

開発途上国における都市排水マネジメントと技術適用に関する研究

研究予算：運営費交付金

研究期間：平成 23～27 年

担当チーム：材料資源研究グループ (リサイクル)

研究担当者：津森ジュン、桜井健介、王 峰

【要旨】

下水処理に加えバイオ燃料の生産が可能な方法として開発途上国で導入が期待される High Rate Algal Ponds について培養藻類の効率的な沈殿処理技術を開発するため、下水から培養された藻類に *Moringa oleifera* の種子の水溶液(MO 溶液)を凝集剤として利用する凝集沈殿実験を行った。その結果、MO 溶液による藻類の沈降促進効果が確認された。実験条件として、pH4 と 11 の間で変化させたところ、pH5 と 6 は凝集効果が小さく、pH7 と 11 の間では、pH が低いほど効果が大きいことが示された。

キーワード：High rate algal ponds、バイオ燃料、*Moringa oleifera*、藻類、凝集、ゼータ電位

1. はじめに

新興国を中心に、急速な経済成長により工場排水や生活排水の河川、湖沼等への放流に伴い、著しい水質汚濁とそれに伴う利水障害、生態系の破壊など深刻な影響が生じている。また、昨今、人口増加による水資源の逼迫に伴う高度な水の再利用、地球温暖化対策に配慮した下水汚泥等を有効利用した省エネルギー対策が求められつつある。我が国では、こうした状況に対応しうる優れた公害対策の経験や汚水処理、汚泥有効利用技術等を保有しており、海外の多くの開発途上国から支援要請があるものの、開発途上国では気候風土、生活様式、経済状況、水資源の逼迫状況等が異なっており、我が国における下水道に関する考え方や技術がそのまま適用できない場合がある。

本研究では、開発途上国の変化する社会的要請を踏まえ、処理水の各種用途への再利用、下水汚泥等の副産物の有効利用や水・汚泥処理の省エネルギー化などの水・汚泥処理技術やそれらの適用方法の開発を目指すものである。

平成 25 年度は、High Rate Algal Ponds で発生する藻類の沈降促進を目指し、下水から培養された藻類に、熱帯・亜熱帯地域に生育する *Moringa oleifera* の種子の水溶液を凝集剤として適用し、沈殿効果を調べた。

High Rate Algal Ponds (HRAP)は、滞留日数 2-8 日、水深 0.2-1m で連続的に攪拌される人工池であり、藻類の光合成による酸素供給によって、排水中の溶解性有機物が従属栄養細菌によって好気分解するのを促進する処理方法である¹⁾。バイオ燃料への変換のために藻類を生産する

技術が世界的に研究されており、HRAP は経済的に実施可能で、かつ、最小の環境影響でできる方法と考えられている²⁾。しかし、沈殿しにくい藻類の除去及び回収効率が悪いことが、HRAP の課題の一つである。

Moringa oleifera は、アジア、中東、アフリカの熱帯、亜熱帯地域で広く生育する樹木で、*Moringa oleifera* の種子の水溶液 (以下、MO 溶液と呼ぶ) が、数ある天然凝集剤の中でも優れた凝集作用を持つ³⁾ことが知られている。MO 溶液が HRAP の藻類の凝集沈殿に効果があれば、HRAP の導入が容易になると思われる。また、現在の化学凝集剤の代わりに *Moringa oleifera* の種子が利用されることになれば、化学凝集剤の生産に伴って排出される温室効果ガスの排出抑制になると思われる。

近年、*Moringa oleifera* の凝集性に関しては、いくつか報告がある。Pritchard ら⁴⁾は、開発途上国での浄水処理のための凝集性を評価し、硫酸アルミニウムや硫酸鉄には劣るが、十分な処理能を有することが報告している。Bhuptawat ら⁵⁾は、インド国の下水の処理に適用し、硫酸アルミニウムと比較しながら、下水処理への適用性を検討している。Segupta ら⁶⁾は、ガーナ国の農業かんがい水等に適用し、濁度と寄生蠕虫卵の除去に有効であることを示している。Vieira ら⁷⁾は、乳業排水に、安価に適用可能であることを報告している。しかし、藻類への適用事例は見当たらない。

