

機関番号：34315

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560511

研究課題名（和文） 鉄ハイブリッド型砒素除去フィルターの適正化と持続化に関する研究

研究課題名（英文） Sustainable application of iron hybrid filter for arsenic removal

研究代表者

中島 淳（NAKAJIMA JUN）

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：00309098

研究成果の概要（和文）：飲用地下水が砒素で汚染されたバングラデシュ農村部に適用可能な砒素除去フィルターを開発した。本フィルターの砒素除去性能、妨害物質の影響、砒素除去の予測モデルなどを室内実験から明らかにした。本フィルターをバングラデシュ農村部で試験をした結果、1年間の使用においても良好な砒素除去性能が継続した。地下水のリン濃度が高い場合には、2段ろ過が効果的と考えられた。現地で製作可能なフィルターは安価である。クルナ市郊外において、本フィルターの製作のワークショップが行われた。

研究成果の概要（英文）：Arsenic removal filter was developed that was applicable to rural areas in Bangladesh where potable ground water was highly contaminated by arsenic. Arsenic removal performance, influence of interfering materials and prediction model for arsenic removal were investigated in laboratory experiments. The filter was applied in rural area in Bangladesh and the arsenic removal performance was continuously found during one year operation. Double filtration seemed to be effective for ground water containing high phosphorous concentration. The filter was inexpensive and able to be manufactured in on site in Bangladesh. A work shop for manufacturing the filter was held in the suburban area of Khulna City.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：水環境工学

科研費の分科・細目：土木工学・土木環境システム

キーワード：砒素除去、地下水汚染、バングラデシュ、浄水処理、鉄バクテリア、吸着
砒素除去フィルター、国際協力

1. 研究開始当初の背景

バングラデシュにおける飲用地下水の砒素汚染は、住民の深刻な健康被害を継続的に引き起こしている。飲用地下水の砒素汚染は世界規模の環境問題であり、他に西ベンガル、アルゼンチン、台湾、メキシコ等々で報告されており、バングラデシュだけでも4,000万

人以上が汚染地下水を飲用しているといわれている。この飲料水リスクの課題に対しては、我が国をはじめとして多数の対策が研究されているが、高度な処理や水道システムには多大なコストがかかることから、より安価で維持管理が可能なシステムの導入が求められている。主な対策としては、表流水の水

道利用や非汚染の深井戸の掘削利用を中心にすすめられているが、汚染区域が広範なことから、地方の隅々まで当該対策が行き渡ることが期待できない。したがって、オンサイト型の水浄化システムを含む多様な適正対策が必要で、これまでもコミュニティ単位の緩速砂ろ過設備や家庭用砒素除去フィルターが導入されている。オンサイト型のシステムでは、維持管理の責任を誰が担うかがもっとも重要なポイントで、実際、これまでに設置されたコミュニティ設置型の緩速砂ろ過設備では、維持管理の責任体制が不明確なために、その多数が継続使用されていない実態もみられる。こうした維持管理システムを確立し持続させるための有効な社会開発手法の研究も、一方で重要な課題である。他方、家庭用砒素除去フィルターは、維持管理責任が個々の家庭であることが明確であるので、その維持管理手法が簡便で安価であれば、むしろ持続可能性は大きい。

水処理工学において鉄バクテリアは、地下水やダム湖水を水源とする原水中に還元性の鉄およびマンガンが含まれる場合に、それらを酸化して不溶化除去する目的で用いられている。また金属鉄は、リン除去のための鉄イオン供給材として用いられる。鉄を用いた物理化学処理である凝集処理を、生物処理とハイブリッドさせた代表例は凝集剤添加活性汚泥法であり、本法は下排水中のリン除去法として広く使用されている。

このような、リン除去における生物処理と物理化学処理のハイブリッド化の考え方を砒素除去に応用し、鉄を利用したハイブリッド型砒素除去フィルターを開発した。すなわち、鉄バクテリアによる砒素除去とそのため安定した2価鉄供給に金属鉄を用いることを考案し、砂ろ過装置およびセラミックろ過との組み合わせによって、持続可能な砒素除去フィルターの導入が可能であることを示した。これまでの研究成果から、以下のことが分かっている。

