 2-methylisoborneol and geosmin, J Am. Water Works Assoc, 69 (4), pp.223-228, 1977.
- 2) 秋葉道宏、高梨啓和、下ヶ橋雅樹、生物障害に対応した省エネルギー型水道システムの開発、厚生労働科学研究費補助金健康安全・危機管理対策総合研究事業「水道システムにおける生物障害の実態把握とその低減対策に関する研究」、平成26年度総括・分担研究報告書、pp.65-71、2015.
- 3) D. Bruce, P. Westerhoff and A. Brawley-Chesworth, Removal of 2-methylisoborneol and geosmin in surface water treatment plants in Arizona, J Water Supply Res Technol AQUA, 51 (4), pp.183-198, 2002.
- 4) S. Lalezary, M. Pirbazari and M. J. McGuire, Evaluating Activated Carbons for Removing Low Concentrations of Taste - and Odor - Producing Organics, J Am Water Works Assoc, 78 (11), pp.76-82, 1986.
- 5) 日本水道協会編、7. 浄水処理施設-12活性炭吸着設備、水道維持管理指針2016、pp.352-361、2017.
- 6) T. E. T. Gillogly, V. L. Snoeyink, J. R. Elarde, C. M. Wilson and E. P. Royal, ¹⁴C-MIB adsorption on PAC in natural water, J Am Water Works Assoc, 90 (1), pp.98-108, 1998.
- 7) G. Newcombe, M. Drikas, S. Assemi, and R. Beckett, Influence of characterised natural organic material on activated carbon adsorption: I. Characterisation of concentrated reservoir water, Water Res, 31 (5), pp.965-972, 1997.
- 8) G. Newcombe, M. Drikas and R. Hayes, Influence of characterised natural organic material on activated carbon adsorption: II. Effect on pore volume distribution and adsorption of 2-methylisoborneol, Water Res, 31, pp.1065-1073, 1997.
- 9) Y. Matsui, Y. Nakano, H. Hiroshi, N. Ando, T. Matsushita and K. Ohno, Geosmin and 2-methylisoborneol adsorption on super-powdered activated carbon in the presence of natural organic

- matter, *Water Sci Technol*, 62 (11), pp.2664-2668, 2010.
- 10) Y. Matsui, T. Yoshida, S. Nakao, D. R. U. Knappe and T. Matsushita, Characteristics of competitive adsorption between 2-methylisoborneol and natural organic matter on superfine and conventionally sized powdered activated carbons, *Water Res*, 46, pp.4741-4749, 2012.
 - 11) Y. Matsui, S. Nakao, T. Yoshida, T. Taniguchi and T. Matsushita, Natural organic matter that penetrates or does not penetrate activated carbon and competes or does not compete with geosmin, *Sep Purif Technol*, 113, pp.75-82, 2013.
 - 12) J. Yu, M. Yang, T. F. Lin and Z. Guo, Effects of Surface Characteristics of Activated Carbon on the Adsorption of 2-Methylisoborneol (MIB) and Geosmin from Natural Water, *Sep Purif Technol*, 56, pp.363-370, 2007.
 - 13) M. F. Tennant and D. W. Mazyck, The role of surface acidity and pore size distribution in the adsorption of 2-methylisoborneol via powdered activated carbon, *Carbon*, 45 (4), pp.858-864, 2007.
 - 14) K. Zoschke, C. Engel, H. Bornick and E. Worch, Adsorption of geosmin and 2-methylisoborneol onto powdered activated carbon at non-equilibrium conditions: influence of and process modelling, *Water Res*, 45 (15), pp.4544-4550, 2011.
 - 15) M. R. Graham, R. S. Summers, M. R. Simpson and B. W. MacLeod, Modeling equilibrium adsorption of 2-methylisoborneol and geosmin in natural water, *Water Res*, 34, pp.2291-2300, 2000.
 - 16) 松井利恭、下ヶ橋雅樹、藤井隆夫、増田太郎、鈴木知美、越後信哉、秋葉道宏、水道原水中での 2-メチルイソボルネオールの粉末活性炭吸着 ～全国の原水を用いた吸着量低下因子の解明～、水道協会雑誌、87 (12)、pp. 2-12、2018.
 - 17) 日本水道協会編、5 浄水施設 - 13 粉末活性炭吸着設備、水道施設設計指針2012、pp. 294-297、2012.
 - 18) 厚生労働省健康局水道課、水道事業における高度浄水処理の導入実態及び導入検討等に関する技術資料、p.100、2009
 - 19) L. Pan, Y. Matsui, T. Matsushita and N. Shirasaki, Superiority of wet-milled over dry-milled superfine powdered activated carbon for adsorptive 2-methylisoborneol removal, *Water Res*, 102, pp.516-523, 2016.
 - 20) J. Yu, F. C. Yang, W. N. Hung, C. L. Liu, M. Yang, and T. F. Lin, Prediction of powdered activated carbon doses for 2-MIB removal in drinking water treatment using a simplified HSDM approach, *Chemosphere*, 156, pp.374-382, 2016.
 - 21) Y. Matsui, S. Nakao, T. Taniguchi and T. Matsushita, Geosmin and 2-methylisoborneol removal using superfine powdered activated carbon: Shell adsorption and branched-pore kinetic model analysis and optimal particle size, *Water Res*, 47 (8), pp.2873-2880, 2013.
 - 22) 小原章裕、大手信人、加藤宏有、鈴木雅一、木庭啓介、山下洋平、森林小流域における溶存有機物の形成・流出機構とその時間変動、水文・水資源学会研究発表会要旨集、26、pp. 256-257、2014.
 - 23) W. Chen, P. Westerhoff, J. A. Leenheer and K. Booksh, Fluorescence Excitation - Emission Matrix Regional Integration to Quantify Spectra for Dissolved Organic Matter, *Environ Sci Technol* 37 (24), pp.5701-5710, 2003.
 - 24) K. Tsuda, H. Mori, D. Asakawa, Y. Yanagi, H. Kodama, K. Yonebayashi and N. Fujitake, Characterization and grouping of aquatic fulvic acids isolated from clear-water rivers and lakes in Japan, *Water Res*, 44, pp.3837-3846, 2010.
 - 25) D. Asakawa, T. Kiyota, Y. Yanagi and N. Fujitake, Optimization of Conditions for High-Performance Size-Exclusion Chromatography of Different Soil Humic Acids, *Anal Sci*, 24, pp.607-613, 2008.

(令和元年9月9日受付)