

ゴミ埋立処分場からの浸出水の マイクロバブルによる水質浄化

MICRO-BUBBLE AERATION OF LEACHATE FROM A GARBAGE-DUMPED LANDFILL

道奥康治¹・釘宮晃一²・山田怜奈²・伊藤義明³・八木正博³・中道民広³

Kohji MICHIOKU, Akikazu KUGIMIYA, Reina YAMADA,
Yoshiaki ITOH, Masahiro YAGI and Tamihiko NAKAMICHI

¹フェロー会員 工博 神戸大学教授 工学部 (〒657-8501 神戸市灘区六甲台町1-1)

²学生会員 学(工) 神戸大学大学院自然科学研究科前期課程 (同上)

³非会員 神戸市環境保健研究所 (〒650-0046 神戸市中央区港島中町4-6)

Leachate from garbage-dumped landfill brings serious contamination in downstream waters. A micro-bubble aeration was conducted in order to experimentally examine its purification performance. Three types of gases, (i) atmospheric air, (ii) oxygen and (iii) ozone, were used for the aeration. Performance of water purification was discussed based on water quality measurements in a water tank experiment. The experiments were carried out in summer and winter. The laboratory data showed that the most efficient oxidation occurred in the oxygen aeration tank in which nitrification was accelerated most significantly among the three gasses. Both the ozone and the atmospheric-air tanks show lower water purification performance. Manganese was tremendously reduced through oxidation of ionic manganese by the oxygen aeration as well.

Key Words : landfill, leachate, micro-bubble, aeration, water purification

1. 序論

対象とするゴミ埋立処分場では、浸出水の浄化処理施設が稼働中であるが、埋め立て完了後すでに20年を経過し施設が老朽化していることから、早期に運転を終了することが望まれている。その際、公共用水域への環境影響を最小化するために、現行施設に代わる何らかの簡易浄化システムが必要となる。

本研究では、浸出水貯留池の嫌気の状態を解消し、自然浄化を促進する一つの方法としてマイクロバブル曝気¹⁾の適用性を検討した。実験水槽に浸出水を貯留し、空気・酸素・オゾンによる曝気浄化を実施した。浸出水中に含まれる栄養塩・金属などの挙動を計測し、浸出水貯留池を浄化するための実機システム計画に必要な知見を収集した。

2. ゴミ浸出水処理に関する既往の研究

浸出水の処理には、散水ろ床法・凝集沈殿法・硝化脱窒法・活性炭吸着法などが一般に用いられる。一方、処理効率の向上や難分解性物質・有害物質の浄化を目的として回分式活性汚泥法²⁾や活性化覆土による浸出水のマンガン除去³⁾、各種膜分離方法⁴⁾などが検討されている。さらに、逆浸透法と濃縮排水

処理装置の組み合わせによる重金属・難分解性有機物の効率的除去⁵⁾、微生物を用いた水質浄化の促進⁷⁾なども検討されている。

以上はいずれも廃水処理施設が併設された管理下にある処分場を対象とするものであるが、埋立終了後を想定した浸出水の水質浄化技術を検討した事例はほとんどない。本研究では、簡易処理法の一つとして、貯水池の水質改善で実績のあるマイクロバブル発生技術¹⁾を浸出水の浄化に適用する。

3. ゴミ埋立処分場の概要

対象は標高300m～450mの山麓斜面に広がる面積65万haの一般廃棄物最終処分場である。浸出水は処分場下流の貯留池(容量約20,000m³)へ集められ、廃水処理施設(処理能力:1,700m³/day)を経て公共用水域へ放流される。処理フローは散水ろ床法・凝集沈殿法・硝化脱窒法・活性炭吸着法である。

図-1には、浸出水に含まれる全窒素濃度T-Nの経年変化を示す。T-Nの大部分はアンモニア態成分からなる。1981年の埋め立て終了以降、各水質濃度は減少してきたが、ここ数年、濃度の再上昇など不規則な変動が観測されている。BODやマンガンについても同様の水質挙動が報告されている。

表-1 実験ケース

季節	実施期間 (2005年)	作業気体 底泥条件	空気 (G1)	酸素 (G2)	オゾン (G3)	参照 (G0)
夏季	2005年7月25日~8月11日 (18日間)	底泥なし	Case-G1-0	Case-G2-0	Case-G3-0	Case-G0-0
	2005年8月23日~9月15日 (24日間)	底泥あり	Case-G1-1	Case-G2-1	Case-G3-1	Case-G0-1
冬季	2006年1月12日~3月9日 (55日間)	底泥あり	Case-G1-2	Case-G2-2	Case-G3-2	Case-G0-2
平均送気量			0.27 L/min	0.18 L/min	0.49 L/min	

