

京都大学	博士（工 学）	氏名	鄭 智 勳
論文題目	Recovery of Heavy Metals from Wastes Using Environmentally Friendly Hydrometallurgical Process（環境調和型湿式製錬プロセスを利用した廃棄物からの重金属回収）		
（論文内容の要旨） 本論文は、廃棄物を熱処理した後に発生する飛灰に有用重金属が濃集している資源的価値に注目して、熔融飛灰から有用重金属を回収することを中心に、対象廃棄物の基本的な性質や金属抽出特性の調査を行うとともに、新たな環境調和型選択的抽出剤としてイオン液体を適用して銅、亜鉛を回収する技術開発を行った結果をまとめたものであって、8章からなっている。 第1章は、研究の背景として、廃棄物からの資源回収の重要性および世界および日本の廃棄物発生及び管理の現状、重金属の環境リスクと資源回収の関係に関して概括した後、研究の枠組みを示し、本研究の目的を述べている。対象となる廃棄物の特性を把握し、金属抽出特性の調査および新たな選択的抽出剤の適用性を実験的に検討し、技術システムを開発することが具体的な目的である。 第2章は、廃棄物から重金属を回収するための各種要素技術について文献調査を行い、まとめている。 第3章は、廃棄物として都市ごみ焼却灰を熔融した際に発生する熔融飛灰を対象にして、重金属の抽出特性を実験的に検討している。まず、熔融飛灰の組成に注目し、重金属を濃縮させるため簡易な前処理として水洗の条件について検討している。次に、各種酸に対する基礎的な抽出特性として、固液比、酸濃度、温度、時間といったパラメータの影響を詳細に検討し、固液比、酸濃度が重要であることを明らかにしている。本実験の最適条件下では熔融飛灰から80%程度の銅が抽出されている。また、重金属の化学状態分析としてX線吸収端近傍構造分析（XANES：X-ray Absorption Near Edge Structure）を抽出前後の固体に適用し、各種抽出過程における現象解明を行っている。鉛についてはいずれの酸を用いても抽出残渣においては硫酸鉛の形態で存在することを明らかにしている。 第4章は、熔融飛灰中重金属の分離濃縮の可能性について、粒径分離と水洗処理の観点からハイドロサイクロンの適用を試みている。流速および処理負荷が分離後の粒径と金属の分布に与える影響について検討し、銅、亜鉛、鉛においては細粒部に、チタニウムは粗粒部濃縮されることが明らかにし、ハイドロサイクロンの重金属回収の前処理法としての有用性を示している。 第5章は、パルプ回収を目的に使用されるイオン液体である1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムクロライド（bmImCl）を2種類のパルプスラッジに適用し、回収工程における重金属の挙動を調査している。その結果、回収可能な有機物量のうち63%以上がパルプとして回収されることおよび回収パルプへの重金属移行率は低いことを明らかにしている。またこのパルプ回収過程でパルプスラッジ中の銅が他の金属よりbmImClにより抽出されやすいことを示している。さらに、イオン液体によるパルプ回収後残渣とパルプスラッジを焼却した際にできる残渣中の銅の化学状態および酸による溶出性を比較評価し、イオン液体によるパルプ回収法の環境影響面での評価を行っている。銅の化学状態は両者で異なり、イオン液体によるパルプ回収後残渣の方が酸による溶出性は低く安定であることが示され、環境影響面でもイオン液体によるパルプ回収法が優れていることが示されている。			

京都大学	博士（工 学）	氏名	鄭 智 勳
第 6 章は、イオン液体の bmImCl による溶融飛灰中重金属の抽出について検討している。5%硫酸による抽出と bmImCl による抽出を比較し、bmImCl では亜鉛及び銅が選択的に抽出されることを見出されている。また、bmImCl による抽出条件として固液比、時間、温度、攪拌強度の影響を検討し、固液比 10、抽出時間 10 時間、抽出温度 100℃、300rpm で攪拌することで 57%の銅および 30%の亜鉛が抽出されることを明らかにし、その抽出機構を論じている。 第 7 章は、溶融飛灰からイオン液体 bmImCl で抽出した液体に対して、電解析出法により銅と亜鉛とを分離析出する手法を検討している。銅、亜鉛の析出状況及び電極の腐食について、電極の種類、荷電圧、時間といった因子が与える影響を調査し、ステンレス電極に 1V の電圧をかけることで腐食をほぼ完全に抑えた状況で銅のみを析出させる条件を見出している。析出した電極をエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置付き電子顕微鏡で分析し、75%程度の純度の銅を得ることができることを明らかにしている。 第 8 章は結論であり、本論文で得られた成果について要約し、今後の展望について述べている。			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、廃棄物からの有用重金属を分離、抽出、回収することを目指して、重金属が濃集する溶融飛灰を主な研究対象として、基本的な性状調査と新たな環境調和型抽出・回収システムのための要素技術の適用可能性を検討したものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 対象廃棄物である溶融飛灰の組成を明らかにし、重金属抽出前処理として水洗効果を確認した。各種酸に対する基礎的な抽出特性として、固液比、酸濃度、温度、時間といったパラメータの影響を詳細に検討し、固液比、酸濃度が重要であることを明らかにし、銅の抽出において最適な条件を見出した。重金属の化学状態変化を調べ、抽出過程において生じる現象を明らかにした。

2. 溶融飛灰中重金属の分離濃縮の可能性について、粒径分離と水洗処理の観点からハイドロサイクロンの適用を試みた。銅、亜鉛、鉛においては細粒部に、チタニウムは粗粒部濃縮されることが明らかにし、ハイドロサイクロンの重金属回収の前処理法としての有用性を示した。

3. 重金属の挙動の観点から、イオン液体である 1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムクロライド (bmImCl) によるパルプスラッジからのパルプ回収工程がパルプスラッジ焼却工程と比較して評価された。回収パルプへの重金属移行率の低さおよびイオン液体によるパルプ回収後残渣中の重金属の化学状態・溶出性からイオン液体による回収法の優位性が示された。また、bmImCl による銅の選択抽出性が示された。

4. bmImCl による溶融飛灰からの重金属抽出性が検討され、銅および亜鉛が選択的に抽出されることが見出された。さらに、固液比、時間、温度、攪拌強度がイオン液体による銅および亜鉛の抽出に与える影響が調査され、最適条件下では 57%の銅および 30%の亜鉛が抽出された。

5. 抽出液からの銅、亜鉛の分離回収について電解析出法が検討され、荷電圧と析出の関係および電極の腐食に関する条件が求められた。ステンレス電極に 1V の電圧をかけることで腐食をほぼ完全に抑えた状況で銅のみを分離析出可能とした。

以上、本論文は、廃棄物からの有用重金属の回収ための新たな技術的システムを提案し、そのために必要な要素技術の検討を行ったものである。個々の技術がそれぞれ関連分野におけるこれまでの知見を深めており、その成果は他の研究分野へも波及すると考えられ、学術上、實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 24 年 10 月 19 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。