

厚生労働科学研究研究費補助金

健康科学総合研究事業

Bangladesh及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域に
おいて地下水を(安全な)水道水源とする実現可能性評価に関する研究

平成16年度 総括研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所

徳永 裕司

分担研究者

宮崎大学工学部

横田 漢

聖マリアンナ医科大学

山内 博

北海道大学大学院工学研究科

大野 浩一

国立保健医療科学院

国包 章一

平成17(2005)年3月

目 次

I. 総括研究報告

- バングラデシュ及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域において地下水を
（安全な）水道水源とする実現可能性評価に関する研究 1
徳永 裕司

II. 分担研究報告

1. ヒ素汚染の地下水を飲用する住民の尿・毛髪等からのヒ素暴露評価
と健康影響に関する研究 7
徳永 裕司
2. バングラデシュに設置した砒素除去装置の性能および除去汚泥の
砒素溶出特性 15
横田 漢
3. 井戸水からの高濃度ヒ素暴露者における尿中ヒ素とDNA損傷に関する研究
：親子間の比較 25
山内 博
4. 給水システムの実現可能性評価（炊飯用水が総ヒ素摂取量に与える影響） 31
大野 浩一

- III. 研究成果の刊行に関する一覧表 35

総括研究報告書

バングラデシュ及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域において地下水を（安全な）水道水源とする実現可能性評価に関する研究

主任研究者 徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部長

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約4700万人、中国で約300万人と言われている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は20数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。

各分担研究者は、1. バングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地の協力者の調査、2. ヒ素除去装置 Gravel Sand Filter (GSF)を開発・設置し、その性能の検討並びにヒ素除去装置の性能の検証及び排出されるヒ素汚泥の処分方法の開発、3. 中国内蒙古自治区フルホト市の住民を対象にヒ素汚染された井戸水を長期間摂取していた住民のヒ素の代謝・排泄とヒ素暴露による DNA 損傷の動態及び4. バングラデシュ・ナワブガンジ市を中心に安全な水の供給を行った場合の暴露量減少と言った便益面からの評価を中心に行うため、調理用水の中でも炊飯用水に着目し、炊飯用水にヒ素汚染水を用いた時の炊飯前後のコメ中ヒ素濃度に与える影響に関する調査を行った。

その結果、下記に示す結論を導き出すことができた。

1. バングラデシュ側のパートナーであるラシャヒ大学地質・鉱山学部の Hamidur Rahman 教授を通して、Chapai Nawabganj District の CHUNAKHALI 村、BAHARAM 村及び RAZARAMPUR 村の村境に安全な水を供給する deep tubewell の掘削と動力など施設の建設に向けて community の責任者、土地所有者並びに地方政府との交渉を進めて行くことになった。
2. ヒ素除去装置のヒ素除去性能は高いものがあった。この装置のメンテナンスを簡略化するための工夫を行ないながらの実地検証を継続中である。また、ヒ素除去装置に蓄積するヒ素汚泥の処分に関して、ヒ素汚泥は粉末にして溶出させても、ヒ素は90%以上も汚泥中に閉じ込められ、埋め立て処分でも処理が可能であることを明らかにした。
3. 中国内蒙古自治区フルホト市のヒ素暴露者群の尿中 IMD 濃度は、これまで経験してきた慢性ヒ素中毒患者の値に類似していた。対照群とヒ素暴露者群の井戸水中無機ヒ素濃度は0.04 mg/l、0.16 mg/l であり、慢性ヒ素中毒の主要症状である色素沈着、色素脱失、角化症は認められなかった。慢性ヒ素中毒発症の機序解明のために継続して観察する必要があることが示唆された。
4. 炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の差と炊飯用水のヒ素濃度には強い正の相関が見られた。炊飯用水や調理用水を含めた水からの摂取量と食料からの摂取量について総合的な暴露量調査を行う必要があることが明らかになった。

分担研究者

徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 部長
横田 漠 宮崎大学工学部 教授
山内 博 聖マリアンナ医科大学 助教授
大野浩一 北海道大学大学院工学研究科 助手
国包章一 国立保健医療科学院 部長

A. 研究目的

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約4700万人、中国で約300万人と言われている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は20数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。特に、バングラデシュにおけるヒ素汚染は非常に深刻で、2003年3月に開催された世界水フォーラム（京都）においても、早急に解決すべき問題の一つとして取り上げられた。この国のヒ素汚染に対して、数多くの国際機関が調査し、安全な水供給の施策を行ってきた。しかし、ヒ素汚染問題に対する根本的な解決の糸口はみられていない。この原因として、ヒ素処理前後でのヒ素暴露量の推定がなされていない、給水体制の面からヒ素処理水の確保が十分でない、ヒ素処理装置の維持管理の問題、ヒ素処理後のヒ素含有汚泥による2次的な環境汚染の問題が指摘できる。

本年度は、徳永及び国包分担研究者はバングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地の協力者の調査を中心に行った。

横田分担研究者は、バングラデシュ・マルア村にヒ素除去装置 Gravel Sand Filter (GSF)を開発・設置し、その性能を検討している。GSFは、地下水中に含まれるヒ素と鉄が酸化状態で吸着・共沈する性質を利用し、この共沈物を Gravel Tank内の砂利の間隙に沈殿させ地下水中のヒ素除去を行うものである。GSFはメンテナンスサイクルの長期化、ヒ素除去能力の向上のため、改良され続

けている。この際に発生するヒ素と鉄の共沈物であるヒ素汚泥の処理は避けられない問題である。そこで、本研究では、ヒ素除去装置の性能を確かめること、および排出されるヒ素汚泥の処分方法を開発することを目的とし、現地において同装置を運転して、装置各点におけるヒ素濃度や水質などを測定の上、ヒ素除去に影響を与える要因の最適状態を求めている。

山内分担研究者は、中国内蒙古自治区フルホト市の住民を対象にヒ素汚染された井戸水を長期間摂取していた住民のヒ素の代謝・排泄、そして、ヒ素暴露によるDNA損傷の動態について検討を試み、ヒ素暴露が近似した状態でのヒ素代謝とDNA損傷との関係を主に親子間で比較を行った。

大野分担研究者は、バングラデシュ・ナワブガンジ市を中心に安全な水の供給を行った場合の暴露量減少と言った便益面からの評価を中心に行うため、調理用水の中でも炊飯用水に着目した。さまざまなヒ素濃度の炊飯用水が炊飯前後のコメ中ヒ素濃度を与える影響に関する調査を行い、安全な水を供給した場合のヒトのヒ素摂取量削減に与える効果について検討を行った。

B. 研究方法

B-1. バングラデシュでの地下水のヒ素汚染地域の探索

平成16年12月4日～9日にかけてバングラデシュ国際下痢症研究センター(ICDDR, B)の Matlab 地域センターを徳永、国包及び大野の三氏が訪れ、地下水のヒ素汚染地域であり、ヒ素被害住民の状況並びに安全な水を供給できる可能性の調査を実施した。

平成17年2月28日～3月3日にかけてバングラデシュ・ラシャヒ市を徳永氏が訪れ、ヒ素被害住民の状況並びに安全な水を供給できる可能性の調査を実施した。

B-2. GSFの性能及びヒ素汚泥の溶出試験

ため池水を浄化して飲料水を供給する Pond Sand Filter(PSF)が乾季の終わりに池の水が底につき利用できなくなった。そのため、稼働中のPSFと全く同じ構造のものを建設して、井戸水を入れ

て、ヒ素除去機能をチェックした。ヒ素汚泥タンクの底部にたまっている汚泥を適宜、採取し、ヒ素と鉄の共沈物であるヒ素汚泥のヒ素含有量とその溶出特性について検討した。

B-3. 中国フルホト市での調査研究

調査研究の対象者は、中国内蒙古自治区フルホト市の住民で農業と牧畜で生計を立てている農民であった。ヒ素暴露者群は54名、年齢は2-34歳、男性18名、女性36名、このうち小児28名、成人26名を選んだ。対照群として、中国のヒ素飲料水基準(0.05 ppm)を満たす井戸水を使用している39名を選んだ。尿中8-OHdG濃度によるDNA損傷の調査において、対照群は瀋陽市在住の中国人成人80名から求めた。

この研究は中国医科大学の倫理委員会の承認を得て中国医科大学の医師、大学院生らが中心となり調査を遂行した。検体の採取に際しては、被検者から書面によりインフォームドコンセントを得た。