そこで、本研究の目的は、MO 溶液による HRAP の藻類の凝集沈殿処理への適用可能性の評価に向けて、簡易試験により、MO 溶液による下水培養藻類の凝集沈殿効果を明らかにすることである。試験にあたり、pH の変化

がMO溶液による凝集沈殿効果に与える影響について検討を行った後に、MO溶液の添加量が藻類の凝集沈殿効果に与える影響を検討した。比較対象としてポリ塩化アルミニウム(PAC)による藻類の凝集沈殿効果も併せて試験した。また、 Ca^{2+} と Mg^{2+} がMO溶液と共存することで凝集能力が向上することが知られており⁸⁾、それらの下水培養藻類の凝集沈殿への影響も調査した。

2. 研究方法

2.1 下水による藻類の培養

HRAPの藻類培養液を想定し、模倣的に培養液を作成した。培養液は、静置した流入下水の上澄み5Lを容量5Lの三角フラスコに入れ、回分式で曝気およびマグネチックスターラーで1,000rpmの撹拌を行い、照明付きの恒温機内で水温24°C、照射条件は光子フラックス $150 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 、12h/dで2週間培養し作成した。流入下水は、処理区の一部に合流式下水道を採用している実下水処理場から晴天日(採水前の24時間の降雨量が0mm)に採取した。実験は2回に分けて行い、実験毎に流入下水を採取して培養した。

2.2 MO溶液の作成

MO溶液は、精製を行わず、作成が比較的容易な既報の方法⁹⁾とした。すなわち、*Moringa oleifera*の種の内部2gを1.0mol/Lの塩化ナトリウム水溶液200mLに加え、30分撹拌したのち、孔径8.0 μm 、0.45 μm のニトロセルロースメンブレンフィルター(ミリポア社)の順にろ過した。MO溶液のTOCを測定し、炭素量で注入量を管理した。TOC濃度は毎回やや異なり、1,300mg/L程度であった。また、MO溶液の二クロム酸カリウムによる酸素要求量(COD_{Cr})も測定した。MO溶液の保管中の劣化が不明であったため、溶液は作成後、2日以内に使用することとした。

2.3 実験方法

pHの変化がMO溶液による凝集沈殿効果に与える影響を評価するため、異なるpHでMO溶液を反応させ、凝集沈殿後の上澄みの水質を分析した。手順は、下水による藻類の培養液400mLを500mLビーカーに入れ、水酸化ナトリウム溶液または希硫酸でpH調整をした後、急速・緩速撹拌しながらMO溶液を終濃度で20mg-C/Lを添加し、pH4と11の間で反応させた。90分間静置した後、上澄み100mLを水面付近からピペットで採取した。採取した上澄みについて、残存する藻類量の指標としてクロロフィルa、藻類に限らない懸濁物量の指標として波長660nmの吸光度(以下、A₆₆₀と表記する)、凝集のしやすさを示す指標としてゼータ電位、凝集剤添加による変化の確認のためにpHと総アルカ

リ度を測定した。MO溶液を注入しない試料も同様に静置し、上澄みの分析をした。

次に、MO溶液の添加量が藻類の凝集沈殿効果に与える影響を評価するため、凝集剤の添加量を変化させて、凝集沈殿後の上澄みの水質を分析した。手順は、500mLビーカーに入れた下水による藻類の培養液400mLを5点用意し、急速・緩速撹拌しながら終濃度で、それぞれ、0、5、10、20、40mg-C/Lを添加し、pH調整なしで反応させた。また、PACはpH調整なしまたはpH7の条件下で、終濃度で0、1.5、3、6、12mg-Al/Lを添加し、同様に試験した。採取した試料のクロロフィルa、全COD_{Cr}(TCOD_{Cr})、溶存態COD_{Cr}(DCOD_{Cr})を測定した。

