

|           |                              |
|-----------|------------------------------|
| 氏 名       | 浦 野 真 弥                      |
| 学位(専攻分野)  | 博 士 (工 学)                    |
| 学 位 記 番 号 | 工 博 第 1930 号                 |
| 学位授与の日付   | 平 成 12 年 3 月 23 日            |
| 学位授与の要件   | 学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当      |
| 研究科・専攻    | 工 学 研 究 科 衛 生 工 学 専 攻        |
| 学位論文題目    | シュレッターダスト中の有害物質とその溶出挙動に関する研究 |

論文調査委員 (主 査) 教 授 高 月 紘 教 授 武 田 信 生 教 授 森 澤 真 輔

### 論 文 内 容 の 要 旨

廃棄物の処理処分に伴う問題の一つにダイオキシン類 (PCDDs/DFs) や PCBs などの残留性有機物質の非意図的発生や混入がある。この PCDDs/DFs や PCBs が廃自動車や廃家電から有価金属を回収した後に発生する残渣、いわゆるシュレッターダスト中に含有されていることが豊島における不法投棄廃棄物調査などで報告された。しかし、その濃度範囲や由来は不明であり、また埋め立て処分後の溶出挙動についても溶解度の低い疎水性有機物質の研究例が少なく不明確な部分が多い。

本論文では主に廃自動車由来のシュレッターダストを対象として、含有されている残留性有機物質の調査を行うとともに、その由来の推定、溶出濃度へ影響を及ぼす因子として界面活性物質、コロイド状物質を取り上げ残留性有機物質の溶出濃度に及ぼす影響を検討している。

第1章は序論であり、シュレッターダストの説明及びそれを取り巻く法的環境について述べており、ついで PCDDs/DFs や PCBs など環境残留性の有機物質の溶出に関する過去の研究について簡単に触れている。最後に本論文の目的について述べている。

第2章はシュレッターダストの排出経路や排出量、周辺環境について述べている。まず、シュレッターダストの排出経路について整理した後、排出源である廃自動車の発生量推移ならびに廃家電製品の廃棄台数の推移を示している。さらにシュレッターダストの有害性がクローズアップされた豊島における不法投棄事件の概要ならびに廃棄物性状等を示し、日本、欧米各国シュレッターダストに対するリサイクルシステムの現状を紹介した。

第3章では PCBs および PCDDs/DFs の基礎物性を示すとともに廃棄物試料中の PCBs および PCDDs/DFs の分析に関して記述している。

第4章はシュレッターダストの物理組成および含有物質について述べている。本論文では複数の事業所から複数年に渡り採取したシュレッターダストについて、その物理組成の変化、残留性有機物質含有濃度の変化について調査し、シュレッターダストの性状を把握している。

その結果、採取を行った1989年から1998年までの10年間ではシュレッターダストの中の物理組成に大きな変化は認められなかった。一方、残留性有機物質の含有量については、廃自動車由来のシュレッターダスト16検体に対して全ての検体から PCBs が検出され、PCDDs/DFs も測定を行った5検体中2検体から検出された。とくに PCBs の含有濃度が高く、採取年によらず同じ濃度単位であった。その濃度範囲は1.1～730 mg/kg であり、平均濃度は75.3 mg/kg であった。

第5章はシュレッターダスト中の残留性有機物質の由来調査について記述している。とくに高濃度含有されていた PCBs について、可能性のある由来経路を整理した後、自動車使用段階における大気取り込み及び燃焼副生成に起因する PCBs 汚染経路として使用前後の自動車エンジンオイル中の濃度について調査を行った。その結果、全ての試料中の PCBs 濃度は定量下限未満であり、シュレッターダスト中の PCBs 汚染由来としてほとんど寄与していないことが示された。そこで、1998年に10日間連続採取を行ったシュレッターダスト試料の物理組成データと全 PCBs 濃度、また過去に製造された PCBs 製品中のコプラナー PCB (Co-PCBs) 異性体データとシュレッターダスト中の Co-PCBs 異性体データをそれぞれ用いた重回

