

研究助成実施報告書

助成実施年度	2021 年度
研究課題（タイトル）	インドネシア地方都市の環境保全を目指したバティック廃水処理装置
研究者名※	惣田 訓
所属組織※	立命館大学理工学部 環境都市工学科 教授
研究種別	研究助成
研究分野	都市環境工学
助成金額	150 万円
発表論文等	

※研究者名、所属組織は申請当時の名称となります。

（ ）は、報告書提出時所属先。

大林財団 2021 年度研究助成実施報告書

所属機関名 理工学部
申請者氏名 惣田訓

研究課題	インドネシア地方都市の環境保全を目指したバティック廃水処理装置
(概要) ※最大 10 行まで バティック廃水の処理施設が未導入な地方都市の産業と環境保全を目指し、高コストであるが処理が確実と思われるオゾン処理と、低コストであるが処理が不安定と思われる人工湿地によるバティック廃水の処理技術の開発を目的とした。染料としてリアクティブブラック 5 (RB5) とリアクティブオレンジ 16 (RO16) を含む廃水の TOC 濃度は、オゾン処理単独では、それぞれ 8.9 mg/L から 5.8 mg/L、13.9 mg/L から 7.1 mg/L となり、35~49%も減少した。さらにオゾン処理後に生物分解を組み合わせることで、RB5 と RO16 を含む廃水の TOC 濃度は、3.3 mg/L と 4.0 mg/L となり、63%と 71%も減少した。人工湿地による処理実験では、滞留時間 5 日、廃水中の染料リアクティブイエロー 86 (RY86) の濃度を 10~50 mg/L において、砂利系で約 10~25%、ガマ砂利系で約 40~80%、パピルス砂利系で約 70~90%と、植栽系で高い除去率が得られた。	

1. 研究の目的	(注) 必要なページ数をご使用ください。
バティック (Batik) は、ろうけつ染め布地のインドネシア特産品であり、2009 年にユネスコの無形文化遺産に認定された。そのため、生産量とともに、染料、ろう、樹脂を含む排水量も増加している。バティックは、中小零細業者による生産が主であり、十分な廃水処理がされておらず、河川や海洋の反応性アゾ染料による水質汚濁が問題になっている。 申請者とバンドン工科大学と共同研究では、中部ジャワ州の都市ペカロンガンの三カ所の村に設置されている排水処理施設において、ろうや樹脂は、浮上分離や沈殿で除去されるが、その後の活性汚泥法や人工湿地による処理では、インドネシアの染料廃水の排出基準の生物化学的酸素要求量 BOD (<60 mg/L) や化学的酸素要求量 COD_{Cr} (<150 mg/L) を超えている時もあり、難分解性染料の除去には限界があることを明らかとした (Pramugani et al., 2020)。バティックが町村の特産であるにも関わらず、ペカロンガン以外では、廃水処理施設の設置は、進んでいない。 本研究では、バティック廃水の処理施設が未導入な地方都市の産業と環境保全を目指し、高コストであるが処理が確実と思われるオゾン処理と、低コストであるが処理が不安定と思われる人工湿地によるバティック廃水の処理技術の開発を目的とする。 Pramugani, A., Soda, S., Argo, T.A. (2020) Current situation of batik wastewater treatment in Pekalongan city, Indonesia. <i>J. Jpn. Soc. Civil Eng.</i>, 8(1), 188-193.	