また、塩化カルシウムと塩化マグネシウムを添加し、 Ca^{2+} と Mg^{2+} 濃度をほぼ倍増させて、pH調整無しで20mg-C/LのMO溶液により凝集沈殿させ、同様に試験した。

凝集のための急速・緩速撹拌は、ジャーテスター(宮本理研工業株式会社、JMD-4E)を用い、2分間150rpm(G値:86s⁻¹)の後、15分間30rpm(G値:7.7s⁻¹)で撹拌した。PACは、酸化アルミニウム濃度10.0~10.6重量%のものを用いた。

2.4 水質分析

実験中の水質の分析の方法は、以下のとおり行った。クロロフィルaの分析は、分光光度計(島津製作所株式会社、Spectrophotometer UV-160)を用い、河川水質試験方法(案)の三波長吸光度法に従った。A₆₆₀は分光光度計にて光路長10mmで波長660nmの吸光度を測定した。pHおよび水温の測定にはポータブルpH計(東亜DKK株式会社、HM-30Pと31P)を使用した。ゼータ電位の測定はDelsa Nano HC(ベックマン・コールター社)と低濃度用フローセルを使用した。MO溶液のTOC分析にはTOC-5000(島津製作所株式会社)を使用した。TCOD_{Cr}、DCOD_{Cr}および Ca^{2+} や Mg^{2+} 濃度の測定は吸光度計DR3900および試薬(ともにハック社)を用いた。DCOD_{Cr}および Ca^{2+} と Mg^{2+} 濃度の測定は、ガラス繊維ろ紙(ワットマン社、GF/B)のろ過試料を用いた。総アルカリ度の分析は、下水試験方法に従った。

3. 研究結果

3.1 pHがMO溶液の凝集沈殿効果に与える影響

実験原水として用いた藻類を培養した下水(MO溶液注入前)のpHは9.53、クロロフィルa濃度は3,125 $\mu\text{g/L}$ で、その試料の静置後の上澄みは1,281 $\mu\text{g/L}$ であった。異なるpH条件下でMO溶液により凝集沈殿した試料の上澄みのクロロフィルa濃度を図1に示す。図1のとおり、高いクロロフィルa濃度を示したpH5と6の条件で反応した試料の上

澄みを除いて、MO溶液により凝集沈殿した試料の上澄みは67 µg/Lから113 µg/L であり、MO溶液が沈殿を促進する効果が確認された。しかしながら、pH5と6は、それぞれ369 µg/L、259 µg/Lと高く、凝集沈殿効果が劣るpHが存在した。pH7と11の間では、pHが高いほどクロロフィルa濃度が高くなる傾向が見られた。HRAPの放流水はpH7より高くなることが多いが、夜間に重点的に凝集させる、凝集前に日陰を設けるなどの運転方法の工夫や薬品によるpH調整などにより、pH7に近付けた方が効率よく沈殿すると考えられた。なお、A₆₆₀も同様に、pH5と6が高くなり、pH7と11の間では、pHが高いほどA₆₆₀も高くなる傾向が見られ（図2参照）、藻類だけでなく濁質全体も同様の対策が有用と考えられた。