B-4. 炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の検討

バングラデシュ・ナワブガンジ市において、18家庭を調査対象とし、それぞれの家庭から生コメ・実際に炊いたコメ・炊飯用水を採取した。コメについては、凍結乾燥後の試料をすり鉢にて粉碎したものをマイクロウェーブ分解装置を用いて分解した。分解の際には、試料0.5gに硝酸4ml及び過酸化水素1mlを添加し、分解抽出を行った。これら前処理を行ったサンプルのヒ素濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP/MS)にて分析を行った。

C. 結果

C-1. バングラデシュでの地下水のヒ素汚染地域の探索

平成16年12月21日、研究班会議を開き、1. 共同研究のカウンターパートはICDDR,Bで良いのか、2. ICDDR,Bと共同研究した場合、今後の交渉はどうするのか、3. ICDDR,BのClinical Biochemistry LabのChowdhury氏の要望はどうするのか、4. Arsenic safe waterの供給はどうするのかを検討した。ICDDR,Bは既に各国の研究者

と共同研究を行っており、新たに新規で参入するのは無理ではないかとの結論に達した。次に、バングラデシュ側のパートナーとしては、ラシャヒ大学地質・鉱山学部のHamidur Rahman教授を選定し、ChapaiNawabganj DistrictのCHUNAKHALI村、BAHARAM村及びRAZARAMPUR村の村境を今回の研究課題の候補地に、1) ヒ素患者の一人がdeep tubewellの管理を行った経験があること、2) deep tubewell、電動ポンプ、水供給タンクの設定に必要な土地をcommunityの世話役が所有しており、地下水のヒ素被害を十分に理解し、安全な水の供給システム(deep tubewellの使用)を願い、土地の供給を申し出ていること、3) 動力源とする電気代についてもモスクで行われる金曜礼拝の際の住民の寄付金の一部を使用できるの可能性があること、4) 我々の研究が修了後のシステムの維持管理がこのcommunityの共同運用で可能であること、6) deep tubewellの掘削、各種の必要工事をRahman教授が中心となり、地元業者と交渉に当たってくれること、7) Rahman教授は大野先生のグループと飲料水中のヒ素除去のプラントの建設・運営で実績があること等から選定した。

C-2. GSFの性能及びヒ素汚泥の溶出試験

メンテナンスサイクルの長期化のため、2004年1月にGravel Tank底面にパイプチップを混入した。これにより底面の間隙が大きくなりGravel Tankの目詰まりを軽減できた。しかし、2004年1月~10月間のモニタリングの結果、ヒ素除去性能が低下していることが判明した。そのため、改良工事を行った。ヒ素除去の性能試験の結果、Supply Tankにおいてバングラデシュの飲料水基準0.05mg/lを満たしているが、Gravel Tank内でヒ素除去が十分にはできていないことが分かった。洗浄を行い、モニターを続行中している。

汚泥中のヒ素含有量は約70~280mg/kgであり、ヒ素溶出量は約0.5~6.0mg/kgであった。汚泥中のヒ素は、特別な処理を行わなくても汚泥中に90%以上、封じ込められることが明らかとなった。バングラデシュにはヒ素の排出基準がないが、これらの汚泥のうち、日本における産業廃棄物管理型最終処分場の埋め立て基準である0.30mg/l以

下を示すものは、そのまま、地中処分でもいいと考えられる。しかし、高濃度のものは、セメント固化などの封じ込めが必要であると思われる。

C-3 中国フルホト市での調査研究

対照群とヒ素暴露者群の井戸水中の無機ヒ素濃度はそれぞれ0.04 mg/l、0.16 mg/lであった。54名の高濃度のヒ素暴露者群に、慢性ヒ素中毒の主要症状である色素沈着、色素脱失、角化症は認められなかった。54名の高濃度ヒ素暴露者群は暴露期間も約7年間を経過しており、経験則の上では発症が認められるものである。このことから、これらの調査対象者は注意深く継続観察することが、慢性ヒ素中毒発症の機序解明に貢献するものと考えられた。

0.04 mg/lの無機ヒ素を含む井戸水を飲んでいる対照群の尿中ヒ素濃度は低値であった。これに対して、0.16 mg/lの無機ヒ素を含む井戸水を飲んでいるヒ素暴露者群の尿中ヒ素濃度は対照群に比較して約23倍の高値であった。

高濃度ヒ素暴露者群の小児と成人は共通して対照群に比較して尿中8-OHdG濃度の上昇傾向が認められた。

C-4 炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の検討

調査した18家庭における生のコメ・炊いたコメの平均ヒ素濃度と標準偏差はそれぞれ0.25±0.13, 0.32±0.16 (mg/kg-dry)であった。生のコメと炊いたコメのヒ素濃度を比較すると、約6割の家庭で炊飯後にコメのヒ素濃度が増加した。炊飯用水中のヒ素濃度は0.037±0.067 (mg/l)であり、約4割の家庭においてバングラデシュの水質基準値(0.05mg/l)以上のヒ素を含む水を炊飯用水として使用していた。

D. 結論

D-1. バングラデシュでの地下水のヒ素汚染地域の探索

バングラデシュ側のパートナーのラシャヒ大学地質・鉱山学部のHamidur Rahman教授を通して、ChapaiNawabganj DistrictのCHUNAKHALI村、BAHARAM村及びRAZAMPUR村の村境に安全な水を供給するdeep tubewellの掘削と動力など施設の建設に向

けてcommunityの責任者、土地所有者並びに地方政府との交渉を進めて行くことになった。

D-2 GSFの性能及びヒ素汚泥の溶出試験

ヒ素除去装置のヒ素除去性能は高いものがあり、現在、メンテナンスを簡略化するための工夫を行ないながらの供用中となっている。また、ヒ素汚泥の処分に関しては、ヒ素汚泥は粉末にして溶出させても、ヒ素は90%以上も汚泥中に閉じ込められることが分かった。

D-3 中国フルホト市での調査研究

この調査対象地域は内蒙古で内陸部にあることから、海洋性魚介類中ヒ素の主体であるトリメチル化ヒ素(アルセノベタイン)は全員から検出されなかった。このヒ素暴露者群の尿中IMD濃度は、これまで経験してきた慢性ヒ素中毒患者の値に類似していた。対照群とヒ素暴露者群の井戸水中無機ヒ素濃度は0.04 mg/l、0.16 mg/lであり、慢性ヒ素中毒の主要症状である色素沈着、色素脱失、角化症は認められなかった。慢性ヒ素中毒発症の機序解明のために継続して観察する必要があることが示唆された。高濃度のヒ素暴露者群の小児と成人は対照群に比較して尿中8-OHdG濃度の上昇傾向が認められた。

D-4 炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の検討

炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の差と炊飯用水のヒ素濃度には強い正の相関が見られた。炊飯用水や調理用水を含めた水からの摂取量と食料からの摂取量について総合的な暴露量調査を行う必要がある。さらに、食料からのヒ素摂取量については、無機ヒ素と有機ヒ素では毒性の大きさが異なるため、形態別ヒ素濃度の分析についても検討を行う必要がある。

E. 研究発表

1. 論文発表

Hiroshi Tokunaga, Tarit Roychowdhury, Tadashi Uchino, Masanori Ando, "Urinary arsenic species in an arsenic-affected area of West Bengal, India(part III)", Appl. Organometal. Chem., 2005, 19, 246-253.

Tarit Roychowdhury, Hiroshi Tokunaga,

Tadashi Uchino, Masanori Ando, "Effect of arsenic-contaminated irrigation water on agricultural land soil and plants in West Bengal, India", *Chemosphere*, 2005, 58, 799-810.

横田 漠：「バングラデシュにおける地下水砒素汚染の循環モデルの検証と砒素除去装置の開発」、平成13-15年度科学研究費補助金(基盤研究)B(2)研究成果報告書、平成16年3月。

Yoshida T., Yamauchi H., et al., Chronic health effects in people exposed to arsenic via the drinking water: dose-response relationships in review. *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, 198, 243-252, 2004.

Yamauchi H., Aminaka Y., et al., Evaluation of DNA damage in patients with arsenic poisoning: urinary 8-hydroxydeoxyguanine. *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, 198, 291-296, 2004.

