鉄粉, レモン汁および太陽光による細菌の殺菌・不活化 —震災直後の緊急上水処理手段としての提案—

鈴木 祐麻^{1*}・Noor Diyana Binti Jamil²・新苗 正和¹

Bacteria Disinfection Using Zero-valent Iron, Lemon Juice, and Sunlight

Tasuma SUZUKI^{1*}, Noor Diyana Binti Jamil² and Masakazu NIINAE¹

¹Department of Environmental Science and Engineering, Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University,
2-16-1 Tokiwadai, Ube, Yamaguchi 755-8611, Japan

²Department of Sustainable Environmental Engineering, Faculty of Engineering, Yamaguchi University,
2-16-1 Tokiwadai, Ube, Yamaguchi 755-8611, Japan

Abstract

The objective of this study was to investigate the disinfection efficiencies of *E. coli* and coliforms during the solar disinfection (SODIS) process with the presence of zero-valent iron and/or citric acid. The experimental results from a series of batch experiments showed that a treatment with neither sole UV-A (365 nm wavelength), zero-valent iron, nor citric acid effectively decreased the fraction of viable *E. coli* and coliforms under the experimental conditions investigated in this study. However, the simultaneous addition of zero-valent iron and citric acid during the UV-A illumination effectively decreased the fraction of viable *E. coli* and coliforms, meaning the co-existence of these three are required to effectively produce oxidants such as hydroxyl radical and ferryl ion. It was also demonstrated through field experiments that the technology proposed in this study can be easily implemented in our daily life using lemon juice rich in citric acid.

Key words: Bacteria disinfection, Solar disinfection, Zero-valent iron, Citric acid, Photo-Fenton reaction

1. 諸 言

2011年に発生した東北地方太平洋沖地震ではインフラ設備も大きな損傷を受け、震災直後における安全な飲み水の確保が大きな問題となった。近い将来に日本で起こると予想されている大地震の直後には、再びこのような飲み水不足の状況に陥ることが大いに予想される。よって、震災時における緊急の上水処理手段として、薬品を用いることなく簡易に汚染物質を処理することが可能な技術を構築しておくことは社会的にも大きな意義がある。そして、震災直後の一時的な水処理技術であることを考慮すると、ここで対象とすべき汚染物質は下痢性疾患などの原因となる病原性微生物およびウイルスである。

薬品を用いることなく病原性微生物およびウイルスを処理する方法としては、途上国で幅広く用いられている

太陽光殺菌 (Solar Disinfection, 通称 SODIS と呼ばれる) が挙げられる¹⁻³。SODIS は、処理原水が入ったペットボトルをアルミ板などの反射板やタン屋根の上に載せ、太陽光に晒すことで太陽光に含まれる紫外線や温度上昇により病原性微生物およびウイルスを処理する方法である。しかし、従来の SODIS では6時間もの長時間ペットボトルを太陽光に晒しておく必要があり、迅速な病原性微生物およびウイルスの処理ができないという問題点が指摘されている。さらに、近年日本で普及しているペットボトルは、紫外線による製品の劣化を防ぐために、細菌に対して強い不活化効果を示す UV-C (200-280 nm の短波長紫外線) が透過しないような材質で作られていることが多い。このことは、ペットボトルに入れた河川水・湖水を太陽光に晒しても、紫外線単独による不活化効果はあまり期待できないことを意味している。よって、日本にて SODIS を適用するためには、ペットボトルを透過する UV-A (315-380 nm の長波長紫外線) と我々の身近に存在するもの (震災直後でも比較的容易に入手可能なもの) を上手く組み合わせることで、効果的に病原性微生物およびウイルスを処理することができる条件を作り出す必要がある。

キーワード: 細菌の殺菌・不活化, 太陽光殺菌, 鉄粉, クエン酸, フォトフェントン反応

¹ 山口大学大学院理工学研究科環境共生系専攻

² 山口大学工学部循環環境工学科

平成 25 年 1 月 17 日受理

*e-mail: tsuzuki@yamaguchi-u.ac.jp

Table 1 Water quality parameters of Lake Tokiwa and synthesized feed waters (after denim jeans filtration pretreatment)