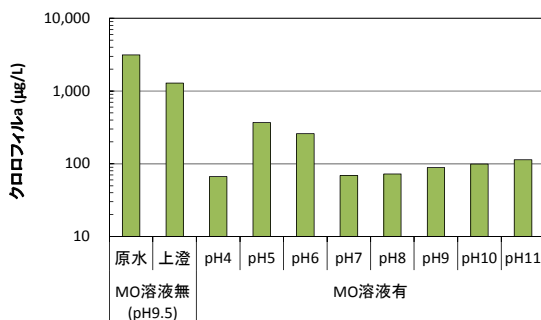


図1 異なるpH条件下で20mg-C/LのMO溶液により凝集沈殿させた試料の上澄み液のクロロフィルa濃度

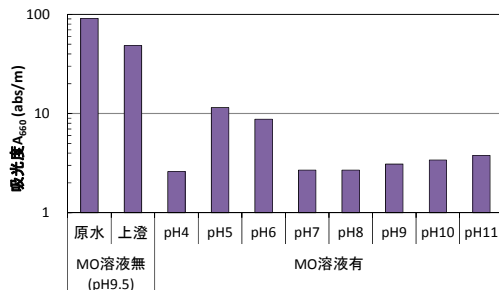


図2 異なるpH条件下で20mg-C/LのMO溶液により凝集沈殿した試料の上澄み液の吸光度A₆₆₀

図3に異なるpH条件下で20mg-C/LのMO溶液により凝集沈殿した試料の上澄みのゼータ電位を示す。pH7では、最も増加し、藻類の凝集に適していると言われるゼータ電位 (-12mV) ⁹⁾に達した。

なお、MO溶液の添加によるpHの低下は最大で約0.1であり、大きく変化しなかった。また、原水の総アルカリ度は96CaCO₃-mg/Lであり、MO溶液による凝集後もほとんど変化が無かった。

3.2 MO溶液の添加量が藻類の凝集沈殿効果に与える影響

本試験で用いた藻類の培養環境下では、pHは24時間内

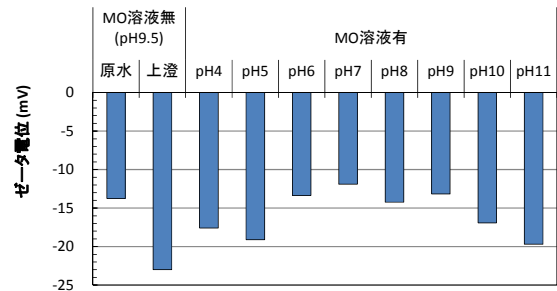


図3 異なるpH条件下で20mg-C/LのMO溶液により凝集沈殿した試料の上澄み液のゼータ電位

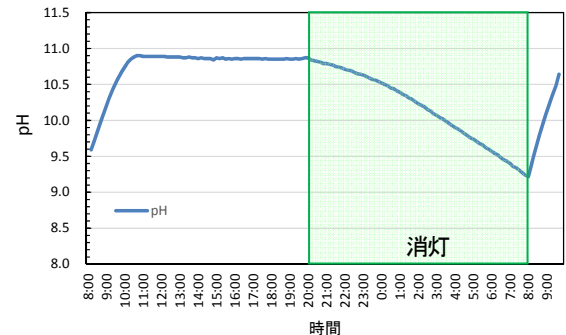


図4 照明付き恒温機による藻類の培養環境下でのpHの連続計測 (20時から8時までには消灯)

に9と11の間で変動し、消灯後12時間経過時にpHが9程度で最低になった(図4参照)。そのため、pHが最も7に近づく消灯後12時間経過時に実験原水を採取し、試験した。実験原水として用いた藻類を培養した下水のpHは9.48、クロロフィルa濃度は2,119µg/Lであった。その試料の静置後の上澄みは1,085µg/Lであった。

MO溶液(pH調整無し)またはPAC(調整無しとpH7)により凝集沈殿した試料の上澄みのクロロフィルa濃度を図5に示す。MO溶液の添加量が多い時に、クロロフィルa濃度は低下し、凝集沈殿効果の向上が見られた。5mg-C/L添加時に、凝集剤添加無しで沈殿させた時よりもさらに60%を除去し、20mg-C/L添加時には94%をさらに除去した。PACも同様に、添加量が多い時にクロロフィルa濃度は低下し、pH7に調整したところ、少ない添加量で効率よく低下した。MO溶液8mg-C/L(pH調整無し)、PAC5mg-AI/L(pH調整無し)、PAC3mg-AI/L(pH7)の添加時、クロロフィルa濃度が約400µg/Lに達し、同程度のクロロフィルaの除去効果を示した。

