

氏 名	ソン 孫	イー 軼	フエイ 斐
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)		
学 位 記 番 号	工 博 第 2707 号		
学位授与の日付	平 成 18 年 9 月 25 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 都 市 環 境 工 学 専 攻		
学位論文題目	Decomposition of Polychlorinated Biphenyls with Activated Carbon-Supported Iron (鉄担持活性炭によるポリ塩化ビフェニルの分解)		
論文調査委員	(主 査) 教 授 武 田 信 生 教 授 森 澤 眞 輔 教 授 酒 井 伸 一		

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、鉄担持活性炭を用いて排ガス中のポリ塩化ビフェニル（PCBs）を分解処理することを目的として、鉄担持活性炭を作成し、その特性を把握した上で種々の条件下で PCBs の分解実験を行い、PCBs を分解する手法を開発したものである。活性炭は高い吸着能をもつことが知られているが、同時に触媒分解能を持ち、PCBs を分解することができる。一方で、遷移金属、特に鉄などの第Ⅷ族金属は PCBs の分解に有用な触媒であることが確かめられている。そこで、本研究ではそれぞれ PCBs の分解に有効な活性炭と鉄化合物触媒を組み合わせ、さらに高機能である鉄担持活性炭を作成し、PCBs の吸着触媒分解を目指して、実験的研究を行った。実験結果によれば、鉄担持活性炭を用いることで、PCBs について、99.9 %以上の高い分解率が得られた。その機構解明の過程で加熱過程における鉄のダイナミックな形態変化をも明らかにした。また、固体試料中の PCBs の迅速分析方法についても検討を行っており、論文は8章から成っている。

第1章では、PCBs 問題の歴史や背景、本研究の目的および本論文の構成について説明した。

第2章は過去の研究のレビューであり、マイクロウェーブ抽出の原理や特徴、固体試料への応用例などについて調査し、他の抽出・分析方法と比較した。また、PCBs の物理化学的性質について詳細な文献調査を行うとともに、鉄担持活性炭を作成・利用するために、鉄を触媒とした研究例およびイオン交換樹脂の性質などを調査し、活性炭の触媒性および吸着性を利用する報告例などについて調査した結果をまとめた。

第3章では、PCBs を含有する固体試料の分析方法の迅速化に関する検討のひとつとして、飛灰から PCBs およびクロロベンゼン類をマイクロウェーブによって抽出し分析する実験を行った。抽出時間、溶媒の組み合わせなどについて検討し、最適な抽出・分析条件を確立した。また溶媒の種類として水の利用を検討した結果、分析時間の短縮および有機溶媒使用量の削減を達成でき、低環境負荷分析方法としての利用可能性を示した。

第4章では、鉄担持活性炭のキャラクタリゼーションを行った。含浸法とイオン交換法によって作成した鉄担持活性炭（それぞれ、LaFe-C および IRFe-C）を用いて PCBs の分解実験を行う前に、SEM-EDS, XPS, XRD, XAFS, FT-IR, 比表面積測定などの様々な手法でキャラクタリゼーションし、二種類の鉄担持活性炭の違いを明らかにした。比表面積分析を用いて、窒素あるいは空気雰囲気で活性炭の細孔および質量が変化することと加えて、二つの異なる雰囲気、鉄化合物の形態および活性炭の細孔変化が分解に及ぼす影響を解明した。

第5章と第6章では、含浸法で作成した鉄担持活性炭 LaFe-C とイオン交換樹脂から作成した鉄担持活性炭 IRFe-C を用いて、PCBs 分解に重要なパラメータである雰囲気、温度および鉄の担持量などが PCBs の分解率に及ぼす影響を調査し、反応速度を求め、PCBs の分解率が99.9%以上になる条件を確立した。また、それぞれの鉄担持活性炭を使用した時の PCBs の分解経路を詳細に調べ、オルト位の塩素の脱離が生じにくいことを明らかにした。PCBs の分解は逐次一次反応によると仮定して数理モデルによりシミュレーションすることにより、中間生成物の分解反応の速度定数を求め、律速段階を明らかにした。

第7章では、実際に分解が生じている温度および雰囲気における活性炭上の鉄の挙動を、放射光を用いた in situ 実験により調べ、鉄のダイナミックな形態変化から、分解場における鉄の酸化還元機構を明らかにし、PCBs 分解時の反応機構を推測した。

第8章は結論であり、本論文で得られた成果および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、高濃度ポリ塩化ビフェニル（PCBs）の処理に伴って排出される PCBs 含有排ガスを鉄担持活性炭によって分解処理する手法を開発したものである。また同時に固体試料中の PCBs の迅速分析方法についても検討を行っている。得られた主な成果は次のとおりである。

1. 含浸法とイオン交換法によって鉄担持活性炭を作成（それぞれ LaFe-C および IRFe-C と呼ぶ）し、それらを SEM-EDS, XPS, XRD, XAFS, FT-IR, 比表面積測定などの手法によってキャラクタリゼーションし、鉄の形態、比表面積、細孔特性などが PCBs の吸着・分解に与える影響を明らかにした。
2. 雰囲気、温度、鉄の担持量などが PCBs の分解に及ぼす影響を実験的に検討し、反応速度を求めた。空気雰囲気の場合、LaFe-C では 350°C, 2時間で、IRFe-C では 350°C, 1時間で PCBs の分解率が99.9%以上となり、窒素雰囲気の場合、LaFe-C では 350°C, 3時間で、IRFe-C では 350°C, 2時間で PCBs の分解率が98.5%, 99.9%であり、分解生成物はほとんどが無機物であることを明らかにした。
3. それぞれの鉄担持活性炭について PCBs の分解経路を詳細に調べ、オルト位の塩素が脱離しにくいことを示した。また、PCBs の分解が逐次一次反応に従うと仮定して数値シミュレーションにより中間生成物の分解速度定数を求め、律速段階を明らかにした。
4. 実際に分解が生じている温度および雰囲気における活性炭上の鉄の挙動を、放射光を用いた in situ 実験により調べ、鉄のダイナミックな形態変化から、分解場における鉄の酸化還元分解機構を明らかにし、空気雰囲気および窒素雰囲気、それぞれ PCBs 分解時の反応機構は酸化分解および還元分解であることを推測した。
5. PCBs を含有する固体試料分析方法の迅速化に関する検討のひとつとして、飛灰からの PCBs およびクロロベンゼン類のマイクロウェーブ抽出法を実験的に検討し、分析時間の短縮および有機溶媒使用量の削減を達成できる低環境負荷分析方法としての利用可能性を示した。

以上要するに、本論文は排ガス中 PCBs を鉄担持活性炭によって分解処理する手法を開発し、その機構を解明したものであって、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18年8月2日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。