

さい えんずい

氏名	崔 延瑞
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成22年 3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程) 土木工学専攻
学位論文題目	生物活性炭・オゾン循環処理による埋立地浸出水の高度処理
指導教員	東北大学教授 西村 修
論文審査委員	主査 東北大学教授 西村 修 東北大学教授 大村 達夫 東北大学准教授 李 玉友 東北大学准教授 中野 和典

## 論文内容要旨

埋立ては最も主要なゴミを処理する方法である。日々発生する大量のゴミを処理するために埋立地が造成され、発生する浸出水の量も急増している。

浸出水中に高濃度に含まれる難分解性有機物は通常の生物処理が困難であるので、凝集沈殿や活性炭吸着などの物理化学的処理を主に処理システムが組み立てられている。しかし、既往の研究では生物処理と物理化学的処理の組合せについていくつかの提案がなされており、なかでも高度な処理を達成しているのはオゾンと生物活性炭の組合せである。ただし処理過程が複雑であるため、運転操作方法の合理化には到っていない。

そこで本研究では、生物活性炭とオゾンの適切な組合せによる埋立地浸出水の高度処理技術を開発することを目的とした。そのために、浸出水のオゾン処理特性、生物処理特性、それらの組合せ方法による処理特性を求め、生物活性炭・オゾン循環回分処理における有機物除去モデルを構築し、シミュレーションにより運転操作方法の合理化に関する検討を行った。

第1章「緒論」では、本研究の背景と目的を述べ、論文の構成を記した。

第2章「既往の研究および研究課題の整理」では、埋立地浸出水の水質特性、埋立地浸出水処理の既往の研究および課題をまとめた。オゾン注入条件と有機物の変化の関係や、生物活性炭による有機物の除去メカニズムなど解明が不十分な課題が抽出され、実験的検討が必要であることがわかった。また、合理化な運転操作方法を解析するために数値モデルを構築する必要性が明らかになった。

第3章「埋立地浸出水のオゾン酸化による有機物の活性炭吸着性・生物分解性変化」では、オゾン酸化による浸出水中有機物の活性炭吸着性、生物分解性の変化を解析した。さらに浸出水の水質特性がオゾン酸化効果に及ぼす影響を解析した。

まず、オゾン酸化による浸出水中有機物の生物分解性を検討した。オゾン酸化時間(オゾン注入量)に対する生物化学的酸素要求量(BOD)、溶存態有機炭素(DOC)の変化を調べた結果、オゾン酸化の最初のごく低注入量でDOCは変化しないもののBODが増加し、有機物の易生物分解性が生じること、その間は注入したオゾンがほぼ有効に消費されることがわかった。そして、易生物分解性が終了した時点(BOD値がピーク)でオゾンの消費が鈍り、排オゾンガスが検出され始めることがわかった。その後はオゾンの注入に対して非効率なオゾンの消費(排オゾン濃度の上昇)がおこり、その過程でDOCが減少し、無機化が生じることが明らかになった。したがって排オゾンの検出を指標としてオゾンによ

る易生物分解性を最大化できることがわかった。

次に、先に求めた無機化しないオゾン注入条件で、オゾン処理が浸出水の活性炭吸着性に及ぼす影響を調べた結果、埋立地浸出水に直接オゾン処理を行った場合は、活性炭吸着性に影響を及ぼさなかった。しかし、活性炭吸着処理した埋立地浸出水をオゾン処理して再度最初に使用した活性炭で吸着処理した場合、浸出水有機物の活性炭吸着性が増加することがわかった。この理由は浸出水の活性炭吸着処理によってオゾンスカベンジャーが除去されてオゾン酸化効果が発現すること、オゾン酸化効果としては有機物の親水性化よりも低分子化効果が上回り吸着性が向上することが考えられた。

オゾン処理が浸出水の生物活性炭処理性に及ぼす影響を調べた結果、オゾン酸化した浸出水の生物分解性の変化は、前処理として行った生物活性炭処理時間の長さによって異なった（図1）。

