

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04754

研究課題名（和文）分子拡散プレートを隔膜に用いた電解法による飲料水や排水からのフッ素とヒ素の除去

研究課題名（英文）Removal of fluoride and arsenic by an electrolysis system with a perforated plate as a diaphragm

研究代表者

川上 智規（Kawakami, Tomonori）

富山県立大学・工学部・教授

研究者番号：10249146

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）：飲料水や廃水からのフッ素やヒ素の除去法として電解法を用いた。電解法は、隔膜で陽極と陰極とに隔てられた電解槽で溶液を電解することにより陰極でpHを上昇させ、それに伴って沈殿するマグネシウムやカルシウムとフッ素やヒ素とを共沈除去する方法である。本研究の特徴として、電解隔膜に多孔板（プラスチック板に多数の孔を開けたもの）を用いた点である。この手法により、スリランカの合成井戸水や下呂温泉源泉からフッ素を除去できた。また、バングラディッシュの合成井戸水からはヒ素を除去することができた。最終的には孔の代わりにスリットを開けることでより効果的にフッ素やヒ素を除去できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

隔膜に多孔板やスリット板を用いた電解法により、飲料水や廃水からフッ素やヒ素の除去に成功した。陰極で生成する水酸化マグネシウムとの共沈により、フッ素やヒ素を除去するため、原水にマグネシウムがもともと含まれている場合には、外部から試薬を添加する必要が無い。また、隔膜にセラミックなどの多孔質板では無く、プラスチックを用いた多孔板やスリット板を用いることで安価な装置が実現できた。また、セラミックなどの多孔質の材料とは異なり、孔やスリット幅が大きいため、隔膜の閉塞を防ぐことができた。これらのことから、発展途上国での利用や温泉旅館での利用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：Electrolysis was used to remove fluoride and arsenic from drinking water and from wastewater. In the electrolysis system, anode cell and cathode cell was separated by a perforated plate with many holes with a diameter of 0.8 mm. As electrolysis progressed, pH in the cathode cell increased to produce precipitation of magnesium hydroxide. Fluoride and arsenic was co-precipitated with magnesium hydroxide. By this method, fluorine was removed from synthetic well water of Sri Lanka, and Gero hot spring water. Also, arsenic was be removed from synthetic well water of Bangladesh. Finally, fluoride and arsenic was removed more effectively by opening slits instead of holes for the diaphragm.

研究分野：水処理工学

キーワード：多孔板 スリット板 フッ素 ヒ素 電解法

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

発展途上国では井戸水に含まれるフッ素やヒ素を摂取することによって健康被害が生じている。ヒ素に関しては、世界の 27 カ国、8 千万人に健康被害が生じており、特に、バングラデシュでは飲料水として用いている井戸水にヒ素が混入しており約 6 千万人がヒ素中毒のリスクがあるとされる。フッ素に関しては世界 25 カ国で 6 千万人が汚染された飲料水によりフッ素症を患っているとされる。また、国内の温泉では、排水中のフッ素が基準を超過しているものがあり環境問題のひとつとなっている。しかしながら、従来のフッ素やヒ素の除去装置は、コストがかかり、発展途上国や温泉旅館業では導入が困難であった。

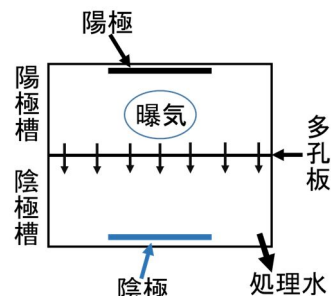
### 2. 研究の目的

電解法を用い、井戸水や温泉排水からフッ素やヒ素を水酸化マグネシウムの沈殿と共沈除去する手法を開発する。特に電解隔膜に多孔板を用いることが特徴である。多孔板はプラスチックの板に直径 1~2 mm 程度の孔を多数開けたものであるため安価であり、溶液を孔を通過させながら電解が可能であることから装置の簡略化も見込まれる。

### 3. 研究の方法

多孔板を隔膜とした連続式のフッ素やヒ素の除去装置を製作し、多孔板の孔の中を溶液が通過する方式を用い運転した。コロナの影響により海外への渡航が困難であったため、バングラデシュやスリランカの井戸水は現地の井戸水の水質に近いものを合成して用いた。

陽極側に原水を流入させ、電解を行うと、陽極では pH が低下する。そこで曝気を加えると炭酸水素イオンが除去され、陰極側での炭酸マグネシウムの生成を抑制できる。その後溶液は多孔板を抜けて陰極側に入ると pH が上昇して水酸化マグネシウムの沈殿を生成し、フッ素やヒ素と共沈する。多孔板は孔内の乱流拡散を止め、多孔板で隔てた両極の溶液が混合することを妨げる役割がある。今回は、その孔内を流体を通過させながら電解を行った。このときの流動について、熱流体解析ソフトの一つである Phoenix を用いたモデル解析を利用した。電解のフローを再現したうえで、多孔板の最適化(厚み、孔数)を行った。その結果、隔膜の厚みは 5 mm 以上、孔の直径は 1.2 mm 以下で十分に乱流拡散が抑制でき、隔膜として利用できることが分かった。孔の数については多いほど良いという結果が得られたが、工作を考えて、5mm 間隔で孔を開けた。従って、10 cm x 10 cm の隔膜であれば約 400 個の孔が設けられ、断面積は約 450 mm<sup>2</sup> である。



