

B-5 砂充填型セラミックポットフィルター によるヒ素および微生物の除去特性

○岡佐 充^{1*}・小熊 久美子¹・村上 道夫²・酒井 宏治¹・滝沢 智¹

¹東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 (〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1)

² 東京大学生産技術研究所(〒153-8505 東京都目黒区駒場4-6-1 Be505)

* E-mail: okasa@env.t.u-tokyo.ac.jp

1. 研究の背景と目的

水道を安定的に利用できない地域では、Household Water Treatment (HWT)として、水を使うその場で水処理をする様々なPoint-of-Use (POU)水処理装置を利用している¹⁾が、処理水質の低さや、処理手順の煩雑性など、多くの問題を抱えている。POU水処理装置の一つとして、セラミックポットフィルター(CPF)が利用されている²⁾。CPFは水中の濁質や細菌の除去を主な目的としているが、微小なウイルスの除去は期待できない³⁾。現在実際に使用されているCPFに改良を加え、ヒ素除去を可能にする研究は限られる⁴⁾。砂ろ過のみによるヒ素除去方法は研究されている⁵⁾が、砂ろ過とCPFを組み合わせた研究はなされていない。

そこで本研究では、ヒ素、鉄、および微生物を含む地下水を原水とし、原水中の鉄を酸化しフロック化してヒ素や微生物を取り込ませ、そのフロックを砂充填型CPFで除去するシステムを構築し、ヒ素と微生物の除去特性、および砂を充填する効果を検討した。

2. 実験方法

(1) 処理方法

図1のCPFを用い、実験条件を変更する際には、物理洗浄と乾熱滅菌を行なった。本研究では、原水をCPFへ通水させる処理を「CPF処理」、原水中の鉄を酸化させフロック化する処理を「鉄酸化処理」、原水中の鉄を酸化させた後CPFへ通水させる処理を「鉄酸化CPF処理」、原水中の鉄を酸化させた後砂充填型CPFへ通水させる処理を「鉄酸化砂充填型CPF処理」と呼ぶ。なお、実際には地下水を汲み上げ空

気との接触による酸化を想定しているが、本研究では鉄の酸化を速めるため試料に水酸化ナトリウムを添加してpH6.5-8に調整し、曝気を行った。

(2) Fe/As比とヒ素除去特性

ヒ素標準液(1000mg/L, As(III))の形態でHCl酸性溶液中に溶存)を用いてヒ素100 μ g-As/Lの溶液を調整し、硫酸アンモニウム鉄六水和物を添加して Fe/Asの質量比が0, 25, 40, 50, 75, 100, 200になる水溶液を用意した。この水溶液を鉄酸化処理に供した後、GFB(WHATMAN社製、粒子保持能1.0 μ m)により吸着ろ過を行い、ろ液のpHとORPの測定を行った。ろ液に濃硝酸と内標準液のイットリウムを添加した後、ICP-MS(Agilent 7700)により、Heガスモードで全ヒ素を、H₂ガスモードで全鉄の濃度を測定し、Fe/As比によるヒ素の取り込みを調査した。

鉄酸化砂充填型CPF処理のヒ素除去特性の実験では、乾熱滅菌したCPFに乾いた硅砂を充填した。As100 μ g/L, Fe(II)5mg/Lに調整した混合溶液を実験に供した。硅砂厚さは0cm, 5cm, 7.5cmに設定し、それぞれの砂厚さにおいてろ過水量測定と20分間隔でのサンプリングを行った。さらに鉄フロックにより目詰りをおこしたCPFをクエン酸1%(w/v)で洗浄し、ろ過水量の変化を測定した。

(3) 微生物除去特性

大腸菌または大腸菌ファージ QB を滅菌済み超純水に添加し、それぞれ 10³-10⁴CFU/mL, 10³-10⁴PFU/mL に調整して CPF 処理に供した。大腸菌はクロモカルト寒天培地 (Merck) を用いた単層培養法、大腸菌ファージ QB は E. coli K12 A/λ を宿主

とした重層培養法で測定し、CPF 処理による除去率を算出した。

また、Fe(II)5mg/L 溶液に大腸菌ファージ QB を添加し、二等分して、一方には鉄酸化処理を、他方にはコントロールとして操作を加えなかった。これらの大腸菌ファージ QB を計数することにより、鉄酸化処理による除去率を算出した。