2. 研究の経過	(注) 必要なページ数をご使用ください。
(1) オゾン処理による模擬バティック排水の脱色と生分解性の向上実験	

バティック廃水で問題となる主物質はアゾ染料であり、オゾンによる酸化によって脱色が生じる(アゾ基 -N=N- が酸化される)程度に部分酸化し、生分解性を向上させれば、後は活性汚泥によって安価に除去できると考えられる。バティック排水の模擬廃水として、アゾ染料のリアクティブブラック 5 ($C_{26}H_{21}N_5Na_4O_{19}S_6$ 、RB5)とリアクティブオレンジ 16 ($C_{20}OH_{17}N_3Na_2O_{11}S_3$ 、RO16)をそれぞれ 48 mg/L、ケイ酸ナトリウムを 3mg/L 含むものを用いた。図 1 に示すように 2L 容のガラス製容器に 2.0 L の模擬染料廃液を充填した。圧カスイング吸着式酸素発生装置 (PSA ITO-04-01、(株)アイビーエス)で酸素濃度を 95%にまで増加した後、オゾン発生装置 (ED-OG-S3、(株)エコデザイン)を用いてオゾンガスを発生させ、模擬染料廃液に 6.3 g/m^3 のオゾンガスを 4 L/min で 15 min 注入した。一定時間ごとに反応槽から試料を 100 mL 程度採水した。実験は約 25°C の室温で実施した。

化学物質の生分解度試験 (BOD) 法 (OECD 301F) に準拠し、呼吸活性測定器システム (OxiTop、WTW、Weilheim、Germany)を用いて生分解性試験を行った。未処理またはオゾン処理した各 420 mL の模擬染料廃水に HCl 溶液を加えて pH 7.6 に調整し、規定濃度の BOD 栄養液と活性汚泥(終濃度 30 mg/L)を添加して褐色瓶に入れ、暗条件下、 $25^\circ\text{C} \cdot 270 \text{ rpm}$ の条件で攪拌した。また、アゾ染料を含まないブランク水を用いた対照系も作成した。BOD 値は、模擬廃水と対照系の溶存酸素 (DO) 消費量の差から算出した。

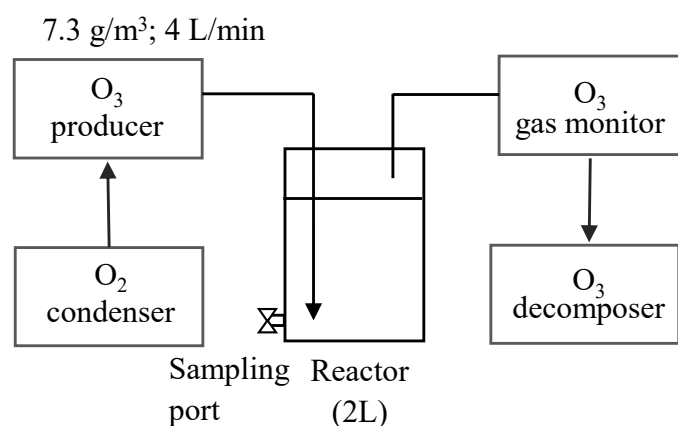


図 1 模擬廃水のオゾン処理装置.

(2) ラボスケール人工湿地によるバティック廃水の処理実験

図 2 に示すように人工湿地として、2L のプラスチック容器に 1.3kg の砂利を充填(空隙率 37.5%)し、植栽をしない砂利系、ガマを植えたガマ砂利系、パピルス植えたパピルス砂利系を各 2 系用意した。ガマとパピルスは、インドネシアの人工湿地でも実際に用いられている植物である。人工湿地は、立命館大学びわこ・くさつキャンパスの屋外の温室内に設置した。

リアクティブイエロー86 ($C_{18}H_{14}Cl_2N_8Na_2O_9S_2$ 、RY86) を含有した廃水に BOD 試験用希釈液を添加した模擬廃水を作成した。人工湿地に模擬廃水 200~300mL を注水し、5 日ごとに入れ替える連続バッチ処理をそれぞれの濃度において表 1 に示す日程とバッチ回数で行った。2022 年 9 月 7 日から滞留時間 5 日のバッチ処理を、染料濃度を 10mg/L から 50mg/L にまで段階的に上げた。その後、11 月 26 日から、人工湿地に染料濃度を 50mg/L で固定した模擬廃水 200~500mL を注水し、連続バッチ処理を行った。紫外可視分光光度計 UV-2600(島津製作所株)で 416nm の吸光度を測定し、蒸発散量も加味して除去率を計測した。



図2 ラボスケール人工湿地. 左からパピルス砂利系、ガンマ砂利系、砂利系（各2系）.

