

氏名	Andri Taufick RIZALUDDIN		
学位の種類	博 士 (生物資源工学)		
学位記番号	博 甲 第 7760 号		
学位授与年月日	平成 28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	Studies on Peroxymonosulfuric Acid Treatment for Totally Chlorine-free Bleaching of Hardwoods Prehydrolysis-kraft Pulps (広葉樹材前加水分解クラフトパルプの完全無塩素漂白のためのモノ過硫酸処理に関する研究)		
主査	筑波大学教授	農学 博士	大井 洋
副査	筑波大学准教授	博士 (農学)	中川 明子
副査	筑波大学准教授	工学 博士	梶山 幹夫
副査	筑波大学教授	博士 (農学)	江前 敏晴

## 論 文 の 要 旨

第一章では、インドネシアの紙パルプ産業の現状と環境対策について概説した。インドネシアの紙パルプ産業は1980年代後半から急速に発展し、世界の主要な生産国に加わり、生産量は2014年にアジアで第三位、ASEANで最大となった。パルプの年間生産能力は2013年に880万トンに達している。他の紙パルプ生産国と比較すると、インドネシアは赤道近くに位置するため、樹木は亜熱帯国の平均3倍の早さで成長し、伐採期間が短いという利点がある。また、インドネシアはアジアの経済発展途上国の中間的な位置にあり、これらの国は将来的に紙パルプ製品の大きな新市場へと成長可能である。インドネシアには原材料用の産業林プランテーション拡張のための用地が残っている。溶解パルプはインドネシアの輸入品で、国内の工場は2つだけであるが、溶解パルプの国内生産を拡大する計画がある。

インドネシアも紙パルプの廃棄物、排水と大気汚染によってもたらされる環境汚染の問題に直面してきた。環境規制計画が1976年に着手され、その後1982年に、インドネシア法の制定によって環境管理の主要事項が承認された。環境規制があるにもかかわらず、監視と強制力が弱いことが原因で、1990年代に環境問題が発生した。アサハン川の水汚染では、悪臭、皮膚の炎症、飲料水不適合、農水産物汚染が発生し、地域社会に深刻な病疾患がもたらされた。シアク川の水汚染でも魚が死んで農水産物が影響を受けた。工場による補償が命令され、現在は水汚染を防ぐための水処理施設が作られ、改善されている。

一方、紙パルプ産業の世界的な競争が激しくなっており、環境関連の要求は急速に厳しくなっている。輸出先の国ではエネルギー効率が良く環境に優しいことが市場の要求であり、顧客は、紙パルプ製品が合法的な原材料から生産され、合法性が公的に認証されていることを厳しく要求するようになっている。生産企業は環境管理を徹底して競争力を持てるように努めている。これらの状況の下で、インドネシアの主要な紙パルプ工場では無塩素 (ECF) 漂白工程を採用している。

現在、ECF漂白は最も良い方法の一つと考えられているが、紙パルプ産業は今後のECF漂白の環境への

影響についても検討を始めている。二酸化塩素 ( $\text{ClO}_2$ : D) 段は、工程と排水からの有機塩素化合物の放出の発生源である。排水中の有機塩素化合物を減らす方法として、ECF ライト漂白シーケンスと呼ばれる方法の導入などによって  $\text{ClO}_2$  の使用量を最小にすること、あるいは D 段を完全無塩素 (TCF) 漂白シーケンスで置き換えることが挙げられる。また最近、オゾン ( $\text{O}_3$ : Z) 段を導入した ECF ライト漂白シーケンスが採用されている。