また、MO溶液(pH調整無し)により凝集沈殿した試料の上澄みのTCOD_GとDCOD_Gを図6に示す。MO溶液の添加量を増やすにつれてDCOD_Gが増加していた。これは、MO溶液自身が持つ有機物が残留するためと思われる。MO溶液40mg-C/L(DCOD_Gで135mg/L)相当を添加した際、上澄みのDCOD_Gは、MO溶液を添加しなかった場合と比較して、

41mg/L多く、有機物添加量の30%が上澄み中に残留しているものと計算された。そのため、流出する有機物の最小化の観点からは、MO溶液の過剰な添加に配慮する必要があると思われる。

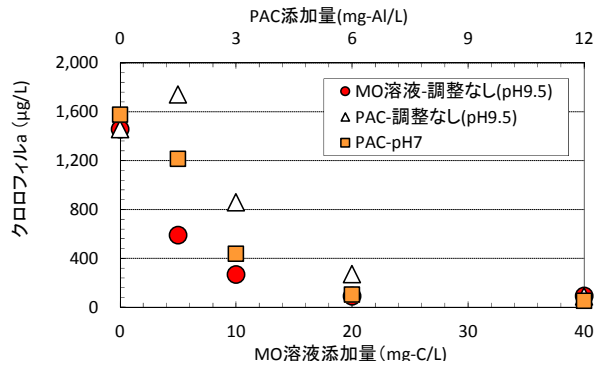


図5 MO溶液(pH調整無し)またはPAC(調整無しとpH7)により凝集沈殿した試料の上澄みのクロロフィルa濃度

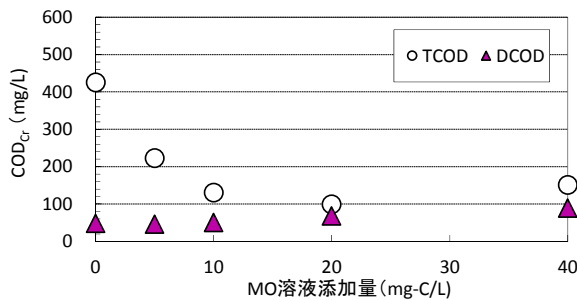


図6 MO溶液(pH調整無し)により凝集沈殿した試料の上澄みのTCOD_{cr}とDCOD_{cr}

3.3 Ca²⁺とMg²⁺濃度の変化がMO溶液による凝集沈殿効果に与える影響

pH調整無しで20mg-C/LのMO溶液で反応させた試料の上澄み中のクロロフィルa濃度は96.8µg/Lであった(図1参照)。それと比較して、Ca²⁺とMg²⁺濃度をほぼ倍増させて、同様に試験したところ、クロロフィルa濃度は65.3 µg/Lとなり、さらに低下した。本試験で用いた藻類を培養した下水は、Ca²⁺濃度18mg/L、Mg²⁺濃度2.7mg/Lであった。この結果より、凝集の対象が藻類でも、Ca²⁺とMg²⁺がMO溶液と共存することで凝集能力が向上すること確認された。開発途上国で導入する際、地域によっては、本試験で用いた原水よりCa²⁺とMg²⁺濃度が高いことが考えられ、その様な場合は、本試験で用いた原水よりも効率的に藻類が除去できる可能性があると考えられる。

4. まとめ

本研究では、HRAP で発生する藻類の沈殿効率を向上させるため、下水から培養された藻類に *Moringa oleifera* の種子の水溶液 (MO 溶液) を凝集剤として沈殿実験を行

