

氏名(本籍)	おか ぎき つよし 毅 (茨城県)		
学位の種類	博 士 (農 学)		
学位記番号	博 甲 第 4713 号		
学位授与年月日	平成 20 年 3 月 25 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	生命環境科学研究科		
学位論文題目	電気化学的手法による難分解性有機物質の処理特性に関する研究		
主 査	筑波大学教授	農学博士	杉 浦 則 夫
副 査	筑波大学教授	博士(農学)	山 口 智 治
副 査	筑波大学准教授	博士(農学)	北 村 豊
副 査	筑波大学准教授	博士(農学)	張 振 亜

論 文 の 内 容 の 要 旨

日本国内の水質汚濁の現況は相対的には改善の傾向にある。しかしながら、利水上の障害などをもたらす有機汚濁については水質改善の効果は顕著ではなく、依然として高い汚濁を示している。これは工業排水・農業排水・家庭雑排水に起因する生分解が困難な難分解性有機物質の水環境中への顕在化が主な原因である。水環境保全ならびに持続的な水利用を行っていくためには、従来の水処理手法では処理が困難である難分解性有機物質に対する新規処理技術の開発と処理能の評価が必要である。現在、難分解性有機物質に対する処理技術として電気化学的処理が注目されている。しかしながら、様々な難分解性有機物質に対する電気化学的処理の知見は乏しく、多くは実用化には至っていないのが現状である。したがって様々な物質に対する処理能の検討など、電気化学的処理に関する処理特性を解明することは極めて重要な研究課題といえる。そこで本研究では貴金属酸化物電極を用いた電気化学的手法による難分解性有機物質の処理特性の解明を目的として、電極や電流密度、電解質などの処理条件が分解に及ぼす影響解析および代表的な難分解性有機物質に対する処理特性の解明を行った。また、さらなる処理の向上を目的として新規電極材料について検討を行った。

電気化学的処理能は活性種の発生量に依存することが知られている。活性種発生量は条件によって異なるため、各種電極の特性評価として様々な条件下での水の電解電位と活性種の生成量について評価を行った(第2章)。処理水中に電解質が存在する条件では、1.4V以上の電位で処理を行うと水の電解が起こり活性種が生成した。この時、各種電極におけるOHラジカル生成量はほぼ等しく、処理水のpHはOHラジカルの生成量に影響を及ぼさなかった。一方、電極により次亜塩素酸発生能に大きな差があることが確認され、特にIrを含有する電極は次亜塩素酸生成量が大きいことが判明した。

次に、難分解性の微生物由来代謝物質である藍藻類由来毒性物質(microcystin)と藍藻類や放線菌が産生するかび臭物質(geosmin)に対する電気化学的処理特性の評価を行った(第3章)。microcystinは、電気化学的処理により中間生成物を生成することなく容易に分解した。また、高濃度のgeosminは短時間で低減が可能であった。以上の結果から、電気化学的処理は上水道で問題となっている微生物由来代謝物質に対して高い処理能を有していることが明らかとなった。

続いて、難分解性化学物質である産業廃棄物由来のアルキルフェノール類に対する電気化学的処理特性の評価を行った（第4章）。アルキルフェノール類は本研究で用いた全ての条件で容易に分解可能であったが、直鎖型構造をもつ *n*-octylphenol, *n*-nonylphenol と分岐型構造をもつ *t*-octylphenol の処理効率に大きな差が見られた。この理由として各物質の分子構造の違いが強く考えられ、処理対象の有機物質の電気化学的特性が類似する場合においても、各有機物質の構造を考慮した処理条件を検討しなければならないことが判明した。電気化学的処理は産業廃棄物由来の芳香族物質に対しても高い処理能を有していることが示唆された。

電気化学的処理においては、芳香族等の酸化分解時に生成する代表的な中間生成物である有機酸を無機化することが困難であるため問題となっている。そこで、様々な有機酸に対する電気化学的処理特性の評価を行った（第5章）。本研究で用いた全ての条件でシュウ酸およびギ酸は易分解であったが、それ以外の有機酸は難分解であった。この結果から、炭素と結合したカルボキシル基を有する有機酸に対して電気化学的処理による分解が困難であることが分かった。

電気化学的処理の処理能の向上のためには活性種を効率的に生成させる新規電極材料が必要である。このため、新規電極材として Pt 系電極に表面処理を行った新規電極の電極特性および電気化学的処理の処理特性の評価を行った（第6章）。新規電極は他の貴金属酸化物電極と比較して極めて高い OH ラジカル生成能を有していること、従来の電気化学的処理が困難としている極低濃度の有機物質に対して高い処理能を有することが確認できた。また、従来の貴金属酸化物電極では分解が不可能であったマロン酸を分解できることが判明した。

本研究では現代社会において利水上問題となっている代表的な難分解性有機物質に対する電気化学的手法の処理特性評価を行った。その結果、電気化学的処理を適切に用いることにより微生物由来代謝産物や芳香族などの従来の水処理手法では処理が困難であった難分解性有機物質を短時間で容易に分解できることを明らかにした。さらに、本研究で用いた新規電極は従来の貴金属酸化物を凌ぐ高い処理能を示したため、様々な難分解性有機物質に対する処理の更なる向上が見込まれる。本研究で得られたこれらの知見は電気化学的処理技術の実用化への大きな一歩となる。

審査の結果の要旨

本研究では貴金属酸化物電極を用いた電気化学的手法による難分解性有機物質の処理特性の解明を目的として、処理条件が分解に及ぼす影響解析および代表的な難分解性有機物質に対する処理特性を検討した。さらに一般的な電極では処理が困難とされる物質に対する処理の向上を目的として新規電極材料の開発を行った。まず、各種電極の特性評価として様々な条件下での水の電解電位と活性種の生成量について評価を行った。次に、難分解性の微生物由来代謝物質である藍藻類由来毒性物質（microcystin）と藍藻類や放線菌が産生するかび臭物質（geosmin）に対する電気化学的処理特性の評価を行った。続いて、難分解性化学物質である産業廃棄物由来のアルキルフェノール類に対する電気化学的処理特性の評価を行った。これらの結果から電気化学的処理は上水道で問題となっている微生物由来代謝物質や産業廃棄物由来の芳香族物質に対して高い処理能を有していることが明らかとなった。電気化学的処理においては、芳香族等の酸化分解時に生成する代表的な中間生成物である有機酸を無機化することが困難であるため問題となっている。そこで、様々な有機酸に対する電気化学的処理特性の評価を行った。その結果、炭素と結合したカルボキシル基を有する有機酸に対して電気化学的処理による分解が困難であることが分かった。電気化学的処理の処理能の向上のためには活性種を効率的に生成させる新規電極材料が必要であるため、新規電極材として Pt 系電極に表面処理を行った新規電極の電極特性および電気化学的処理の処理特性の評価を行った。その結果、新規電極は他の貴金属酸化物電極と比較して極めて高い処理能を有することが確認できた。

以上より、電気化学的処理による難分解性物質とくに水環境中で問題となっている微生物由来代謝物質や産業廃棄物由来の芳香族物質の処理に対して新規な知見を得、水環境の向上のための水処理技術の発展に寄与していることが高く評価される。

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。