Feed water#	Lake Tokiwa water							Feed water	
	Temp	pH	SS	NPOC	TN	Turbidity	Chlorophyll <i>a</i>	<i>E. coli</i>	Coliforms
	(°C)	(-)	(mg/L)	(mgC/L)	(mgN/L)	(NTU)	(µg/L)	(CFU/ml)	(CFU/ml)
1	24	8.55	7.91	5.12	0.60	4.6	9.5	13,100	24,500
2	25	7.81	4.82	7.43	0.37	2.9	17.8	2,840	8,700
3	28	7.52	9.15	9.17	0.58	4.0	10.9	7,900	25,200
4	33	8.47	6.53	10.52	0.81	5.4	25.4	13,400	37,000
5	31	8.40	6.59	6.29	0.36	5.9	12.3	9,600	32,900
6	27	8.83	7.70	7.63	0.43	4.2	15.1	10,100	59,000

本研究の目的は、大腸菌と大腸菌群を対象汚染物質として選定し、微量の鉄粉およびレモン汁を処理原水に添加することでSODISの効果を高めることができることを提案・実証することである。鉄粉およびレモン汁を添加することによりSODISの効果が高まると期待できる理由は二つある。まず一つ目の理由は、鉄および二価鉄イオンに殺菌効果があることは広く知られており^{4,9}、従来のSODISの効果に加えて鉄あるいは二価鉄イオンによる殺菌効果が得られることである。そして二つ目の理由としては、レモン汁に豊富に含まれているクエン酸は三価鉄イオンと非常に高い光還元性を示す錯体を形成するため、太陽光に晒すことでフェントン反応の律速段階となっている三価鉄イオンから二価鉄イオンへの還元反応を促進することができることが挙げられる。つまり、鉄粉、レモン汁、そして太陽光を組み合わせることにより、フェントン反応と類似した反応プロセスがペットボトル内で連続的に進行し、その結果、OH ラジカルなどの活性酸素種やフェリルイオン (ferryl ion, 四価鉄イオン) の効率的な生成を通して SODIS 効果の促進が期待できる。このような背景を踏まえ、処理条件が制御されたバッチ実験および実際の震災直後の状況を想定した実証実験を行った結果、本技術の有効性が実証されたのでその結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 処理原水の作成

本研究で用いた処理原水は、山口県宇部市に位置する常盤湖の湖水に下水処理場からの放出水に含まれる細菌を添加することで人工的に作成した。実験を行う当日に宇部市内の下水処理場からの放出水 (塩素注入前) を採取し、まずは 5.0 µm のニトロセルロースメンブレンフィルター (日本ミリポア (株)) で濾過することで放出水に含まれる微生物などの濁質成分を除去した。その後、ろ液を 0.2 µm の混合セルロースエステルフィルター (アドバンテック東洋 (株)) で 50 倍濃縮した濃縮液を、同じく実験を行う当日に常盤湖から採取した湖水に 5 vol% 加

えて 30 分ゆっくりと攪拌した。そして、太陽光を反射して透過を妨げる粒子状物質を除去することを目的とした前処理として、デニムジーンズ (製品番号 067923, (株) ユニクロ) を用いて混合液を濾過することにより本研究で用いる処理原水を得た。なお、筆者らの過去の研究¹⁰により、本ジーンズ生地の有効孔径は約 50 µm であり、ろ過することで 50 µm 以上の懸濁物質およびそれらに吸着している細菌が効果的に除去されることが分かっている。処理原水の pH、濁度、不揮発性有機炭素濃度 (non-purgeable organic carbon, NPOC)、そして全窒素濃度 (total nitrogen, TN) はそれぞれポータブル pH 計 (HM-30P, 東亜ディーケーケー (株))、デジタル濁度計 (TN-100, Eutech instruments 社)、全有機炭素測定装置 (TOC-VCN, (株) 島津製作所)、そして全窒素測定装置 (TNM-1, (株) 島津製作所) を用いて測定した。懸濁物質濃度 (suspended solid, SS) は米国 EPA Method 1684 に従って測定し、クロロフィル *a* 濃度は社団法人日本水道協会が定める上水試験方法 (2011 年版) に従って測定した。大腸菌および大腸菌群は CHROMagar™ ECC 培地を用いてコロニーカウント法によって定量した。本研究で使用した常盤湖の水質および処理原水中の細菌濃度を表 1 にまとめる。