った。その結果、以下のことが明らかになった。

- 1) MO溶液が下水で培養された藻類の沈殿を促進する効果が確認された。
- 2) pH4と11の間で20mg-C/LのMO溶液により藻類を凝集沈殿させたところ、pH5と6は効果が小さく、pH7と11の間では、pHが低いほど効果が大きくなった。
- 3) MO溶液 8mg-C/L(pH調整無し)、PAC 5mg-Al/L(pH調整無し)、PAC 3mg-Al/L(pH7) は同程度のクロロフィルaの凝集沈殿効果を示した。
- 4) pH調整無しの場合で、添加したMO溶液のDCOD_{cr}の30%が上澄み中に残留した。
- 5) Ca²⁺とMg²⁺濃度をほぼ倍増させて、MO溶液で藻類を凝集沈殿させたところ、凝集沈殿効果が向上した。

参考文献

- 1) Shilton, A., 2006. *Pond treatment technology*, IWA publishing.
- 2) Park, J. B. K., Craggs, R. J., Shilton, A. N., 2011. Wastewater treatment high rate algal ponds for biofuel production. *Bioresource Technology*, 102(1), 35-42.
- 3) Yongabi, K.A., 2010. Biocoagulants for water and waste water purification: a review, *International review of chemical engineering*, 2(3), 444-458.
- 4) Pritchard, M., Craven, T., Mkandawire, T., Edmondson, A. S., O'Neill, J. G., 2010. A comparison between *Moringa oleifera* and chemical coagulants in the purification of drinking water – An alternative sustainable solution for developing countries. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 35(13-14), 798-805.
- 5) Bhuptawat, Hitendra, Folkard, G. K., Chaudhari, Sanjeev, 2007. Innovative physico-chemical treatment of wastewater incorporating *Moringa oleifera* seed coagulant. *Journal of Hazardous Materials*, 142(1-2), 477-482.
- 6) Sengupta, M. E., Keraita, B., Olsen, A., Boateng, O. K., Thamsborg, S. M., Palsdotir, G. R., Dalsgaard, A., 2012. Use of *Moringa oleifera* seed extracts to reduce helminth egg numbers and turbidity in irrigation water. *Water research*, 46(11), 3646-3656.
- 7) Vieira, Angelica Marquetotti Salcedo, Vieira, Marcelo F., Silva, Gabriel F., Araújo, Álvaro A., Fagundes-Klen, Márcia R., Veit, Márcia T., Bergamasco, Rosângela, 2009. Use of *Moringa oleifera* Seed as a Natural Adsorbent for Wastewater Treatment. *Water, Air, and Soil Pollution*, 206(1-4), 273-281.
- 8) 鈴木祐麻, 新苗正和, 真田靖瑛, 2012. 天然凝集剤 *Moringa oleifera* によるカオリナイト粒子の凝集沈殿に水質が与える影響, *環境資源工学*, 59, 73-80.
- 9) Parsons, S. A., and Jefferson, B., 2006. *Introduction to portable water treatment processes*, Blackwell publishing Ltd.

A STUDY ON URBAN WASTEWATER MANAGEMENT AND THE APPLICATION OF TECHNOLOGY IN DEVELOPING COUNTRIES

Budgeted : Grants for operating expenses

Research Period : FY2011-2015

Research Team : Recycling Research Team, Materials and Resources Research Group

Author : TSUMORI Jun, SAKURAI Kensuke,
WANG Feng

Abstract : In order to improve the removal performance of cultural algae in high rate algal ponds, a solution of *Moringa oleifera* seeds which is a natural coagulant was investigated by jar test. The solution was mixed with pH-controlled sewage including cultured algae. As a result of the test, the coagulant increased the settleability of algae. In the case that pH of sample was between 7 and 11, the best performance was obtained at pH 7, and decreased with increase of pH. In addition, coagulation at pH 5 and 6 showed much lower performance than that at pH 11.

Key words : High rate algal ponds, Biofuel, *Moringa oleifera*, Algae, Coagulation, Zeta potential