

氏名（本籍）	ERDA RAHMILAILA DESFITRI（インドネシア共和国）
学位の種類	博士（工学）
学位授与番号	甲第601号
学位授与日付	令和3年3月25日
専攻	環境エネルギーシステム専攻
学位論文題目	Development of additives materials for controlling trace elements leaching from coal fly ash (石炭フライアッシュからの微量元素溶出抑制材の開発)
学位論文審査委員	(主査) 教授 板谷 義紀 (副査) 教授 神原 信志 准教授 小林 信介

### 論文内容の要旨

石炭灰の有効利用の拡大において土砂代替材（土工材）が考えられているが、石炭灰にはヒ素、ホウ素、セレン、フッ素、クロムといった有害微量物質が含まれているため、石炭灰をそのまま土工材として利用するとこれらの有害微量物質が土壌に溶出し、土壌環境基準を満たせない懸念がある。そのため、有害微量物質の溶出を抑制できる技術の開発が望まれている。

本研究は、実際の石炭火力発電所から採取したフライアッシュについて、微量元素溶出量を調べ、溶出量に影響する因子は石炭灰の組成および溶出液のpHであり、特にフライアッシュ中のカルシウムの化学形態（ $\text{CaO}$ 、 $\text{Ca(OH)}_2$ 、 $\text{CaCO}_3$ ）が溶出量に大きく影響していることを明らかにした。 $\text{Ca(OH)}_2$ は溶出抑制効果が顕著であり、フライアッシュに $\text{Ca(OH)}_2$ を添加すると、添加量が多いほど微量元素溶出量を抑制できることを明らかにした。しかし、 $\text{Ca(OH)}_2$ はコストが高く、実用性の観点で課題があることがわかった。

安価なカルシウム源として、発生量も多く廃棄物であるペーパースラッジ焼却灰に着目した。実際の製紙工場から排出される数種類のペーパースラッジ焼却灰中のカルシウム形態を測定し、再生紙製造で発生するペーパースラッジ焼却灰がもっとも $\text{CaO}$ を多く含み、微量元素溶出抑制材の原料として有効であることを見出した。しかし、ペーパースラッジ焼却灰はフッ素を多く含むため、フライアッシュにペーパースラッジ焼却灰を混合してもフッ素の溶出量抑制はできなかった。

フライアッシュから土工材を製造する場合、フライアッシュの固化材として高炉セメントが良く用いられる。この高炉セメントは $\text{CaO}$ を多く含むため微量元素溶出抑制効果が高く、フライアッシュにペーパースラッジ焼却灰と高炉セメントを混合すると、ペーパースラッジ焼却灰から溶出するフッ素を抑制することができた。しかし、高炉セメントにはクロムが含有しているため、クロムの溶出抑制が課題となった。クロムの溶出には、 $\text{Ca(OH)}_2$ が最も高い溶出抑制効果を持つことは当初の研究成果からわかっていたため、フライアッシュに少量の水酸化カルシウムとペーパースラッジ焼却灰、高炉セメントを混合すると、As, Se, B, F, Crすべての溶出を同時抑制できることを明らかにした。これより、安価な微量元素溶出抑制材を開発することができた。

### 論文審査結果の要旨

本論文は、石炭火力発電所で発生するフライアッシュの有効利用において問題となっている微量元素（As, Se, B, F, Cr）の溶出を抑制できる抑制材の開発を目的としている。まず、十数種のフライアッシュについて微量元素溶出挙動を調べ、溶出量について特性化を行い、フライアッシュ中のカルシウムの化学形態が溶出量に大きく影響していることを明らかにした。次に、水酸化カルシウムをフライアッシュに添加した時の微量元素溶出量を調べ、水酸化カルシウム添加量が多いほど、微量元素溶出量を抑制できることを見出した。しかし、水酸化カルシウムはコストが高く、実用性の観点で課題があることがわかった。

そこで、安価なカルシウム源を探索した。発生量も多く廃棄物であるペーパースラッジ焼却灰に着目した。実際の製紙工場から排出される数種類のペーパースラッジ焼却灰中のカルシウム形態について特性化研究を行い、酸化カルシウムを多く含むものが微量元素溶出抑制に特に有効であることを明らかにした。しかし、ペーパースラッジ焼却灰はフッ素を多く含むため、フッ素の溶出抑制が課題として残った。

フライアッシュの有効利用においては、固化材として高炉セメントが良く用いられるが、この場合、高

炉セメントに含まれるクロムの溶出が問題となっている。当初の研究成果から、ペーパースラッジ焼却灰のフッ素と高炉セメントのクロムの溶出は、水酸化カルシウムで溶出抑制できることがわかっていたため、フライアッシュに少量の水酸化カルシウムとペーパースラッジ焼却灰、高炉セメントを混合するアイデアにより実験したところ、As, Se, B, F, Crすべての溶出を同時抑制できることを見出した。これより、安価な微量元素溶出抑制材を開発することができた。

申請された学位論文を慎重に審査した結果、本論文は新規性ある有効な知見を見出ししており、優れた研究成果であることを確認した。学位審査委員会における審査の結果、本論文は学位論文に値するものと判定した。また、岐阜大学大学院工学研究科における課程申請による博士の学位に関する取扱要項第4の規定において、提出する学位論文の基礎となる学術論文の数は環境エネルギーシステム専攻における規定に達しているものと確認された。

### 最終試験結果の要旨

学位審査委員会は、提出論文の基礎となる発表論文（査読付き論文4編）の内容を確認し、令和3年2月2日に開催された学位論文公聴会において、論文提出者との質疑応答と口頭試問などに基づいて審査を行い、最終試験に合格と判定した。

---

発表論文（学位論文に直接関係するもの）

1. Preliminary Study on Additives for Controlling As, Se, B, and F Leaching from Coal Fly Ash, F. F. Hanum, E. R. Desfitri, Y. Hayakawa, S. Kambara, Minerals, 2018.
2. Calcium Performance in Paper Sludge Ash as Suppressing Material, E. R. Desfitri, F. F. Hanum, S. Kambara, Y. Hayakawa, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 543(1), 8pages, 2019.
3. The Role of Calcium Compound on Fluorine Leaching Concentrations, F. F. Hanum, E. R. Desfitri, S. Kambara, Y. Hayakawa, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 543(1), 7pages, 2019.
4. Effect of Additive Material on Controlling Chromium (Cr) Leaching from Coal Fly Ash, E. R. Desfitri, U. M. Sutopo, Y. Hayakawa, S. Kambara, Minerals, 10(6)-563, 2020.