

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：56203  
研究種目：基盤研究(C)（一般）  
研究期間：2019～2022  
課題番号：19K12392  
研究課題名（和文）生物・凝集処理を同時に行う染料廃水の省エネ・ゼロエミッション型廃水処理装置の開発

研究課題名（英文）Development of Zero Liquid and Waste Discharge Treatment for Dye Factory Wastewater by Biological and Coagulation Process

研究代表者  
多川 正（TAGAWA, TADASHI）  
香川高等専門学校・建設環境工学科・教授

研究者番号：30390511  
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：無曝気・低コストである嫌気性微生物による染色排水の脱色システムの開発を目的とし、嫌気性DHSリアクター内に凝集処理を同時に行う機能を組み込み、タイの染色工場において実際に使用されている6色染色原排水を用いた連続通水試験を実施したが、顕著な脱色効果は見られなかった。そこで回分式にて染料を供給した培養系を構築した結果、でんぷん+6色染料の嫌気性培養条件が着色度600程度から300程度まで低減可能なことが判明した。追加研究にて共代謝基質を添加した脱色試験を実施し、タイ紅茶の抽出液は排水基準にて定められているCOD<sub>Cr</sub>の濃度上昇を抑えながら、脱色を促進する効果が観察された。

研究成果の学術的意義や社会的意義  
染色排水処理は先進国では活性汚泥、凝集沈殿、オゾン+活性炭処理などで脱色が十分に行われるが、途上国での適応は設備が複雑かつ高額であるため、適応は難しく、現状では大幅に着色した処理水が河川や海に放流され、観光地などでは景観など問題になっている。本研究では簡便な嫌気性DHSリアクター1台に腐葉土や嫌気性消化汚泥にて培養した汚泥を用いて、紅茶の葉の廃棄物から抽出した排水を一部添加することにより、嫌気性微生物の共代謝反応により脱色が促進されることをつきとめた。社会的意義として、脱色の簡便なシステムの開発、廃棄物の有効利用など、途上国において導入のしやすい技術が開発された点であると言える。

研究成果の概要（英文）：In developing countries, water pollution problems are becoming more serious, and one of the causes is the color pollution of industrial wastewater by insufficiently treated wastewater due to the absence of color standards in the effluent standards. This study aims to develop a low-cost biological decolorization wastewater treatment system. To establish a microflora that contributes to decolorization, acclimation cultures to the dye were conducted in a batch cultivation system using microorganisms from leaf mold, cow dung, and urban sewage digestion sludge. The results showed that decolorization rates of more than 50% were obtained when co-metabolite substrates were added, especially in cultures without aeration and with organic substrates, suggesting that additional experiments are needed to improve the decolorization rate and to completely mineralize the dye.

研究分野：嫌気性排水処理

キーワード：染色排水 脱色 嫌気性DHS 共代謝

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

廃水・廃棄物の処理においては、地球環境への配慮、公害の防止および循環型社会の形成の観点から、処理・処分にかかるエネルギー、最終処分を行う廃棄物を最小にすることが必須の課題となっている。更に最近では、処理水質の更なる高度化・再利用、装置の維持管理に関するコスト(人件費、薬品代の削減)の削減、省スペース化、短期間での工事などが、実際に廃水を排出する工場管理者などから期待される要件である。

これまでの代表的な廃水処理である活性汚泥法では、比較的処理可能な廃水種も多く、高い水質が得られる一方で、曝気動力(電気代)によるエネルギー消費、大量の余剰汚泥、窒素やリンなどの除去には別途処理施設の追加が必要で、維持管理が煩雑になり、薬品の管理、コストも発生する。