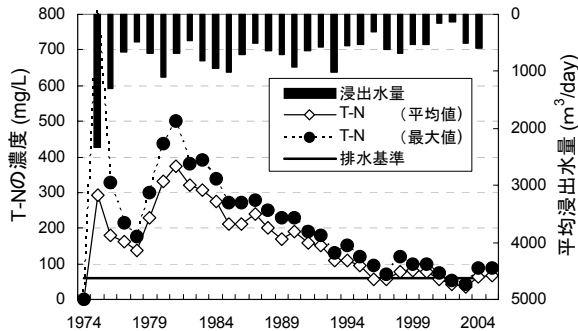


図-1 浸出水の全窒素濃度T-Nの経年変化

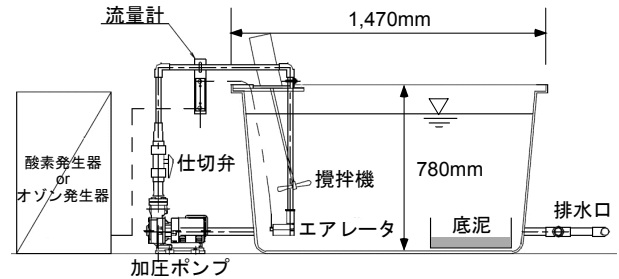
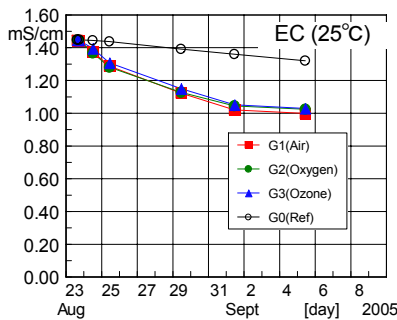
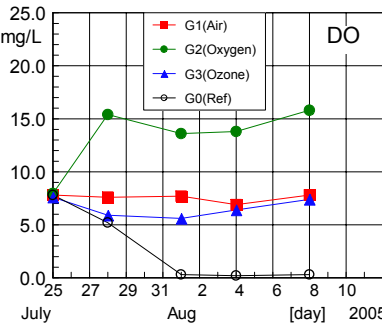
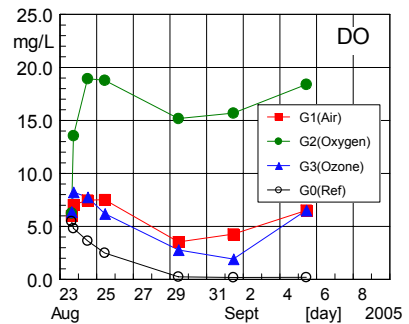


図-2 実験装置 (酸素曝気(G2)のケース)

図-3 電気伝導度ECの経時変化
(夏季-底泥あり: G*-1)

(a) 夏季-底泥なし: G*-0



(b) 夏季-底泥あり: G*-1

図-4 溶存酸素DOの経時変化

4. 水質浄化実験の方法

周年的に無酸素状態にある貯留池を好気的状态へ改善し、硝化・脱窒の促進、溶存態マンガンの不溶化と沈殿除去、有機物の削減をはかる。

表-1に実験ケースを示す。曝気気体には、空気 (G1)、酸素 (G2、酸素分圧比約90%)、オゾン (G3) の三種類を用いた。実験に用いる試料 (以降、「原水」と記す) は、貯留池から排水処理場への送水管より実験開始前に採取された。無曝気で原水を放置した参照ケース (G0) を含め、合計四基のFRP製水槽 (縦1.47m×横1.23m×高さ0.78m) に同一の原水を貯留し、曝気実験を同時実施した。例として酸素曝気のケース (G2-series) の実験システムを図-2に示す。G1~G3-seriesでは、水槽内を攪拌して水質を均質化し、G0-seriesでは攪拌しない。夏季と冬季に合計三回実施した。冬季においては曝気にともなう水質反応がかなり緩やかであったこと、夏季の水質制御がより重要であることから、本文では主に夏季の実験結果を報告する。夏季の実験では、(a) 貯留池の底泥を20cm×30cm平方のトレーに約5cm厚さ敷いて水槽底に設置したケース (G*-1-series) と(b) 敷かないケース (G*-0-series) を実施した(*は、0,1,2,...の数字に相当する「ワイルドカード」)。