(1) 鉄バクテリアと金属鉄をハイブリッド化することによって、水中の砒素を安定して不溶化し除去することが可能である。

(2) 砂ろ過装置に添加する方法を用いた場合には、金属鉄・鉄バクテリアの順が効果的である。

(3) セラミックフィルターに鉄バクテリアを集積させ、金属鉄を添加することによって、安定した砒素除去が可能である。本法は、維持管理面で砂ろ過を用いた方法より優れている。

以上のように、これまでの研究で鉄ハイブリッド型砒素除去フィルター開発についての、基礎技術に関する知見が集積された。

また、バングラデシュの農村部において、既に導入がすすめられた砒素除去フィルタ

ーの使用実態を調査したところ、導入後の故障や破損のため使用されなくなった装置も多数みられた。そして、その原因について解析した結果、フィルター導入後に住民自らが維持管理や破損箇所の修繕をしてゆく水利用システムが必要であること、また地域の社会開発と併せて維持管理方法を住民に教育してゆくことが効果的であることなどが明らかになっている。

2. 研究の目的

以上に述べた背景から、これまでの研究成果を進展させ、鉄ハイブリッド型砒素除去セラミックフィルターを開発し普及するために、明らかにしなければならない課題として、以下の点があげられる。

(1) フィルターを製作する場合の適正な材料と焼成方法

(2) フィルターの適正な維持管理手法

(3) フィルターを用いた持続可能な水利用システムの構築

そこで、モデル地域であるクルナ市郊外の農村地域において、これらの具体的な課題を検討することとし、フィルターの適正な製造および維持管理方法、およびこれを用いた持続可能なシステム構築の方法について、明らかにすることを目標とする。

3. 研究の方法

(1) フィルターの製作

現地で使用可能な土壌と米糠を、いずれも粉碎し篩にかけて均一な材料とした。乾燥状態のままよく混合した後に水を加えて練り、型を用いて成型した後、自然乾燥させた。焼成は900℃とし、実験室では電気炉を用い、現地では素焼きの壺や鉢を焼成している窯で焼成した。室内実験では、土壌・米糠の混合比を変えて素焼き板を焼成し、そのろ過性能と曲げ強度を測定することによって、最適な混合条件を検討した。

(2) 砒素除去装置

現地で広く用いられている素焼き植木鉢(14L容)底部に、焼成したフィルターを接着させ、鉄製の金網を周囲に置き、さらに鉄酸化バクテリアの混合液を加えた。この装置に、原水を満水し、鉢の下部から自然重力ろ過で滴下するろ過水(処理水)をバケツに捕集した。なお、室内実験ではプラスチック製の植木鉢を用いた。

(3) 砒素除去試験

バングラデシュの地下水を模した人口地下水を用い、砒素および鉄濃度をそれぞれ500 µg/Lおよび5mg/Lとした。砒素除去装置に1日1回満水して通水ろ過し、処理水質の変化を測定した。添加した金網重量および鉄酸化バクテリア量を変化させた運転、および原水の2価鉄濃度を0~5.0 mg/L、リン濃度

を 0.9~10 mg/L の範囲でそれぞれ変化させた運転を行った。

(4) 砒素除去現場試験

平成 21 年 8~9 月の 1 カ月間、クルナ市近郊の 3 農村地域(ルプシャ(R 地域)、ファカルハット(F 地域)、ムラハット(M))において各 5 ヶ所、計 15 の井戸水(浅井戸 14、深井戸 1)を対象に、装置を設置した。1 日 1 回約 14L の井戸水原水をろ過し、初期のろ過速度とろ過前後の水質を測定して、砒素除去性能を調査した。なおろ過前に、溶存酸素濃度を増加させるため、原水をバケツに 5 回ほど入れ替える作業を行っている。