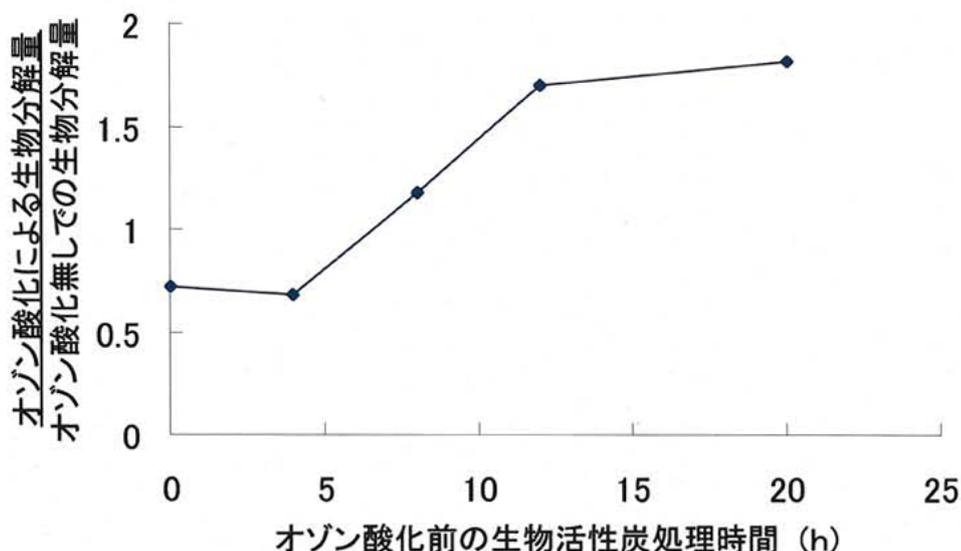


図1 オゾン酸化による生物分解性変化に及ぼす生物活性炭前処理時間の影響

直接あるいは短時間の生物活性炭前処理後にオゾン酸化した浸出水の生物分解性は低下すること、適切な前処理時間を確保することで1.5倍以上生物分解性が向上すること、しかし前処理時間を長くすることの効果は次第に低減し、2倍弱の向上にとどまることがわかった。

浸出水に直接あるいは短時間の生物活性炭前処理を行ってオゾン酸化した場合に、オゾン酸化の効果は親水性化のみが発現し、生物分解性の低下につながったと考えられた。一方より長時間の生物活性炭前処理を行った場合、オゾンスカベンジャーが除去されてオゾン酸化の効果が強く発現し、親水性化に続いて低分子化が起こって生物分解性の向上につながったと考えられた。さらに生物活性炭前処理時間を長くしてもオゾン酸化効果が増加しないのは、オゾン酸化によって発生した新たなオゾンスカベンジャーの影響と考えられた。

すなわち、オゾンスカベンジャーの適切な前処理およびオゾンスカベンジャーの蓄積抑制のための最適な生物活性炭・オゾン循環回分処理方法が存在することが示唆された。

第4章「生物活性炭による浸出水中有機物の除去過程の解析」では、生物活性炭処理過程での生物分解によるCO<sub>2</sub>の生産量をオンラインで測定する方法を開発した。この方法を利用して生物活性炭処理過

程中の生物分解量、吸着量を定量化し、生物活性炭の有機物除去メカニズムを解析した。

その結果、定常状態では生物活性炭により生物分解した有機物量は除去した有機物量とほぼ同じであることが確認され、生物分解した有機物は浸出水中の有機物が比較的速やかに分解した部分（易生物分解性有機物の分解）と活性炭吸着後生物再生した部分（生物再生）からなることが推定された。そこで、後者のみかけ上一定速度で生物分解が進む期間を生物再生のみにより分解が進んでいるものと仮定し、生物再生量として定量化した。その結果、生物活性炭による処理水の濃度は生物活性炭の吸着量とみかけ上平衡を保っていること、生物再生速度と活性炭吸着有機物量には比例関係があることが明らかになった。

