

# UASB Treatment and Associated Microbial Characteristics of Chemical Synthesis-based Pharmaceutical Wastewater Containing Rich Organic Sulfur Compounds and Sulfate

著者	李 偉成
号	59
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工第2233号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/62823">http://hdl.handle.net/10097/62823</a>

氏 名 Li Weicheng (李伟成)  
授 与 学 位 博士 (工学)  
学 位 授 与 年 月 日 平成27年3月4日  
学 位 授 与 の 根 拠 法 規 学位規則第4条第2項

学 位 論 文 題 目 UASB treatment and associated microbial characteristics  
of chemical synthesis-based pharmaceutical wastewater containing rich organic  
sulfur compounds and sulfate (有機硫黄化合物と硫酸塩を多く含む化学合成系製薬  
廃水処理の UASB 処理および関連微生物特性に関する研究)

論 文 審 査 委 員 主 査 東北大学教授 李 玉友 東北大学教授 西村 修  
東北大学教授 原田秀樹 東北大学准教授 久保田健吾

## 論 文 内 容 要 旨

### 1. 研究の背景と目的

過去 30 年間に於いて中国製薬産業の持続的な発展に伴い、様々な化合物を含む排水が未処理のまま水環境に放流されている。これらの化合物がほとんど重大な健康および環境リスクをもたらす毒性化合物であるため、効果的かつ経済的なプロセスにより、汚染物質を排水基準まで除去することが緊急な課題となっている。本研究の主な目的はアップフロー嫌気性スラッジブランケット (Up-flow Anaerobic Sludge Blanket, UASB) 反応器を用いて、高濃度の硫酸塩及び有機硫黄化合物を含有する化学合成製薬廃水に対する嫌気性処理の可能性を検討することである。UASB 処理に関するこれまでの研究は有機成分除去、バイオガス生成およびメタン収率に対する硫酸塩の影響を調べたものが多いものの、嫌気性プロセスにおける有機硫黄化合物の分解およびそれに伴って放出される硫酸塩の影響を評価した研究はほとんどない。本研究、中国山東省にある富康製薬工場の廃水処理問題をモデルケースとして、実廃水および模擬廃水を用いて実験的研究を行い、UASB による製薬廃水の処理特性および関連の微生物挙動を明らかにしたとともに、プロセスの設計条件を確立した。

### 2. 論文の構成

全体の論文は 6 章から構成されている。

第 1 章は、公開されている統計データを引用して、世界における製薬産業の急速な拡大実態を説明した上で、世界 (特に中国) の製薬産業から直接排出される排水による深刻な水環境汚染の問題と研究課題を提起した。

第 2 章は、製薬廃水処理のために、多くの利点を持つ UASB 嫌気処理方法の適用を目指して、好気性と嫌気性処理の比較をはじめ、促進酸化プロセスなどについて、文献レ

ビューを行い、研究課題をまとめた。

第3章は、室内実験的研究として、図-1に示す実験装置を用いて有機硫黄化合物や硫酸塩を大量的に含有する高濃度の化学合成医薬廃水のUASB処理特性について連続実験を行った。実験用の廃水は、2011年7月～9月に製薬工場の製造部門から採取した混合廃水であった。有機物負荷を段階的に向上させてUASBの処理性能を把握したとともに、増殖した微生物の解析を行った。

第4章は、エタノールを共存基質として含む場合と含まない場合における、UASBによるp-アセトアミドスルホニルクロリド (p-acetamidobenzene sulfonyl chloride, P-ASC) 含有排水の処理特性を検討した。用いた廃水は製薬工場のある部門におけるP-ASC(有機硫黄化合物)の変化濃度に基づき人工的に調製したものであった。流入液が硫酸塩を含有しなかったにも関わらず、処理水中に一定量の硫酸塩および硫化物が同時に検出された。特にエタノールを含まない場合でもp-ASCが唯一の炭素源およびエネルギー源として利用され分解されることを明らかにすることができた。また190日目採取した微生物試料に関する古細菌及び細菌群集のクローンライブラリーも構築できた。