(4) CPFのろ過モデル

CPFのろ過モデルの構築のため、図1に示すように CPF へ円筒形座標軸を設定した。ろ過流速 $J(\text{mL}/\text{cm}^2/\text{s})$ は、ろ材抵抗とケーキ抵抗の和である抵抗 $R(\text{m}^{-1})$ と水の粘性係数 $\mu(\text{Pa}\cdot\text{s})$ に反比例し、ろ過圧力（ろ材両面の差圧 ΔP ）に比例する（式(1)）。

$$J = \Delta P / \mu R \quad (1)$$

単位時間あたりの流量 $Q(\text{mL}/\text{s})$ は、水と CPF が接している面積 $A(\text{cm}^2)$ を用いて以下の式で与えられる。

$$Q = J \times A = F / \mu R \quad (2)$$

壁面にかかる力 F は、側面にかかる力と底面にかかる力の和であり、以下の式で与えられる。

$$F = \int_0^h \rho g (h - z) \cdot 2\pi r dz + \rho g h \cdot \pi r_0^2 \quad (3)$$

(2), (3)より得るろ過モデルの値とろ過水量の実測値を最小二乗法によりフィッティングし、ろ過抵抗 $R(\text{m}^{-1})$ を求めた。

3. 結果と考察

(1) Fe/As比とヒ素の除去特性

図2に鉄酸化処理における Fe/As 比とヒ素除去率の関係を示す。Fe/As 比が 0 から 50 の範囲であればヒ素の除去率は上昇し、50 以上ではヒ素の除去率は 83% 以上で安定した。この結果は、Breg *et al.* (2006)⁵⁾、Shafiquzzaman *et al.* (2011)⁴⁾ の実験結果と一致した。

図3に鉄酸化 CPF 処理および鉄酸化砂充填型 CPF 処理によるヒ素除去率のろ過水量による変化を示す。砂を充填した場合、砂の空隙の体積分のろ過水量が得られた時点を流出量 0 mL とした。砂 5 cm の場合、ヒ素除去率は全て 84% 以上であり砂 0 cm に比べてより高い除去率が得られた。また、砂 0 cm ではろ過水

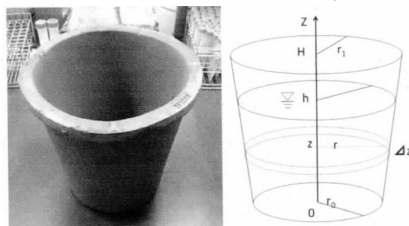


図1 CPF 外観とろ過モデル座標軸

量の増加に伴いヒ素除去率が向上したが、これは溶液が CPF 内で静置されフロック同士が凝集した効果によると考えられる。

(2) ろ過水量とろ過抵抗の関係

図4に、全実験期間を通じた累積通水量に対するろ過抵抗 $R(\text{m}^{-1})$ を示す。A, E, F では水道水を、B, C, D では FeAs 溶液を鉄酸化処理後に通水した。R はろ過モデル式 (1) により、各採水区間のデータから 20 分間隔で算出した値である。

図中 A の CPF 処理はろ過抵抗に大きな変化は見られなかったが、砂厚 7.5 cm の鉄酸化砂充填型 CPF 処理 (B) では図4の×で示される様に通水開始 60 分後（累積ろ過水量 2135 mL 相当）にろ過抵抗が著しく上昇した。これは通水を続ける事により水面が砂面を下回り、砂による表面張力が働いたためだと考えられる。続く砂厚 5 cm の鉄酸化砂充填型 CPF 処理 (C) ではろ過抵抗値が大きく上昇することはなかった。図中 D の鉄酸化 CPF 処理では砂による鉄フロック除去のプロセスが無いいため、鉄フロックが CPF に閉塞し、ろ過抵抗が大きく上昇し流量も大きく減少した。E の CPF 処理では、同じ条件で通水した A に比べろ過抵抗が上昇しており、流水と手による表面の物理的な洗浄では不十分であり、CPF 内部の閉塞が示唆された。E とクエン酸洗浄を施した後の F を比較すると、ろ過抵抗は約 35% 減少しており、クエン酸による洗浄の有効性が示された。

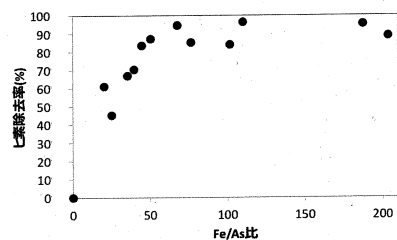


図2 鉄酸化処理による Fe/As 比とヒ素除去率の関係

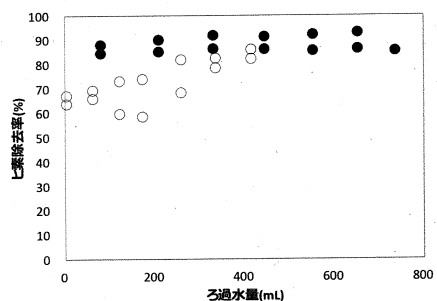


図3 鉄酸化 CPF 処理および鉄酸化砂充填型 CPF 処理におけるヒ素除去率とろ過水量との関係
(○:砂 0cm, ●:砂 5cm)