帰分析を行い、シュレッダーダスト中のPCBsとの相関を求めた。その結果、特定の物理成分とシュレッダーダスト中のPCBs濃度との間の相関は低かったが、一部の製品PCBsと高い相関が認められた。

第6章は共存物質が残留性有機物質の溶出に及ぼす影響について述べたものであり、本論文ではまず疎水性有害有機物質の溶出影響因子について整理を行っている。疎水性有機物質の溶出挙動に影響を与える可能性のある因子は、対象化学物質の物性や廃棄物試料の性状に加えて、溶出溶媒が上げられるが、本論文では溶出溶媒に着目しており、その中でも界面活性効果を持つ化学物質やコロイドサイズの粒子の共存影響に着目して実験を行っている。

界面活性効果を持つ化学物質として埋立地環境での共存が想定される直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)やフミン酸を用いた溶出試験を行った結果、シュレッダーダスト中のPCBs溶出濃度は蒸留水を溶媒とした場合の数倍から70倍程度まで上昇し、LASやフミン酸の共存によりPCBsやPCDDs/DFsの溶出濃度の増加が確認され、その影響はLASの方が強いことが示された。

また、界面活性剤のLASを溶出溶媒に用い、固液分離条件を変更した実験では、固液分離条件のみ変更したにもかかわらず、両者で大きく溶出濃度が異なり、疎水性有機物質の溶出濃度がコロイドサイズの粒子に大きな影響を受けることが示された。さらにフミン酸溶液を溶媒として溶出試験を行い、得られた粗溶出液を三分割して、0.1 $\mu$ m、1.0 $\mu$ m、10 $\mu$ mと細かく固液分離粒径を変更した溶出試験により、これらのコロイドがその溶出挙動に大きく影響することが示された。それぞれの溶出液中の溶存有機炭素濃度、粒子状有機物質濃度、溶存フミン酸濃度、コロイド状フミン酸濃度を求めた結果、全PCBsの溶出濃度とフミン酸、特にコロイド状フミン酸濃度との間に高い相関が認められた。塩類共存に関してはコロイド粒子や界面活性物質共存ほどの影響は認められなかった。

第7章はまとめでありシュレッダーダスト中の残留性有機物質含有量やその由来、溶出挙動に対する共存物質の影響について各章で得られた結果を整理して述べたものである。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、廃棄された自動車や家庭電気製品を破碎処理し有価物を回収した後の残さ物であるシュレッダーダスト中の有害な残留性有機物質(ダイオキシンやPCBなど)の含有量及びその由来を調査するとともに、それらの残留性有機物質の溶出に影響を及ぼす因子や溶出機構について研究した成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 本研究に用いたすべてのシュレッダーダストからPCBが、また一部からダイオキシン類が検出された。特に、PCBの含有濃度は高く、1.1～730 mg/kgという広い範囲であることを示した。
2. シュレッダーダスト中のPCBの由来として自動車使用段階における大気への取り込み及び燃焼生成に起因するPCB汚染経路について調査を行った結果、この経路による汚染はほとんど考えられず、別の汚染経路があることを明らかにした。
3. シュレッダーダストのPCB含有濃度とシュレッダーダストの物理組成との相関及び製品PCBとの相関について統計的な考察を加えた結果、物理組成との相関は低く、コプラナーPCB異性体データを利用した重回帰分析により一部の製品PCBとの相関が認められ、製品PCBがシュレッダーダスト中の主要な汚染源である可能性を示した。
4. 廃棄物中に存在する残留性有機物質は環境中の界面活性剤や浸出水中にも検出されるフミン酸などの界面活性物質の存在により溶出が促進されることを示した。
5. とくに、合成洗剤の主成分である直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)はPCBの溶出を強く促進することを明らかにした。
6. さらに、フミン酸共存下でのPCB溶出機構を解析し、フミン酸中のコロイド状成分がその溶出を強く支配していることを明らかにした。

以上、本論文は自動車や家電製品のリサイクル過程で大量に発生するシュレッダーダスト中に含有される有害な残留性有機物質について、その含有量と溶出機構を明らかにしたものであり、今後のシュレッダーダストの適正処理に関して学術上、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、平成12年2月1日、論文内容とそれに関連した試問を行った結果、合格と認めた。