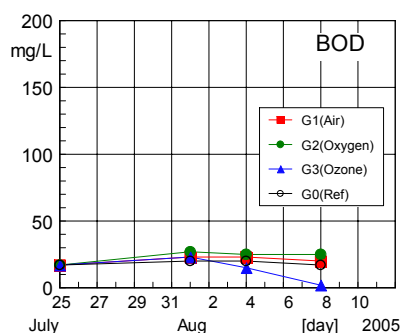
電気伝導度、溶存酸素濃度、pH、酸化還元電位はハンディ多項目水質計 (電極法) で、アンモニア態、全窒素、リン酸態リンは分光光度計を用いてそれぞれ、インドフェノール青吸光光度法、銅・カドミウムカラム還元法、モリブデン青吸光光度法によって、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素はイオンクロマトグラフで、BOD、CODはそれぞれ、ウインクラー・アジ化ナトリウム変法、過マンガン酸カリウム法による滴で、全有機炭素はTOC計で、溶存態マンガンと全マンガンは原子吸光光度計を用いたフレイム原子吸光法で、溶存態鉄と全鉄はICP発光分光分析計でそれぞれ計測した。

予備実験で確認した反応速度を考慮して、G2 (酸素曝気) では1時間運転-2時間休止、G1 (空気曝気) では1時間運転-1時間休止の間欠運転とし、オゾン曝気 (G3) では連続運転を実施した。各曝気ケースの平均送気量を表-1の最下行に示す。

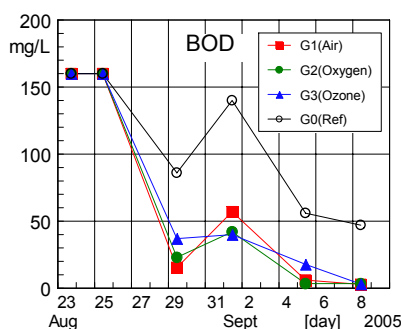
5. 実験結果

(1) 水温、pH、電気伝導度 (EC)、溶存酸素濃度 (DO)

曝気と攪拌によって水温が5~10℃上昇する。上昇率は運転時間の最も長いオゾン曝気 (G3) において最も大きく、次いで空気 (G1) ⇒酸素 (G2) ⇒参照



(a) 夏季－底泥なし：G*-0



(b) 夏季－底泥あり：G*-1

図-5 生物化学的酸素要求量BODの経時変化

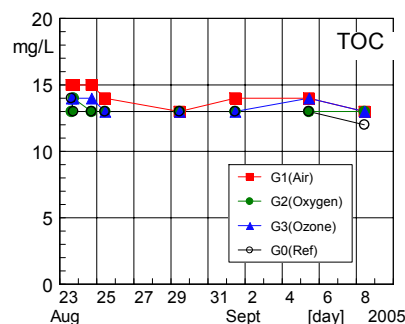
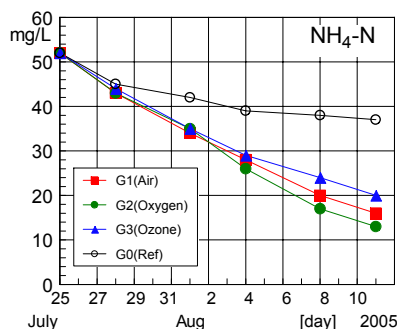
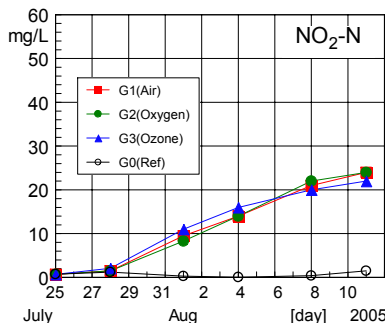


図-6 TOCの経時変化

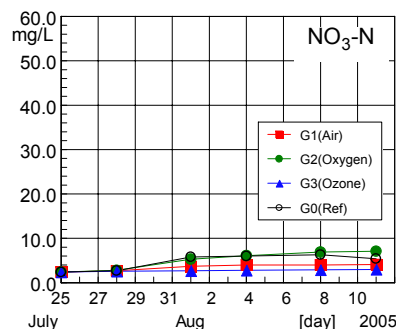
(夏季－底泥あり：G*-1)