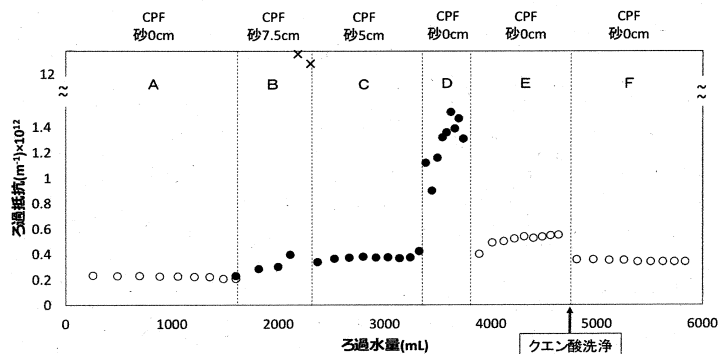


図4 ろ過抵抗のろ過水量変化(○は水道水を, ●は酸化処理済み FeAs 溶液を透過した結果を表す)

(3) 微生物の除去特性

CPF処理の除去特性を図5に示す。CPF処理による大腸菌の除去率は15分後(通水220mL後)に1.5logで最も高く、その後減少傾向を示したが通水60分まで1log以上の除去率を保っていた。一方、大腸菌ファージQβは、CPF処理により通水15分後でおよそ1log除去されたがその後除去率は急激に低下した。CPFによる大腸菌ファージQβの除去機構を推定するため、CPF粉末のゼータ電位を測定した結果、CPFへ大腸菌ファージQβを透過した時のpH6.7-7.3においてCPF表面は約-12mVと負に帯電していることが分かった。大腸菌ファージQβも負に帯電するため、CPF処理によるQβの除去は電氣的吸着によらないと推定された。急激に除去率が低下する原因については、荷電状態が変化することが考えられるが、さらに調査が必要である。

一方、鉄酸化処理による大腸菌ファージ Qβ の除去率は、平均 89%であった。この鉄酸化処理による結果と図5のCPF処理の結果を統合すると、鉄酸化砂充填型 CPF 処理では大腸菌ファージ Qβ を90%以上除去できる可能性が示唆された。

4. まとめ

地下水中中のヒ素及び微生物除去が可能なPOU処理の一例として、鉄酸化後にCPFへ通水しヒ素と微生物を除去する方法を検討し、以下の結論を得た。

- ① Fe/As比50以上あれば、酸化された鉄フロックへのヒ素の取り込みと鉄フロック除去により、ヒ素を83%以上除去することが可能であった。
- ② CPF処理により大腸菌を1log以上、鉄酸化処理により大腸菌ファージQβを1log除去できた。
- ③ CPFのろ過モデルを作成し、CPFのろ過水量測定結果を再現する事が出来た。
- ④ 鉄酸化CPF処理においてCPFに砂を充填するとヒ素除去率が向上し、ろ過抵抗の上昇を抑制す

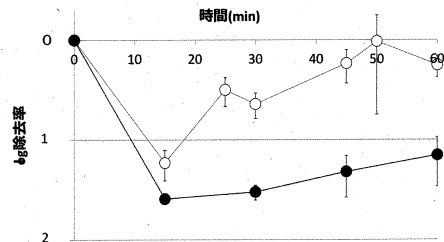


図5 CPF 処理による微生物の除去特性(○:大腸菌ファージ Qβ, ●:大腸菌, エラーバーは最大最少を表す, n=2)

ることが出来た。

- ⑤ クエン酸によるCPF洗浄によりろ過抵抗を減少することが出来た。

謝辞: 本研究は、平成21年度採択・科学技術振興機構CREST(研究領域:持続可能な水利用を実現する革新的な技術とシステム, テーマ「気候変動に適応した調和型都市圏水利用システムの開発」)の援助を受けて行われた。

参考文献

- 1) Center for Disease Control and Prevention, The safe water system Household Water Treatment, <http://www.cdc.gov/safewater/household-water.htm> (2012/11/10 閲覧)。
- 2) D. van Halem et al., Assessing the sustainability of the silver-impregnated ceramic pot filter for low-cost household drinking water treatment, *Physics and Chemistry of the Earth*, 34, 36-42, 2009.
- 3) Hagan. J. et al., *Ceramic Water Filter Handbook*, <http://www.rdic.org/water-ceramic-filtration.php>.
- 4) Shafiqzaman. M. et al., Investigation of arsenic removal performance by a simple iron removal ceramic filter in rural households of Bangladesh, *Desalination*, 265, 60-66, 2011.
- 5) Breg. M. et al., Arsenic Removal from Groundwater by Household Sand Filter: Comparative Field Study, Model Calculations, and Health Benefits, *Environmental Science and Technology*, 40, 5567-5573, 2006