### 2. 研究の目的

本研究では、嫌気性処理、好気性処理の生物処理を基本としながら、UASB 処理では汚泥が崩壊・流出するような、これまでは適応が見送られた難分解性廃水種に対しても適応可能で、COD<sub>Cr</sub>の除去、窒素除去に加え、さらに脱色を装置内に組み込み、環境負荷を著しく低減し、かつ処理水を再生水として利用できるレベルにまで処理可能でありながら、維持管理が安価で簡便なメンテナンスである水再生循環型高効率廃水処理装置を開発し、実装置に必要な課題の抽出と実現可能性を確認するものである。

処理の対象として、高濃度染料実廃水(pH:10程度, COD<sub>Cr</sub>: 2,000mg/L, 全窒素: 230mg/L, 着色度: 4,000~6,000)を供給した長期連続実験にて、これまで不可能であった無希釈で高濃度染料実廃水の無曝気、省エネ型生物処理+新構想のビルトイン凝集処理装置の実証運転を行う。

### 3. 研究の方法

本研究は、図1に示したラボスケールの高効率廃水処理装置を製作し、難分解性高濃度染料実廃水を供給した長期間の連続処理実験を行い、COD<sub>Cr</sub>や窒素などの除去および脱色特性、保持生物量の把握などの調査を行う。達成目標としては廃水処理装置全体において、COD<sub>Cr</sub>除去率90%以上、全窒素除去率70%以上、色度300ADMI以下(もしくは着色度300以下)、余剰汚泥発生量0.1以下(対除去COD<sub>Cr</sub>量)が可能であるかの長期実証実験を行う。また、処理が上手く行われない場合には、回分実験(培養、脱色実験など)などを行い、条件設定を複数のケース設定し、その理由を考察する。加えて、立ち上げ時に投入する種汚泥(既設実設備余剰汚泥等)及び馴養期間の嫌気性DHS、好気性DHSスポンジおよび凝集剤人工芝の付着汚泥について定期的にサンプリングを行い、脱色試験や硝化・脱窒活性の把握、クロロニングによる微生物変遷の追跡を行い、分解に参与する微生物の同定および分解ポテンシャルを把握する。

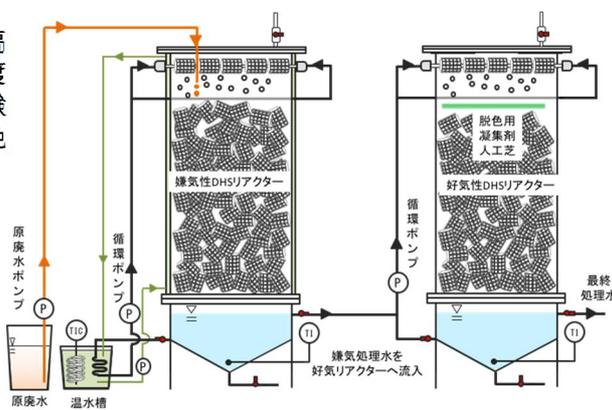


図1 難分解性染料廃水の有機物・窒素除去・脱色装置構成

### 4. 研究成果

#### (1) 嫌気性 DHS リアクターによる脱色性能評価

嫌気性 DHS リアクターは、直径 0.3m、高さ 0.8m、全容量 56.5L の円筒型で、G3.3 型スポンジを 1,000 個充填(スポンジ担体充填高 0.7m)し、水循環運転にてスポンジの疎水性を低減させた後、植種汚泥として都市下水消化汚泥を 194.6g、循環運転にてスポンジに付着させた。嫌気性 DHS リアクターによる染料排水への脱色効果を確認するため、タイの染色工場にて使用される 6 つの染料(赤, 青, 黒, 黄, 橙, 青緑)を懸濁した模擬染料排水(最終濃度: 0.2g/L)を 60 L 作製し、循環通水運転を行った。性能評価は循環通水運転開始から所定の時間経過した模擬染料排水をサンプリングし、5C 濾紙にて濾過前・後の排水の着色度(日本電色工業 NDR-2000 にて測定) COD<sub>Cr</sub>、排水温度、pH を測定し、着色度除去率、COD<sub>Cr</sub> の分析結果から実施した。