大野浩一、古川明彦、林健司、亀井翼、眞柄泰基(2004) バングラデシュにおける地下水ヒ素濃度と他の金属・イオン類濃度との関連、環境工学研究論文集, 41, 591-600

2. 学会発表

徳永裕司、Tarit Roychowdhury、内野 正、安藤正典：「インド西ベンガル州の地下水ヒ素汚染地域でのヒト尿中ヒ素化合物に関する研究」、フォーラム2004：衛生薬学・環境トキシコロジー、平成16年10月。

内野 正、Tarit Roychowdhury、徳永裕司：「バングラデシュにおけるヒ素汚染に関する研究：稲中へのヒ素蓄積について」、フォーラム2004：衛生薬学・環境トキシコロジー、平成16年10月。

Hiroshi Yokota, "Arsenic pollutions of groundwater in the world and arsenic removal unit installed in Bangladesh", Keynote Lecture, Vietnam-Japan Joint Seminar on Geotechnics and Geoenvironment Engineering, Hanoi, November, pp.226-242, Oct., 2004.

Miah M. Hussainuzzaman, Yohei Setoyama, Daisuke Kataoka, Hiroshi Yokota, "Arsenic Removal Performance Analysis of the Gravel

Sand Filter", Vietnam-Japan Joint Seminar on Geotechnics and Geoenvironment Engineering, Oct., 2004.

Miah M. Hussainuzzaman, Yohei Setoyama, Daisuke Kataoka, Hiroshi Yokota, "Performance and Maintenance of Arsenic Removal Unit Installed at Bangladesh", International Symposium on Lowland Technology, 2004 (ISLT 2004), Bangkok, Thailand, September, 2004.

中添真弥、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2004) 鉄系凝集剤 PSI によるヒ素除去に関する研究、第55回全国水道研究発表会講演集、pp.140-141

江端克明、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2004) PSI を用いた凝集処理における攪拌条件とフロック粒径との関係、第55回全国水道研究発表会講演集、pp.142-143

K. Ohno, A. Furukawa, K. Hayashi, T. Kamei and Y. Magara (2004) Arsenic Contamination of Groundwater in Nawabganj, Bangladesh, Focusing on the Relationship with Other Metals and Ions, The Proceedings of 4th IWA World Water Congress, in CD-ROM (paper ID: 134280), Marrakech, Morocco

大野浩一(2004) ヒ素とアンチモンのNF膜による処理、ニューメンブレンテクノロジーシンポジウム2004、pp.2-1-1~2-1-11

草野真一、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2004) 鉄系凝集剤 PSI を用いた有害金属類の凝集効果とE260による迅速な処理性評価、第12回衛生工学シンポジウム論文集、pp.117-120

梁瀬達也、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2004) バングラデシュ井戸水ヒ素汚染地域における食物中ヒ素の分析、第41回環境工学研究フォーラム講演集、140-142

F. 知的財産権の出願・登録状況

特になし

厚生労働科学研究費（健康総合研究事業）

分担研究報告書

ヒ素汚染の地下水を飲用する住民の尿・毛髪等からのヒ素暴露評価と健康影響に関する研究

主任研究者 徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部長

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約4700万人、中国で約300万人とされている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は20数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。特に、バングラデシュにおけるヒ素汚染は非常に深刻である。本研究では、地下水のヒ素汚染地域のバングラデシュにおいて、地域を限定した住民を対象にした安全な飲料水の給水システムの確立と安全な水を供給する前後での尿・毛髪中のヒ素代謝物の動態の変化の検討と安全な水を供給することによるヒ素被害の低減による各種のバイオパラメーターの変化を検討する。本年度は、バングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地の協力者の調査を中心に行った。平成16年12月4日～9日にかけてバングラデシュ国際下痢性疾患研究センター（ICCDR, B）では Dr. Mahfuzar Rahman がパートナーとして対応した。ICCDR, B の Matlab 地区では、Matlab 地域センターが2002年より、Arsenic Matlab 計画を実施し、ヒ素患者数、井戸水中のヒ素量の調査を行っている。この地区のヒ素患者数は506名であった。共同研究のパートナーとしての ICCDR, B の Matlab 地区は NGO の BRAC の協力のもと、各国の研究者と既に共同研究を行っており、新たに新規で参入するのは無理ではないかとの結論に達した。日本の NGO として、バングラデシュのジョソール県で実績のあるアジアヒ素ネットワーク（AAN）と話し合いを行ったが、JICA での5年間の活動が修了の段階であり、調査研究が AAN の活動として申請していないということでパートナーとして断念した。平成17年2月28日～3月3日にかけてバングラデシュ・ラシャヒ市 Chapai Nawabganj 地区をラシャヒ大学の Hamidur Rahman 教授をパートナーとして訪れた。Shallow tubewell のヒ素汚染を調べるため、Department of Public Health Engineering (DPHE) の Chapai Nawabganj 地区事務所を訪れ、所長の Shahab Uddin 氏から Chapai Nawabganj 地区の tubewell のヒ素汚染状況、deep tubewell の建設計画などの情報を収集した。地下水のヒ素汚染が激しく、100人規模のヒ素患者が発生している CHUNAKHALI 村、BAHARAM 村及び RAZARAMPUR 村を訪れ、ヒ素患者と話をすると同時に deep tubewell の建設が可能かどうかの調査を行った。その結果、下記の理由から、この地点を deep tubewell の掘削の候補地とし、安全な水の供給のプログラムを進めることにした。1) ヒ素患者の一人が deep tubewell の管理を行った経験があること、2) deep tubewell、電動ポンプ、水供給タンクの設置に必要な土地を community の世話役が所有しており、地下水のヒ素被害を十分に理解し、安全な水の供給システム（deep tubewell の使用）を願い、土地の供給を申し出ていること、3) 動力源とする電気代についてもモスクで行われる金曜礼拝の際の住民の寄付金の一部を使用できるの可能性があること、4) 我々の研究が修了後のシステムの維持管理がこの community の共同運用で可能であること、6) deep tubewell の掘削、各種の必要工事を Rahman 教授が中心となり、地元業者と交渉に当たってくれること、7) Rahman 教授は研究班員の大野先生（北海道大学工学部）のグループと飲料水中のヒ素除去のプラントの建設・運営で実績があること、8) Rahman 教授は横田先生と shallow tubewell の掘削に当たり、協力して実施した経験があることである。

A. 研究目的

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約4700万人、中国で約300万人と言われている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は20数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。特に、バングラデシュにおけるヒ素汚染は非常に深刻で、2003年3月に開催された世界水フォーラム（京都）においても、早急に解決すべき問題の一つとして取り上げられた。この国のヒ素汚染に対して、数多くの国際機関が調査し、安全な水供給の施策を行ってきた。しかし、ヒ素汚染問題に対する根本的な解決の糸口はみられていない。この原因として、ヒ素処理前後でのヒ素暴露量の推定がなされていない、給水体制の面からヒ素処理水の確保が十分でない、ヒ素処理装置の維持管理の問題、ヒ素処理後のヒ素含有汚泥による2次的な環境汚染の問題が指摘できる。本研究では、地下水のヒ素汚染地域のバングラデシュにおいて、地域を限定した住民を対象にした安全な飲料水の給水システムの確立と安全な水を供給する前後での尿・毛髪中のヒ素代謝物の動態変化の検討と安全な水を供給することによるヒ素被害の低減による各種のバイオパラメーターの変化を検討する。

本年度は、バングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地の協力者の調査を中心に行った。

B. 研究方法

B-1. 地下水のヒ素汚染地域の探索

B-1-1. バングラデシュ国際下痢性疾患研究センター (ICDDR, B) をパートナーとする調査

平成16年12月4日～9日にかけて ICDDR, B では Dr. Mahfuzar Rahman (Arsenic and Environmental Epidemiologist, Public Health Sciences Division)がパートナーとして対応した。