以上の結果をふまえて、負荷を変化させたときの遷移の過程を解析した結果、有機物負荷を増加しても急激な処理水 DOC の上昇、CO<sub>2</sub>生産量の変化は認められなかった。これは生物活性炭の吸着能力がまだ十分にあり、吸着量を増加させて処理水 DOC を維持するためである。次第に生物活性炭に吸着した有機物量が増加して、生物再生量も増加する中で処理水 DOC も徐々に増加して、新たな定常状態に遷移する。

一方、有機物負荷をゼロにしても処理水 DOC の変化は緩やかで、CO<sub>2</sub>生産量は次第に低下する。そして、処理水 DOC および CO<sub>2</sub>生産量も徐々に低下する。このような処理過程の詳細な解析から、吸着と生物分解によって除去される生物活性炭処理の機構を解明することができた。

第5章「生物活性炭・オゾン循環回分処理における有機物除去過程のモデル化および最適処理操作のシミュレーション解析」では、生物活性炭による吸着、生物分解、およびオゾンによる難分解性有機物の易生物分解性を組み込んだモデルを開発した。

第4章で生物活性炭において吸着と生物分解（易生物分解性有機物の分解、生物再生）が同時に起こること明らかにした。この過程をモデルにより再現するためには吸着式と生物分解式を連立させて解く必要があるが、この解析解を求めることは困難である。また、数値解を求めるために細かな時間刻みで計算を行っていく必要があるが、計算回数を多くすることによる誤差の累積も大きくなる可能性がある。このことをふまえて生物分解が起こり、次に吸着が起こる逐次反応を仮定してモデルを構築した。

このモデルによる計算結果は生物活性炭・オゾン循環処理過程の実験結果をよく再現することができた。

そして定常状態での生物活性炭・オゾン循環回分処理のシミュレーション解析を行った。図2に示すように、生物活性炭処理、生物活性炭・オゾン1回循環回分処理と生物活性炭・オゾン3回循環回分処理のシミュレーション結果を比較し、原水 DOC200mg/L を処理して処理水 DOC20mg/L を達成するためには生物活性炭処理では 261mg/24h の負荷が上限であるものの、1回循環回分処理では 343mg/24h に増加した。この増加率は 1.3 倍であり、生物活性炭・オゾン循環回分処理の有効性が明らかとなった。また、3回循環回分処理では、負荷が 384mg/24h と増加するが、増加率は 1.5 倍にとどまった。このようなシミュレーション解析を行うことで、生物活性炭・オゾン循環回分処理の運転操作方法の合理化が可能となった。

