

Table 10-1 Urinary creatinine and arsenic species obtained from arsenic-affected families

(unit: ng/mg creatinine)

Sample No.	arsenicosis	creatinine (mg/ml)	1)As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	Total As	
1	001-A	+	0.207	19.0	135.9	8.8	0.0	163.6
2	001-B	+	0.538	33.0	301.8	81.6	15.4	431.9
3	001-C	-	0.114	65.0	639.0	103.7	18.0	825.7
4	001-D	-	0.218	9.2	73.0	4.3	0.0	86.6
5	001-E	-	0.111	62.6	496.3	69.2	100.4	728.5
6	001-F	-	0.089	60.7	783.1	99.4	410.7	1353.9
7	002-A	+	0.110	31.3	319.6	36.4	25.2	412.4
8	002-C	-	0.578	68.0	505.4	87.1	8.0	668.4
9	002-D	-	0.088	72.7	968.3	71.4	0.0	1112.3
10	002-E	-	0.113	67.7	760.8	101.5	0.0	930.0
11	002-F	-	0.086	969.2	3466.8	967.3	88.9	5492.1
12	003-A	+	0.192	58.6	390.5	89.4	33.9	572.4
13	003-B	-	0.466	24.5	377.6	47.1	8.8	458.0
14	003-C	-	0.862	42.9	240.4	51.2	12.6	347.1
15	003-D	-	0.187	78.3	212.4	54.0	23.9	368.6
16	003-E	-	0.066	145.1	1121.6	210.1	69.3	1546.1
17	003-F	-	0.163	51.6	452.8	55.3	21.0	580.7
18	004-A	+	0.965	48.4	279.0	49.9	11.1	388.5
19	004-B	+	0.169	0.0	115.0	35.2	6.7	156.9
20	004-C	-	0.547	9.5	166.8	8.9	4.7	189.9
21	004-D	-	0.126	2.9	122.7	11.3	23.6	160.6
22	005-A	+	0.352	15.7	336.1	42.9	2.1	396.8
23	005-B	-	1.257	40.4	351.6	69.1	7.6	468.6
24	006-A	+	0.440	19.1	245.5	17.4	1.9	283.9
25	006-B	-	0.284	15.9	329.6	60.8	489.3	895.5
26	007-A	+	0.725	25.6	377.1	47.7	3.8	454.2
27	007-B	-	0.585	49.9	538.3	83.3	11.7	683.2
28	007-C	-	0.409	36.7	583.0	46.7	9.6	676.0
29	008-A	+	0.130	58.0	421.9	77.2	29.0	586.0
30	008-B	-	0.230	76.4	507.3	116.5	22.6	722.9
31	008-C	-	0.696	157.9	661.5	176.3	41.3	1037.0
32	008-D	-	0.235	171.7	1147.6	292.0	40.2	1651.4
33	008-E	-	0.080	112.7	883.9	183.9	20.7	1201.2
34	008-F	-	0.131	95.8	1274.1	228.1	21.1	1619.0
35	009-A	+	0.701	11.8	182.8	24.9	6.0	225.5
36	009-B	+	0.237	11.7	146.9	24.5	17.5	200.6
37	009-C	+	0.533	12.3	202.4	23.3	2.9	241.0
38	009-D	+	0.736	45.7	249.4	54.9	10.0	360.0
39	010-A	+	1.008	76.6	337.0	74.9	10.3	498.9
40	010-B	-	0.709	179.7	1017.4	260.1	40.0	1497.2
41	010-C	-	0.397	41.6	539.2	73.6	12.0	666.5
42	011-A	+	1.157	1.0	58.9	3.5	2.3	65.8
43	011-B	-	0.090	45.8	29.5	1.1	129.3	205.8
44	011-C	-	0.645	1.7	95.4	7.1	2.4	106.6
45	012-A	+	0.601	0.0	47.6	5.6	2.6	55.8
46	012-B	+	0.324	2.6	94.6	21.4	15.2	133.8
47	012-C	-	0.683	3.0	69.7	10.3	5.2	88.2
48	012-D	-	0.208	0.6	38.7	1.5	14.2	54.9
49	013-A	+	0.367	5.6	57.3	7.0	0.0	69.8
50	013-B	-	0.310	11.7	116.7	19.9	0.0	148.3
51	013-C	-	0.137	3.8	91.5	12.0	1.6	109.0
52	013-D	-	0.187	32.7	160.5	43.5	7.5	244.1
53	014-A	+	0.222	10.8	142.5	6.7	4.7	164.6
54	014-B	-	0.371	43.7	325.1	40.4	9.4	418.6
55	014-C	-	0.099	17.6	150.0	13.9	15.7	197.3

