

学位論文審査の結果の要旨

氏名	野村 洋平
審査委員	主査 藤原 拓 副査 治多 伸介 副査 市浦 英明 副査 深堀 秀史 副査 張 浩

論文名

回転円板型促進酸化装置による廃水中微量有機化学物質の除去技術の開発

審査結果の要旨

近年、微量有機化学物質による水環境汚染が世界的に問題となっており、排出源となっている廃水からの除去技術の開発が喫緊の課題となっている。これらの微量有機化学物質には生物難分解性の性質を有するものが存在し、活性汚泥法等の生物処理では除去が困難であるため、促進酸化法等の化学的処理が適用されてきた。しかしながら、実廃水には塩類や有機物等の共存物質が含まれており、これらの阻害影響を緩和可能な技術開発という点で、課題が残されている。本研究では、各種の微量有機化学物質のうち 1,4-ジオキサンおよびサルファモノメトキシ(SMM)を対象物質として取りあげ、回転円板型促進酸化装置による廃水中微量有機化学物質の除去技術の開発を行った。

第2章では、活性炭/酸化チタン粉末複合触媒による 1,4-ジオキサンの吸着・分解特性を評価するとともに、廃棄物処分場浸出水中の共存物質による阻害影響を明らかにした。木質系活性炭と酸化チタンの粉末複合触媒を合成し、純水中で 1,4-ジオキサンを吸着処理した結果、1,4-ジオキサンの吸着と光触媒分解にともなう吸着容量の再生が同時に進行した。次に、粉末複合触媒による 1,4-ジオキサンの除去に対する共存物質の阻害影響を検討した結果、模擬無機廃水中の塩化物イオンによる吸着阻害は見られなかったが、光触媒反応が阻害された。模擬有機廃水中のフミン酸に関しては、平衡吸着量に対する阻害は見られなかったものの、吸着速度の低下と光触媒反応への阻害が観察された。粉末複合触媒を実浸出水生物処理水に適用した結果、1,4-ジオキサンと溶存有機物の同時除去が可能であったが、塩化物イオンや重炭酸イオンなどのラジカルスカベンジャーや溶存有機物による光触媒反応への強い阻害が生じた。そこで、共存物質による阻害影響を緩和可能な技術として、吸着工程と触媒再生工程を分離した処理技術の検討を行った結果、1mg/L の 1,4-ジオキサンを含有する実浸出水生物処理水に対して、排水基準値以下までの 1,4-ジオキサンの除去と光触媒分解による複合触媒の再生が可能であることが示された。

第3章では、活性炭/酸化チタン複合シートを搭載した回転円板型促進酸化装置により、廃棄物処分場浸出水中に含まれる 1,4-ジオキサンの除去特性を評価するとともに、共存物質の阻害影響を評価した。その結果、粉末複合触媒と同様に、UV 照射下では純水中の 1,4-ジオキサンの吸着と光触媒分解にともなう吸着容量の再生が同時に進行することが示された。1mg/L の 1,4-ジオキサンを含有する実浸出水生物処理水に対して、排水基準値以下までの 1,4-ジオキサンの除去と光触媒分解による複合触媒の再生が可能であることが示された。

む実浸出水生物処理水に対しては、回転円板型促進酸化装置により 66 時間の吸着・分解処理を行うことで、液相から約 89%の 1,4-ジオキサンが除去され排水基準値を達成するとともに、約 81%の 1,4-ジオキサンが光触媒分解された。回転円板型促進酸化装置は、水や吸光物質による透過光減衰を抑制しつつ、無機イオンによる光触媒分解の阻害を軽減することが可能である上に、回転させることで吸着工程（液相部）と触媒再生工程（気相部）を繰り返すため、共存物質を高濃度で含む実浸出水生物処理水においても 1,4-ジオキサンを処理することが可能なことが示された。

第 4 章では、高シリカ型ゼオライト/酸化チタン粉末複合触媒による淡水養殖廃水中の SMM およびその分解生成物の吸着・分解特性を評価するとともに、共存物質による阻害影響を評価した。複合化にともなう高シリカ型ゼオライト（HSZ-385）の吸着容量の変化は極めて小さく、粉末複合触媒による SMM の吸着処理に対する共存物質の阻害は生じないことが示された。酸化チタン/UV 処理では共存物質により SMM の光触媒分解は阻害された一方、複合触媒/UV 処理では複合触媒表面に SMM が濃縮されることにより光触媒分解に対する阻害影響が緩和されたと考えられた。SMM の分解生成物を同定した結果、検出された全ての分解生成物は環構造を有しており、SMM の光触媒分解の初期段階として、フェニル環とピリミジン環への水酸化反応、アミノ基からニトロ基への酸化反応、ヒドロキシル基のメトキシ基への置換反応が生じていることが明らかとなった。SMM を酸化チタン/UV 処理することにより生成される Ph-OH(SMM のフェニル環への水酸化反応により生成される物質)の光触媒分解挙動を調査した結果、複合触媒は SMM に加えて分解生成物も効率的に除去できることが示された。

第 5 章では、ゼオライト/酸化チタン複合シートを搭載した回転円板型促進酸化装置により、淡水養殖廃水中の SMM および分解生成物の除去特性を評価するとともに、共存物質による阻害影響を評価した。その結果、回転円板型促進酸化装置は淡水養殖廃水中の共存物質による阻害を受けずに SMM を吸着できることが示された。次に、SMM を吸着しないゼオライト(F-9)と酸化チタンを含む複合シートを使用することで、SMM の光触媒単独処理に対する共存物質の阻害影響を評価した結果、SMM の光触媒分解に対する共存物質の阻害影響はみられなかった。一方、SMM の光触媒分解により生じる分解生成物の光触媒分解は、共存物質により阻害されることが示唆された。また、回転円板型促進酸化装置による吸着・分解処理では、光触媒単独処理より SMM の除去が速やかに進行することが示された。また、回転円板型促進酸化装置による SMM の反復処理性能を評価した結果、同一のシートを用いて SMM を 5 回繰り返し処理しても、除去性能が変わらないことが確認され、回転円板型促進酸化装置は淡水養殖廃水中 SMM を効率的にかつ反復して除去可能であることが示された。

上述したように、実廃水中の微量化学物質の除去技術の開発に関しては、これまで共存物質による阻害影響の緩和という点で大きな課題が残されていた。本論文では、回転円板型促進酸化装置による廃水中微量有機化学物質の除去技術の開発に成功し、従来研究の課題解決に成功したという点で顕著な成果を得ている。加えて、促進酸化処理における中間生成物にも着目し、回転円板型促進酸化装置による処理過程での中間生成物の挙動を明らかにした点は、学術的価値が高いと評価される。

学位論文の公開審査会は平成 30 年 2 月 3 日に愛媛大学農学部で開催され、論文発表と質疑応答が行われた。続いて開催された学位論文審査委員会において本論文の内容について慎重に審査を行った。学位論文の内容については、環境工学、化学工学、生産環境学等の広範囲の分野に渡っており学際的である。これらを総合的に評価した結果、審査委員全員一致して、本論文は博士（学術）を授与するに値すると判定した。