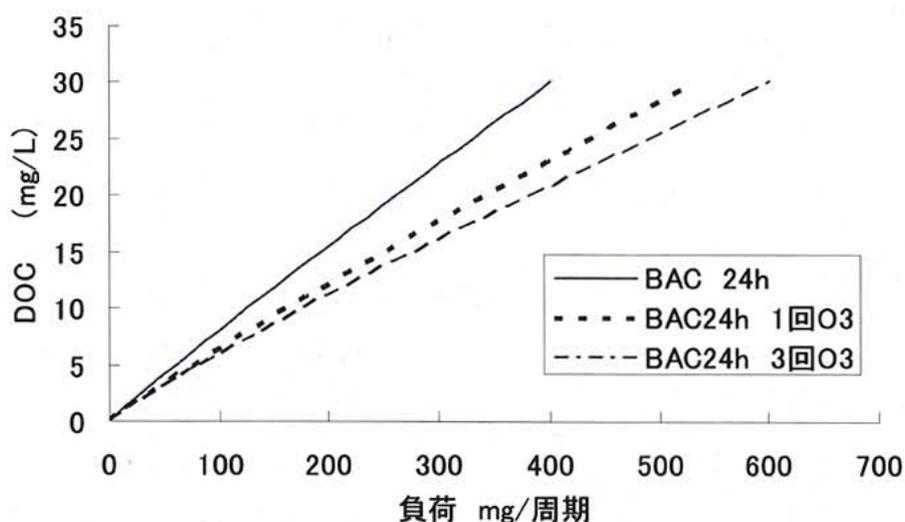


図2 定常状態での生物活性炭処理モデルと生物活性炭・オゾン循環回分処理モデルのシミュレーション結果

BAC24h : 1周期 24h の生物活性炭 (BAC) 処理

BAC24h, 1回 O<sub>3</sub> : 1周期 24h, 12h BAC, オゾン酸化, 12h BAC

BAC24h, 3回 O<sub>3</sub> : 1周期 24h, 6h BAC, オゾン酸化, 6h BAC, オゾン酸化, 6h BAC, オゾン酸化, 6h BAC

生物活性炭リアクター : 活性炭重量 : 3000 g、容量 : 4 L

1周期の流入量を変化させて負荷を制御する

その他有機物の性状等に関するパラメータ (省略)

第6章「総括および今後の課題」では、本研究で得られた成果を総括し、生物活性炭・オゾン複合リアクターを用いた浸出水処理の課題および今後の展望を述べた。

以上のとおり、本研究ではオゾン・生物活性炭循環回分処理方法による埋立地浸出水の高度処理に関する研究を行い、浸出水のオゾン処理特性、生物処理特性、それらの組合せ方法による処理特性を理解し、生物活性炭・オゾン循環回分処理の運転操作方法を合理化することが重要であることをまとめた。

# 論文審査結果の要旨

廃棄物の埋立にともなって浸出水が発生する。埋立地浸出水の成分はフミン物質等の難分解性有機物であり、主に物理化学的な処理が行われてきた。なかでも高度な処理を達成しているのはオゾンと生物活性炭の組合せである。しかし、生物処理の役割は不明であり、処理の合理化に関する検討は極めて不十分である。

本研究は、生物活性炭処理とオゾン処理を適切に組合せて難分解性有機物処理の高度化を図ることを目的として行ったもので、全編6章からなる。

第1章「緒論」では、本研究の背景と目的を述べ、論文の構成を記した。

第2章「既往の研究および研究課題の整理」では、埋立地浸出水処理に関する既往の研究をまとめ、研究課題を抽出した。

第3章「埋立地浸出水のオゾン酸化による有機物の活性炭吸着性・生物分解性変化」では、オゾン酸化による浸出水中有機物の活性炭吸着性、生物分解性の変化を解析した。その結果、無機化しない低オゾン注入量下でオゾン酸化による活性炭吸着性の変化は認められないこと、活性炭吸着処理後の浸出水にオゾン酸化を行うことで活性炭吸着性が向上すること、生物活性炭による前処理を適切に行うことで、オゾンによる易分解性化効果が大きく発現することが明らかになった。これらは新規かつ重用な知見である。

第4章「生物活性炭による浸出水中有機物の除去過程の解析」では、有機物の生物分解量を排気中のCO<sub>2</sub>量からオンラインで測定する方法を開発し、生物活性炭の有機物除去メカニズムを解析した。その結果、処理水の有機物濃度は生物活性炭の吸着量と吸着平衡とみなせること、生物再生速度と吸着有機物量には比例関係があることが明らかになった。これらは重要な知見である。

第5章「生物活性炭・オゾン循環回分処理における有機物除去過程のモデル化および最適処理操作のシミュレーション解析」では、生物活性炭による吸着、生物分解、およびオゾンによる難分解性有機物の易分解性を組み込んだモデルを開発した。構築したモデルは有機物除去過程をほぼ再現できることを確認し、生物活性炭・オゾン循環回分処理によって高度な水質を高い負荷条件下で得られることを明らかにした。これらは有用な知見である。

第6章は「総括および今後の課題」であり、本研究で得られた成果を総括し、生物活性炭・オゾン循環回分処理の課題および今後の展望を述べた。

以上要するに本論文は、オゾン・生物活性炭循環回分処理による埋立地浸出水の高度処理に関する研究で得られた新たな知見をまとめたもので環境工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。