Table 10-2 Urinary creatinine and arsenic species obtained from arsenic-affected families

(unit: ng/mg creatinine)

Sample No.	arsenicosis	creatinine (mg/ml)	1)As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	Total As	
56	015-A	+	0.331	188.1	1103.5	197.8	14.1	1503.5
57	015-B	-	2.328	18.0	191.9	29.2	2.2	241.3
58	015-C	-	0.482	71.6	785.0	71.4	13.7	941.7
59	015-D	-	0.711	139.2	1406.2	101.0	8.1	1654.5
60	015-E	-	0.319	100.4	1080.2	179.5	26.5	1386.6
61	016-A	+	0.546	14.2	32.8	10.0	4.7	61.6
62	016-B	-	0.243	21.2	125.7	35.9	12.1	194.9
63	016-C	-	0.212	25.9	156.8	25.8	13.7	222.2
64	016-D	-	0.259	51.1	392.6	108.7	5.2	557.5
65	017-A	+	0.576	15.7	88.4	25.9	13.0	143.1
66	017-B	-	0.269	23.7	367.7	21.4	5.0	417.9
67	017-C	-	2.352	11.9	83.4	11.9	3.2	110.4
68	017-D	-	1.448	35.4	236.0	49.7	98.1	419.2
69	017-E	-	0.508	30.9	273.9	28.0	11.4	344.2
70	018-A	+	1.598	8.0	97.5	9.4	2.4	117.2
71	018-B	-	0.892	12.0	105.9	24.4	6.0	148.3
72	018-C	-	0.264	42.4	8.1	96.9	14.2	161.7
73	018-D	-	0.573	14.9	364.3	23.7	9.2	412.1
74	018-E	-	0.685	23.3	142.3	30.2	5.5	201.2
75	018-F	-	0.576	10.3	172.7	18.2	5.5	206.7
	average		0.486	56.2	412.7	73.5	28.9	571.3
	MAX		2.352	969.2	3466.8	967.3	489.3	5492.1
	MIN		0.066	0.0	8.1	1.1	0.0	54.9

Table 11-1 Arsenic species obtained from arsenic-affected villagers

(unit: ng/mg creatinine)

Sample No.	1)As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	Total As	
1	001-A	19.0	135.9	8.8	0.0	163.6
2	001-B	33.0	301.8	81.6	15.4	431.9
3	002-A	31.3	319.6	36.4	25.2	412.4
4	003-A	58.6	390.5	89.4	33.9	572.4
5	004-A	48.4	279.0	49.9	11.1	388.5
6	004-B	0.0	115.0	35.2	6.7	156.9
7	005-A	15.7	336.1	42.9	2.1	396.8
8	006-A	19.1	245.5	17.4	1.9	283.9
9	007-A	25.6	377.1	47.7	3.8	454.2
10	008-A	58.0	421.9	77.2	29.0	586.0
11	009-A	11.8	182.8	24.9	6.0	225.5
12	009-B	11.7	146.9	24.5	17.5	200.6
13	009-C	12.3	202.4	23.3	2.9	241.0
14	009-D	45.7	249.4	54.9	10.0	360.0
15	010-A	76.6	337.0	74.9	10.3	498.9
16	011-A	1.0	58.9	3.5	2.3	65.8
17	012-A	0.0	47.6	5.6	2.6	55.8
18	012-B	2.6	94.6	21.4	15.2	133.8
19	013-A	5.6	57.3	7.0	0.0	69.8
20	014-A	10.8	142.5	6.7	4.7	164.6
21	015-A	188.1	1103.5	197.8	14.1	1503.5
22	015-A	188.1	1103.5	197.8	14.1	1503.5
23	016-A	14.2	32.8	10.0	4.7	61.6
24	017-A	15.7	88.4	25.9	13.0	143.1
25	018-A	8.0	97.5	9.4	2.4	117.2
	average	36.0	274.7	47.0	10.0	367.7
	MAX	188.1	1103.5	197.8	33.9	1503.5
	MIN	0.0	32.8	3.5	0.0	55.8