ICDDR, B には、ヒ素の測定に還元気化法を用いた AAS の装置(Nutritional Biochemistry Lab)と国際厚生事業団が寄贈した2台の AAS 装置 (Clinical Biochemistry Lab)が設置されていた。また、Matlab 地区は22万人の住民が生活し、その地区を6分割し、ICDDR, B は3区画11万人の住民を Matlab 地域センターは管理していた。Matlab 地域センターは下痢性疾患の入院病棟を管理すると同時に住民基本台帳の管理も行っている。2002年より、AsMat(Arsenic Matlab)計画を ICDDR, B は始め、Matlab の3区画のヒ素患者、井戸水中のヒ素量(フィールドテストキットとAAS)、各井戸を使用する住民の履歴などのデータを約80名の調査員が毎月調査に当たり、必要なファイルの更新を行っている。この地区のヒ素患者数は506名との報告であった。また、代替水源として、pond-sand filter、deep-tubewell、アルカンフィルター等を用い、NGOのBRACがICDDR, Bの施策をサポートしていた。新たに、BRACは、来年2月を目途に、対象住民5000人で1006家族に対し、deep-tubewellの掘削とpipe給水を行う計画を持っているとの説明をBRACの同行者から受けた。AsMat計画で採取された水などの試料はNutritional Biochemistry Labのヒ素の還元気化-AAS装置で測定を行っていた。

Dr. Mahfuzar RahmanからICDDR, Bは、既に、井戸水、尿のサンプルを集め、Sweedenを含めて数カ国と共同研究を行っている。ICDDR, Bのメリットは何なのか。deep-tubewellとpipe配管の費用の負担(BRACの同行者の説明では10万円位、Dr. Mahfuzar Rahmanではその10倍位)。共同研究する際には、日本でのサンプルの分析の状況の分析などの実情調査のため、Dr. Mahfuzar Rahmanの日本への派遣の要請があった。

Mr A. K. Chowdhury (Head, Clinical Biological Lab)から国際厚生事業団が供与したAAS装置2台は外部からの分析依頼があまりなく、役立っているとは言いがたい。NISTの標準試料を使っているvalidationあるいは外部機関とのcross-checkを実施していないため、十分な信頼度が得られていないとの指摘があり、日本側の何らかの協力の依頼

があった。

B-1-2. ICCDR, B をパートナーとする調査の方針

平成16年12月21日、国際厚生事業団の会議室で研究班会議を開催した。出席者は、国包(国立保健医療科学院)、山内(聖マリアンナ医科大学)、大野(北海道大学工学部)、徳永(国立医薬品食品衛生研究所)、吉川(厚生労働省国際課)及び菅原(国際厚生事業団)の班員4名と厚生労働省国際課及び国際厚生事業団の各1名であった。ICCDR, B の訪問の報告を基に下記の論点に従い検討を行った。1. 共同研究のカウンターパートは ICCDR, B で良いのか、2. ICCDR, B と共同研究した場合、今後の交渉はどうするのか、3. ICCDR, B の Clinical Biochemistry Lab の Chowdhury 氏の要望はどうするのか、4. Arsenic safe water の供給はどうするのかの4点であった。

「1. 共同研究のカウンターパートは ICCDR, B で良いのか」の点に関して、Matlab 地区は ICCDR, B が BRAC の協力のもと、各国に研究者と共同研究を行っており、新たに新規で参入するのは無理ではないかとの結論に達した。Deep-tubewell あるいは pond-sand filter の設置あるいは設置後の必要な装置の maintenance を含めて、ジョソール県で実績のある日本 NGO のアジアヒ素ネットワーク(AAN)と話を進めればどうかとの方向が示された。主任研究者の私が、AAMN のメンバーである班員の横田先生を通して AAN に連絡をとることとされた。Chowdhury 氏への support に関しては、NIST 等の標準試料(尿、毛髪及び牡蠣の粉末)の調査を行い、厚生労働科学研究班の研究費で購入し、提供することとされた。

B-1-3. AAN をパートナーとする調査

AAN の事務局長の川原氏と連絡が取れ、当研究班の要望を説明した。

それに関して、下記の連絡を川原氏より受け取った。

バングラ現地の判断・結果を転送します。残念ながらお引き受けはできないのではないかと、このことです。その理由は以下のようです。

1) バングラデシュで NGO として活動するためには、「NGO ビューロー」に活動内容を届け

て NGO 活動の認可をとることが必要です。現在の AAN バングラデシュはその登録の際に研究活動を申請していない。

2) AAN バングラはこれまで JICA の活動を中心にしてきましたが、その JICA プロジェクトが本年の12月で終了します。これを機会に AAN バングラは現地の若者を主体とした NGO に変わろうとしています。現在、現地でバングラ若者が議論中です。その議論にはおそらく研究活動は入ってこないのではないかと、この判断です。新 AAN バングラが動き出すのは4月以降ですが、現在のところその NGO 活動内容は確定していないので、お申し出に対応しにくいとの判断です。

なお、AAN バングラには Executive committee や Steering committee があり、日本の AAN とは局面、局面で相談しながらその同意は得て活動してきておりますが、基本的には独立しているようです。法律的なことは良くは分からないのですが……。

お力添えできずに申し訳なく思っています。BUET の Prof. Feroze に相談すれば、カウンターパートが見つかるかもしれません。

以上の結果より、AAN をバングラデシュ側のパートナーとして要望することを断念した。

B-1-4. Professor Hamidur Rahman をパートナーとする調査

平成17年2月28日～3月3日までバングラデシュ人民共和国ラシャヒ市 Chapai Nawabganj 地区をラシャヒ大学の Hamidur Rahman 教授をパートナーとして訪れ、地下水のヒ素汚染地域でヒ素患者が発生し、かつ、Department of Public Health Engineering(DPHE)等により近い将来、安全な水の供給が計画されている地域の調査を行った。

2月28日(月)の12時にダッカ空港に到着後、荷物の受け取りに少々時間がかかったが無事に空港外に出ることができた。空港内では ICCDR, B の職員の待ち合わせを受け、ICCDR, B の A. K. Chowdhury 氏の検査室で使用する標準試料(凍結乾燥の尿、牡蠣の粉末及び毛髪)の3種類を手渡した。空港の出口でラシャヒ大学の

Hamidur Rahman 教授の出迎えを受け、借り上げた車で直ちにラシャヒ市に向かった。

今回の調査は、昨年12月の国包、大野先生及び私の3名が ICDDR, B のマトラブ地区の調査を行ったが、研究実施のスポットとして不十分であるとの結論に達したため、私が単独で調査を行った。

3月1日(火)、Rahman 教授と奥さんの Bilkis Begum 助教授の案内で、大野先生が調査地点に行っている ChapaiNawabganj 地区の UPO RAJARAMPUR 村を訪れ、ヒ素が発症している患者(hyperkeratosis)のお宅を訪ねた。この家族は数年前から shallow tubewell を掘り抜き井戸に変えており、ヒ素の症状も緩解しているとの事であった。この UPO RAJARAMPUR 村は安全な水の確保のために何らかの手当がされている地域であるとの説明を Rahman 教授から受けた。そこで、DPHE の ChapaiNawabganj 地区事務所を訪れ、事務所長の Shahab Uddin 氏から ChapaiNawabganj 地区の deep tubewell の建設計画などの情報を収集した。Table 1 に DPHE の ChapaiNawabganj 地区事務所で購入した ChapaiNawabganj 地区の測定対象となった村落の tubewell の数、安全な tubewell の数、ヒ素汚染の tubewell の数などを示した。その結果、100人規模のヒ素患者が出ており、まだ、何ら手当のされる目途のない地域を DPHE 職員の Rafiqui 氏の案内のもとで訪れ、簡単な調査(ヒ素患者の家庭の訪問及び飲料水の採取)をした。

3月2日(水)、Rahman 教授夫妻と昨日訪れた地点(CHUNAKHALI 村、BAHARAM 村及び RAZARAMPUR 村)を訪れ、ヒ素患者と話をすると同時に deep tubewell の建設が可能かどうかの調査を行った。調査地点は3つの村の境界であり、モスクと広場があった。その広場の周りの井戸18本から水の採取と住民との話を行った。ヒ素患者の一人が deep tubewell の管理を行った経験があること並びに広場の土地の所有者がこの community の世話役であり、ヒ素被害の充分に理解し、是非に安全な水の供給システム(deep tubewell の使用)を願っていること、また動力源とする電気代についてもモスクで行われる金曜礼拝の際の住民の寄付金の一部が使用できるのではないかなどの提案を

受けた。Rahman 教授との話合いで deep tubewell、動力源のモータ、モーター小屋、数本の給水タンクおよび簡単な蛇口が施設として必要ではないかなどの提案を受けている。建設等に関しては、Rahman 教授が責任を持って引き受けてくれることになった。

