

## 論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨の公表

学位規則第 8 条に基づき、論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨を公表する。

○氏名	ANDRES GINNO LIZANO (あんどれす じーの りぎーの)
○学位の種類	博士 (工学)
○授与番号	甲 第 1020 号
○授与年月日	2015 年 3 月 31 日
○学位授与の要件	本学学位規程第 18 条第 1 項 学位規則第 4 条第 1 項
○学位論文の題名	Development and Application of Capacitive Deionization System (電気二重層を用いた溶液中のイオン除去システムの開発と応用)
○審査委員	(主査) 吉原 福全 (立命館大学工学部教授) 大上 芳文 (立命館大学工学部教授) 小島 一男 (立命館大学生命科学部教授)

### <論文の内容の要旨>

本論文は、電気二重層を用いた水溶液中のイオンを除去システム (CDI: capacitive deionization) の構築について検討を行ったもので、以下のように要約される。

- 1) CDI では同じ容量の電極をアノードとカソードに用いると、両極の電荷量が等しくなるように電圧が分担される。水溶液の場合、水素標準電極値に対しカソード電位が $-0.42\text{V}$ 、アノード電位が $+0.82\text{V}$ を超えるとそれぞれの電極で水素および酸素が発生し、イオンを吸着できなくなるだけでなく、エネルギーを無駄に消費することになる。電極のイオン吸着容量を高めるために、一般に比表面積の高い活性炭が電極材料として用いられるが、開発した活性炭電極の自然電位 (rest potential) は  $0.33\sim 0.39\text{V}$  (対水素基準電極) であり、アノードでのイオン吸着のための電圧の余裕が少ないため、電極の容量をイオン吸着に十分に活かすことができない。本研究では、この問題を解消するために、カソードとアノードの電極厚さを電極の自然電位から酸素および水素発生までの電位差の逆数の比にすることによって、カソードでの利用可能電位を水素発生電位まで拡大でき、より多くのイオンを吸着することができることを明らかにした。
- 2) 電気二重層イオン除去槽内でイオンを吸脱着する場合、処理液を処理槽内に留めた状態で吸着および脱着を行うバッチ処理と、処理液を流しながら処理を行うフロースルー処理のケースが想定され、それぞれに長所・短所がある。本論文では、除去イオン量を最大化し、電極再生のためのイオン濃縮をより高濃度まで可能とするためには、フロースルー

一処理での吸着とバッチ処理での濃縮を行うハイブリッド処理が効率的であることを実験的に明らかにした。

- 3) 活性炭電極を積層した CDI スタックについて、ユニポーラおよびバイポーラ接続によるイオン吸着/脱着特性を評価し、バイポーラ回路による CDI スタックがユニポーラ回路のそれに比べて、約 30%のエネルギーで稼働出来ることを実験に明らかにした。さらに、合計 8 つの CDI セルから構成されたシステムを用いて、イオン脱着時のエネルギーを他段のイオン吸着のエネルギーとしてエネルギー回生を行う手法について検討を行い、最高 81%のエネルギー回生率を達成した。
- 4) 近年、最終処分場の埋立容量の逼迫に伴い都市ごみ焼却残渣の資源化は喫緊の課題であり、焼却灰のセメント原料化が有望視され、受入も進みつつあるが、その受入量はセメント製造時に塩素を除去する塩素バイパス装置の能力によって制限されている。焼却灰のセメント原料化の更なる促進を目的として、焼却灰の水洗による脱塩システムとその洗浄廃液のクローズド化に、本研究で開発した電気二重層イオン除去システムを応用し、本方式が逆浸透圧膜 (RO 膜) 法など既存技術に比べてエネルギー効率および運転経費の面で優れていることを明らかにした。

#### <論文審査の結果の要旨>

一対の電極間に電解液を浸し、電極間に電圧を印加すると、分極により電極表面にイオンが吸着され、電気二重層が形成される。この現象を利用して溶液中のイオンを除去することができる。この手法は CDI (capacitive deionization) と呼ばれ、その原理はよく知られているが、エネルギー効率や少ないイオン吸着容量などから、特殊な場合を除き実用化には至っていない。CDI ではイオンが吸着した状態はコンデンサの充電状態にあたり、放電のエネルギーを他段の充電 (イオン吸着) に利用することで、エネルギー回生が可能で、一般的に用いられている逆浸透圧膜 (RO 膜) 法よりも高いエネルギー効率を期待できるほか、懸濁物や析出物で目詰まりしないための高度な前処理が求められる RO に対し、このような前処理を必要とせず、維持コストが低い CDI システムは高い競争力を持つことが出来る。本研究では、このような現状に鑑み、CDI システムにおける吸着容量の増大とエネルギー回生手法について検討を行っている。

電極の自然電位と水溶液の酸化還元電位との差に基づいてアノードとカソードの電極容量を最適化することで、イオン吸着容量を最大化できる、新しい知見を得ている。また、活性炭電極を積層した CDI スタックについて、ユニポーラおよびバイポーラ接続によるイオン吸着/脱着特性を評価し、バイポーラ回路による CDI スタックがユニポーラ回路のそれに比べて、約 70%のエネルギーを節減できること、ならびにイオン吸着・脱着時の処理溶液のフローについて、イオン吸着時に通液処理、電極再生時にバッチ処理を行う組み合わせが最も効率的にイオンを除去・濃縮できることを実験的に示しており、新しい知見といえる。なお、実験では 1mS/cm の伝導率で NaCl 溶液を使って評価した結果、2.5 : 1 (アノード : カソード) 厚み比率による電極において、0.034 モル/m<sup>2</sup>の高いイオン除去能力を示した。さらに、合計 8 つの CDI セルを用いて、イオン脱着時のエネルギーを他段のイオン吸着のエネルギーとしてエネルギー回生を行う手法について検討を行い、最高 81%のエネルギー回生率を達成している。

CDI システムの応用例として、近年、最終処分場の埋立容量の逼迫に伴い喫緊の課題となっている、都市ごみ焼却残渣の資源化について、焼却灰のセメント原料化の促進を目的

として、焼却灰の水洗による脱塩システムとその洗浄廃液のクローズド化への適用について検討を行い、本方式が逆浸透圧膜（RO 膜）法など既存技術に比べてエネルギー効率および運転経費の面で優れていることを明らかにしている。

以上の理由から、本論文は高い工学的価値を有していると判断した。

本論文の審査に関して、2015年2月4日（水）14時40分～16時30分、イーストウイング4階機械システム系演習室において公聴会を開催し、学位申請者による論文要旨の説明の後、審査委員は学位申請者 ANDRES GINNO LIZANO に対する口頭試問を行った。各審査委員および公聴会参加者より、電極の構造、スタックの構成、エネルギー効率などに関する質問がなされたが、いずれの質問に対しても学位申請者の回答は適切なものであった。よって、以上の論文審査と公聴会での口頭試問結果を踏まえ、本論文は博士の学位に値する論文であると判断した。

#### <試験または学力確認の結果の要旨>

本論文の主査は、学位申請者と本学大学院理工学研究科総合理工学専攻博士課程後期課程在学期間中に、研究指導を通じ、日常的に研究討論を行ってきた。また、本論文提出後、主査および副査はそれぞれの立場から論文の内容について評価を行った。

学位申請者は、本学学位規程第18条第1項該当者であり、論文内容および公聴会での質疑応答を通して、学位申請者が十分な学識を有し、博士学位に相応しい学力を有していると確認した。

以上の諸点を総合し、学位申請者に対し、本学学位規程第18条第1項に基づいて、「博士（工学 立命館大学）」の学位を授与することが適当であると判断する。