Table 11-2 Arsenic species obtained from non-arsenic-affected villagers

(unit: ng/mg creatinine)

Sample No.	1)As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	Total As	
1	001-C	65.0	639.0	103.7	18.0	825.7
2	001-D	9.2	73.0	4.3	0.0	86.6
3	001-E	62.6	496.3	69.2	100.4	728.5
4	001-F	60.7	783.1	99.4	410.7	1353.9
5	002-C	68.0	505.4	87.1	8.0	668.4
6	002-D	72.7	968.3	71.4	0.0	1112.3
7	002-E	67.7	760.8	101.5	0.0	930.0
8	002-F	969.2	3466.8	967.3	88.9	5492.1
9	003-B	24.5	377.6	47.1	8.8	458.0
10	003-C	42.9	240.4	51.2	12.6	347.1
11	003-D	78.3	212.4	54.0	23.9	368.6
12	003-E	145.1	1121.6	210.1	69.3	1546.1
13	003-F	51.6	452.8	55.3	21.0	580.7
14	004-C	9.5	166.8	8.9	4.7	189.9
15	004-D	2.9	122.7	11.3	23.6	160.6
16	005-B	40.4	351.6	69.1	7.6	468.6
17	006-B	15.9	329.6	60.8	489.3	895.5
18	007-B	49.9	538.3	83.3	11.7	683.2
19	007-C	36.7	583.0	46.7	9.6	676.0
20	008-B	76.4	507.3	116.5	22.6	722.9
21	008-C	157.9	661.5	176.3	41.3	1037.0
22	008-D	171.7	1147.6	292.0	40.2	1651.4
23	008-E	112.7	883.9	183.9	20.7	1201.2
24	008-F	95.8	1274.1	228.1	21.1	1619.0
25	010-B	179.7	1017.4	260.1	40.0	1497.2
26	010-C	41.6	539.2	73.6	12.0	666.5
27	011-B	45.8	29.5	1.1	129.3	205.8
28	011-C	1.7	95.4	7.1	2.4	106.6
29	012-C	3.0	69.7	10.3	5.2	88.2
30	012-D	0.6	38.7	1.5	14.2	54.9
31	013-B	11.7	116.7	19.9	0.0	148.3
32	013-C	3.8	91.5	12.0	1.6	109.0
33	013-D	32.7	160.5	43.5	7.5	244.1
34	014-B	43.7	325.1	40.4	9.4	418.6
35	014-C	17.6	150.0	13.9	15.7	197.3
36	015-B	18.0	191.9	29.2	2.2	241.3
37	015-C	71.6	785.0	71.4	13.7	941.7
38	015-D	139.2	1406.2	101.0	8.1	1654.5
39	015-E	100.4	1080.2	179.5	26.5	1386.6
40	016-B	21.2	125.7	35.9	12.1	194.9
41	016-C	25.9	156.8	25.8	13.7	222.2
42	016-D	51.1	392.6	108.7	5.2	557.5
43	017-B	23.7	367.7	21.4	5.0	417.9
44	017-C	11.9	83.4	11.9	3.2	110.4
45	017-D	35.4	236.0	49.7	98.1	419.2
46	017-E	30.9	273.9	28.0	11.4	344.2
47	018-B	12.0	105.9	24.4	6.0	148.3
48	018-C	42.4	8.1	96.9	14.2	161.7
49	018-D	14.9	364.3	23.7	9.2	412.1
50	018-E	23.3	142.3	30.2	5.5	201.2
51	018-F	10.3	172.7	18.2	5.5	206.7
	average	68.7	493.9	89.0	37.9	689.4
	MAX	969.2	3466.8	967.3	489.3	5492.1
	MIN	0.6	8.1	1.1	0.0	54.9