(a) NH₄-N

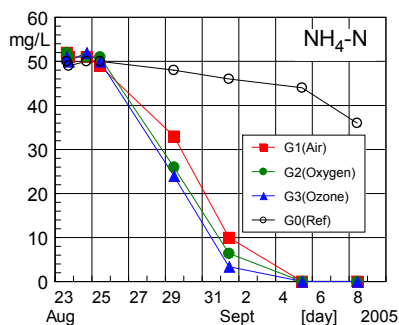


(b) NO₂-N

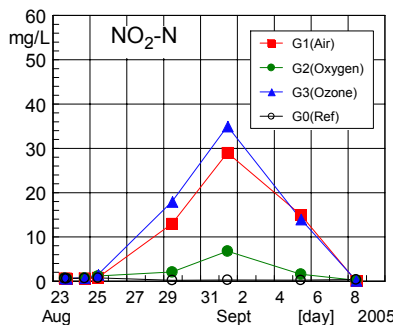


(c) NO₃-N

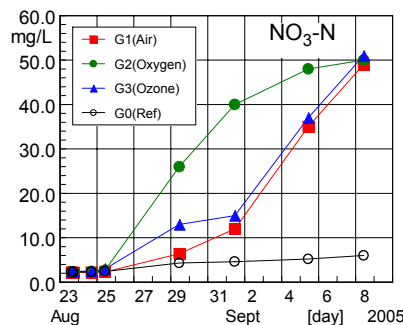
図-7 窒素系化合物の経時変化 (夏季－底泥なし：G*-0)



(a) NH₄-N



(b) NO₂-N



(c) NO₃-N

図-8 窒素系化合物の経時変化 (夏季－底泥あり：G*-1)

(G0)と運転時間の減少とともに昇温幅が低下する。pHは7.5~8.5の範囲にあり、曝気とともに微増傾向を示す。

「夏季－底泥あり：G*-1」における電気伝導度ECを図-3に示す。いずれの気体についても曝気によって参照ケース(G0-1)よりもECが顕著に減少している。「夏季－底泥あり：G*-1」や「冬季：G*-2」においても同様の結果を得ており、底泥の微生物や季節がECにおよぼす影響は小さい。このことから、ECの減少は主に溶解態マンガンなどの酸化と沈殿すなわち化学反応に起因すると考えられる。

夏季・冬季全てのケースにおいて、酸化還元電位ORPは正值を示し、酸化的环境が維持された。

DOの経時変化を図-4に示す。夏季の参照ケース(G0)では5,6日後にDOが枯渇する。酸素回復は酸素曝気(G2)において最速であり、次いで空気(G1)、オゾン(G3)の順である。いずれの気体においても2日目までは同様にDOの増加が認められるが、その

後の1~2週間では、「底泥あり」(図-4(b):G*-1)の方が「底泥なし」(図-4(a):G*-0)の場合よりもDOの減少ならびに再増加の傾向が顕著である。このような底泥のDO消費への影響は、底泥中の微生物活動が介在する窒素系栄養塩の生物化学反応に起因している(後述)。

(2) 有機物指標 (BOD, TOC)

生物化学的酸素要求量BODの推移を図-5に示す。

「夏季－底泥なし：G*-0(図-5(a))」において特徴的な増減は認められないのに対し「夏季－底泥あり：G*-1(図-5(b))」では初期に高く、次第に減少する。その減少傾向は曝気ケースの方が顕著である。別途、硝化菌の活性を抑え有機炭素のみのBODを検出しており(ATU-BOD)、それとの比較から浸出水のBODの大部分は窒素系有機物によるものであることを確認している。図-5(b)の初期段階における高いBODは底泥に含まれるアンモニア酸化菌・

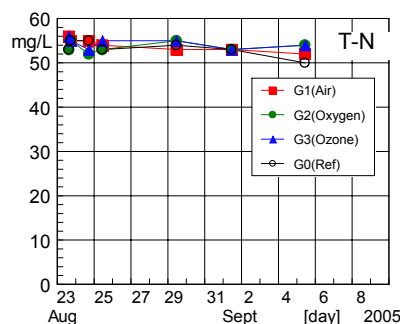
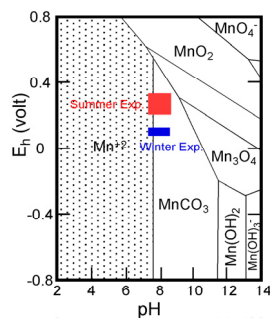
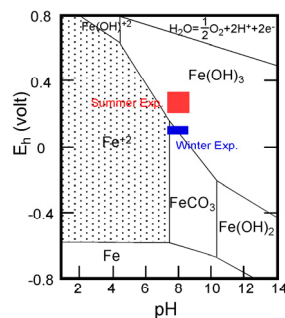


図-9 全窒素T-Nの経時変化
(夏季-底泥あり: G*-1)



