

京都大学	博士 (工 学)	氏名	NGUYEN THI NGOC
論文題目	Study on characterization and differentiation of dissolved organic matter and its bindings with heavy metals in leachate from an old municipal landfill site (旧最終処分場からの浸出水中溶存有機物の特性評価と識別および重金属との結合に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>日本においては廃棄物の中間処理として焼却処理が主流であるため、焼却残渣と不燃物が最終処分される。それゆえ、最終処分場からの浸出水の有機物負荷は小さいが、焼却残渣には重金属が濃縮されるため重金属負荷が高い。浸出水中溶存有機物 (DOM) は重金属の毒性、生物学的利用能、輸送において重要な役割を果たすと考えられてきたが、焼却残渣主体の最終処分場での挙動、重金属との相互作用は明らかにされてこなかった。以上より、本研究では、日本の古い最終処分場浸出水中溶存有機物の特性ならびに重金属との相互作用を明らかにすることを目的としており、本論文は7章からなっている。</p> <p>第1章では本研究の背景として、日本における廃棄物最終処分場やそこから排出される浸出水に含まれる DOM について紹介しつつ、本研究の目的および本論文の構成を説明している。</p> <p>第2章では、最終処分場浸出水の性質、処理方法、浸出水中 DOM の特性評価手法、DOM と重金属との結合などに関連する文献調査が行われている。</p> <p>第3章では、実際の1つの最終処分場内の10つのサンプリング地点から13か月にわたって、浸出水をサンプリングし、3次元蛍光分析 (EEM) により浸出水中蛍光性溶存有機物 (FDOM) を求めた。得られたデータを多変量解析法 (PARAFAC) により特性評価し、3つの FDOM 成分 (Microbial humic-like component, Terrestrial humic-like component, Protein or tryptophan-like component) を同定した。3つの FDOM 成分と溶存有機炭素 (DOC) の関係においては、いずれの FDOM 成分とも有意な正の相関が認められたが、有機物の芳香性の指標である SUVA₂₅₄ とは相関が認められなかった。また、フミン酸物質の指標である HIX とも正の相関は認められず、これらの指標は最終処分場浸出水を評価するのに適切でないことを明らかにした。さらに、3つの FDOM 成分の埋立処分場の空間的および時間的変動も評価しており、FDOM に対する水文学的影響や浸出水ポンプ操作などの要因の影響についても考察している。</p> <p>第4章では、浸出水に含まれる DOM について固相抽出を行い、濃縮液に対してオービトラップ質量分析計により分析し、主要な化合物群に関する情報を得て、様々な統計的処理を行い、DOM の分子組成を求めた。5ヶ月間にわたる6つのサンプリング地点における DOM の分子組成、化学的性質、構造的特徴の違いを明らかにし、埋立処分場内の2つのサンプリング地点 (G3、G4) において、DOM に差があることを見出した。さらに、階層クラスター分析を行い、サンプリング地点 (G3、G4) とそれ以外の地点において DOM が異なることを可視化した。また、都市ごみ焼却飛灰中に含まれる重金属の安定剤として用いられるキレート剤由来の有機物に着目して可能性のある分子構造を示したが、その検出数は少なく、旧最終処分場の浸出水においてはキレート剤由来物は問題とならないことを示した。</p> <p>第5章では、浸出水の一般的な水質項目である pH や温度、酸化還元電位、各種イオン濃度などの13ヶ月間の結果を示した。物理化学的特性と EEM-PARAFAC から得られた FDOM 成分との関係を明らかにするために、相関分析や階層クラスター分析などの多変</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	NGUYEN THI NGOC
<p>量解析を行った。これらの結果からも、最終処分場内での地点により有機物を含む水質の違いが明確にされ、地点を分類することができた。これにより監視するサンプリング地点数を10地点から3地点に減らし、分析を効率化でき、運用コストを低減できる可能性があることを示した。</p> <p>第6章では、最終処分場内の各サンプリング地点における重金属濃度を調べ、浸出水処理施設では排水基準以下であるが、内部の地点においては、亜鉛や銅、マンガンなどが比較的高い値を示す場合があり、鉛については排水基準を超過する場合も認められることを示した。EEM 蛍光消光法を用いて、銅及び鉛の重金属イオンと浸出水由来のDOMとの結合の条件付き安定定数（KM）を求めるための実験を行った。各サンプリング地点の結合親和性を説明するために、FT-IRによりDOMの分子特性と官能基を評価した。本研究で調査した最終処分場浸出水中DOMと溶存重金属の結合性は、先行研究と比較して高くなく、DOMにより重金属の移動性が高まる可能性は低いと判断された。</p> <p>第7章では、主な調査結果を要約し、今後の研究への提言を行っている。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

世界的には有機性廃棄物を直接埋立処分した最終処分場での浸出水処理に関する研究は多くなされてきたが、焼却残渣主体の最終処分場での DOM の挙動、重金属との相互作用等の知見が不足している。本研究では、日本の古い最終処分場の 6 地点の観測井から浸出水をサンプリングし、DOM 及び重金属濃度などを調査し、それを統計的に解析するとともに、室内実験を行うことにより DOM と重金属との相互作用を明らかにしたものである。以下に主に得られた成果を示す。

1) EEM-PARAFAC を用いた浸出水中蛍光性溶存有機物 (FDOM) の特性評価においては、3 つの FDOM 成分を同定し、これらの空間的および時間的変動を示すとともに、SUVA₂₅₄ や HIX は処分場のフミン酸物質の指標にはなりえないことを明らかにした。また、DOM の変動は地下水位や浸出水ポンプ操作などの影響が大きいことを明らかにした。

2) 浸出水に含まれる DOM の主要な化合物群をオービトラップ質量分析計により同定し、59-89% が CHO を含む分子、41~54% が低酸素の不飽和フェノール化合物であることを明らかにした。EEM-PARAFAC のみでは観測井間による違いを明確に分けることができなかったが、DOM の分子組成による情報から処分場内で 2 つの観測井が他の観測井と比べて DOM が異なることを明らかにすることができ、本手法が浸出水中 DOM の特性評価に有用であることを示した。

3) 浸出水中重金属濃度については、最終的な浸出水処理施設では排水基準以下となっていたが、鉛の最大濃度は半数程度の観測井において排水基準を超えており、重金属の溶出について懸念があることを明らかにした。また、観測井ごとの違いについては、DOC や COD、pH などの一般的な水質項目も含め、多変量解析を行い、統計的にも分類されることを明らかにした。このことから監視観測井の数を減らすことが可能であり、本手法が最終処分場管理に有用であることを示した。

4) DOM と重金属 (Cu^{2+} および Pb^{2+}) との相互作用については、結合の条件付き安定定数 (KM) を EEM 蛍光消光法を用いて評価した。本研究で調査した最終処分場浸出水中 DOM と溶存重金属の結合性は先行研究と比べて高くなく、最終処分場浸出水中 DOM により重金属の移動性が高まる可能性は低いことを明らかにした。

本論文は、焼却残渣主体の最終処分場浸出水に含まれる溶存有機物の詳細な分析を行い、重金属との相互作用を論じたものである。本論文で得られた成果は、最終処分場での維持管理や廃止に向けた科学的な知見の裏付けとして利用可能であり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 6 年 2 月 21 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。