Table 12 Ratio of (DMA+MMA)/(Total As) and of MMA/DMA

Sample No.	(DMA+MMA)/ Total As (%)	MMA/DMA (%)	Sample No.	(DMA+MMA)/ Total As (%)	MMA/DMA (%)		
1	001-A	88.4	6.5	40	010-B	85.3	25.6
2	001-B	88.8	27.0	41	010-C	92.0	13.7
3	001-C	89.9	16.2	42	011-A	94.9	6.0
4	001-D	89.4	5.9	43	011-B	14.9	3.7
5	001-E	77.6	13.9	44	011-C	96.2	7.4
6	001-F	65.2	12.7	45	012-A	95.4	11.7
7	002-A	86.3	11.4	46	012-B	86.7	22.6
8	002-C	88.6	17.2	47	012-C	90.7	14.8
9	002-D	93.5	7.4	48	012-D	73.1	3.9
10	002-E	92.7	13.3	49	013-A	92.0	12.2
11	002-F	80.7	27.9	50	013-B	92.1	17.1
12	003-A	83.8	22.9	51	013-C	95.0	13.1
13	003-B	92.7	12.5	52	013-D	83.6	27.1
14	003-C	84.0	21.3	53	014-A	90.6	4.7
15	003-D	72.3	25.4	54	014-B	87.3	12.4
16	003-E	86.1	18.7	55	014-C	83.1	9.3
17	003-F	87.5	12.2	56	015-A	86.5	17.9
18	004-A	84.7	17.9	57	015-B	91.6	15.2
19	004-B	95.7	30.6	58	015-C	90.9	9.1
20	004-C	92.5	5.3	59	015-D	91.1	7.2
21	004-D	83.5	9.2	60	015-E	90.9	16.6
22	005-A	95.5	12.8	61	016-A	69.4	30.4
23	005-B	89.8	19.6	62	016-B	82.9	28.5
24	006-A	92.6	7.1	63	016-C	82.2	16.5
25	006-B	43.6	18.4	64	016-D	89.9	27.7
26	007-A	93.5	12.6	65	017-A	79.9	29.3
27	007-B	91.0	15.5	66	017-B	93.1	5.8
28	007-C	93.2	8.0	67	017-C	86.3	14.2
29	008-A	85.2	18.3	68	017-D	68.2	21.0
30	008-B	86.3	23.0	69	017-E	87.7	10.2
31	008-C	80.8	26.6	70	018-A	91.1	9.6
32	008-D	87.2	25.4	71	018-B	87.9	23.0
33	008-E	88.9	20.8	72	018-C	65.0	1195.1
34	008-F	92.8	17.9	73	018-D	94.2	6.5
35	009-A	92.1	13.6	74	018-E	85.7	21.2
36	009-B	85.4	16.7	75	018-F	92.4	10.6
37	009-C	93.7	11.5		average	85.6	31.6
38	009-D	84.5	22.0		MAX	96.2	1195.1
39	010-A	82.6	22.2		MIN	65.0	3.7

Table 13 8-OHdG in urines obtained from arsenic-affected families

Sample No.	arsenicosis	8-OH dG(ng/mg creatinie)	Sample No.	arsenicosis	8-OH dG(ng/mg creatinie)		
1	001-A	+	163.6	40	010-B	-	1497.2
2	001-B	+	431.9	41	010-C	-	666.5
3	001-C	-	825.7	42	011-A	+	65.8
4	001-D	-	86.6	43	011-B	-	205.8
5	001-E	-	728.5	44	011-C	-	106.6
6	001-F	-	1353.9	45	012-A	+	55.8
7	002-A	+	412.4	46	012-B	+	133.8
8	002-C	-	668.4	47	012-C	-	88.2
9	002-D	-	1112.3	48	012-D	-	54.9
10	002-E	-	930.0	49	013-A	+	69.8
11	002-F	-	5492.1	50	013-B	-	148.3
12	003-A	+	572.4	51	013-C	-	109.0
13	003-B	-	458.0	52	013-D	-	244.1
14	003-C	-	347.1	53	014-A	+	164.6
15	003-D	-	368.6	54	014-B	-	418.6
16	003-E	-	1546.1	55	014-C	-	197.3
17	003-F	-	580.7	56	015-A	+	1503.5
18	004-A	+	388.5	57	015-B	-	241.3
19	004-B	+	156.9	58	015-C	-	941.7
20	004-C	-	189.9	59	015-D	-	1654.5
21	004-D	-	160.6	60	015-E	-	1386.6
22	005-A	+	396.8	61	016-A	+	61.6
23	005-B	-	468.6	62	016-B	-	194.9
24	006-A	+	283.9	63	016-C	-	222.2
25	006-B	-	895.5	64	016-D	-	557.5
26	007-A	+	454.2	65	017-A	+	143.1
27	007-B	-	683.2	66	017-B	-	417.9
28	007-C	-	676.0	67	017-C	-	110.4
29	008-A	+	586.0	68	017-D	-	419.2
30	008-B	-	722.9	69	017-E	-	344.2
31	008-C	-	1037.0	70	018-A	+	117.2
32	008-D	-	1651.4	71	018-B	-	148.3
33	008-E	-	1201.2	72	018-C	-	161.7
34	008-F	-	1619.0	73	018-D	-	412.1
35	009-A	+	225.5	74	018-E	-	201.2
36	009-B	+	200.6	75	018-F	-	206.7
37	009-C	+	241.0		average		571.3
38	009-D	+	360.0		MAX		5492.1
39	010-A	+	498.9		MIN		54.9