2.2 バッチ実験

バッチ実験は、254 nm と 365 nm の波長を選択できる波長切り替え UV ランプ (アズワン (株)) を搭載した UV ランプビューイングキャビネット (アズワン (株)) を用いて室温 (24±1°C) で行った。ガラス製フラットシャーレに前処理を施した処理原水を 60 ml (高さとして約 1 cm) 加え、フロート攪拌子を用いてゆっくりと攪拌しながら、鉄粉およびクエン酸ストック溶液 (42 g/L) をそれぞれ 1 g/L および 10 mg/L となるように添加すると同時に紫外線の照射を開始した。そして、あらかじめ決められた照射時間後に大腸菌と大腸菌群の生存率を測定した。なお、今回の実験で使用した鉄粉の BET 比表面積は $1.1 \pm 0.2 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ である¹¹。二価鉄イオンの濃度は JIS K 0102 に基づいたフェナントロリン吸光度法によって、紫外可視分光光度計 (UV-2550, (株) 島津製作所) を用いて測定した。その他使用した試薬はすべて、ナカライ

Fig. 1 Picture of SODIS field experiments.

Fig. 2 The transmittance of UV light through the PET bottle used in this study. The spectrum was obtained using UV-Vis spectrophotometer (UV-2550, Shimadzu Corp., Japan).

テスク (株) あるいは和光純薬工業 (株) から購入した特級試薬である。また、UV ランプが放出する波長の強度をデジタル式 UVX 紫外線強度計 (フナコシ (株)) に Radiometer センサー (UVX-25 あるいは UVX-36, フナコシ (株)) を接続して測定した結果、波長 254 nm と波長 365 nm の強度はそれぞれ 0.24 mW/cm^2 と 0.165 mW/cm^2 であった。

2.3 実証実験

実証実験もバッチ試験と同様に、デニムジーンズを用いて濾過することで粒子状物質を除去した処理原水を用いて行った。飲料用の 500 ml ペットボトルに 500 ml の前処理 (ジーンズによるろ過) 済みの処理原水を入れ、鉄粉とレモン汁を添加した後にそのペットボトルを内部が黒色の金属製半円筒の中に置いて太陽光に晒した (図1)。図2に示すように、本実証実験で用いたペットボトルは、UV-A (315–380 nm) の長波長紫外線は高い割合で透過するものの、強い不活化効果がある UV-C (200–280 nm

Fig. 3 Fraction of viable *E. coli*/coliforms after treating UV, zero-valent iron, or citric acid. Experimental conditions : (a) Feed water #1, UV dose: 7.2 mJ/cm^2 for 254 nm, 594 mJ/cm^2 for 365 nm. (b) Feed water #2, Zero-valent iron dose: 1 g/L, citric acid concentration: 10 mg/L. The reaction time was 60 mins for both zero-valent iron and citric acid.

の短波長紫外線) に関しては全く透過しない材質が使われているものである。鉄粉は 2.2 節のバッチ実験で使用した鉄粉と同じ鉄粉を使用した。また、レモン汁は一般のスーパーで購入したレモンを絞った液をそのまま使用した。レモン汁の pH は 2.17 であり、イオンクロマトグラフ (Prominence, (株) 島津製作所) を用いてレモン汁の中に含まれるクエン酸の濃度を定量した結果、クエン酸濃度は 42 g/L であった。実証実験中は地表面から 1 m 離れた場所の気温、ペットボトル内の水温、そして波長 365 nm の紫外線強度 (ペットボトルを透過する前) をモニタリングし、さらに照度をデジタル照度計 (LX-204, (株) カスタム) で随時測定した。