$\text{O}_3$  は TCF 漂白剤の最も強い酸化剤であるが、有害性のある気体で製造のエネルギー消費量が高い。一方、モノ過硫酸 ( $\text{H}_2\text{SO}_5$ :  $\text{P}_{\text{sa}}$ ) は強い酸化剤として以前から知られている。 $\text{P}_{\text{sa}}$  の合成法は 1957 年に特許化され、繊維状材料の脱リグニンでは、 $\text{P}_{\text{sa}}$  塩を用いることによって板紙に適したパルプの製造が可能であることなどが報告されている。パルプ漂白の研究では、1983 年頃に  $\text{P}_{\text{sa}}$  の効果が詳細に調べられ、最近、 $\text{P}_{\text{sa}}$  処理によりヘキセンウロン酸 (HexA) を分解できることが示されている。日本の ECF 漂白パルプ工場では、酸処理段を  $\text{P}_{\text{sa}}$  処理に転換する方法が用いられるようになってきた。また、 $\text{P}_{\text{sa}}$  処理によって  $\text{O}_3$  と  $\text{ClO}_2$  の添加量を削減できることが確認されている。

第二章では、アカシア材前加水分解クラフトパルプの Z 段を用いる TCF 漂白の改良として  $\text{P}_{\text{sa}}$  処理を適用する方法について検討を行った。アカシア材酸素 (O) 漂白パルプを  $\text{P}_{\text{sa}}$  処理、Z 処理、アルカリ抽出 (E)、過酸化水素 ( $\text{E}_p$ ) 漂白の順に漂白した。 $\text{P}_{\text{sa}}$  処理はパルプ濃度 10%、pH3、処理温度  $70^\circ\text{C}$  で行った。 $\text{P}_{\text{sa}}$  を用いると、パルプの HexA の除去を進め、白色度を改善できた。 $\text{P}_{\text{sa}}$  添加率 0.6% では、 $\text{E}_p$  漂白後のパルプの最終 ISO 白色度は 86.0% となった。 $\text{P}_{\text{sa}}$  添加率 0.2% では、3.4 の銅価減少で粘度が  $10.9 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  減少した。一方、添加率 0.5% の Z 漂白では、2.6 の銅価減少で粘度が  $12.5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  減少した。すなわち、 $\text{P}_{\text{sa}}$  処理は、銅価減少と粘度の関係で示される選択性の点で、Z 漂白よりも良いことを明らかにした。

また第三章で、Z 段の代替として  $\text{P}_{\text{sa}}$  処理を用いる TCF 漂白あるいは少量の  $\text{ClO}_2$  を用いる ECF 漂白について検討を行い、ユーカリ材とアカシア材前加水分解クラフトパルプの漂白のための O- $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$ - $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$  および O- $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$ -D シーケンスを提案した。その結果、O- $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$ - $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$  シーケンスは O- $\text{P}_{\text{sa}}$ -Z- $\text{E}_p$  よりも良い結果を与え、ISO 白色度は 87.3-88.3%、粘度は  $5.1$ - $6.0 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  となることを示した。O- $\text{P}_{\text{sa}}$ -Z- $\text{E}_p$  では ISO 白色度が 83.1% で粘度は  $5.4 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  であった。TCF 漂白の可能性については、より品質のよい原材料を用いて検討する必要がある。一方、ECF 漂白の O- $\text{P}_{\text{sa}}$ - $\text{E}_p$ -D シーケンスでは、ISO 白色度 88.1% で粘度  $7.3 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  のパルプが得られた。有効塩素換算の  $\text{ClO}_2$  添加量は少量の 0.5% であり、この結果は ECF 漂白における塩素含有漂白剤の使用をさらに削減できる可能性を示唆している。

以上を総括すると、本研究では、インドネシアにおける紙パルプ産業の持続的発展のために、有害廃棄物を発生源で抑制し、生産工程を改良し、あるいはより毒性の小さい物質の使用を推進することによって達成される汚染抑制対策の一つとして、 $\text{P}_{\text{sa}}$  を用いる TCF 漂白と ECF 漂白の新しい改良方法を提案した。

## 審 査 の 要 旨

本論文は、インドネシアの紙パルプ産業の現状と環境対策について概説し、産業と地域社会の持続的発展のために、広葉樹材溶解パルプの製造法として、モノ過硫酸を用いる完全無塩素漂白法、および少量の二酸化塩素を用いる無塩素漂白法を提案している。新規で有用な科学的知見と信頼性のある方法が示されており、インドネシアにおける紙パルプ産業への貢献が期待できる。

平成28年1月27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及び最終試験を行い、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定された。

よって、著者は博士 (生物資源工学) の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。