B-2. 飲料水中のヒ素を含む6元素の分析

飲料水 0.5 ml を正確に量り、0.1 mol/l 硝酸 0.5 ml を正確に加え、試料溶液とした。試料溶液 100 μ l を reodyne 製 loop-injector に注入し、島津製 LC-10AT 型液体クロマトポンプで 0.7ml/min の流量で HP4500 型 ICP/MS 装置に送液し、試料溶液中の9元素量を測定した。各元素量は、各元素の10及び50 ppb を含む 0.1 mol/l 硝酸溶液を調製し、その 100 μ l を用いて作成した検量線より求めた。

C. 結果

C-1 バングラデシュのパートナー及び候補地について

バングラデシュ側のパートナーとしては、ラシャヒ大学地質・鉱山学部の Hamidur Rahman 教授を選定し、これまで大野先生(北海道大学工学部)が精力的に調査を行ってきた地下水のヒ素汚染地域である ChapaiNawabganj District の CHUNAKHALI 村、BAHARAM 村及び RAZARAMPUR 村の村境を今回の研究課題の安全な水を供給する前後での尿・毛髪中のヒ素代謝物の動態の変化の検討と安全な水を供給することによるヒ素被害の低減による各種のバイオパラメーターの変化を検討する候補地に選定した。

その理由は下記の通りである。1) ヒ素患者の一人が deep tubewell の管理を行った経験があること、2) deep tubewell、電動ポンプ、水供給タンクの設置に必要な土地を community の世話役が所有しており、地下水のヒ素被害を充分に理解し、安全な水の供給システム(deep tubewell の使用)を願い、土地の供給を申し出ていること、3) 動力源とする電気代についてもモスクで行われる金曜礼拝の際の住民の寄付金の一部を使用できるの可能性があること、4) 我々の研究が終了後のシ

システムの維持管理がこの community の共同運用で可能であること、6) deep tubewell の掘削、各種の必要工事を Rahman 教授が中心となり、地元業者と交渉に当たってくれること、7) Rahman 教授は大野先生のグループと飲料水中のヒ素除去のプラントの建設・運営で実績があること、8) Rahman 教授は横田先生と shallow tubewell の掘削に当たり、協力して実施した経験があることである。

C-2. 飲料水中のヒ素を含む6元素の分析

各元素量は、各元素の 10 及び 50 ppb を含む 0.1 mol/l 硝酸溶液を調製し、その 100 μ l を用いて作成した検量線を作成し、Fig. 1 に示した。

Fig. 1 から分かるように、検量線は原点を通る良好な直線性を示した。

今回の調査でヒ素症状が手の平、胸あるいは足の裏に出ている住民が用いている井戸水 (A~I) あるいは deep tubewell の掘削の候補地の広場の周りの家庭で使用している水 (No. 1~No. 18) を採取し、その中に含まれる Cu, As, Se, Cd, Sb 及び Hg の 6 種類の元素の測定を行い、その結果を Table 2 に示した。

Table 2 から分かるようにバングラデシュの飲料水のヒ素基準の 50 ppb を超える水を用いている家族は調査した 28 家族の内の 4 家族であった。A~I の家族には、ヒ素被害の患者がいるが、飲料水中のヒ素量がバングラデシュの飲料水の基準内のものも見受けられる。これらに関しては、今後、詳細な検討が必要な部分である。また、deep tubewell の掘削の候補地の周りの 18 本の shallow tubewell の水の中のヒ素濃度も tubewell 毎にバラバラであった。安全な deep tubewell の水を供給する際には、使用している shallow tubewell のヒ素濃度を十分に調査し、ヒ素被害の状況と合わせて詳しく調査し、調査対象家族を十分に精査する必要があることが明らかになった。

D. 結論

1. バングラデシュ側のパートナーとしては、ラシャヒ大学地質・鉱山学部の Hamidur Rahman 教授を選定した。
2. 調査の候補地として、バングラデシュ人民共

和国の Chapai Nawabganji 地区を選定した。

3. Rahman 教授を中心に安全な水を供給するため deep tubewell を掘削し、動力ポンプ、ポンプ小屋、給水タンクを設置を検討し、現地の業者あるいは地方政府との交渉を依頼することとした。
4. 28 家族が利用する tubewell から採取した水の中のヒ素濃度は 4 家族がバングラデシュの飲料水のヒ素基準を超えていた。

E. 研究発表

1. 論文発表

Hiroshi Tokunaga, Tarit Roychowdhury, Tadashi Uchino, Masanori Ando, "Urinary arsenic species in an arsenic-affected area of West Bengal, India(part III)", Appl. Organometal. Chem., 2005, 19, 246-253.

Tarit Roychowdhury, Hiroshi Tokunaga, Tadashi Uchino, Masanori Ando, "Effect of arsenic-contaminated irrigation water on agricultural land soil and plants in West Bengal, India", Chemosphere, 2005, 58, 799-810.

2. 学会発表

徳永裕司、Tarit Roychowdhury、内野 正、安藤 正典：「インド西ベンガル州の地下水ヒ素汚染地域でのヒト尿中ヒ素化合物に関する研究」、フォーラム 2004：衛生薬学・環境トキシコロジー、平成 16 年 10 月。

内野 正、Tarit Roychowdhury、徳永裕司：「バングラデシュにおけるヒ素汚染に関する研究：稲中へのヒ素蓄積について」、フォーラム 2004：衛生薬学・環境トキシコロジー、平成 16 年 10 月。

F. 知的財産権の出願・登録状況

特になし

Table 1-1 Number of villages, of tubewells, of arsenic-contaminated tubewells and of arconisis in ChapaiNawabganj District

Name of NGO	Measured No. of	Measured No. of Ward	Name of union	Total No. of tubewell	Running tubewell	No. of safe tubewell	No. of Arsenic-contaminated	Arsenic-contaminated tubewell (%)	Identified No. of arconisis by MO
Care	23	9	Chakkirti	2004	1862	1446	516	26.3	2
Care	23	9	Daipnkuria	2002	1953	1927	26	1.3	-
Care	20	9	Ghorapakhia	1184	1158	897	261	22.54	4
Care	24	9	Kansat	3157	3124	3040	84	2.69	-
Care	29	9	Mobarakpur	1714	1661	1583	78	4.7	-
Care	22	9	Chatrajitpur	1902	1862	936	926	49.73	128
Care	29	9	Shyampur	2856	2841	2366	475	16.72	-
Care	28	9	Durlavpur	3882	2797	3176	621	16.35	23
Care	30	9	Shabajpur	3555	3507	2880	627	17.88	34
Care	41	9	Nayalabhanga	4071	3999	2338	1661	41.53	21
Care	18	9	Dhainagar	1754	1648	1559	89	5.4	-
Care	9	9	Panka	1572	1558	1431	127	8.15	9
Care	9	9	Vijpur	671	655	615	40	6.1	-
Dasco	-	-	Binodpur	-	-	-	-	-	-
Dasco	8	4	Manakasha	1550	1550	1526	24	1.55	-
Shibganj Sb-district	Total			31874	30275	25720	5555	17.76	221
Dasco	53	9	Nachol	586	505	505	-	-	-
Dasco	43	9	Nijampur	425	341	341	-	-	-
Dasco	32	9	Kasba	506	418	418	-	-	-
I.D.E	46	9	Fatepur	1096	1077	1003	74	6.87	-
Nachol Sub-district	Total			2341	2267	74	6.87	3.16	-

Table 1-2 Number of villages, of tubewells, of arsenic-contaminated tubewells and of arconisis in ChapaiNawabganj District