3. 実験結果

3.1 紫外線、鉄粉およびクエン酸が処理速度に及ぼす影響—バッチ実験による検証—

波長 254 nm および 365 nm の紫外線、鉄粉、そしてクエン酸が大腸菌と大腸菌群の処理効率に及ぼす影響を評価することを目的として、種々の処理条件でバッチ実験を行った。まず、図3 (a) には、処理原液 #1 (Feed water #1, 表 1) を用いて波長 254 nm あるいは 365 nm の紫外線による処理を検討した結果を示す。波長 254 nm の紫外線を用いた場合は、比較的少ない 7.2 mJ/cm^2 の積算照射量 (強度 0.24 mW/cm^2 で照射時間 30 秒) で約 99% の大腸菌および大腸菌群が不活化されているのに対して、波長 365 nm の紫外線の場合は 594 mJ/cm^2 の積算照射量 (強度 0.165 mW/cm^2 で照射時間 60 分) でも不活化効果が非常に小さいことが分かる。また、図3 (b) に示すように、鉄粉 (1 g/L) あるいはクエン酸 (10 mg/L となるように

Fig. 4 Fraction of viable *E. coli*/coliforms in feed water #3 after treating various conditions. Experimental conditions: UV dose: 594 mJ/cm² (during 60 mins), Zero-valent iron dose: 1 g/L, citric acid concentration: 10 mg/L.

添加)を処理原水 #2 に添加し (紫外線は照射せず), 60 分後に大腸菌および大腸菌群の生存率を測定した結果, どちらの場合も生存率の大幅な減少は得られなかった。これらのことは, ペットボトルを透過する UV-A に分類される 365 nm の紫外線では殺菌の不活化効果はほとんど期待できないこと, そして鉄粉およびクエン酸の単独使用についても, 今回の実験で使用した濃度では殺菌効果はほぼ無いことを意味している。次に, 波長 365 nm の紫外線, 鉄粉 (1 g/L), そしてクエン酸 (10 mg/L) を組み合わせた条件で処理原水 #3 を処理した結果を図 4 に示す。波長 365 nm の紫外線と鉄粉, あるいは波長 365 nm の紫外線とクエン酸を組み合わせた場合は, 波長 365 nm の紫外線単独で処理を行った場合と同様に大腸菌および大腸菌群の効果的な処理ができないのに対して, 波長 365 nm の紫外線, 鉄粉, そしてクエン酸の 3 つを組み合わせた場合は 60 分 (積算照射量 594 mJ/cm² に相当) で 90% 以上の処理効率が得られた。この理由としては二つ考えられる。まず一つ目は, 微量ではあるが pH 1.85 のクエン酸溶液を添加することで処理原水の pH が低下し (処理原水 #3 の場合は 7.52 から 6.31 に低下), 鉄粉から微量の二価鉄イオンが溶出し, 二価鉄イオンと溶存酸素などとの反応過程で生成した活性酸素種や四価鉄イオン (フェリルイオン) により (式 1-6) 大腸菌および大腸菌群が殺菌されるプロセスの促進である⁶。そして二つ目の理由は, 三価鉄イオンから二価鉄イオンへの光還元反応の促進である。式 1-6 の反応によって生成した三価鉄イ

Fig. 5 Fraction of viable *E. coli*/coliforms in feed water #4 after treating UV, zero-valent iron, and citric acid. Experimental conditions: UV dose: 594 mJ/cm² (during 60 mins), Zero-valent dose: 1 g/L, citric acid concentration: 10 mg/L. Zero-valent iron and citric acid were separately added into the feed water for “UV (365 nm) + Fe + citric acid”, while zero-valent iron and citric acid were mixed in advance with a small amount of feed water before adding into the feed water for “UV (365 nm) + (Fe + citric acid)”.