表1 人工湿地による模擬廃水の処理条件

期間	RY86 濃度 (mg/L)	滞留時間 (日)	バッチ回 数
2022/9/7～9/17	10	5	3
9/22～10/8	20		3
10/17～10/27	30		3
11/11～11/11	40		3
11/16～11/26	50		3
11/26～11/29		3	1
11/29～11/30		1	1
11/30～12/10		10	1
12/10～12/25		15	1

3. 研究の成果

(注) 必要なページ数をご使用ください。

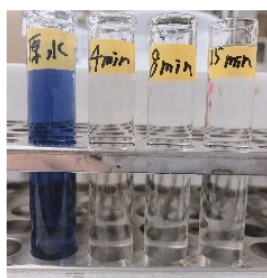
(1) オゾン処理による模擬バティック排水の脱色と生分解性の向上実験

オゾン処理による RB5 または RO16 を含む模擬廃水の外観と色度の変化を図3と図4にそれぞれ示す。色度は類黄色あるいは黄褐色の度合を示すものであり、RO16 を含む模擬廃水の色度が高かった。オゾン処理によって RB5 と RO16 を含む廃水の色度は、8 分間でそれぞれ 835 から 50、2、780 から 750 に減少し、15 分間で両者とも検出下限の 50 未満になった。オゾン処理前後で pH は大きくは変化しなかった。色度の変化で評価した RB5 と RB16 の一次脱色速度係数は、それぞれ 0.35 min^{-1} と 0.46 min^{-1} であった。

BOD 測定試験では、アゾ染料を含まない対照系に対し、模擬廃水は、わずかに DO を多く消費し、RB5 溶液と RO16 溶液の BOD₇ は、それぞれ 5.1 mg/L と 1.6 mg/L であった。オゾン処理によって模擬廃水の DO 消費量は多くなり、RB5 溶液と RO16 溶液の BOD₇ は、それぞれ 15.4 mg/L と 20.2 mg/L となった。

模擬廃水の微生物分解、オゾン処理、オゾン処理と微生物分解による TOC 濃度の変化を図5に示す。RB5 と RO16 を含む廃水の色度は、生分解単独では、それぞれ 8.9 mg/L から 8.4 mg/L、13.9 mg/L から 12.9 mg/L と約 7% しか減少しなかったが、オゾン処理単独では、それぞれ 5.8 mg/L と 7.1 mg/L となり、35～49% も減少した。さらにオゾン処理後に生物分解を組み合わせることで、RB5 と RO16 を含む廃水の色度は、3.3 mg/L と 4.0 mg/L となり、63% と 71% も減少した。RB5 と RO16 を混合した模擬廃水の場合は、TOC 濃度は、生物分解単独では有意には減少せず、オゾン処理単独で 34% 減少し、オゾン処理後に生物処理を組み合わせることで 49% 減少した。

(A) RB5



(B) RO16

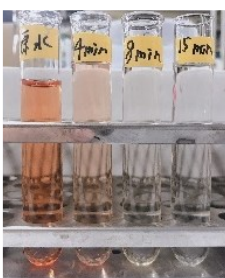


図3 オゾン処理による模擬廃水の外観の変化. RB5 (A)、48 mg/L RO16 (B).

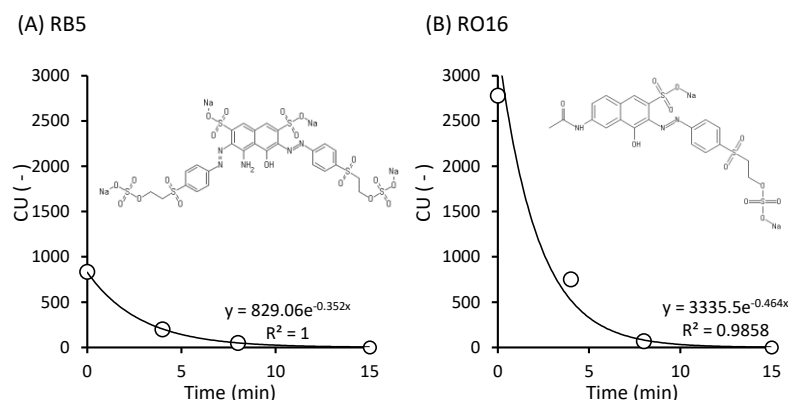


図4 オゾン処理による模擬廃水の色度(CU)の減少. 48 mg/L RB5 (A)、48 mg/L RO16 (B).