厚生労働科学研究費（健康総合研究事業）

分担研究報告書

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処分

分担研究者 横田 漢 宮崎大学工学部教授

我々は、バングラデシュにコミュニティ用砒素除去装置 GSF(Gravel Sand Filter)の1号基を2003年1月に設置して以来、現在までに4基が現地で稼働している。その間に砒素除去性能の保持およ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。砒素除去のメカニズムは、地下水中に高濃度に含有されている鉄分を本装置内で酸化し、その砒素との共沈物を砂利槽内の砂利間隙中でトラップし、最後に砂槽で緩速ろ過するものである。

そのためバッキ、砒素と鉄の接触時間および砂利槽内の水の速度がキーポイントとなる。また、共沈砒素の本槽内での再溶出に対する対応も大きな課題となる。水の流動はハンドポンプ汲み上げ時（朝、昼、夕方）の3回にしか起こらず、その汲み上げ量も日にちによって変化している。さらに、地下水中の砒素や鉄の濃度も通年的には一定ではない。そのような自然任せのなかで様々な工夫やメンテナンス等を試行錯誤的に行ってきた。ここでは2003年1月から2006年1月の間の3年間の砒素除去性能の履歴とメンテナンス方法をまとめている。

また、砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿処理され、その上澄み液は人工池に放流されている。沈殿汚泥の処分に関しては、汚泥のセメント固化処分の研究を行ってきた。汚泥の20%セメント量を添加すれば、溶出試験による砒素濃度は0.02~0.04mg/Lであり、現地の基準をクリアすることが認められている。その際、汚泥中の砒素はわずか、その0.01~0.53%しか溶出しなく、90%以上の砒素が汚泥中に閉じ込められこととなっている。ただ、pHが12.1~12.3と高アルカリであり、放流時には中和処理が必要となる。また、本研究では、砒素汚泥の成分分析も行われており、砒素が2~4%と高濃度に含まれ、その他はFe(3~9%)、Mg(11~19%)、Ca(26~45%)というのが主な成分内容であった。なお、セメント量を10%、2%と低下させたときの溶出砒素濃度などを検討している。

汚泥タンクの上澄み液は人工池に放流されるが、そこで砒素の自然浄化処理を試みている。自然浄化に関する基礎データを得るため、人工池環境における砒素の自然・生態系中の流れを解明することを目的として、池底土中の砒素堆積状況の追跡と同土中における砒素を効率よく有機化する細菌の探索を行っている。今回は、砒素汚泥槽及び池中の砒素環境について調べたものとなっている。

上澄み液および人工池の表面水の砒素濃度はそれぞれ、0.123mg/Lおよび0.054mg/Lであり、また汚泥タンクの底部汚泥および人工池の底部泥を吸引ろ過したろ液の砒素濃度はそれぞれ、1.347mg/Lおよび0.086mg/Lであった。汚泥タンクは高濃度に砒素を保持し、その人工池への拡散がうかがえる内容となっている。砒素の形態は人工池の表面水を除いて、80~90%が3価（人工池表面水は17%）であった。さらにどの試料でも僅かであるが、有機砒素（MMA,DMA）を確認することができた。

更に、砒素汚泥槽及び人工池とも、砒素濃度にかかわらず 10^5 cells/ml以上の生菌数を示し、標準寒天培地—塗布平板培養法によっても砒素の影響は見られなかった。コロニーの色や表面状態は、それぞれの表層水と底土で類似していた。1000mg/Lの砒素を含む培地でもかなりの数のコロニーが出現したことから、砒素耐性能に優れた菌がかなり存在することが分かった。