オンはクエン酸と光還元性が非常に高い錯体を形成する。よって, 波長 365 nm の紫外線によって三価鉄イオンから二価鉄イオンへの光還元反応 (式 7) が促進され, その結果, 式 3-6 に記した反応を通して活性酸素種や四価鉄イオンの生成が促進されたと考えられる。

最後に, 処理原水に鉄粉とクエン酸を加える際の順序が処理効率に与える影響を処理原水 #4 を用いて検討した結果を図 5 に示す。鉄粉とクエン酸を別々に処理原水に加えた場合に比べ, 原液 1 ml の中に鉄粉およびクエン酸溶液を同時に添加し, 1 分後にその混合液を処理原水に加えてから波長 365 nm の紫外線を照射した場合の方が高

Fig. 6 The weather information during field experiments. See Fig. 7 for the *E. coli*/coliforms treatment efficiencies during these field experiments.

い処理効率が得られることが分かる。この要因としては、フミン質を含む溶存有機物質や炭酸水素イオンなどに起因する酸緩衝能力を有した大量の処理原水に微量のクエン酸を添加しても、pH の効果的な低下、そしてそれに伴う二価鉄イオンの効果的な溶出が起らないのに対して、鉄粉とクエン酸溶液を少量の処理原液と最初に混ぜてからこれらの混合液を処理原水に加えたことにより、鉄粉がより長い時間酸性条件下に晒され、その結果、より多くの二価鉄イオンが溶出したことが考えられる。実際、処理水中に含まれる二価鉄イオンの濃度は、鉄粉とクエン酸を別々に処理原水に加えた場合は 0.098 mgFe/L であったのに対して、原液 1 ml の中に鉄粉およびクエン酸溶液を添加し、1 分後にこれらの混合液を処理原水に加えた場合は 0.97 mgFe/L であった。

これらのバッチ実験の結果から、鉄粉およびクエン酸を処理原水に加えた後に波長 365 nm の紫外線を照射することで大腸菌および大腸菌群の効果的な処理が行えること、そして鉄粉とクエン酸溶液を少量の処理原液と最初に混ぜてからこれらの混合液を処理原水に加えることで、効果的に二価鉄イオンを溶出させ、その結果、処理効率が高まることが確認された。

3.2 鉄粉およびクエン酸が SODIS の効果に及ぼす影響—実証実験—

実証実験は山口大学工学部の建物のベランダで、快晴

Fig. 7 The field experimental results demonstrating the positive influence of simultaneous addition of zero-valent iron and citric acid during SODIS on the *E. coli*/coliforms treatment efficiencies. Feed water # used (a) and (b) were #5 and #6, respectively. Zero-valent dose was 0.5 g/500 ml for both experiments. Zero-valent iron and citric acid were mixed in advance with a 1 ml of the feed water before adding into the bulk feed water. See Fig. 6 for weather information during the experiments.

で風が弱い日と曇りの日の二回行った。それぞれの実証実験中の、地表面から 1 m 離れた場所で測定した気温、照度、波長 365 nm の紫外線強度（ペットボトルを透過する前）、そしてペットボトル内の水温の 4 項目をモニタリングした結果を図 6 に示す。快晴で風が弱い日（図 6 (a)）は曇りの日（図 6 (b)）に比べて 4 項目全てにおいて高い値となっており、ペットボトル内の水温は 50°C を超えていることが分かる。鉄粉およびレモン汁の添加量は、500 ml の処理原水に対してそれぞれ 0.5 g と 0.12 ml（実際に絞った場合は約 4 滴に相当）であり、これはクエン酸をバッチ実験と同様の 10 mg/L 加えたことに相当する。また、図 5 に示したバッチ実験の結果に基づき、0.5 g の鉄粉と 0.12 ml のレモン汁を 1 ml の処理原液と最初に混合してから処理原水に加えた。

これらの実験で得られた大腸菌および大腸菌群の処理効果を経時変化として表現した結果を図 7 に示す。図 7 から分かるように、実験中の天候変化などを無視した大まかな計算ではあるが、鉄粉およびレモン汁を加えた

かった場合と比較してこれらを加えた場合は大腸菌 / 大腸菌群の処理速度が2倍から5倍促進されていることが分かる。よって、微量の鉄粉とレモン汁を添加した後に太陽光に晒すことで、SODISの効果を高めることができることが実証された。