嫌気性 DHS リアクターを用いた脱色試験の結果を表 1 に示した。試験開始時の模擬染料排水の着色度は、タイの染色工場の排水処理施設で処理されている着色度に概ね設定した。1 回目の循環通水実験では、濾過した模擬染料排水の着色度は開始時 5,975 に対して時間の経過に伴って着色度は低下し、48 時間経過後には 3,830 (除去率 35.9%)、120 時間経過後には 3,049 (除去率 49.0%) の脱色性能を確認できたが、タイの排水基準値の着色度約 300 をクリアすることはできなかった。COD<sub>Cr</sub> の濃度に関しては、開始時 68 mg/L に対して時間の経過に伴って濃度は上昇し、120 時間経過後には 308 mg/L に増加した。これは、植種した嫌気性消化汚泥の一部はスポンジ担体から剥離し、原排水槽に流出したことによるものと推察された。

表 1 嫌気性 DHS リアクターによる処理試験結果

経過時間(hr)	0	24	48	72	96	120
排水温度( )	9	26	26	27	29	21
CODcr(mg/L)	68	174	244	258	308	308
着色度	7,122	4,488	4,360	4,337	4,541	4,077
着色度 濾過	5,975	3,709	3,830	3,953	3,844	3,049
着色度除去率(%)	-	37.0	38.8	39.1	36.2	42.8
着色度除去率(%) 濾過	-	37.9	35.9	33.8	35.7	49.0

( 2 ) 回分実験による脱色能力を向上させる微生物培養条件の探索

前項の嫌気性 DHS 連続処理実験では、有効な脱色性能を発揮すること確認できなかった。そこでその理由の探索のため、染料を供給した様々な条件での培養汚泥に対して、脱色を促進する共代謝基質を添加した際の脱色特性を調査し、処理性能向上に寄与する検討を行った。実験では、タイの染色工場で実際に使用されている 6 色の染料各色の溶解液 (0.2 g/L) を作成後、溶解液を 6 色混合や 3 色混合など様々に組み合わせた模擬染料排水を作成し、腐葉土から抽出した微生物に供給し、馴致培養を行った。さらに牛糞および都市下水消化汚泥を追加添加したり、培養条件を変更したりと改良を行った。馴致培養汚泥の微生物による 6 色染料を用いた脱色試験を行った結果、初発着色度約 600 に対して、嫌気性培養条件のみ 25% 程度の脱色率が確認できたが、最終測定時の着色度は 441 と高い数値であり、効果を発揮するに約 1 か月を要することから、染料を分解可能な微生物のさらなる活性向上が必要であることが判明した。

脱色において、嫌気性環境下においては、共代謝による促進効果が期待できることが知られており、本研究でも様々な基質を共代謝基質として用い、脱色試験を実施した。その結果、でんぷん、スクロース、タピオカ、タイ紅茶抽出液 (タイ紅茶抽出粕に水を加えたもの) にて脱色の促進効果が見られ、特にタイ紅茶は COD の濃度を上昇させることなく少量の添加にて脱色の促進効果が観察され、廃棄物として大量に廃棄される茶葉などを有効的に活用できる可能性が示唆された。

