

氏名	りゅう かせい 劉 佳星		
学位の種類	博士（工学）		
報告番号	甲第 1965 号		
学位授与の日付	令和 5 年 3 月 16 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当（課程博士）		
学位論文題目	<b>電気透析法による副生塩リサイクルおよび難分解性有機物の電気分解に関する研究</b>		
論文審査委員	（主 査） 福岡大学	教授	重松 幹二
	（副 査） 福岡大学	教授	佐藤 研一
	北九州市立大学	教授	大矢 仁史

## 内 容 の 要 旨

### 研究背景

日本の廃棄物管理の基本原則は廃棄物の発生抑制、資源化に努め、排出された廃棄物を焼却等中間処理により減容化、無害化したのち、残渣を埋立処分することにある。これは国土が狭く最終処分場用地の確保が極めて困難であるという国土事情に起因している。このため一般廃棄物については世界に先駆けて焼却炉を導入し、世界屈指の焼却大国となった。一方で、最終処分場技術については、焼却炉普及率が 50%以下であった 1960 年代に開発された埋立地をバイオリクターとして活用する「準好気性埋立」が中心となり、焼却炉普及後は焼却残渣を中心とした埋立技術や「被覆型処分場（クローズドシステム処分場）」などが開発普及してきた。その他、筆者が知るところ世界で唯一の海面処分場（水面を残したままの廃棄物の埋立）の存在、あるいは埋立終了後、キャッピング規定がないことなど国際的にも例を見ない独自の技術を有している。近年の最終処分場は中間処理施設の高度化により、埋立物の大半が焼却残渣と破碎不燃残渣で占められている。このため埋立ごみ中の有機分は少なく、安定化は早く、廃止も早いと考えられがちであるが、中間処理施設で用いられる薬剤や排ガス処理副産物である塩類の形態により、埋立地の安定化が遅れ、それに伴い廃止も遅れる傾向にある。また、中間処理に伴う排出された飛灰は特別管理一般廃棄物であるため、重金属等（特に鉛）の不溶化措置を行い、埋立処分することが義務付けられている。不溶化措置として最も多く採用されているのが、有機キレート剤による不溶化である。しかし最近、キレート剤に含まれる COD や窒素が浸出水水質上昇要因となっている。日本の一般廃棄物最終処分場の早期安定化、早期廃止に与える焼却施設の排ガス脱塩方式、飛灰安定化剤の影響は大き

い。このような背景下、焼却技術のさらなる高度化により、日本の最終処分場は様々な課題が顕在化してきた。

## 研究目的

研究背景で説明したとおり、日本の最終処分場の安定化、廃止のためには様々な課題を有している。その中で、本研究では焼却施設の排ガス脱塩剤と飛灰安定化剤の影響の課題解決の一手法として副生塩の資源化方法として「バイポーラ膜を用いたエコ酸、エコアルカリ回収」と残留キレートに代表される難分解性有機物の電気分解処理について研究した。

### 1) バイポーラ膜による副生塩からのエコ酸、エコアルカリ生成

焼却施設脱塩剤の影響により、浸出水中の塩化物イオン濃度が上昇する。塩化物イオン濃度が高濃度化すると処理水放流先で農業被害を生ずるため、電気透析膜法や逆浸透膜法による脱塩処理が行われる。脱塩処理をおこなうと濃縮水として副生塩が発生する。副生塩は適切な処分方法がないため、乾燥固化され処分場内に保管される。このため副生塩のリサイクルが望まれている。副生塩リサイクル手法として、無隔膜電解法による消毒剤、エコ次亜を生成する研究が樋口らにより行われ<sup>12)</sup>、松山市で実用化された。現時点で本格的な再利用方法として本方式しかないため、発生源近くに下水道終末処理施設等がない場合、エコ次亜の輸送問題等で使用できない場合がある。このためエコ次亜以外のリサイクル方法として、バイポーラ膜電気透析法により、エコ酸、エコアルカリを生成することに着目した。エコ酸、エコアルカリは中和剤として各種工場、水処理施設等利用用途が多いことより、副生塩問題解決の第2の方法として研究目的とした。

### 2) 残留キレートの電気分解処理

飛灰安定化剤のうち、有機キレート剤（以下、キレート）は焼却施設の90%以上で用いられている。キレートは主としてPbの溶出抑制のために用いられるが、他の2価の重金属とも反応するため、過剰に添加せざるを得ない。過剰に添加されたキレートは残留キレートとして、浸出水中に残留し、窒素の生物学的硝化脱窒プロセスにおいて硝化阻害を生じ、適正処理を阻害する。またキレートを構成するC,Nは難分解性有機物、難分解性窒素としてこれも適正処理を阻害する。従来、この対策として、逆浸透膜法（RO）や活性炭吸着法で対処できるが、キレートおよびキレート由来COD、窒素の分離のみであり、分解ができなかった。今回、2-1のバイポーラ膜電気透析法でエコ酸、エコアルカリ生成実験中に、COD、T-Nも分解されていることに着目し、これらが電氣的に分解されていることが判った。このため新たに、イオン交換膜を外し、電気分解装置を組み、残留キレートならびにキレート由来のCOD、窒素を分解することを研究目的とした。

## 結論

本研究は焼却残渣主体の最終処分場の課題である焼却施設における排ガス脱塩剤による高塩類問題とおなじく焼却施設の飛灰安定化に用いられるキレート剤による浸出水中のCOD、窒素問題を解決することを目的として実施した。高塩類問題については浸出水から回収した副生塩をBPEDによりエコ酸、エコアルカリを生成し、中和剤として利用できることを確認した。副生塩についてはすでにエコ次亜による消毒剤利用が先行実用化されているが、エコ次亜利用先の確保問題等の課題を抱えているため、あらたな利用方法として中和剤を開発した。中和剤は全国の中小工場等での利用が可能である。消毒剤、中和剤と二つの選択肢があることにより、脱塩処理を余儀なくされている全国の最終処分場の処分完結の可能性に貢献できると考えられる。

