

氏名（本籍）	楊 生炯（ 中国 ）		
学位の種類	博 士（環境学）		
学位記番号	博 甲 第 6691 号		
学位授与年月日	平成 25 年 7 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	Development of Adsorbents for Phosphate Removal from Aqueous Solution (水溶液からリン酸塩を除去するための吸着剤の開発)		
主査	筑波大学教授	博士（農学）	張 振亜
副査	筑波大学准教授	博士（理学）	内海 真生
副査	筑波大学准教授	工学博士	雷 中方
副査	筑波大学准教授	博士（生物工学）	楊 英男

## 論 文 の 要 旨

リンは、食糧生産、水生植物と藻類の成長のための必須栄養素要素であり、リン資源として再生可能なものではなく、世界中の埋蔵量から推定した使用年数は 100 年である。一方、過剰なリンの水環境への流入は水環境富栄養化問題を引き起こす。したがって、リンを含む廃水からのリン除去や回収に関わる技術の研究開発が必要である。本研究は、限られた資源であるリンを回収するため、鹿沼土を用いて水中のリンを吸着・回収し、その吸着・回収の条件を最適化することにより吸着効率を向上させ、実用性の高い吸着剤の開発を目指したものである。水中のリンの吸着・除去に関わる吸着剤の量、接触時間、初期 pH、温度のリンの吸着への影響を検討した。リンの吸着メカニズムを究明するために、吸着等温線、吸着動態、脱離速度の観点から検討をした。

天然鹿沼土を用いて水溶液からリンの回分式吸着除去実験を行い、吸着の等温線、脱離速度、吸着の動力学的解析、初期 pH、吸着剤の使用量、温度などの影響要素を調査した。鹿沼土のリン吸着データは Freundlich 等温線モデル ( $R^2 = 0.990$ ) に適合した。吸着過程は発熱に伴う反応で pseudo-second-order kinetic model ( $R^2 = 0.999$ ) と一致した。天然鹿沼土を利用した場合、最適初期 pH は 6、初期リン濃度 50 mg/l、吸着剤の使用量 4 g/l で、最大リン吸着能力は 2.13 mg/g を達成した。これらの結果から、鹿沼土はリンの吸着材料として期待できる。

また、吸着能力を高めるためコンスターチ及び金属酸化物を鹿沼土と混合し、顆粒状の多孔性セラミックス (TPM) を作成した。TPM を用いて回分式実験を行い、吸着の等温線、リンの回収、吸着の動力学的解析および初期 pH、吸着剤の使用量、温度などの影響要素を調べた。吸着データは Freundlich 等温線モデル ( $R^2 = 0.999$ ) に適合した。初期 pH は 7、吸着剤の使用量 4 g/l で 4.39 mg/g の吸着量に達した。その場合の吸着平衡時間は 2h であった。また、0.2 mol/l の HCl 液を脱離液として使用し、TPM から 70.9 % のリンが回収できた。TPM を 5 回繰り返し使用した場合、一回目の吸着量は 1.316 mg/g に対し、5 回目の吸着量は 0.466 mg/g に低下したことから、PTM は繰り返し使用が可能であることを示唆した。

さらに、電気化学表面改善法で PTM セラミックスを改善し、ECTPM を作成した。ECTPM を使用して回分式リン吸着実験を行い、吸着の等温線、リンの回収、吸着の動力学的解析、初期 pH、吸着剤の使用量、温度などの影響要素を調べた結果、吸着データは Freundlich 等温線モデル ( $R^2 = 0.988$ ) に適合し、吸着の動力学的方程式は pseudo-second-order kinetic model ( $R^2 = 0.999$ ) に一致したことから、リンの吸着は吸熱性反応プロセスであることが分かった。初期 pH 7、吸着剤使用量 4 g/l で、リンの吸着能力は 5.36 mg/g に達した。

これらの研究結果から、鹿沼土及び開発した顆粒状 TPM は有効的に水溶液からリンの除去ができ、電気化学表面改善法で開発した ECTPM は最も高いリン吸着能力を持つことを明らかにした。また、電気化学表面改善法は他の吸着材料の表面改善にも応用できると考える。

## 審 査 の 要 旨

本研究は、限られた資源であるリン回収にあたり、天然鹿沼土を用いて水中のリンを吸着・回収する方法の研究開発を行ったものである。吸着・回収の条件を最適化することにより吸着効率を向上させ、実用性の高い吸着材料の開発に成功した。水中のリンの吸着・除去に関わる吸着剤の量、接触時間、初期 pH、温度のリン吸着への影響を検討した。さらに、リンの吸着メカニズムを究明するため、吸着等温線、吸着動態、脱離速度の観点から検討をした。天然鹿沼土及び開発した顆粒状 TPM は有効的に水溶液からリンの除去ができ、電気化学表面改善法で開発した ECTPM は最も高いリン吸着能力を持つことを明らかにした。今後 ECTPM は実際の生活廃水からリンの吸着除去、並びに水環境の富栄養化の防止に応用できることが期待される。

本研究から得られた貴重な実験データは、鹿沼土及び開発したセラミックス TPM、ECTPM による廃水中のリンの浄化や回収の応用に科学的かつ技術的な助言が提供できた点がオリジナリティに富む研究として高く評価できる。

平成 25 年 6 月 5 日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査および最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判断された。

よって、著者は博士（環境学）の学位を受けるに十分な資格を有するものとして認める。