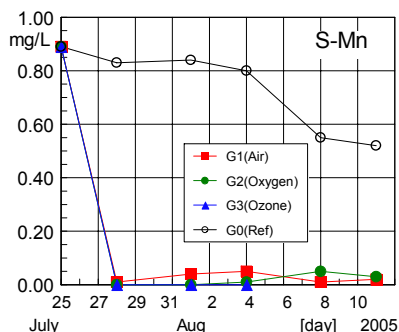
(a) マンガン



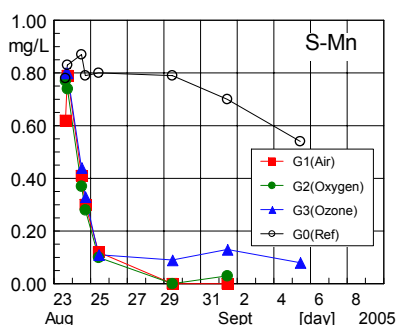
(b) 鉄

図-10 金属成分の存在形態のpH, ORPへの依存性

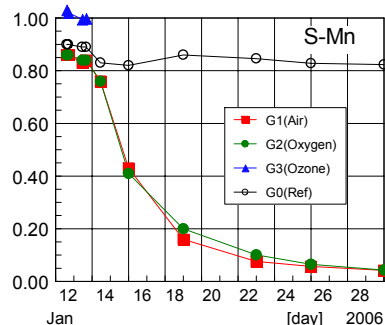
(ハッチ部は溶存態としての存在範囲, ■は夏季, ■は冬季の実験範囲)



(a) 夏季-底泥なし: G*-0



(b) 夏季-底泥あり: G*-1



(c) 冬季-底泥あり: G*-2

図-11 溶存態マンガンS-Mnの経時変化

硝化菌の酸素要求量を反映し、その後のBODの減少はアンモニア酸化・硝化の進行にともなう酸素消費物質の減少に対応していると考えられる。

「夏季-底泥あり: G*-1」における全有機炭素 (TOC) の経時変化を図-6に示す。「夏季-底泥なし: G*-0」, 「冬季-底泥あり: G*-2」のケースにおいてもほぼ同様の結果で、TOCはほとんど除去されない。

(3) 窒素系化合物 (NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N, T-N)

対象とする浸出水の酸素消費特性や曝気による水質浄化特性は、窒素系有機物の挙動に大きく依存している。本研究では、特に公共用水域の魚毒性指標であるNH₄-Nの削減に重点をおく。

図-7と図-8には窒素系栄養塩の推移を示す。両図が示すように、曝気前の浸出水の窒素成分の大半はアンモニア態窒素 (NH₄-N) である。

NH₄-Nの挙動 (図-7(a)と図-8(a)) から次の特徴が確認される。

- (i) 底泥なし (G*-0) よりも底泥あり (G*-1) の方が NH₄-Nの減少、すなわちアンモニア酸化の速度は大きい。
- (ii) 底泥なしの場合には、オゾン(G3-0)⇒空気(G1-0)⇒酸素(G2-0)の順にNH₄-Nの減少速度が大きく、酸素曝気 (G2-0) が最も高い浄化効率を示している。一方、底泥ありの場合には、オゾン(G3-1)が酸素(G2-1)と同程度あるいはやや高い浄化効率を発揮している。

次に、亜硝酸態窒素 (NO₂-N) と硝酸態窒素 (NO₃-N) の挙動に着目して図-7と図-8を比較する

と、次のような特徴が見られる。

- (i) 底泥がない場合 (G*-0) には、曝気によりNO₂-Nに至る亜硝酸化は進むが、NO₃-Nへの硝化はほとんど生じない。
- (ii) 底泥が存在する場合 (G*-1) には、前半の約10日間にアンモニア酸化と硝化がともに進行し、NH₄-Nが枯渇した後半以降では硝化のみが進行する。いずれのケースでもNO₂-Nの全てがNO₃-Nへと変化する。
- (iii) アンモニア酸化 [NH₄-N⇒NO₂-N] に対しては酸素(G2)⇒空気(G1)⇒オゾン(G3)の順に、硝化 [NO₂-N⇒NO₃-N] に対しては、空気(G1)⇒オゾン(G3)⇒酸素(G2)の順に、それぞれ反応速度が大きくなる。