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が、その地下水がほぼ全国的に砒素に汚染されている。我々は、コミュニティ用の砒素除去装置 GSF (Gravel Sand Filter, Fig. 1 参照) をバングラデシュのマルア村に開発・設置し、その性能を検討してきた。

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 はここ数年間、メンテナンスの単純化、砒素除去能力の向上のため、改良され続け、現在すでに4基がバングラデシュで稼働している。

今後、GSF により砒素除去が行われてゆく場合、砒素汚泥タンクに貯蔵される砒素汚泥（砒素と鉄の共沈物）の処理処分方法の確立は避けられない問題である。そこで、本研究では砒素汚泥の処分方法も開発されてきた。

ここでは過去3年間の砒素除去性能の履歴とメンテナンス法をまとめている。また、砒素汚泥の処理処分方法の成果について報告している。

B. 方法及び結果

B-1. GSF の性能履歴

砒素除去のメカニズムは、地下水中に高濃度に含有されている鉄分を本装置内で酸化し、その砒素との共沈物を砂利槽内の砂利間隙中でトラップし、最後に砂槽で緩速ろ過するものである (Fig. 1 参照)。

そのためバッキ、砒素と鉄の接触時間および砂利槽内の水の速度が砒素除去上のキーポイントとなる。また、鉄との共沈砒素が本装置内で再溶出ししないための対応も大きな課題となる。

流速は模型実験などにより 75~100cm/h (見かけの速度)、バッキは、①ポンプからインレットタンクに地下水を汲み入れる場合の落下エネルギーを利用する方法、②汲み上げた地下水を本砒素除去装置の槽壁頭上に設置したチャンネル上を流して酸化させる方法、③多くの細孔を持つプレー

トをインレットタンクの頭部に設置し、汲み上げた地下水を水滴状に落下させて酸化させる方法がとられている。

本装置内における水の流動はハンドポンプ汲み上げ時 (朝、昼、夕方) の3回にしか起こらず、その汲み上げ量も日にちによって変化している。さらに、地下水中の砒素や鉄の濃度も通年的には一定ではない。そのような自然任せのなかで様々な工夫やメンテナンス等を試行錯誤的に行ってきた。ここでは2003年1月から2006年1月の間の3年間の砒素除去性能の履歴を示せば、Fig. 2 の通りである。

B-2. GSF のメンテナンス

目詰まりや砒素再溶出などに関するメンテナンスについては、以下のものが確立されている。

①砒素除去性能のチェック (住民によるフィールドキットを用いた測定: 1回/10日、AAN 砒素センターのAASによる測定: 1回/月)、②砒素汚泥による目詰まり防止 (砂利タンクの底部の数分間排水: 1回/10日、砂利槽内の砂利洗浄: 1回/3月、砂槽内の砂洗浄: 1回/3月、以上住民による作業)。

B-3. 砒素汚泥の砒素含有量および成分分析

砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿・貯蔵されている。その成分分析を行った結果を Fig. 3 に示す。砒素が2~4%と高濃度に含まれ、その他はFe(3~9%)、Mg(11~19%)、Al(4~7%)、K(1~2%)、S(0~1%)、Na(0%)、Ca(26~45%)、Si(10~25%)であった。

B-4. 砒素汚泥の固化処分実験

砒素汚泥槽内の沈殿汚泥処分に関しては、セメント固化処分の研究を行ってきた。本研究におけるセメントの添加割合は、汚泥重量の20%、10%、2%、0%となっており、その結果を Fig. 4 に示す。

20%添加の場合、溶出試験による砒素濃度は0.02~0.04mg/Lであり、現地の基準をクリアしている。その際、汚泥中の砒素はわずかに、その0.01~0.53%しか溶出しなく、90%以上の砒素が汚泥中に閉じ込められることが認められている。ただ、pHが12.1~12.3と高アルカリであり、放流時には中和処理が必要となる。

他のセメント添加量の場合には次のような結果となっている。すなわち、前述の溶出濃度、溶出量およびpH値はそれぞれ、0.03~0.09mg/L、1.20~4.09%、pH=10.9~11.9（以上セメント量10%の場合）、0.05~0.11mg/L、1.64~5.83%、pH=10.5~10.9（セメント量2%の場合）、0.05~0.65mg/L、3.0~12.8%（セメント量0%）となっている（Fig. 5 参照）。