(5) 長期運転試験

ろ過実験を行った井戸のうち 5 井戸水(F 地域 2 家庭、M 地域 3 家庭)については、平成 22 年 9 月まで装置を継続して設置し、運転管理を設置家庭の住民に依頼した。半年後の平成 22 年 3 月(乾期)と 1 年後の同年 9 月(雨期)に、これらの家庭を訪問し、装置の使用状況およびろ過速度と砒素除去性能を調査した。

(6) 2 段ろ過実験

ろ過実験において原水中砒素濃度が 500 µg/L 以上を示した R 地域の 2 井戸水を対象に、平成 22 年 8~9 月に、2 つの装置を直列に用いた 2 段ろ過実験を行った。原水を午前中に第 1 装置に入れた後、午後(4~5 時間後)にその処理水(第 1 処理水)を第 2 装置に移し、また新たな原水を第 1 装置に入れた。翌日午前、第 2 装置の処理水(第 2 処理水)を採取し、また第 1 処理水を第 2 装置に移し、新たな原水を第 1 装置に入れた。これを毎日繰り返し、2 週間継続した。

(7) 現地ワークショップ

砒素除去フィルターの普及方法を検討する試みとして、砒素除去フィルターの製作と使用および維持管理に関するワークショップを開催した。現地の NGO およびクルナ工科大学と共同で実施し、クルナ市郊外の農村住民を対象とし、会場は NGO のトレーニングセンターを使用した。

4. 研究成果

(1) 土壌・米糠混合比

土壌と米糠の混合比を変化させて焼成した素焼き板は、米糠の割合の増加に伴って透水性が上昇し、他方、曲げ強度が低下した。米糠比(全重量に対する米糠重量)を 20%とした場合に、水圧に対して十分な強度が得られ、また 2L/h のろ過速度が得られたことから、20%を最適とした。フィルターの孔径は 1~5 µm であった。

(2) 砒素除去性能

処理水中の砒素濃度は、実験開始時に急激に減少した後も緩減し、20 日以降はほぼ一定となった。原水リン濃度が 0.9mg/L の場合に

は、金網の添加量が多いほど砒素の減少がみられ、金網 300g の添加の場合には、処理水砒素濃度は 10 µg/L 以下となった。他方、原水リン濃度を上昇させると処理水砒素濃度が増加し、リン濃度の高い地下水にはさらなる金網の添加が必要といえる。以上から、金網添加量を 600 g とし、鉄酸化バクテリアの混合液(乾燥重量 5000 mg 相当)を加えることを標準とした。

(3) 原水中鉄濃度の影響

バングラデシュ地下水の平均的なリン濃度(0.9 mg/L)について、原水の 2 価鉄濃度を变化させた場合の処理水中砒素濃度(運転期間の平均値 ± 標準偏差)を調べた。0~3 mg/L の鉄濃度の増加に対して、砒素濃度は直線的に減少した。また、鉄濃度 5 mg/L の場合には、砒素濃度は 10 µg/L 未満となった。回帰式の傾きは -34 (µg/mg) で、決定係数は 0.998 であった。回帰式から、鉄濃度が 2 mg/L 以上であれば、バングラデシュ基準値の砒素濃度 50 µg/L を下回るといえる。リン濃度が 2 mg/L、4 mg/L、5 mg/L の場合についても、鉄濃度の増加に対して砒素濃度は同様に直線的に減少し、原水中の鉄濃度は砒素の除去濃度に線形で正に影響するといえる。

(4) 原水中リン濃度の影響

バングラデシュ地下水の平均的な 2 価鉄濃度(5 mg/L)について、原水のリン濃度を变化させた場合の処理水中砒素濃度(運転期間の平均値 ± 標準偏差)を調べた。3~10 mg/L のリン濃度の増加に対して、砒素濃度は直線的に増加した。また、リン濃度 0.9 mg/L の場合には、砒素濃度は 10 µg/L 未満であった。回帰式の傾きは 44 (µg/mg) で、決定係数は 0.991 であった。回帰式から、リン濃度が 3 mg/L 以下であれば、バングラデシュ基準値の砒素濃度 50 µg/L を下回るといえる。鉄濃度が 1 mg/L の場合についても、リン濃度の増加に対して砒素濃度は同様に直線的に増加した。以上から、原水中のリン濃度は砒素除去濃度に線形で負に影響するといえる。