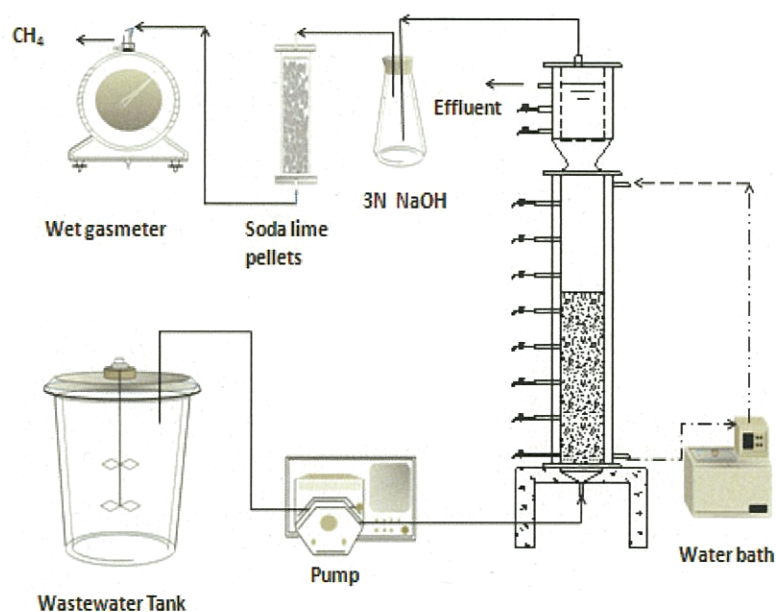


図-1 第3と第4章の実験室研究用実験装置

第5章は、フェントン酸化-UASB 連続処理による 3,4,5 - トリメトキシベンゼンアルデヒド(3, 4, 5-Trimethoxybenzaldehyde)および Di プロモアルデヒド(Di-bromo-aldehyde)製造廃水の処理について検討した。バッチ実験における pH、リンの初期濃度および吸着剤の投与量などのパラメータの単独また相互作用効果を評価するために、二次モデル応答曲面法を用いて研究を行った。最適 COD のために、提案されたモデルは凸最適化法とさらにインタフェースし、パラメータを最適化した。この凸最適化方法は広域的最適化を保証することができる。フェントン前処理が廃水の B/C 比を大幅に増強したことは、次の生物性処理が実用であることを示唆した。GC-MS および FT-IR 分析は、有機化合物の分解挙動を明らかにした。

第6章は本研究の成果をまとめたとともに、その応用展開を簡単に紹介した。第3章と第4章で得た研究成果に基づき設計した4つの 2,800 m<sup>3</sup> UASB 反応槽(図-2)を中国山東省における富康製薬工場(図-2)に建設し、これから毎日 1,100 m<sup>3</sup> の実廃水を処理すべく現在スタートアップを進めている。



図-2 本研究の成果に基づき製薬工場に建設した4つの 2,800m<sup>3</sup> UASB 反応槽

# 論文審査結果の要旨

製薬産業排水には様々な有機化合物が含まれ、重大な健康および環境リスクをもたらす毒性化合物も多いため、効果的な分解処理が緊急な課題となっている。本研究は、省エネルギーかつ効果的な処理技術を開発することを目的として、アップフロー嫌気性スラッジブランケット (Up-flow Anaerobic Sludge Blanket, UASB) 反応器を用いて、高濃度の硫酸塩及び有機硫黄化合物を含有する化学合成製薬廃水に対する嫌気性処理の性能を検討したものである。論文は全6章で構成されている。

第1章は総論であり、本研究の背景および目的を述べている。

第2章では、製薬廃水処理に関する文献レビューを行い、嫌気性処理の研究課題をまとめた。

第3章では、有機硫黄化合物や硫酸塩を含有する高濃度の化学合成製薬廃水の UASB 処理特性について中温条件で連続実験を行った。実験用の廃水は製薬工場の製造部門から採取した混合廃水であった。有機物負荷を段階的に向上させて COD 除去率、バイオガス生成量および処理水質などの UASB 処理性能を把握したとともに、反応槽で増殖した微生物の群集構造を明らかにした。

第4章では、エタノールを共存基質として含む場合と含まない場合における、UASB による p-アセトアミドスルホニルクロリド (p-acetamidobenzene sulfonyl chloride, P-ASC) 含有排水の処理特性を検討した。用いた廃水は製薬工場のある部門における P-ASC (有機硫黄化合物) の変化濃度に基づき人工的に調製したものであった。特にエタノールを含まない場合でも p-ASC が唯一の炭素源およびエネルギー源として利用され分解されることを明らかにすることができた。

第5章では、フェントン酸化-UASB 連続処理による 3,4,5-トリメトキシベンゼンアルデヒド (3,4,5-Trimethoxybenzaldehyde) および Di ブロモアルデヒド (Di-bromo-aldehyde) 製造廃水の処理について検討した。バッチ実験における pH、リンの初期濃度および吸着剤の投与量などのパラメータの単独また相互作用効果を評価するために、二次モデル応答曲面法を用いて研究を行った。フェントン前処理による生分解性向上効果と最適条件を示したとともに、GC-MS および FT-IR 分析により有機化合物の分解挙動を明らかにした。これは実用上有益な成果である。

第6章は総括であり、各章の成果をまとめている。

以上要するに、本論文は、製薬工場の廃水処理問題をモデルケースとして、実廃水および模擬廃水を用いて実験的研究を行い、UASB による製薬廃水の処理特性および関連の微生物挙動を明らかにしたとともに、プロセスの設計条件を確立したものであり、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。