キレート剤については最も今日的な課題であり、残留キレートおよびこれに由来するCODや窒素処理により浸出水の適正処理が可能になるとともに、電気分解の導入により、これまでの浸出水プロセスを大幅に短縮することが可能である。一般的に電気を用いる処理方法は電気供給源である火力発電に頼ることになり、脱炭素化社会に反すると考えられる。特に従来のバイオリアクター型処理原理である生物学的硝化脱窒法も多くのプロセスでブロー、ポンプを多用しており、電気分解法との差は殆どない、もしくは電気分解法の方が少ないとも考えらえる。

## 審査の結果の要旨

### [審査の経過]

#### (1) 博士論文事前審査委員会

令和4年11月30日に開催された博士論文事前審査委員会で、申請資格の条件に適合する者であると判定された。

#### (2) 学位論文類似度判定実施

事前審査委員会に先立ち、学位論文類似度判定ソフトウェアにより学位論文として問題がないことを確認し、令和4年11月16日に福岡大学長に報告した。

#### (3) 博士課程後期通常委員会

令和4年12月7日に開催された博士課程後期通常委員会において、申請論文の受理と審査委員が承認された。

#### (4) 審査会

第1回審査会を令和5年1月5日に開催し、申請者本人から申請論文の内容説明を受け、論文の修正指示を行った。なお、第2回審査会の開催は必要とせず、このまま公聴会に臨むことを審査委員全員で決定した。

#### (5) 公聴会

令和5年2月1日に4号館多目的ホールにて公聴会を行った。公聴会では申請者による約

60分の発表の後、出席者から8件の質疑があり、申請者は全ての質疑に対する的確な回答を行った。

#### (6) 最終試験

公聴会終了後、口頭で最終試験を行い、関連領域に関する十分な学識と研究能力、英語および日本語の能力を確認した。

#### (7) 最終審査会

申請者の学力、学位論文の内容、審査会および公聴会での質疑応答の内容を踏まえ、審査員全員で当該学位論文を合格と判定した。

### [論文の評価]

#### (1) 学術的、社会的意義

日本では、一般廃棄物は焼却処理したのち、その焼却残渣を最終処分場に埋め立てるのが主流である。そのため焼却時の廃ガス処理で多量の塩類が発生するが、これを環境に放出することなく再資源化することが望ましい。さらには、焼却残渣に含まれる重金属（特に鉛）が放出されることを避けるため有機キレート剤が用いられているが、過剰の投与によって化学的酸素要求量(COD)や全窒素量(T-N)が高くなり、排水基準を満たさなくなる。有機キレート剤は2価の金属イオンと反応し、不溶化させるが、焼却残渣中には鉛以外に銅や銀等の2価の金属イオンが含まれるため過剰に投与せざるを得ない。本研究はこれらの問題を電気透析法および電気分解によって解決しようとしたものであり、学術的、社会的に意義のある研究テーマである。

#### (2) 新規性、独創性

副生塩のリサイクル法としては、無隔膜電解法による次亜塩素酸塩（NaとKの混合物であるため、エコ次亜と称する）の生産プラントが既に実用化されている。本研究はこれとは異なり、イオン交換膜を配置したバイポーラ膜電気透析(BPED)法を適用することで、酸およびアルカリ（同様に、エコ酸、エコアルカリと称する）を生産する方法を提案し、実用に供することができる濃度で得られることを実証している。また、過剰投与で生じる残留キレート剤については、電気分解(ED)法の適用によって分解可能であり、CODとT-Nが低減できること、さらにはキレート剤で捕捉された重金属は再び溶出しないことを確認している。特にCODについては先例がなく、既発表学術論文においても評価されている。以上により本研究は、新規性と独創性に富んだ研究と判断される。

#### (3) 先行研究の調査

前述の社会的意義や新規性で述べたように、本研究は先行事例における問題点を解決しようとするものであり、先行研究の調査は適切に行われている。

#### (4) 目的と結論

上記の問題と解決案について、モデル実験とともに実際の埋め立て地から排出される浸出水に適用し、当初の目的通りに問題解決が可能であることを実証し、適切に結論を導き出している。

(5) 語法、文章表現、引用

本論文は日本語で書かれており、語法、文章表現、引用いずれも問題はない。また、国際会議における英語での研究発表も適切な文章で書かれており、英語能力にも問題はない。

(6) 口述発表と質疑応答

審査会および公聴会とも、日本語で適切に口述発表するとともに、質疑応答も適切であり、研究者としての能力は適切な水準に達していると認められる。

(7) 関連分野の基礎知識、学術的研究遂行能力

日本の廃棄物関連法規に基づいた研究であり、環境工学や化学の基礎知識も豊富である。特にキレート剤の分解反応については、現象論に留まらず、研究計画の設定、反応機構の推定を行っており、高い研究遂行能力を持っていると認められる。

(8) 研究倫理

福岡大学研究倫理規定はもとより、関連法規等にも配慮された研究であると認められる。

(9) 上記をふまえた学位論文としての水準

上記の各評価をふまえ、本論文の博士学位論文は適切な水準に達していると認められる。

[審査委員の結論]

申請者の学力、学位論文の内容、査読付き論文への掲載状況、審査会および公聴会での質疑応答の内容より、本申請論文は工学研究科博士学位申請取扱細則第7条の審査基準に照らし、博士（工学）の学位授与に値すると全会一致で判定した。