Name of NGO	Measured No. of	Measured No. of Ward	Name of union	Total No. of tubewell	Running tubewell	Safe No. of tubewell	Arsenic-contaminated No. of tubewell	Arsenic-contaminated tubewell (%)	Identified No. of arconisis by MO
Dasco	17	7	Maharapur	737	736	583	583	20.71	-
Dasco	2	1	Barghoria	600	595	407	407	31.6	-
Dasco	7	6	Ranihati	1511	1482	748	748	49.5	103
Dasco	13	6	Baliadanga	836	803	714	714	11.08	1
Dasco	2	2	Gobratata	152	148	147	147	0.68	-
Dasco	37	8	Islampur	1750	1727	1458	1458	15.58	-
Dasco	30	9	Narayanpur	1772	1736	1678	1678	3.34	5
Dasco	9	9	Shahjahanpur	1812	1793	1707	1707	4.8	-
Dasco	28	9	Sundarpur	2183	2132	1544	1544	27.58	-
Care	9	9	Char-Annpnagar	546	539	279	260	48.24	2
Care	9	9	Alatuli	1285	1256	1191	65	5.18	-
Care	9	9	Debinagar	1552	1507	1253	254	16.85	-
Care	24	9	Jhilim	427	382	382	-	-	-
Care	18	9	Char-Bagdanga	2078	2061	2034	27	1.31	-
Nababganj Sub-district	Total			17241	16897	14125	9592	16.4	111
I.D.E	35	9	Radhanagar	578	542	542	-	-	-
I.D.E	34	9	Gomastapur	1523	1496	1115	381	25.47	-
I.D.E	30	9	Boyalia	765	726	653	73	10.05	-
I.D.E	26	9	Chowdala	1517	1438	1099	339	23.54	-
I.D.E	66	9	Parbartipur	442	399	399	-	-	-
I.D.E	12	9	Alimagar	530	500	498	2	0.4	-
I.D.E	23	9	Bangrabari	678	623	557	66	10.59	-
I.D.E	32	9	Rahanpur	322	289	289	-	-	-
Gomastapur Sub-district	Total			6355	6013	5152	861	15.04	-
I.D.E	15	9	Gohalbari	1049	1003	977	26	2.59	-
I.D.E	17	9	Jambaria	727	722	721	1	0.14	-
I.D.E	23	9	Bholahat	1600	1534	1469	65	4.24	-
I.D.E	29	9	Daldali	781	719	657	62	8.62	-
Bholahat Sub-district	Total			4157	3978	3824	154	3.84	-
Care	128	15	Nababganj Municipality	17128	16551	9078	7473	45.15	221
Care	36	9	Shibganj Municipality	4143	4123	3671	452	10.96	13
I.D.E	51	9	Rahanpur Municipality	1553	1537	1537	-	-	-

Table 1-3 Number of tubewells, of arsenic-contaminated tubewells and of arconisis

	Total No. of tubewell	Running tubewell	Safe No. of tubewell	Arsenic-contaminated No. of tubewell	Arsenic-contaminated tubewell (%)	Identified No. of arconisis by MO
Village (Total)	62237	60215	50769	9416	15.654	332
Municipality (Total)	22824	22211	14286	7925	35.68	234
District (Total)	85061	82426	65085	17341	21.04	566

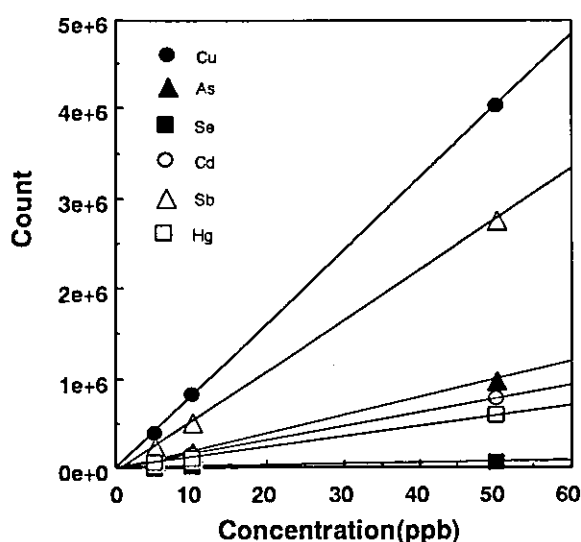


Fig.1 Working curves for Cu, As, Se, Cd, Sb and Hg

Table 2 Amounts of 6 elements in drinking waters obtained from ChapaiNawabganj District

(unit: ppb)

	Cu	As	Se	Cd	Sb	Hg
A(water)	0.7	2.0	4.0	1.1	1.8	2.1
B(water)	0.0	0.0	1.9	0.0	1.6	0.0
C(water)	0.0	11.1	1.8	0.0	1.5	0.0
D(water)	0.0	50.1	1.6	0.0	1.5	0.0
E(water)	0.0	56.9	1.7	0.0	1.5	0.0
F(water)	0.0	7.4	0.0	0.0	0.0	0.0
G(water)	0.0	11.9	1.6	0.8	1.5	0.4
H-1(water)	0.0	6.3	1.6	0.0	0.0	0.0
H-2(water)	0.3	5.5	1.7	0.0	0.0	0.0
I(water)	0.0	7.9	1.7	0.0	0.0	0.0
No.1(water)	0.0	11.5	0.0	0.0	0.0	0.0
No.2(water)	0.0	27.9	1.6	0.0	0.0	0.0
No.3(water)	0.7	3.9	1.6	0.0	1.5	0.0
No.4(water)	0.0	25.5	1.6	0.0	0.0	0.0
No.5(water)	0.0	7.5	1.6	0.0	0.0	0.0
No.6(water)	0.0	1.5	2.1	0.0	0.0	0.0
No.7(water)	0.0	65.2	1.6	0.8	1.4	0.4
No.8(water)	0.1	13.5	1.7	0.0	0.0	0.0
No.9(water)	0.0	2.7	1.5	0.8	1.4	0.4
No.10(water)	0.0	1.3	0.0	0.0	0.0	0.0
No.11(water)	0.0	1.3	1.7	0.8	0.0	0.0
No.12(water)	0.0	0.0	1.8	0.0	0.0	0.0
No.13(water)	0.0	4.5	1.6	0.0	0.0	0.0
No.14(water)	0.0	6.7	0.0	0.0	0.0	0.3
No.15(water)	0.0	46.7	0.0	0.0	0.0	0.0
No.16(water)	0.0	7.3	1.6	0.8	0.0	0.0
No.17(water)	0.0	1.7	2.0	0.0	0.0	0.0
No.18(water)	0.0	1.4	1.8	0.0	0.0	0.0

我々は、砒素除去装置 GSF(Gravel Sand Filter)をバングラデシュのマルア村に開発・設置し、その性能とメンテナンスの改良及び排出される砒素汚泥の処分方法について研究している。ため池水を浄化して飲料水を供給する Pond Sand Filter(PSF) を7~8年前に開発し、現在バングラデシュで25基が稼動している。良好な飲料水を供給するが、乾季の終わりに池の水が底をつき利用できなくなる。乾季にPSFに井戸水を入れて砒素が除去されれば、PSFは通年で利用できる。そこで、稼動中のPSFと全く同じ構造のものを建設して、その砒素除去機能をチェックした。一年間のパフォーマンス試験の結果、砒素はよく除去されたが、3ヶ月に一度は砂利間の砒素・鉄共沈物（砒素汚泥）を除くために、砂利の洗浄が必要であった。しかし、PSFの乾季利用問題は3ヶ月（2月~4月）程度であるので、これは乾季における砒素除去装置として利用に関しては障害にはならない。従って、乾季（3ヶ月）にはPSFはGSFとして利用できることが確認されたといえる。GSFによる飲料水の供給を1年間通して行うため、種々の改良を試みた。メンテナンスサイクルの長期化のため、2004年1月にGravel Tank底面にパイプチップを混入し、Gravel Tankの目詰まりを軽減できた。しかし、2004年1月~10月間のモニタリング結果、砒素除去性能は低下していることが判明した。また、その他に、砒素汚泥の砒素含有量とその溶出特性について検討した。その結果、採取した砒素汚泥の砒素含有量は約70~280mg/kgであり、バングラデシュの泥質層の1.0~18.7mg/kgに比べても非常に高いことが確認できた。また、砒素溶出量は約0.5~6.0mg/kgであり、これは汚泥中砒素量の0.3%~9.0%に相当している。従って、砒素汚泥は、自然環境の中に放置しても、砒素を汚泥中に90%以上、封じ込めることが明らかとなった。また、溶出溶液中の砒素濃度は約0.05~0.7mg/lであった。日本の最終処分場の埋め立て基準である0.30mg/l以下に相当するものは、そのまま、地中処分でもよいが、高濃度の場合はセメント固化などの封じ込めが必要である。そこで、2004年11月に全面改良を行い、Gravel Tank内の水流をこれまでの斜め方向から垂直上向きに変えた。これにより砂利間隙中の沈殿が容易になり、砒素汚泥がGravel Tank底面に落ちやすくなった。2004年12月の性能試験の結果、Supply Tankにおいてバングラデシュの飲料水基準0.05mg/lを満たしているが、Gravel Tank内で砒素除去が十分にはできていないことがわかった。その原因として、Gravel Tank内の流速が速すぎて、砒素と鉄の共沈物が砂利の間隙中に沈殿する前に流れてしまったことが考えられた。1月以降、Gravel Tankで目詰まりが起るなどの問題も発生し、洗浄などを行った上、現在、モニター中である。今回の検討の結果、次のことが明らかになった。1) 改造後の砒素除去率の低下は、流速が大きすぎることが原因であると判断された。鉛直上向きの場合は流速を低下させることが必要であり、現在動水勾配を下げるように工夫中である。2) 砒素汚泥中の砒素含有量は20~250mg/kgの範囲であり、周辺の地層中の砒素含有量は5~10mg/kgに比べて高濃度であり、汚泥中に砒素が蓄積されていることが確認された。3) 溶出試験の結果、砒素の溶出量は0.5~6.5mg/kgであり、汚泥中の砒素含有量の0.3~9.0%に相当した。砒素汚泥は粉末にして溶出させても、砒素は90%以上も汚泥中に閉じ込められるので、処分方法は容易であると考えられる。4) 砒素は鉄と強力な化学結合をしていることが認められた。それが0.3~9.0%の溶出率を示す構造となっている。GSF内で十分に砒素を鉄と共沈させれば、汚泥の処分もそれに対応して容易に行えることが考えられる。