(5) 砒素除去濃度予測式

原水の鉄濃度およびリン濃度のいずれもが、砒素除去濃度に線形で影響することから、原水中の 2 価鉄が酸化され生成した 3 価鉄が、砒素およびリンを化学量論的に共沈除去しているものと考えられた。また、リンが砒素よりも優先して除去されることから、砒素除去を妨害しているといえる。したがって、砒素除去濃度の予測式として線形モデル式： $As = a \cdot Fe - b \cdot P + c$ (a、b、c は定数) を考えた。ここで、As : 砒素除去濃度、Fe : 原水中 2 価鉄濃度、P : 原水中リン濃度、定数項の c は金網から供給される鉄などによる除去である。得られたデータから、パラメータ a、b、c として、それぞれ 34 (µg/mg)

44 ($\mu\text{g}/\text{mg}$)、420 ($\mu\text{g}/\text{L}$) とした。

(6) 現場試験

浅井戸 14 の原水中砒素、鉄およびリン濃度はそれぞれ、180 ~ 590 $\mu\text{g}/\text{L}$ 、6.7 ~ 16 mg/L 、1.2 ~ 2.4 mg/L であった。約 1 カ月間のろ過実験における砒素除去率は 60 ~ 85% で、処理水の砒素濃度は 32 ~ 190 $\mu\text{g}/\text{L}$ であり、多くはバングラデシュ基準値の 50 $\mu\text{g}/\text{L}$ を下回った。上記砒素除去濃度の予測式を適用したところ、実測値と計算値がよく一致した。このことから、実際の地下水においても、原水中の鉄が砒素除去に効果があり、他方リンが砒素除去を妨害するといえる。

(7) 長期運転試験

半年後の乾期には、5 家庭の全てで装置が継続使用されていた。処理水の色、におい、味などに問題がないこと、フィルターの掃除を行ったことなどが確認された。1 年後の雨期には、2 家庭で継続使用しており、他は雨水利用のため装置の使用を休止していた。休止された装置も含めて、半年後および 1 年後においても、高い砒素除去性能が得られた。

(8) 2 段ろ過実験

原水の砒素濃度 390 ~ 510 $\mu\text{g}/\text{L}$ に対して、第 1 処理水の砒素濃度は 140 ~ 170 $\mu\text{g}/\text{L}$ となり、さらに第 2 処理水では 60 ~ 85 $\mu\text{g}/\text{L}$ に低下した。砒素除去率は、第 1 装置で 65 ~ 70%、第 2 装置で 50 ~ 58% で、総合すると 82 ~ 87% であり、2 段ろ過による除去率の向上が確認された。第 1 装置でほとんどの鉄が除去されるにもかかわらず、第 2 装置で金網からの鉄供給および鉄酸化バクテリアによる酸化鉄生成によって、砒素除去が進行したといえる。第 1 装置でリンが除去されることから、リンが高濃度の原水に対して、2 段ろ過は効果的であるといえる。

(9) 現地ワークショップ

平成 22 年 9 月 2 日に、クルナ市郊外の NGO 「ADAMS」の職業訓練施設において、砒素除去フィルターの製作と使用および維持管理に関するワークショップを開催した。現地材料で安価で製作できるフィルターへの期待は高く、NGO モビライザーが中心に、フィルターの製作に参加した。

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

Shafiquzzaman, Md., Iori Mishima, I. and Jun Nakajima: Hybrid method for arsenic removal from groundwater, Jpn J. Water Treatment Biology, Vol.44, No.4, 175-185, 2008 査読有

Azam, Md. Shafiul, Shafiquzzaman, Md., Iori Mishima, I. and Jun Nakajima:

Measurement of Soluble Arsenic in Soil of Bangladesh by Acid-alkali Sequential Extraction, J. Sci. Res., Vol.1, No.1, 92-107, 2009 査読有

Shafiquzzaman, Md., Md. Shafiul Azam, Iori Mishima, Jun Nakajima: Technical and Social Evaluation of Arsenic Mitigation in Rural Bangladesh, Journal of Health, Population and Nutrition, Vol.27, No.5, 674-683, 2009 査読有

Azam, M. S., M. Shafiquzzaman, Iori Mishima, and Jun Nakajima: Arsenic Release from Contaminated Soil of Bangladesh in Natural Field Conditions, J. Sci. Res., Vol.1, No.2, 258-269, 2009 査読有

Shafiquzzaman, Md., Jun NAKAJIMA : Arsenic removal from groundwater by hybrid method using iron oxidising bacteria and zero valent iron, Proceedings of the Seventh Seminar on Water and Wastewater Management and Technology, 15-22, 2009 査読無

Shafiquzzaman, Md., Md. Shafiul Azam, Jun Nakajima, Quazi H. Bari: Arsenic Leaching Characteristics of the sludges from iron based removal process, Desalination, Vol.261,41-45, 2010 査読有

Mohammad Shafiul Azam, Md Shafiquzzaman, Jun Nakajima: Effect of Calcium and Magnesium addition on Arsenic Leaching from Paddy Field Soil of Bangladesh, J. Water and Environment Technology, Vol.8, No.4, 329-338,2010 査読有

Shafiquzzaman, Md., Md. Shafiul Azam, Jun Nakajima, Quazi H. Bari: Investigation of arsenic removal performance by a simple iron removal ceramic filter in rural households of Bangladesh, Desalination, Vol. 265,60-66, 2011 査読有

Hasan M.M., Shafiquzzaman M. Azam, M.S., and Nakajima, J. : Application of a simple ceramic filter to membrane bioreactor, Desalination (Accepted, March, 2011) 査読有

[学会発表] (計 6 件)

Shafiquzzaman, Md., Md. Shafiul Azam, Iori Mishima, Jun Nakajima, Quazi H. Bari: Arsenic Leaching Characteristics of Biologically Produced Sludge, Proceedings of the Second International Conference on Water and Flood Management, Vol.1. 27-35, 2009 年 3 月 17 日, ダッカ(バングラデシュ)

礒塚史明、Md. Shafiquzzaman、Md. Shafiul Azam、中島淳、見島伊織: 鉄酸化バクテリア、

金属鉄および素焼きフィルターを組み合わせた飲用地下水からの砒素除去、第 43 回日本水環境学会年会、2009 年 3 月 18 日、山口大学（山口県）

Md. Shafiul AZAM, Md. SHAFIQUZZAMAN, Jun NAKAJIMA, Iori MISHIMA : Arsenic Release from Highly Contaminated Paddy Soil of Bangladesh、第 43 回日本水環境学会年会、2009 年 3 月 18 日、山口大学（山口県）

Shafiquzzaman, Md., Jun NAKAJIMA : Arsenic removal from groundwater by hybrid method using iron oxidising bacteria and zero valent iron, Proceedings of the Seventh Seminar on Water and Wastewater Management and Technology, 15-22, 2009 年 12 月 21 日、京都大学（京都）

碓塚史明、Md. Shafiquzzaman、Md. Shafiul Azam、中島淳、見島伊織：家庭用砒素除去フィルターによる飲用地下水からの砒素除去、第 44 回日本水環境学会年会、2010 年 3 月 15 日、福岡大学（福岡）

渡邊敬太、Md. Mahmudul Hasan、Md. Shafiquzzaman、中島淳：簡易砒素除去フィルターのバングラデシュ地下水への適用、第 45 回日本水環境学会年会、2011 年 3 月 18 日、北海道大学（紙上）

6 . 研究組織

(1)研究代表者

中島 淳 (NAKAJIMA JUN)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：00309098