4. 考 察

本研究の実証実験に用いたペットボトルは、細菌のDNAが高い吸収を示すUV-Cが透過しない材質で作られている(図2)。よって、実証実験条件下で期待できる主な細菌処理メカニズムとしては、温度上昇による熱殺菌およびOHラジカルなどの活性酸素種による化学殺菌である。図7から分かるように、従来のSODISの場合の処理速度は天候に大きく依存する。これは、UV-Cを透過しないペットボトルを用いている今回の実証実験においては、温度上昇による熱殺菌が重要な処理メカニズムであることから予想される結果である。それに対して、鉄粉, レモン汁そして太陽光を組み合わせたSODIS処理の場合は、太陽光単独で処理した従来のSODISに比べて天候依存性が低く、曇った日でも効果的に処理が行われていることが分かる。本研究では毎回異なる処理原水を使用しているため、快晴の日に行った実験のデータ(図7(a))と曇りの日に行った実験のデータ(図7(b))を比較することは困難である。しかし、今回の実証実験条件下では太陽光の主な役割が細菌の不活化ではなく三価鉄イオンから二価鉄イオンへの還元反応(式7)の促進であることを踏まえると、この実験結果は、曇りの日程度の照度があればUV-Aの強度は三価鉄イオンの光還元反応の律速とはならないことを示唆している。また、バッチ実験で得られた実験結果(図5)と実証実験の結果(図7)を比べると、実証実験ではバッチ実験($165 \mu\text{W}/\text{cm}^2$)よりも強い波長365 nmの紫外線が照射されている(図6)にも関わらず、60分後の処理率は90%程度に止まっており、バッチ実験で得られた約99%の処理率と大きな違いがある。推測の域を出ないがこの原因の一つとしては、レモン汁の中にはクエン酸と同様に二価鉄イオンと安定な錯体を形成するアスコルビン酸¹⁶⁻¹⁸や三価鉄イオンと光還元性の高い錯体を形成するリンゴ酸などの他のカルボン酸も含まれており、これらの存在が処理効率に影響を及ぼしていることが考えられる。また、式1-6から推測されるように、活性酸素種の生成は溶存酸素濃度に大きく依存する⁷。開放系で攪拌しながら行ったバッチ実験と閉鎖系で行った実証実験とでは酸素供給速度に大きな違いがあるため、その違いがバッチ実験に比べて実証実験では処理速度が遅くなったことの要因となっているとも考えられる。

これらの議論を踏まえると、薬品を用いることなく簡単な操作で効果的に大腸菌および大腸菌群を処理することができる本手法は、詳細な殺菌・不活化メカニズムの解明にはまだまだ多くの実験が必要であり、さらに我々が通常飲用している水道水にその水質はもちろん劣るものの、一時的な上水処理手段としては有効であることが実証されたと考えられる。今後の検討課題としては、詳細な殺菌・不活化メカニズムの解明はもちろんのこと、本研究では検討しなかった鉄粉とレモン汁の添加量が処理効率に及ぼす影響、冬の日や雨の日における処理効果の確認、三価鉄イオンの光還元反応に大きな影響を及ぼすことが報告されている¹²⁻¹⁴フミン質の種類および濃度を代表とする処理原水の水質が処理効果に与える影響、そして本研究で対象とした大腸菌および大腸菌群より強い耐性を持つ他の病原性微生物・ウイルスに対する処理効果の検討などが挙げられる。

5. 結 言

本研究では、鉄粉とレモン汁を加えた処理原水を太陽光に晒すことにより、大腸菌および大腸菌群が効果的に処理されることを提案・実証することを目的とした。結果は以下のように要約される。