A. 研究目的

バングラデシュでは飲料水の95%を地下水に依存している。しかし、地下水が砒素に汚染されている箇所が多く大きな問題となっている。我々は、砒素除去装置 GSF (Gravel Sand Filter, Fig. 1 参照) をバングラデシュのマリア村に開発・設置し、その性能を検討している¹⁾。GSF は、地下水に含まれる砒素と鉄が酸化状態で吸着・共沈する性質を利用し、この共沈物を Gravel Tank 内の砂利の間隙に沈殿させ地下水中の砒素除去を行うものである。GSF はメンテナンスサイクルの長期化、砒素除去能力の向上のため、改良され続けている^{2)~4)}。

また、今後バングラデシュにおいて GSF により砒素除去を行っていく場合、メンテナンスの際に発生する砒素と鉄の共沈物である砒素汚泥の処理は避けられない問題である。そこで、本研究では、砒素除去装置の性能を確かめること、および排出される砒素汚泥の処分方法を開発することを目的とし、現地において同装置を運転して、装置各点における砒素濃度や水質などを測定の上、砒素除去に影響を与える要因の最適状態を求めている。その後数ヶ月間にわたって、供用中の砒素濃度を現地 NGO が毎週分析し、日本に送られてきたデータを分析して長期パフォーマンスを検討している。また、砒素汚泥については汚泥の溶出試験や含有成分などを日本で行っている。

B. 方法及び結果

B-1. GSF の性能

ため池水を浄化して飲料水を供給する PSF (Pond Sand Filter) が乾季の終わりに池の水が底をつき利用できなくなる。そのため、稼動中の PSF と全く同じ構造のものを建設して、井戸水を入れて、砒素除去機能をチェックした。

Fig. 2 は3ヶ月に一度メンテナンスを行いながら、PSF の砒素除去性能をみたものである。これより、乾季(3ヶ月)には PSF は GSF として利用できることが確認された。今後、GSF を専用の砒素除去装置として稼動させるためには、メンテナンスフリーに近づけなければならない。以下、GSF

による飲料水の供給を1年間通して行うために、メンテナンスサイクルの長期化の観点から、種々の改良を試みた。それについて以下に述べる。

B-2. GSF への改良

メンテナンスサイクルの長期化のため、2004年1月に Gravel Tank 底面にパイプチップを混入した。これにより底面の間隙が大きくなり Gravel Tank の目詰まりを軽減できた。しかし、Fig. 3 に示す2004年1月~10月間のモニタリング結果に見られるように、砒素除去性能が低下していることが判明した。

そこで2004年11月に全面改良を行った。主な改良点は Gravel Tank 内をこれまでの水流を斜め方向から垂直上向きに変えたことである。これは砂利間隙中の沈殿を起こしやすくさせ、かつ砒素汚泥が Gravel Tank 底面に落ちやすいようにするために行ったものである。2004年12月の性能試験の結果、Supply Tank においてバングラデシュの飲料水基準0.05mg/l を満たしているが、Gravel Tank 内で砒素除去が十分にはできていないことがわかった(Fig. 4 参照)。その原因として、Gravel Tank 内の流速が速すぎて、砒素と鉄の共沈物が砂利の間隙中に沈殿する前に流れてしまったことが考えられた。1月以降、Gravel Tank で目詰まりが起こるなどの問題も発生し、洗浄などを行ったうえで、現在、モニター中である。

B-3. 砒素汚泥の溶出試験

砒素汚泥タンクの底部にたまっている汚泥を適宜、採取した。採取日は表1に示すとおりである。砒素と鉄の共沈物である砒素汚泥の砒素含有量とその溶出特性について検討した。その結果、汚泥中の砒素含有量は約70~280mg/kg であり、バングラデシュの泥質層(砒素が主として含まれている地層)の1.0~18.7mg/l¹⁾に比べても非常に高いことが確認できた。Fig. 5 は砒素溶出量を汚泥中の砒素含有量との関係でみたものであるが、砒素溶出量は約0.5~6.0mg/kg であり、これは汚泥中砒素量の0.3%~9.0%に相当している。砒素は、特別な処理を行わなくても汚泥中に90%以上、封じ込められることが明らかとなった。

Fig. 6 は汚泥中の鉄含有量と砒素含有量の関係

を示すものである。また、汚泥中の砒素の溶出割合を溶出率と定義するとき、溶出率と鉄含有量との関係をFig. 7に示している。砒素溶出量は汚泥中の鉄の量が多くなれば、砒素の含有量は高くなり(Fig. 6)、溶出率も低くなっている(Fig. 7)、ことなどが分かる。これは、汚泥中の砒素と鉄は配位子交換反応による内圏型表面錯体をなしているために、化学的に強いポンド力を表しているためと考えられる。Fig. 8に、汚泥中の鉄含有量と砒素溶出濃度との関係を示す。鉄濃度が低くなると砒素の溶出濃度は高くなっている。また、砒素汚泥の溶出濃度は約0.05~0.7mg/lである。バングラデシュには砒素の排出基準がないが、これらの汚泥のうち、日本における産業廃棄物管理型最終処分場の埋め立て基準である0.30mg/l以下を示すものは、そのまま、地中処分でもよいと考えられる。しかし、高濃度のものは、セメント固化などの封じ込めが必要であると思われる。

また、同図より、GSF内で効率よく鉄と砒素を共沈させれば汚泥中からの砒素の溶出を低下できるといえる。

C. 考察

1) 乾季にため池の水が不足してもPSFに井戸水を入れることにより、砒素許容値以下の飲料水を供給でき、乾季にPSFをGSFとして転用することは可能である。砒素除去専用の装置として利用するために、装置の改造を行った。従来の水流は斜め(上向きと下向き)であったが、これをすべて鉛直上向き方向に流れるように改造した。流速はこれまでのものと同様であったが、砒素除去効果は低下した。砒素汚泥は自動的に装置底部に落ちてくると思われていたが、それも十分な効果は見られなかった。改造後の砒素除去率の低下は、流速が大きすぎることで原因であると判断された。鉛直上向きの場合には流速を低下させることが必要であり、現在動水勾配を下げるように工夫中である。

2) 砒素汚泥中の砒素含有量は20~250mg/kgの範囲であり、周辺の地層中の砒素含有量は5~10mg/kgに比べて高濃度であり、汚泥中に砒素が

高濃度に蓄積されていることが確認された。

3) 溶出試験の結果、砒素の溶出量は0.5~6.5mg/kgであり、汚泥中の砒素含有量の0.3~9.0%に相当した。

従って、砒素汚泥の処分に関しては、砒素汚泥は粉末にして溶出させても、砒素は90%以上も汚泥中に閉じ込められるので、処分方法は容易であると考えられる。

4) 砒素は鉄と強力な化学ポンドで結合していることが認められた。それが0.3~9.0%の溶出率を示す構造となっている。したがって、GSF内で十分に砒素を鉄と共沈させれば、汚泥の処分もそれに対応して容易に行えることが考えられる。