( 3 ) 脱色に寄与する構成微生物叢の解析

脱色が確認された無曝気かつ有機物基質供給系 (でんぷん+染料供給) の Case 2-1、脱色が確認されなかった無曝気かつ有機物基質無供給系 (染料のみ供給) の Case 2-2 において染料脱色に寄与する構成微生物叢について調査した。微生物叢解析として、各培養汚泥の微生物より DNA を抽出 (凍結融解, ピーズによる物理的粉碎) し、標的の 16S rDNA の約 1,500 塩基対のうち、全細菌に特異的な PCR プライマーセット (341F-806R) にて約 460bp の PCR 増幅 (30 cycles) と MiSeq システムにてシーケンシング解析を行った。Case 2-1、Case 2-2 において培養開始時点と培養開始からそれぞれ 24 日、69 日、434 日時点の門レベルにおける微生物 (存在割合 1% 以上) を図 2 に示した。主要な微生物種は *Euryarchaeota* 門、*Actinobacteria* 門、*Bacteroidetes* 門、*Chloroflexi* 門、*Chlorobi* 門、*Firmicutes* 門、*Proteobacteria* 門、TM7 候補門であった。長期間の馴致培養により *Bacteroidetes* 門、TM7 候補門が減少し、特に Case 2-1 において *Chloroflexi* 門の増加が目立った。Case 2-2 においては独立栄養細菌が多く存在している *Nitrospirae* 門の増加が目立った。属レベルでは、脱色能力があると報告されているいくつかの細菌株<sup>1)</sup>が属する属を調査し、*Pseudomonas* 属、*Bacillus* 属、*Hydrogenophaga* 属、*Sphingomonas* 属、*Xanthomonas* 属において存在割合を比較したが、存在割合は 1% 未満と小さく、有機物基質供給の有無により顕著な差は確認できなかった。

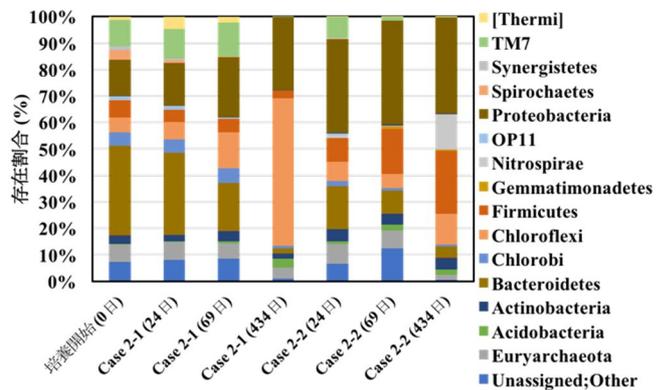


図 2 微生物叢の構成 (門レベル)

<引用文献>

1) A. Pandey et al., *Int. Biodeterior*, 59, 73-84 (2007)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 泉陽彩, 宮下捺美, 多川正
2. 発表標題 染色工場で使用される染料の生物学的脱色排水処理システムの開発
3. 学会等名 2022年度土木学会四国支部第28回技術研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮下捺美, 泉陽彩, 多川正
2. 発表標題 染料の脱色に寄与する排水処理汚泥性状と構成微生物叢の解析
3. 学会等名 2022年度土木学会四国支部第28回技術研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 泉陽彩, 宮下捺美, 多川正
2. 発表標題 タイの染色工場で使用される染料の脱色促進に寄与する共代謝基質の影響評価
3. 学会等名 第57回日本水環境学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮下捺美, 泉陽彩, 多川正
2. 発表標題 タイの染色排水中の染料分解に寄与する構成微生物叢の解析
3. 学会等名 第57回日本水環境学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮下捺美、井口愛恵、多川正
2. 発表標題 タイ王国の染色工場にて使用される染料の生物学的脱色特性の把握
3. 学会等名 令和3年度土木学会四国支第27回技術研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 多川正、岡元雄哉、宮下捺美
2. 発表標題 高濃度染料排水を対象とした嫌気性DHSリアクターによる脱色特性
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡元雄哉
2. 発表標題 染色排水の嫌気性共代謝による脱色処理効果の検討
3. 学会等名 令和2年度土木学会四国支第26回技術研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 多川正
2. 発表標題 染色工場における排水処理施設の脱色特性の把握および処理改善方案の基礎的検討
3. 学会等名 第54回日本水環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tagawa T.
2. 発表標題 Pengembangan dan Penerapan Sistem pengolahan Air Limbah Domestik maupun Air Limbah Industri Kecil degna Pemakaian sponge
3. 学会等名 Seminar International Indonesia dan Jepang “ IPAL Communal yang ditingkatkan until Indonesia maju (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------