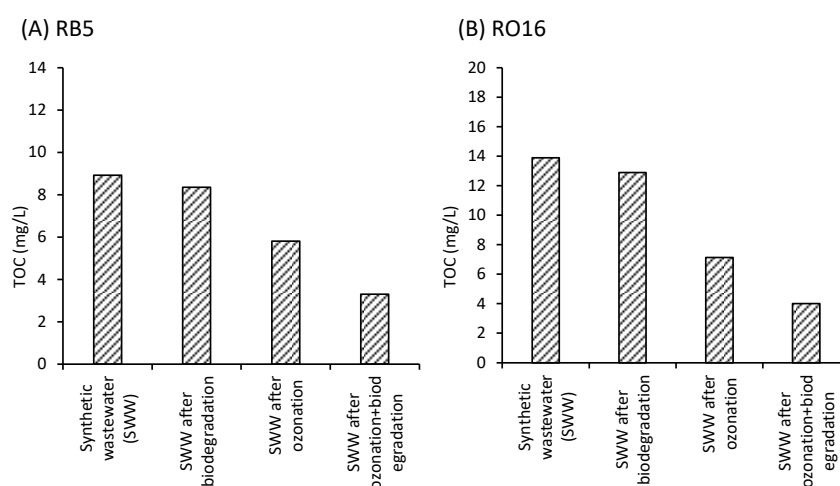


図5 模擬廃水のTOC濃度の変化. 48 mg/L RB5 (A)、48 mg/L RO16 (B).微生物分解(14日)、オゾン処理(15分)、オゾン処理+微生物分解.

(2) ラボスケール人工湿地によるパティック廃水の処理実験

模擬廃水の RY86 に対する人工湿地の除去率を図 6 に示す。ガマ砂利系では約 40～80%、パピルス砂利系では約 70～90%と植栽系では高い除去率を得られた。砂利系においては約 10～25% の除去率が継続していた。また 気温の低下につれて除去率も低下した。砂利系の除去率が実験を通して維持されていたことから、人工湿地内の微生物の働きによって砂利の吸着能力が再生した可能性も考えられる。

人工湿地による RY86 の除去に対する滞留時間の影響を図 7 に示す。滞留時間の増加と共に除去率が上昇し、滞留時間 15 日ではガマ砂利系 パピルス砂利系の両系で RY86 除去率が 70%以上となった。一方、砂利系では 10～20%程度の除去率であった。

図 8 に RY86 の濃度が 50 mg/L(2022/11/26 測定)の含有廃水と人工湿地によるその処理水の吸光度スペクトルを示す。砂利系において 416 nm のピーク値の減少は確認できなかった。ガマ砂利系では、RY86 を投入していない系と比較すると、主に根の上部が黄色く着色され、茎の下部にも RY86 が付着していた。パピルス砂利系でも、根の上部が若干着色されていた。人工湿地による RY86 の主な除去要因は、基質や植物への吸着・植物への吸収であると考えられる。