D. 結論

砒素除去装置の砒素除去性能は高いものがあり、現在供用中ではあるが、メンテナンスを簡略化するための工夫を行ないながらの供用中となっている。メンテナンス簡略化と砒素除去性能の向上は、元来、相反する現象であり、その最適解は現地住民の判断に大きく依存するようである。

また、砒素汚泥の処分に関しては、砒素汚泥は粉末にして溶出させても、砒素は90%以上も汚泥中に閉じ込められることが分かった。したがって、バングラデシュに将来、我国のような廃棄物処理・処分システムができるまでは、ポリバケツなどに貯蔵して地中に埋設しておくなどの処分が可能である、といえる。また、GSF内で十分に砒素を鉄と共沈させれば、汚泥の処分もそれに対応して容易に行える、ことも分かった。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

横田 漢、：「バングラデシュにおける地下水砒素汚染の循環モデルの検証と砒素除去装置の開発」、平成13~15年度科学研究費補助金(基盤研究)B(2)研究成果報告書、平成16年3月。

Hiroshi Yokota, "Arsenic pollutions of groundwater in the world and arsenic removal

unit installed in Bangladesh” , Keynote Lecture,
Vietnam-Japan Joint Seminar on Geotechnics
and Geoenvironment Engineering, Hanoi,
November,pp.226-242,Oct.,2004.

Miah M. Hussainuzzaman, Yohei Setoyama,
Daisuke Kataoka ,Hiroshi Yokota, “Arsenic
Removal Performance Analysis of the Gravel
Sand Filter”, Vietnam-Japan Joint Seminar on
Geotechnics and Geoengineering, Oct.,2004.

Miah M. Hussainuzzaman, Yohei Setoyama,
Daisuke Kataoka ,Hiroshi Yokota, ”
Performance and Maintenance of Arsenic
Removal Unit Installed at Bangladesh”,
International Symposium on Lowland
Technology, 2004 (ISLT 2004) 、 Bangkok,
Thailand、 September, 2004.

F. 知的財産権の出願・登録状況

特になし

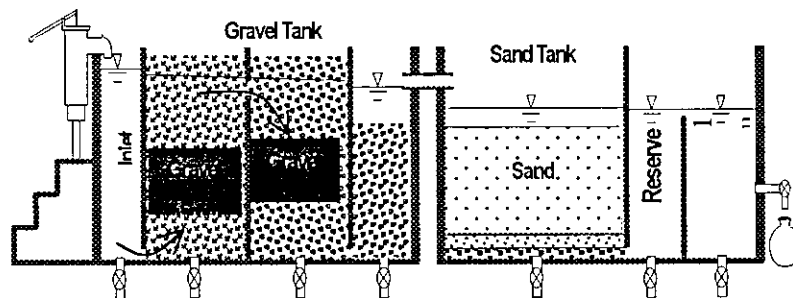


Fig1 GSFの構造

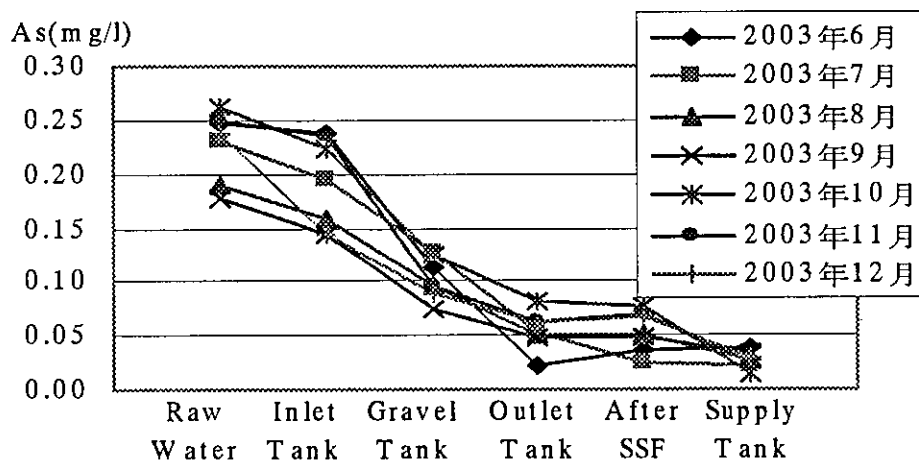


Fig2 GSFのモニタリング結果(2003年6月~12月)

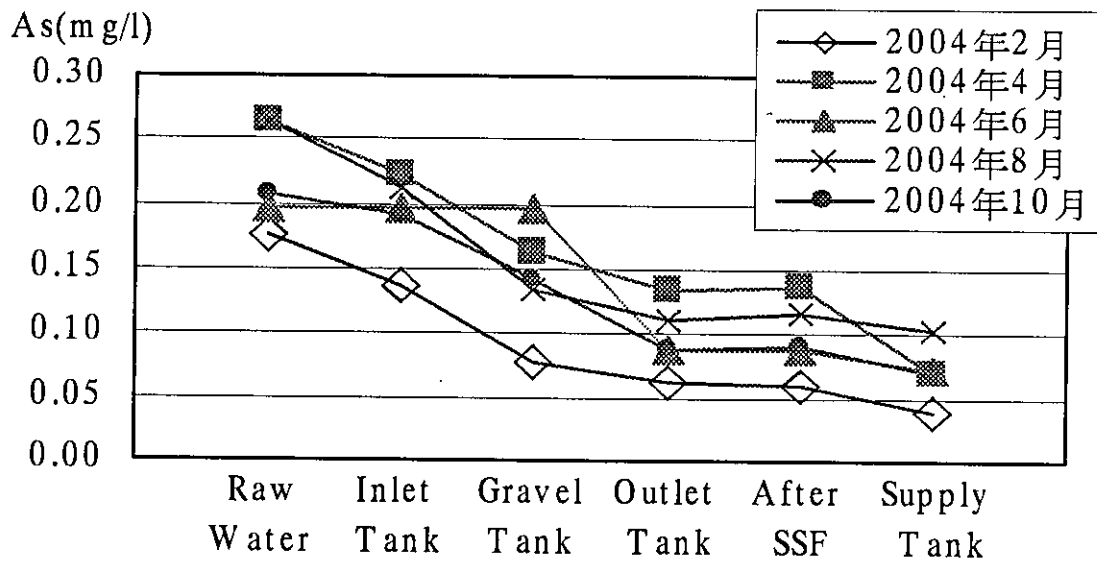


Fig3 GSFのモニタリング結果 (2004年2,4,6,8,10月分)

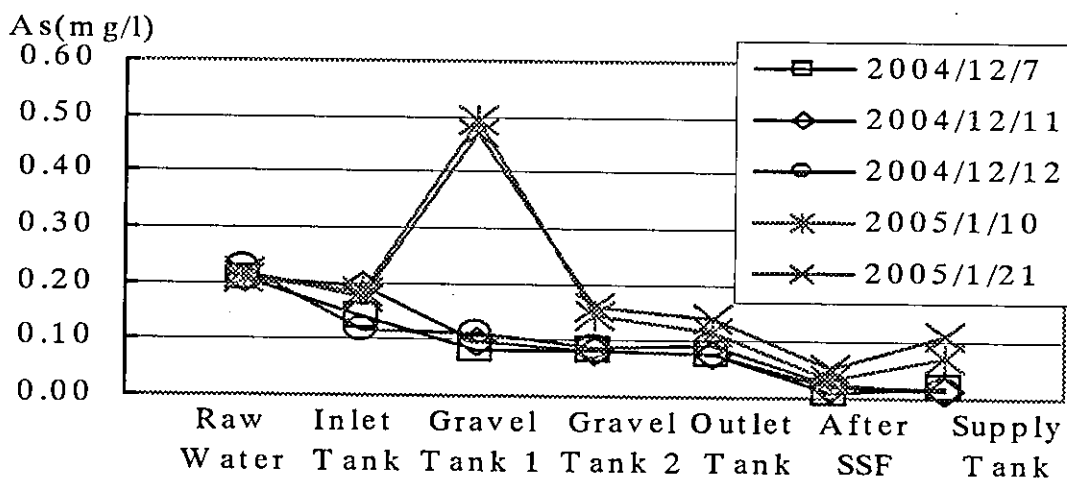


Fig4 改良後のGSFの砒素除去性能(2004年12月)