B-5. 砒素汚泥の自然浄化実験

砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿処理され、その上澄み液は人工池に放流されている。汚泥槽内および人工池内の砒素濃度や細菌活動などについては表-1~3 に示すとおりである。

砒素汚泥槽の上澄み液および人工池の表面水の砒素濃度はそれぞれ、0.123mg/L および0.054mg/L であり、また汚泥タンク内の沈殿汚泥および人工池の底部泥を吸引ろ過したろ液の砒素濃度はそれぞれ、1.347mg/L および0.086mg/L であった。

砒素の形態は人工池の表面水を除いて、80~90%が3価（人工池表面水は17%）であった。さらにどの試料でも僅かであるが、有機砒素（MMA,DMA）を確認することができた。砒素汚泥槽及び人工池とも、 10^5 cells/ml以上の生菌数を示した。これらの細菌を標準寒天培地-塗布平板培養法によって培養実験を行ったが、培養液中の砒素濃度の影響は見られなく、1000mg/Lの砒素を含む培地でもかなりの数のコロニーが出現した。また、コロニーの色や表面状態は、汚泥槽及び人工池のそれぞれの表層水と底土で類似していた。

C. 考察

GSFはこの3年間、メンテナンスの実施のもとで効果的な砒素除去を行っている。GSF内で鉄と共沈した砒素（砒素汚泥）には数%の砒素が濃縮されており、地下水中の砒素がよく除去されていることがわかる。

この汚泥の固化処分方法としては、セメント20%添加すれば、汚泥中の砒素は90%以上が汚泥中に閉じ込められ、溶出試験による砒素濃度は

0.02~0.04mg/Lであり、現地の基準をクリアしている。

砒素汚泥槽の上澄み液の砒素濃度は、0.123mg/Lと高濃度であるが、この上澄み液中でも細菌は 10^5 cells/ml以上生息していた。これは同槽の沈殿汚泥中でも同様であり、還元下（ORP=-200mv）での砒素耐性能のある微生物の活動が確認された。

汚泥槽の上澄み液が流入している人工池では表面水の砒素濃度が0.054mg/L、底部泥からの砒素溶出試験濃度が0.086mg/Lと基準値以上であるが、ここでも、砒素耐性能のある微生物の活動が確認された。

この砒素耐性能のある微生物の存在は、1000mg/Lの砒素を含む培養実験によってもかなりの数のコロニーが出現した事実からも認められる。さらに、有機砒素（MMA,DMA）の存在確認は、砒素の微生物による代謝活動をも示唆するものであった。

D. 結論

GSFの砒素除去性能は高いものがあり、今後バングラデシュ以外でも、例えばネパール・テライ平原での設置を今後検討したい。GSFで除去された砒素汚泥の処分に関しては、重量比20%のセメントで固化し、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からの排水を砒素汚泥専用のため池で管理すれば、そこでの微生物活動により、自然浄化処理できることが示唆された。これについては今後の実験・分析により明らかとされることだろう。

E. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Miah M., Hussainuzzaman, Hiroshi Yokota, "Efficiency of Arsenic Removal Unit working in Bangladesh and Cement Stabilization of its Sludge", Journal of ASTM International, Vol.3, No.4, April 2006. (in press)
- 2) Miah M., Hussainuzzaman, Hiroshi Yokota, "Performance of Arsenic Removal Unit Installed in Bangladesh and Cement Solidification of Arsenic Sludge from the Unit", Proc. of 16th Intern.

