

氏名(本籍)	田 ^た 中 ^{なか} ふみ子 ^こ (長野県)
学位の種類	博士(農学)
学位記番号	博甲第3293号
学位授与年月日	平成16年1月31日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	農学研究科
学位論文題目	電気化学的手法による埋立地浸出水の処理に関する研究

主査	筑波大学教授	農学博士	前川孝昭
副査	筑波大学教授	学術博士	水鉤揚四郎
副査	筑波大学助教授	農学博士	杉浦則夫
副査	筑波大学教授	工学博士	田中秀夫

論文の内容の要旨

我々は日々の生活の中で大量の廃棄物を排出し続けている。有害な物質が浸出し環境を汚染するおそれのある埋立処分場では、遮水工、浸出水処理施設などにより浸出水の管理をすることが義務づけられている。しかし、遮水工または浸出水処理施設を有しない施設が全国に数多く報告されている。その一方、環境への放流基準は改正を重ねるごとに厳しくなっており、従来型の浸出水処理設備だけでは不十分であると認識されつつある。このような背景から、本研究では、高効率、省エネルギー、省スペースさらに環境と適応する処理プロセスとして、電気化学的処理-分解による無害化プロセスに着目し、その浸出水処理への応用に向けた研究を行った。

電気化学的処理は有望な高度処理技術のひとつであるが有機汚染物質などの分解処理には、処理水の性状や電極の性質により影響される複雑なメカニズムを伴っている。強力な酸化剤であるOHラジカルによる有機汚染物質の分解は効果的であると考えられているが、実際の廃水処理では塩化物イオンから生成される次亜塩素酸などの酸化剤や、ラジカルスカベンジャーのような化合物が与える影響をも考慮する必要がある。

本研究では、異なる電極、電解質、pHおよび共存物質による電気化学的処理系での影響を定量的に評価するため、*p*-Nitrosodimethylaniline (RNO) をスピントラップとして用いる電気化学的処理系評価の有効性を検討した。その結果、RNOは電気化学的処理において、電子による還元とOHラジカルによる酸化を受けることが推測されたが、次亜塩素酸やクロラミンなどの有効塩素の脱色への関与が強く示唆された。

さらに、RNOの脱色反応を用いた処理系の評価手法をもとにして、ビスフェノールAおよびフミン酸を含むモデル廃水の、異なる電気化学的処理(直流・高周波パルス)について検討した。RNOの脱色反応はビスフェノールAのようなラジカルとの反応性が高い化合物の酸化に関しては直接的な指標となる可能性はあるが、フミン酸のような難分解性高分子化合物の分解を予測することはできなかった。また、塩化物イオンの存在するモデル廃水の電気化学的処理において、TOC除去に関しては二酸化炭素への無機化に加えて、メタン生成を伴う有機塩素化合物還元による除去の可能性が示唆された。有機塩素化合物には有害なものも多く、有機塩素化合物の還元による分解は電気化学的処理の利点となることが期待された。

電気化学的処理を埋立地浸出水の処理に応用することを目的とし、異なる2種類の埋立地浸出水を用いて電気化学的処理実験を行った。COD、TOC、窒素化合物、発生気体を測定し、異なる性状の浸出水処理効果を検討した。さらに、モデル廃水を用いた処理実験と実際の浸出水処理実験を比較することにより、電気化学的処理における汚染物質除去メカニズムを定性的に解析し、また直流および高周波パルス処理による処理効率を定量的に比較した。

アンモニウムイオンは陽極で直接酸化されることもあるが、塩化物イオンが存在した場合、クロラミン類のような中間体を経て窒素に酸化されることが示唆された。また、塩化物イオンが少なく易分解性有機物が多い浸出水のTOC除去には、OHラジカルによる直接的な陽極酸化が重要である一方、塩化物イオンを含む廃水の電気化学的処理では、次亜塩素酸などの強い酸化剤が生成し、有機化合物は塩素化され様々な有機塩素化合物を生じることが推測された。有機塩素化合物類は電気化学的処理において陰極での水素化還元によりメタンと塩化物イオンに分解される。実際の浸出水中には有機塩素化合物が含まれることが多いため、メタンへの還元プロセスは他の酸化処理には無い、電気化学的処理の利点となりうることを示された。

また、高周波パルス処理は直流処理と比較して電気量は小さかったが、その処理効果は直流処理に匹敵するものであった。本研究ではパルス処理についての有望性を示すことができたが、その処理条件や詳細なメカニズムについて十分な検討を行うことが出来なかった。将来的に持続的な安全を確保するためにも、省エネルギー型処理が期待される高周波パルス処理のさらなる検討を進め、施設のコスト低減化も目標に研究を行うことが今後の課題である。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究では、異なる電極、電解質、pHおよび共存物質による電気化学的処理系での影響を定量的に評価するため、*p*-Nitrosodimethylaniline (RNO) をスピントラップとして用いる電気化学的処理系評価の有効性を検討した。その結果、RNOは電気化学的処理において、電子による還元とOHラジカルによる酸化を受けることが推測されたが、次亜塩素酸やクロラミンなどの有効塩素の脱色への関与が強く示唆された。

さらに、RNOの脱色反応を用いた処理系の評価手法をもとにして、ビスフェノールAおよびフミン酸を含むモデル廃水の、異なる電気化学的処理（直流・高周波パルス）について検討した。RNOの脱色反応はビスフェノールAのようなラジカルとの反応性が高い化合物の酸化に関しては直接的な指標となる可能性はあるが、フミン酸のような難分解性高分子化合物の分解を予測することはできなかった。また、塩化物イオンの存在するモデル廃水の電気化学的処理において、TOC除去に関しては二酸化炭素への無機化に加えて、メタン生成を伴う有機塩素化合物還元による除去の可能性が示唆された。有機塩素化合物には有害なものも多く、有機塩素化合物の還元による分解は電気化学的処理の利点となることを期待された。

以上のように、本研究は化学的組成の複雑な埋立て処分地浸出水の電気化学的処理に関する基礎的知見を得ており、水処理工学分野の発展に大きく寄与すると判断した。

よって、著者は博士（農学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。