

平成26年 2月 3日

論文審査結果の要旨

専攻 入学年度	資源環境科学 専攻 平成20年度(4月)入学	氏名	大榮 薫
論文題目	マグнетタイトを基体とした砒素吸着材の開発に関する基礎的研究		
審査委員 職名及び氏名	主査 教授 馬場由成 副査 教授 田畠研二 副査 教授 酒井剛 副査 教授 佐伯雄一 副査 准教授 塩盛弘一郎 副査 准教授 大島達也		

審査結果の要旨(800字以内)

バングラデシュやインドなど世界各地で地下水の砒素汚染が深刻な環境問題になっている。本研究では毒性の高い As(III)に高い選択性を示すと期待され、しかも操作性の観点から磁性をもったマグネットタイト (Fe_3O_4) に着目した。砒素を吸着した微粉末のマグネットタイトはマグネットによって固液分離が容易に達成される。

マグネットタイトによる砒素の吸着能は、吸着サイトの表面水酸基量の増加によって向上すると考えられる。本研究ではマグネットタイトの高比表面積化を図るためにナノ粒子化を検討し、その調製溶媒にアルコール類を用いることにより高比表面積のマグネットタイトナノ粒子の合成に成功した。マグネットタイトの粒子サイズの逆数がアルコール水溶液の誘電率の逆数と直線関係が成り立つことから、調製溶媒の誘電率によりマグネットタイトの粒子サイズを制御できることを見出した。

マグネットタイトナノ粒子は、水酸化鉄($Fe(OH)_3$)と比較すると As(III)に高い選択性を示し、As(V)との相互分離ができることを見出した。またこれらの飽和吸着量は比表面積および表面水酸基量と正の相関があり、ナノ粒子化によって砒素の吸着・除去性能は格段に向上した。これらの結果を明らかにするために、ヒ素の吸着に及ぼすマグネットタイトの表面電位、吸着平衡に及ぼす pH、イオン強度、砒素濃度、温度および共存イオンの影響を調べ、As(III)およびAs(V)の吸着機構を検討した。その結果、As(III)の吸着はイオン強度に影響されず、吸熱反応と正のエントロピー変化を示すことから、As(III)は水和水の脱離を伴う内圈型錯体形成による吸着であり、その選択性の発現機構を明らかにした。As(V)は低 pH で高い吸着量を示し、pH の上昇に伴い吸着量は低下した。高 pH 領域ではイオン強度と共に吸着率が増加し、As(V)の吸着後、等電点は低 pH 側へ大きくシフトした。また As(V)の吸着は発熱反応および正のエントロピー変化を示したことから、内圈型錯体と外圈型錯体形成による吸着機構であることを明らかにした。一方、As(III)およびAs(V)の吸着速度解析の結果、これらの吸着は粒子内拡散が律速段階であり、特に表面拡散が支配的であることを明らかにした。さらに Ce^{4+} あるいは Zr^{4+} を添加したマグネットタイトは、地下水の砒素除去材として有用であることを明らかにした。

本審査委員会は、以上の論文内容ならびに公聴会での発表内容および質疑応答を総合的に判断して、本論文が博士論文として適格であり、最終審査に合格したものと判定した。

(注) 論文題目が外国語の場合は日本語を併記すること。