

氏 名 吳 英 敏  
Oh Young-Min  
 学位の種類 工 学 博 士  
 学位記番号 論 工 博 第 1183 号  
 学位授与の日付 昭 和 54 年 3 月 23 日  
 学位授与の要件 学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当  
 学位論文題目 Wastewater Treatment Using Natural Adsorbent  
 (天然吸着剤による廃水処理)

(主 査)  
 論文調査委員 教 授 岩 井 重 久 教 授 平 岡 正 勝 教 授 井 上 頼 輝

### 論 文 内 容 の 要 旨

この論文は、天然ゼオライトを用いて、廃水中のアンモニア窒素および各種の重金属を吸着によって除去するに際して解明を必要とされる基礎的事項について、理論的、実験的検討を加えたものであり、6章から成っている。

第1章では、アンモニア性窒素および重金属類の環境水域に対する汚染の状態およびその人体や水棲生物に対する影響について論じている。

第2章では、ゼオライト鉱物が発見されて以来その結晶構造が明らかにされるまでのゼオライト自体に関する各種の基礎研究と、その優れたイオン交換特性に基づいた多くの物理的、化学的、あるいは生物学的窒素除去への応用に関する研究ならびに微量重金属の物理化学的除去に関する既往の研究について述べ、その問題点を明らかにしている。

第3章では、九州産ゼオライトのアンモニア性窒素除去特性について実験的検討を加えており、(1)アンモニウムイオンを吸着したゼオライトの熱再生に関して、再生温度と結晶構造の状態および酸処理による結晶構造の変化のX線回折による検討、(2)アンモニア性窒素除去に対する初濃度、共存イオン、接触時間、ゼオライトの添加量および粒径と吸着効率との関係、(3)吸着速度に関する解析、とくに粒内有効拡散係数の算定、などを回分式吸着実験に基づいて解明し、あるいは決定している。さらに、ゼオライトのアンモニウムイオン吸・脱着特性から、ゼオライトカラムの液中アンモニア性窒素濃度平均化装置としての利用を提案し、連続通液処理実験に基づいて、アルカリ金属イオンが多量に共存する際には、ゼオライトのそういった利用が可能であることを明確にしている。

第4章では、アンモニウムイオンを吸着したゼオライトの再生法として、食塩水による再生と熱再生とについて検討を加えている。再生液の温度は再生効率を支配する重要な因子であるにもかかわらず、従来これに関する検討は全く行われていない。ここでは、食塩水濃度とその温度を変化させて再生実験を行い、温度が高いほどアンモニウムイオンの溶出曲線の立ち上がりが早く、ピークも高いこと、また、温度の影

響は食塩水濃度が高いほど顕著であることを確認し、少量で高濃度の食塩水を加温して使用することが、有効な再生法であることを見出した。熱再生については、再生温度について検討し、400~700℃の間では再生温度が高いほど再生効果も高いが、800℃以上では逆に温度が高くなると再生ゼオライトのアンモニウムイオン吸着能は低下することを認め、これは第2章で検討した結晶構造の変化の状態によって矛盾なく説明された。

第5章では、韓国産ゼオライトを用い、重金属類を対象として、吸着に対する各種影響因子などに関して第3章と類似内容の実験的検討を試みるとともに、代表的な4種の重金属イオンについて選択性の序列を明らかにしており、天然ゼオライトを用いて重金属除去を行う場合の基礎的知見ならびに設計資料を得ている。

第6章は結論で、本研究の結果得られた成果の主なものをまとめている。

### 論文審査の結果の要旨

下水や産業廃水から比較的微量の汚染物質を除去することは、水質環境保全や水の高度利用を行うために不可欠である。天然ゼオライトは天然資源として安価に利用できるため、その吸着能を活用した水処理は従前から検討されているが、技術的に未解明の点も多く、普遍的活用をはかるためには究明されなければならない問題が多い。

本論文は、下水や廃水中のアンモニア性窒素および重金属類を天然ゼオライトを用いて効率的かつ経済的に除去するために、吸着特性や吸着作用に影響を及ぼす諸因子について検討するとともに、速度論的解析を加え、この種の吸着装置の設計、運転管理するうえで必要とされる基礎資料を得たほか、廃ゼオライトの効果的な再生法についても若干の検討を行っており、得られた研究成果の主なものを要約・列挙すると次のようになる。

(1) 天然ゼオライトを熱処理ならびに酸処理した場合の結晶構造の状態をX線回折によって調べ、結晶構造の変化により熱処理のできる最高温度を明らかにするとともに、酸処理によっては結晶構造の変化はなく、酸性廃水へのゼオライトの使用や酸による廃ゼオライトの再生が可能であることを示した。

(2) 天然ゼオライトのアンモニウムイオン吸着に対する主要な影響因子として、pH、共存金属イオン、ゼオライトの添加量と粒径などを取り上げ、その挙動について検討した結果、1) pHについては中性域で吸着量が最大となること、2) 共存金属イオンの吸着作用妨害の序列は、 $K^+ > Na^+ \gg Ca^{2+} \approx Ba^{2+} \approx Mg^{2+}$  となり、アルカリ土類金属はほとんど影響を示さないこと、3) ゼオライトによるアンモニウムイオンの吸着平衡に関しては、フロインドリッヒの吸着等温式が適用できるが、式中のパラメータ定数は同一産地のゼオライトでも、粒径によって非常に異なること、などを明らかにした。

(3) 天然ゼオライトのアンモニウムイオンの吸着過程に関する実験結果から、粒内有効拡散係数を算定し、回分式処理における接触時間の決定などのための基礎資料を示した。

(4) アルカリ金属イオンが共存する系でのアンモニウムイオンの吸・脱着特性に基づいて、アンモニウムイオン濃度が急激に変化する場合に、その平均化のためにゼオライト充填層を活用することを提案し、実験によってそれが可能であることを明らかにした。

(5) 廃ゼオライトの食塩水による再生に関して、再生液の温度と食塩濃度とを相互影響因子として検討し、高温であるほど再生効率は高く、しかも温度の影響は高濃度食塩水ほど顕著であるため、高温、高濃度で再生することによって、吸着-再生プロセスにおける減容比を高めうることを明確にした。

(6) 廃ゼオライトの熱再生について、最適温度、再生効率などを求め、熱再生の基礎資料を示した。

(7) 韓国産天然ゼオライトについて、pH が4種の重金属の吸着性に及ぼす影響を検討し、重金属水酸化物の溶解度積と無関係に pH 5～6において除去率が最大となることを認めた。また吸着等温式、吸着速度、選択性の序列など、吸着装置設計上の基礎資料を示した。

以上を要するに、本論文は下水や廃水中のアンモニア性窒素および重金属類を天然ゼオライトを用いて除去するに際して、その除去機構、影響因子、再生操作などに定量的検討を加えるとともに、それらに関して得られた諸知見に基づいて、天然ゼオライトの有効利用法について一、二の提案を行ったものであり、これらの成果は学術上、実際上で寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。