底泥がない場合にはアンモニア酸化が進むが硝化はほとんど行われず、浸出水中に生息する硝化菌が非常に少ないことが推察される。これに対し、底泥はアンモニア酸化菌・硝化菌双方の供給源となっており、いずれの反応も速やかに進行する。後述のように送気量あたりで評価すれば (図-12(a), 13(a))、酸素溶解効率の高い酸素曝気 (G2-*) ほどこれらの反応速度は大きく、好気的な生物化学反応であることが確認される。したがって、窒素系化合物の反応には底泥内に生息する微生物の影響が大きい。

以上のような窒素系栄養塩の酸化特性から、図-4に示すDOの消費特性を説明することができる。すなわち、底泥がない場合には実験前半のアンモニア酸化によってDO消費がほぼ完了するため、いったん減少気味であったDO濃度が後半に回復する (図-4(a))。底泥を敷いた場合 (図-4(b)) には、前述のように前

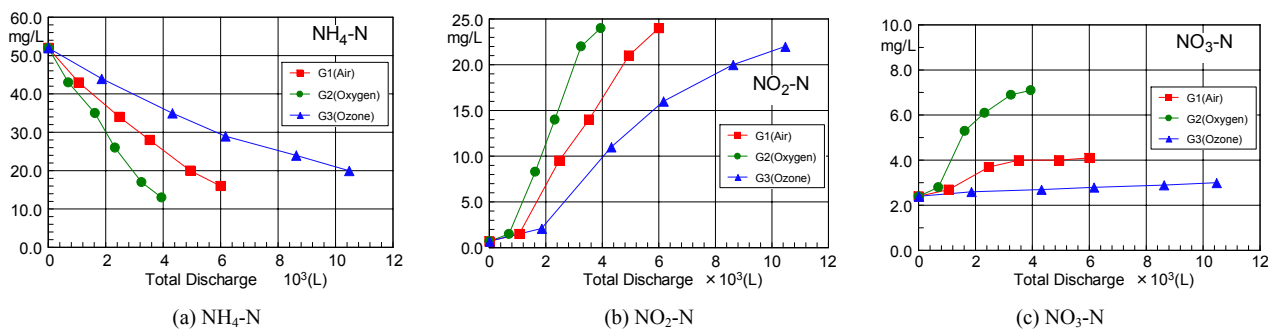


図-12 累積送気量と窒素系化合物の濃度との関係 (夏季-底泥なし: G*-0)

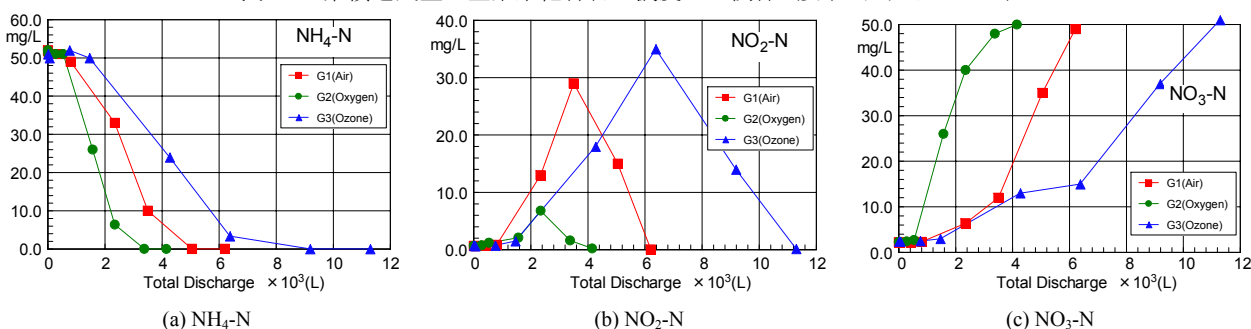


図-13 累積送気量と窒素系化合物の濃度との関係 (夏季-底泥あり: G*-1)