2022 年度からは、孔を多数開けるのではなく、プラスチック板に幅の狭いスリットを刻むことを思いつき、幅 0.6mm で 1cm 間隔にスリットを設けた。断面積は孔より大きく 540 mm<sup>2</sup> となる。の場合とほぼ同じになる。スリットの方が加工がやすく洗浄などのメンテナンスも容易であった。

温泉排水については下呂温泉を対象とした。下呂温泉はフッ素とヒ素とを含んでいる。温泉水を現地で入手し、実験室に持ち帰り実験に供した。ただし、マグネシウムを含まないため、塩化マグネシウムを添加して電解を行った。

### 4. 研究成果

本研究では、フッ素やヒ素の除去法として電解法を用いたが、その隔膜に分子拡散プレート(多孔板)を用いることに新規性を有する。2020 年度には、多孔板の厚み、孔の径、孔の数について流動解析ソフトを用いたシミュレーションにより最適化を試み、それぞれ 5mm、1.2mm、400 個/100cm<sup>2</sup> とし、バッチ式でフッ素やヒ素の除去を試みた。その結果、スリランカの井戸水では原水中のフッ素濃度を 2mg/L から 0.6mg/L 以下にすることができた。バングラデシュの井戸水では原水中のヒ素濃度を 500µg/L から WHO の飲料水基準である 10µg/L 以下にすることができた。下呂温泉水では原水中のフッ素濃度を 17mg/L から一律排水基準である 8mg/L 以下にすることができた。またヒ素に関しては原水中の 114µg/L から 1µg/L 以下にまで低減することができた。

2021 年度は連続式でフッ素やヒ素の除去を試みた。多孔板を用いた時の特徴は、多孔板の孔を通じて溶液を流しながら電解が可能であるという点である。フッ素やヒ素は陰極側において生成される水酸化マグネシウムの沈殿との共沈で除去されるが、原水のアルカリ度が高い時には陰極側で炭酸マグネシウムの沈殿が生成し、フッ素やヒ素の除去を妨害する。従って、連続式では原水をまず陽極に導き、陽極側の低 pH を利用してアルカリ度を除去した後、多孔板の孔を通じて溶液を陰極に流入させ、水酸化マグネシウムの沈殿を生成させることとした。当初はスリランカやバングラデシュにおいてフッ素やヒ素の現地処理を連続式で行う予定であったが、コ

コロナの影響により渡航が困難となったため、実験室における実験を実施した。実験室では水量が確保できないため、予定（100 L/日）の5分の1のスケールで合成井戸水を用いて実験を行った。単位水量当たりの電気量をバッチ式と同じに設定して実験を行ったところ、フッ素やヒ素はバッチ式とほぼ同等の除去性能であり、飲料水基準を満足できる水準であった。また、多孔板を通じて溶液を流動させながら電解を行うことが可能であることが立証できた。

下呂温泉においては温泉源泉を用いてフッ素とヒ素との同時除去を試みた。下呂温泉はマグネシウムを含まないため、マグネシウムを外部から添加する必要があったが、20 L/日の水量で約3週間の運転を実施し、17 mg/Lのフッ素は一律排水基準の8 mg/L以下に、114 ug/Lのヒ素は飲料水基準の10ug/L以下にまで処理することができた。

2022年度は隔膜に用いていた多孔板に替えて幅約0.6 mmのスリットが多数入ったスリット板を用いた。乱流拡散を抑制するという機能はそのまま、孔の閉塞が無い、作成が容易というメリットがある。このスリット板を用いて2020年度～2021年度と同様に、流動シミュレーションにより、スリット幅、本数、配置を最適化した後、合成井戸水や、下呂温泉の温泉源泉を用いてフッ素やヒ素の処理を行った。その結果、処理水質は多孔板と同程度であった。多孔板に比較して、開口面積が広いことにより電圧は低下し、消費電力の低減ができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 川上智規
2. 発表標題 電解法を用いた飲料水や排水からのフッ素やヒ素の除去
3. 学会等名 日本水環境学会 全国環境研協議会研究集会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小野楠奈、川上智規
2. 発表標題 電解法を用いた飲料水からのヒ素の除去
3. 学会等名 日本水環境学会中部支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野なな、川上智規
2. 発表標題 連続式電解法を用いた飲料水からのヒ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋美優、川上智規
2. 発表標題 電気透析法を用いた飲料水からのフッ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋美優、川上智規
2. 発表標題 各種隔膜を用いた電気透析法による飲料水からのフッ素除去
3. 学会等名 第2回エコテクノロジーフォーラム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤希、川上智規
2. 発表標題 電解法を用いた温泉排水からのフッ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会中部支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋美優、川上智規
2. 発表標題 電気透析法による飲料水からのフッ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会中部支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤希、川上智規
2. 発表標題 連続式電解法を用いた 温泉排水からのフッ素除去におけるモデル構築
3. 学会等名 第2回エコテクノロジーフォーラム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤希、川上智規
2. 発表標題 電解法による温泉排水からのフッ素除去におけるモデル式の構築
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加藤希、川上智規
2. 発表標題 電解法を用いた温泉排水からのフッ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会中部支部
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 加藤希、川上智規
2. 発表標題 多孔板を隔膜に用いた電解法による温泉排水からのフッ素除去
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 フッ素含有水の処理装置	発明者 川上智規	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-182450	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------