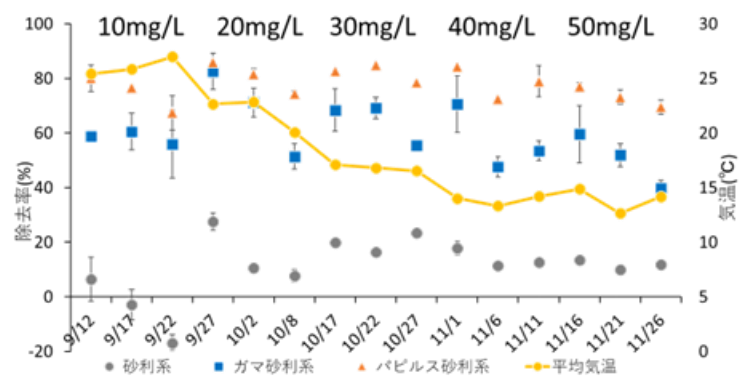


図 6 RY86 の除去率に対する初期濃度の影響（滞留時間 5 日）。

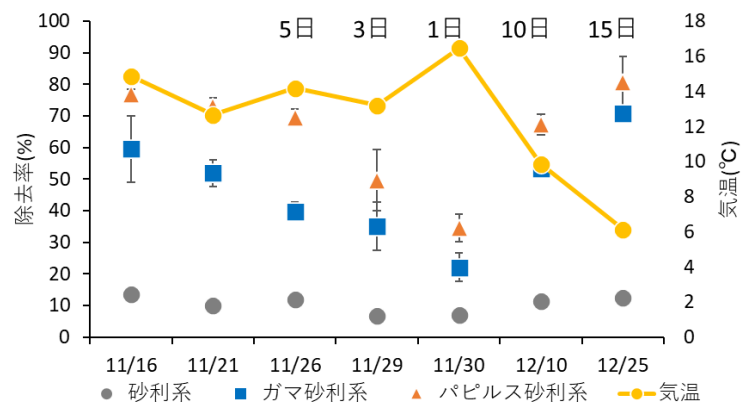


図 7 RY86 の除去率に対する滞留時間の影響（濃度 50mg/L）。

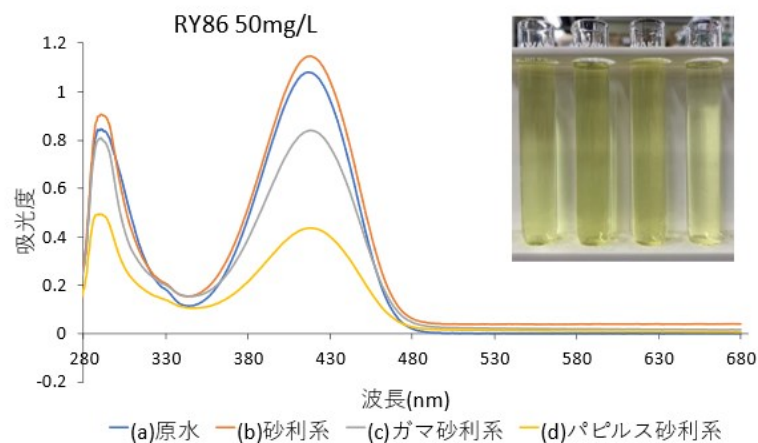


図 8 人工湿地による RY86 含有廃水の処理前後の吸光度スペクトル。

4. 今後の課題

(注) 必要なページ数をご使用ください。

バティック染色廃水へのオゾン処理の導入に関しては、初期 pH、オゾンの注入率と処理時間、廃水中の夾雑物などが、脱色やその後の生物処理に及ぼす影響を明らかにすることが今後の課題である。人工湿地処理に関しては、より高濃度の RY86 を含んだ廃水の処理実験や、砂利以外の

基質を用いた実験による処理性能の評価を行う。また、**RY86** を脱色する微生物の探索を行う。オゾン処理と人工湿地による処理は、それぞれ長所と短所があり、処理性能、処理時間、必要面積、費用などを比較し、インドネシア地方都市の環境保全を目指したバティック廃水処理装置のシステム構成例を提案する。

本研究成果の一部は、下記に発表した。

- Pramugani, A., Shimizu, T., Goto, S., Argo, T. A., Soda, S. (2022) Decolorization and biodegradability enhancement of synthetic batik wastewater containing Reactive Black 5 and Reactive Orange 16 by ozonation. *Water*, 14, 3330.
- 後藤慎平、清水聡行、惣田訓 (2023) リアクティブオレンジ 16 とリアクティブブラック5を含む模擬廃液の脱色と生分解性の向上のためのオゾン処理. *日本水処理生物学会誌*, 59(3) 印刷中.