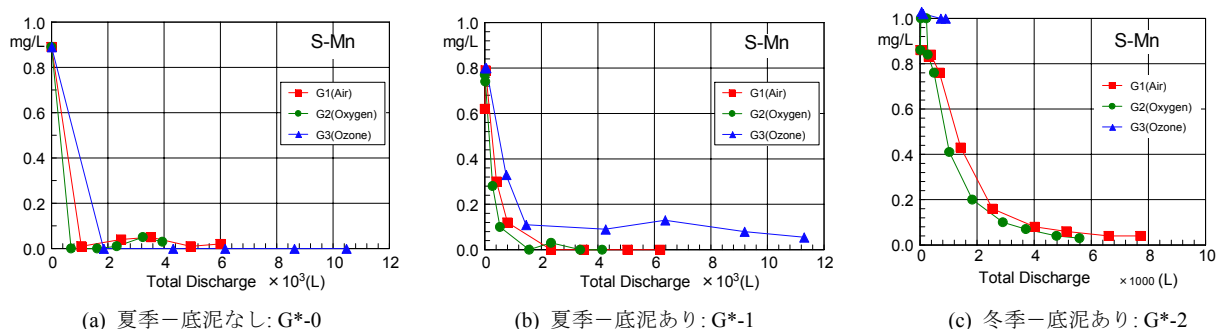


図-14 累積送気量とS-Mn濃度との関係

半においてアンモニア酸化と硝化によってDOが消費され、図-4(a)よりもDOがより大きく減少する。しかし、後半においては硝化のみによりDOが消費され、しかも最終的に硝化がほぼ完了するために、DOの再回復傾向は図-4(b)の場合より強い。

実験水槽内では好氣的条件が維持されたために、脱窒は進行せず、全窒素濃度T-Nは図-9のようにほぼ一定値を維持している。窒素除去のためには、硝化後の脱窒処理系が別途必要である。

(4) 金属成分 (S-Mn, T-Mn, S-Fe, T-Fe)

曝気前には、[全マンガン濃度T-Mn] $\approx$ [溶存態マンガンS-Mn]，[全鉄濃度T-Fe] $\approx$ [懸濁態鉄S-Fe]であった。図-10に示すように、マンガンと鉄の存在形態はpHとORPに依存する⁸⁾。図中には本実験における(pH, ORP)の変動範囲を示しているが、鉄は終始懸濁態で存在するのに対し、マンガンは初期に溶存態として存在し、曝気とともにpHが増加し懸濁態へ酸化された後に沈降する。

S-Mnの経時変化を図-11に示す。S-Mnの挙動に対する底泥の有無や曝気気体の影響は小さく、い

ずれのケースにおいても曝気によって速やかにS-Mnは除去されている。T-MnはS-Mnと定量的に同様の挙動を示しており(図は省略)、曝気によって不溶化したマンガンがただちに沈降し、懸濁態として浮遊する成分はほとんどないことが確認された。したがって、曝気は溶存態マンガンの除去に対して有効に働いている。また、夏季に比べ冬季の除去速度はやや小さい。窒素系栄養塩の場合とは異なり、曝気によるS-Mn濃度の減少は主として水温に依存する化学反応である。

図-10(b)からわかるように鉄は実験条件の範囲では懸濁態として存在するため、T-Fe, S-Feともに曝気にともなう有意な変化挙動は認められなかった。

本実験においてはORPが常に正で酸化的環境が維持されたが、貯留池ではORPが負の還元的環境にある可能性があり、実機運用に際して水槽内と異なる金属成分の挙動に留意するべきである。

6. 各気体の水質浄化性能

本実験では、気体間の酸素溶解効率の違いを考慮

して、気体に応じた間欠曝気を実施した（表-1）。本節では、水質浄化性能の気体間比較をするために、送気量の時間累積値（以下、「累積送気量」と略す）を用いて水質時系列を整理する。

窒素系栄養塩の濃度と累積送気量との関係を図-12と図-13に示す。底泥がない場合（G*-0）には、いずれのケースにおいても概ね「 $\text{NH}_4\text{-N} \Rightarrow \text{NO}_2\text{-N}$ 」までの反応にとどまり、硝化にまでは至っていない。また、酸素（G2）が最も高い反応速度を示し、次いで空気（G1）、オゾン（G3）の順である。底泥を敷いた場合（G*-1）には、前半にアンモニア酸化「 $\text{NH}_4\text{-N} \Rightarrow \text{NO}_2\text{-N}$ 」で $\text{NH}_4\text{-N}$ が枯渇し、後半は硝化「 $\text{NO}_2\text{-N} \Rightarrow \text{NO}_3\text{-N}$ 」によってほぼ全ての窒素系栄養塩が硝酸態窒素に変換される。いずれの段階においても、酸素（G2）の反応速度が最大で、オゾン（G3）の反応速度は最小である。

図-14には溶存態マンガンS-Mnと累積送気量との関係を示す。ここで、夏季の実験でオゾンの浄化能力が小さいことを確認したため、冬季の実験ではオゾン曝気を初期段階で停止している。夏季においては、底泥なし（G*-0）の場合も底泥あり（G*-1）の場合も、同程度の減少特性を示している。S-Mn濃度の低下速度は酸素（G2）で最も高く、次いで空気（G1）、オゾン（G3）の順である。冬季（G*-2）においては夏季よりも除去率が低下している。前述のように、全マンガンT-Mnも図-14とほぼ同じ挙動を示した。