- 1) バッチ実験を行った結果、鉄粉(1 g/L)とクエン酸(10 mg/L)を添加した処理原水に波長365 nmの紫外線を照射($594 \text{ mJ}/\text{cm}^2$)することで、約90%の大腸菌および大腸菌群が処理された。また、鉄粉とクエン酸溶液を少量の処理原液と最初に混ぜてからこれらの混合液を処理原水に加えることで二価鉄イオンがより効果的に溶出し、その結果、 $594 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ の積算照射量で約99%の大腸菌と大腸菌群が処理された。また、波長365 nmの紫外線、鉄粉、そしてクエン酸のいずれを欠いても高い処理効率は得られなかった。これらのことから、これら3つが共存することでフォトフェントン反応に類似した反応が連続的に進行し、その結果、大腸菌および大腸菌群の処理が促進されることが分かった。
- 2) 晴れた日と曇った日に実証実験を行った結果、鉄粉とレモン汁を添加することで、大腸菌と大腸菌群の処理速度が従来のSODISに比べて2倍から5倍促進された。また、従来のSODIS処理の場合は処理効率が天候に大きく依存するのに対し、鉄粉とレモン汁を添加したSODIS処理の場合は天候依存性が小さかった。

謝 辞

本研究の一部は、公益信託エスバック地球環境研究・

技術基金（エスベック環境研究奨励賞），財団法人日本科学協会 笹川科学研究助成，および日本学術振興会科学研究費補助金（若手研究（B），No. 24710078）の補助を受けて行いました。深く感謝の意を表します。

References

1. SODIA, 2013, Retrieved July 20, 2013, from http://www.sodis.ch/index_EN
2. H. Gómez-Couso, M. Fontán-Sainz, K.G. McGuigan, E. Ares-Mazás: *Acta Tropica*, **112**, pp. 43–38 (2009)
3. S.I. Ali, M. MacDonald, J. Jincy, K.A. Sampath, G. Vinothini, L. Philip, K. Hall, K. Aronson: *Journal of Water, Sanitation and Hygiene for Development*, **1**, pp. 112–123 (2011)
4. C. Lee, J.Y. Kim, W.I. Lee, K.L. Nelson, J. Yoon, D.L. Sedlak: *Environmental Science Technology*, **42**, pp. 4927–4933 (2008)
5. J.N. Ryan, R.W. Harvey, D. Metge, M. Elimelech, T. Navigato, A.P. Pieper: *Environmental Science Technology*, **36**, pp. 2403–2413 (2002)
6. J.Y. Kim, C. Lee, D.C. Love, D.L. Sedlak, J. Yoon, K.L. Nelson: *Environmental Science Technology*, **45**, pp. 6978–6984 (2011)
7. J.Y. Kim, H. Park, C. Lee, K.L. Nelson: *Applied and Environmental Microbiology*, **76**, pp. 7668–7670 (2010)
8. M. Auffan, W. Achouak, J. Rose, M. Roncato, C. Chanéac, D.T. Waite, A. Masion, J.C. Woicik, M.R. Wiesner, J. Bottero: *Environmental Science Technology*, **42**, pp. 6730–6735 (2008)
9. Y. You, J. Han, P.C. Chio, Y. Jin: *Environmental Science Technology*, **39**, pp. 9263–9269 (2005)
10. T. Suzuki, N.D. Binti Jamil, M. Niinae: *Water and Environment Journal*, Submitted.
11. T. Suzuki, M. Moribe, M. Niinae: *Chemical Engineering Journal*, **183**, pp. 271–277 (2012)
12. J.J. Pignatello, E. Oliveros, A. MacKay: *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, **36**, pp. 1–84 (2006)
13. R.G. Zepp, B.C. Faust, J. Hoigné: *Environmental Science Technology*, **26**, pp. 313–319 (1992)
14. A. Georgi, A. Schierz, U. Trommler, C. Horwitz, T. Collins, F.-D. Kopinke: *Applied Catalysis B: Environmental*, **72**, pp. 26–36 (2007)
15. E. Lipczynska-Kochany and J. Kochany: *Chemosphere*, **73**, pp. 745–750 (2008)
16. M.E. Conrad and S.G. Schade: *Gastroenterology*, **55**, pp. 35–45 (1968)
17. W. Forth and W. Rummel: *Physiological Reviews*, **53**, pp. 724–741 (1973)
18. J.E. Gorman and F.M. Clydesdale: *Journal of Food Science*, **48**, pp. 1217–1225 (1983)