

## 論文審査の結果の要旨

申請者氏名 Wu Chia-Yu

水銀およびその化合物は、人間および生物に重大な健康影響を及ぼすことが知られている。水銀は化学形態（元素、無機化合物、有機化合物）によって環境中での挙動が異なり、高い生物蓄積性や長距離移動性を示すため、水銀汚染は世界的に懸念される問題である。2017年8月に水銀に関する水俣条約が発効され、世界的に水銀対策が進められている。

水銀の生物蓄積性の高さから水環境中の水銀の除去は重要なテーマである。水処理には凝集沈殿、生物処理、吸着、イオン交換、膜処理など様々な技術がある。近年、水銀を含む排水に対して、精密ろ過（MF）、限外ろ過（UF）、ナノろ過（NF）および逆浸透（RO）の4つの膜処理の除去能力を調査され、それぞれの有用性が示された。しかし、高い操作圧力（エネルギー）が必要であるほか、膜が汚れやすいなどの、エネルギー、メンテナンス、コストの面で課題が残っている。これら課題を対応する水処理技術として正浸透（FO）が注目を集めている。FOは、溶液間（供給溶液（FS）と駆動溶液（DS））の浸透圧差が駆動力となるため、ROのような高い圧力を必要とせず、膜の汚れが小さく、さらに環境に無害である塩や糖を駆動溶液に利用できるといった利点があり、グリーンテクノロジーとして期待されている。これまでに高濃度の重金属汚染廃水にFOが適用された例はあるが、低濃度の水銀や共存物質が水銀の除去率（阻止率）に与える影響などについては分かっておらず、高効率で低エネルギーの水銀の除去方法の確立のためにはさらなる研究が必要である。そこで本研究では、FOを用いて排水中の水銀の除去方法を構築することを目的とし、水銀の効率的な処理条件の検討、共存イオン・有機物による水銀の阻止率への影響、さらにFOシステムと膜蒸留（MD）システムあるいは低圧ROとの連結による高性能な水処理方法の確立を行った。

本論文では、上記の目的を達成するために実験を4つのパートに分けて行った。実験Ⅰにおいては、FOの効率的な運転条件を決定することを目的とし、流速（0.1～16 L/min）、溶液の水銀濃度（25 μg/L～10 mg/L）、pH（4～9）および水温（25℃～60℃）を変化させて実験を行った。実験の結果、各条件の違いは内部濃度分極（ICP）や浸透圧の変化をもたらし、溶液間の水フラックス、逆塩フラックスに影響したが、いずれの条件においても80%以上の高い水銀の阻止率を示した。実験条件によって水銀の阻止率に違いがみられており、水銀の阻止率は低流速、pH 7程度、25℃程度、低水銀濃度の条件で最も高い数値を示すことが明らかになった。

実験Ⅱにおいては、水中に共存する金属イオンや有機化合物が水銀の阻止率に与える影響について研究を行った。まず、水銀、銅、鉛を対象にFOによる阻止率を求めたところ、各金属イオンの阻止率は98%以上を示し、また他の膜処理（NF、UF、RO）の既報値と比較して最も高く、FOは水銀以外の金属についても極めて効率的な除去技術であることが示された。つぎに、銅イオン、鉛イオンの共存下における水銀の阻止率を調べた結果、両金属イオンの共存によって水フラックスが増加するとともに、水銀

の阻止率も増加した。さらに、ハロゲンイオン (Cl、Br、I)、硫黄化合物、りん化合物のほか、システイン、フミン酸のような高分子化合物を含む共存イオンの水銀の阻止率への影響を調べた。ハロゲンイオン共存下では水銀はハロゲン化態として水中に存在していると推定され、電気的な反発、分子サイズ等によって水銀の阻止率は異なった。また、フミン酸共存下では水銀の阻止率が 80% まで低下したが、L-システイン共存下では 99.9% の水銀阻止率が観察され、共存物質によって水銀の阻止率への影響が異なることが示された。

実験Ⅲにおいては、FO 処理のさらなる効率化を図るため駆動溶液の選択について検討した。駆動溶液中のイオンの価数による影響を把握するため、NaCl 溶液と MgCl<sub>2</sub> 溶液の 2 種を駆動溶液として用いて比較した。両溶液で水フラックスの値は類似したが、逆塩フラックスは NaCl よりも MgCl<sub>2</sub> を用いた方が顕著に低い値を示した。水銀阻止率は NaCl よりも MgCl<sub>2</sub> を用いた方が高く、さらに供給溶液から駆動溶液への移動も小さく、駆動溶液に適していることが示唆された。

実験Ⅳにおいては、持続可能な水処理方法の構築のため、FO に加えて、水温差を駆動力とする膜蒸留 (MD) および圧力を駆動力とする RO との接続について検討した。低圧 RO は水フラックスが MD よりも高いものの、時間の経過とともに減少する傾向が確認された。一方、MD は時間経過に関係なく一定の水フラックスを得ることで、長時間安定してシステムを作動させることが可能であると考えられた。また、FO は長時間運転 (24 時間) させても水銀の阻止率が 95% を示したが、供給溶液中の水銀の一部が駆動溶液側に移動することが確認され、課題であった。この課題について、FO で処理した溶液に MD を適用することで約 100% の Hg<sup>2+</sup> 阻止率および安定した水フラックスを得ることが可能となることが明らかになった。このような FO-MD ハイブリッドシステムは、水銀を含む重金属除去の既往処理システムに代わる新たなシステムであり、低エネルギーで排水を持続的に処理し、高品質の水を製造することのできる大きな可能性を持っている。

本研究により、水銀処理に関する FO の最適な操作条件を決定し、また他の金属イオンや高分子化合物によるマトリックス効果に関して明らかにした。さらに、FO-MD ハイブリッドシステムを使用することによって、約 100% の水銀阻止率と安定した水フラックスを得られることを明らかにした。このように FO-MD システムは汚染水の再生や汚染地域の水銀処理に対する新たな代替手法として大きな可能性を持つことが示された。

以上のように、Wu 君の研究は、博士 (環境共生学) の学位に相応しいものと判定する。