図-12~14の結果は以下のように要約される。(i) 窒素系栄養塩の変化は微生物の影響を強く受け、底泥や水温に大きく依存する生物化学反応である。曝気は微生物の酸素消費を活性化している。(ii) マンガンは化学反応による溶存態の酸化・沈降とともに減少するため、底泥の有無には関係なく主として水温に依存する。マンガンに関しても酸素が最も高い除去効率を発揮する。

7. 結論

ゴミ埋立地処分場からの浸出水が公共用水域に及ぼす水質負荷を最小化するために、マイクロバブル曝気の水質浄化性能を実験的に検討した。浸出水を水槽に貯留し、空気・酸素・オゾンによる曝気と無曝気の場合とを比較しながら水質変化を計測した。季節の影響を見るために夏季と冬季に実験を実施した。底泥が水質反応におよぼす影響を検証するために、夏季の実験では水槽底に浸出水貯留池の底泥を敷いた場合と敷かない場合の実験ケースを設定した。

- 1) 窒素系栄養塩・溶存態マンガンのいずれに関しても、酸素が最も高い浄化効率を示し、次いで空気・オゾンの順であった。
- 2) 浸出水に含まれる窒素系栄養塩の大部分はアンモニア態窒素である。夏季において底泥を敷いた場合には、前半にアンモニア酸化と硝化が、後半に硝化のみが進み、いずれの気体においてもアンモニア態窒素のほぼ全量が最終的に硝酸

態窒素にまで硝化された。これに対し、底泥を敷かない場合には亜硝酸態窒素まで酸化されるが、硝化はほとんど進行しない。これより、窒素系栄養塩の硝化を促進する上で、底泥に含まれる微生物の働きが重要であることがわかる。

- 3) BODの大部分は炭素系化合物よりも窒素系栄養塩の酸化に起因しており、BODの低減には窒素酸化が重要な役割を果たしている。
- 4) 全有機炭素濃度はいずれの曝気によってもほとんど低下しなかった。
- 5) マンガンの除去に対しては底泥の有無はほとんど影響しない。冬季のマンガンの除去効率は夏季よりもやや低下する。

以上より、硝化・マンガン除去に対し酸素マイクロバブルを用いた曝気が最も高い浄化効率を発揮することが明らかになった。一方、実験は酸化的環境で実施されたため、脱窒はほとんど生じていない。また、本工法では全有機炭素がほとんど除去されない。さらに、窒素系栄養塩を除去するために、脱窒処理工程を検討することも今後の課題である。本実験結果に基づいて浸出水貯留池での水質浄化実験を実施する予定である。

謝辞：実験システムの製作にあたり(株)中電技術コンサルティング各位のご協力を頂いた。

参考文献

- 1) 道奥康治・酒谷祐輔・松尾克美・尾田敏範・原義晴：酸素マイクロバブルを用いた貯水池の水質浄化システム，水工学論文集，第50巻，pp.1357-1362，2006年
- 2) 細見正明・松重一夫・稲森悠平・須藤隆一：回分式活性汚泥法による埋立処分地浸出水中の窒素ならびに難分解性有機物の除去，廃棄物学会論文誌，Vol. 2, No.4, pp.74-82, 1991年
- 3) 高辻宏治・松藤康司・花嶋正孝：活性化覆土による浄化機構—浸出水中のマンガン(Mn)の吸着・除去—，第7回廃棄物学会研究発表会講演論文集，pp.775-777, 1996年
- 4) 牛越健一・梶山吉則・小林俊幸・土谷聡：埋立地における高塩類問題と技術的対応—研究委員会研究活動，廃棄物学会誌（特集），Vol. 8, No.7, pp.547-552, 1997年
- 5) 牛越健一・梶山吉則・小林俊幸・土谷聡：膜ろ過技術による浸出水処理，廃棄物学会誌，Vol. 8, No.7, pp.553-562, 1997年
- 6) 堀井安雄・樋口壮太郎・島岡隆行・花嶋正孝：高塩類浸出水の処理技術，廃棄物学会誌，Vol. 8, No.7, pp.529-539, 1997年
- 7) 安藤東洋治・鍵谷淳・鍵谷司：管理型処分場における微生物注入による浸出水の水質改善について，第15回廃棄物学会研究発表会講演論文集，pp.1112-1114, 2004年
- 8) Wetzel, R.G.: Limnology, 3rd Ed., "Lake and River Ecosystem", Academic Press, pp.1006, 2001.