Conf. on Soil Mechanics & Geotechnical Engineering, pp.2379-2382, Spt.,2005

- 3) M. M. Hussainuzzaman, Y. Setoyama, D. Kataoka and H. Yokota, "Arsenic removal and sludge treatment for Gravel Sand Filter", 1st IWA-ASPIRE, Conference & Exhibition, Environmental Engineering Society of Singapore, *F~~Y~~IWA-ASPIRE~~Y~~index.htm*, July, 2005
2. 学会発表
 - 1) 福田博之, 埜嘉一, 片岡大輔, M.M.Hussainuzzaman, 田辺公子, 横田 漠, 「バングラデシュで設置稼働中の砒素除去装置 GSF の性能について」、H. 17 土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 563-564, H. 18. 3.
 - 2) 松本直之, 若林貢, M. M. Hussainuzzaman, 田辺公子, 横田 漠, 「ネパールにおける地下水砒素汚染の特徴～トロクノワール村の調査結果～」、H. 17 土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 565-566, H. 18. 3.
 - 3) 前田倫志, 吉川正道, M.M.Hussainuzzaman, 田辺公子, 上野俊夫, 古川改造, 横田 漠, 「火山灰質セラミックスの砒素除去装置への適用に関する基礎実験」、H. 17 土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 567-568, H. 18. 3.
 - 4) 若林貢, 宮崎大学砒素研究グループ, 九州大学谷研究室, AAN, 「ネパールにおける地下水砒素汚染の特徴～クノワール村とパトカリ村の調査結果～」、第10回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 新潟市, pp.67-69, 2005年11月.
 - 5) 田辺公子, 若林貢, 古結英樹, 帖佐宣昭, 瀬戸山充, 宮武宗利, 横田 漠, 「ネパール・ナワルパラシ郡における地下水ヒ素汚染」、第12回ヒ素シンポジウム, 岩手県立大学, pp. 86-87, 2005年11月.
 - 6) 宮武宗利, 林幸男, 田辺公子, 横田 漠, 「バングラデシュに設置したヒ素除去装置の汚泥処理に関する研究」、第12回ヒ素シンポジウム, 岩手県立大学, pp. 50-51, 2005年11月.
 - 7) 大栄薫, 田貝泰之, 大島達也, 馬場由成, 志水雅之, 三宅義和, 堀河俊英, 横田 漠, 「マグネタイト微粒子を用いた砒素の吸着特性」、第12回ヒ素シンポジウム, 岩手県立大学, pp. 36-37, 2005年11月.

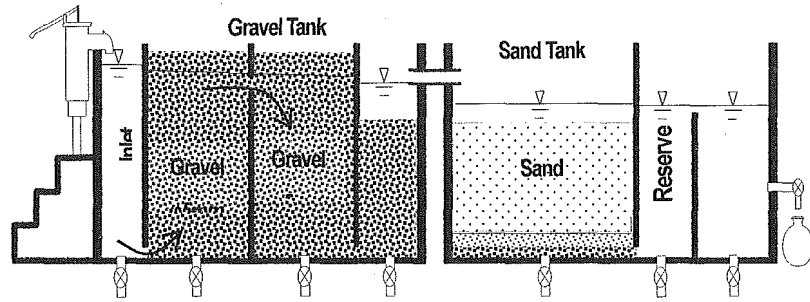


Fig.1 GSF の構造

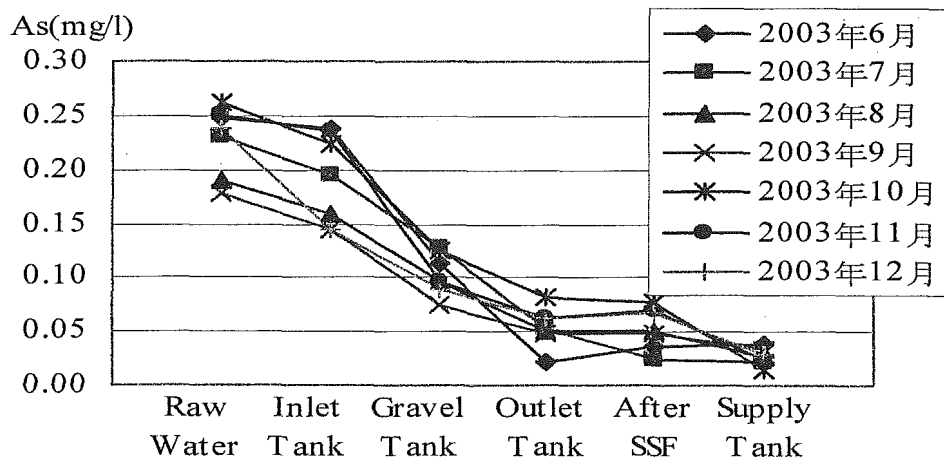


Fig.2 GSF のモニタリング結果(2003年6月~12月)

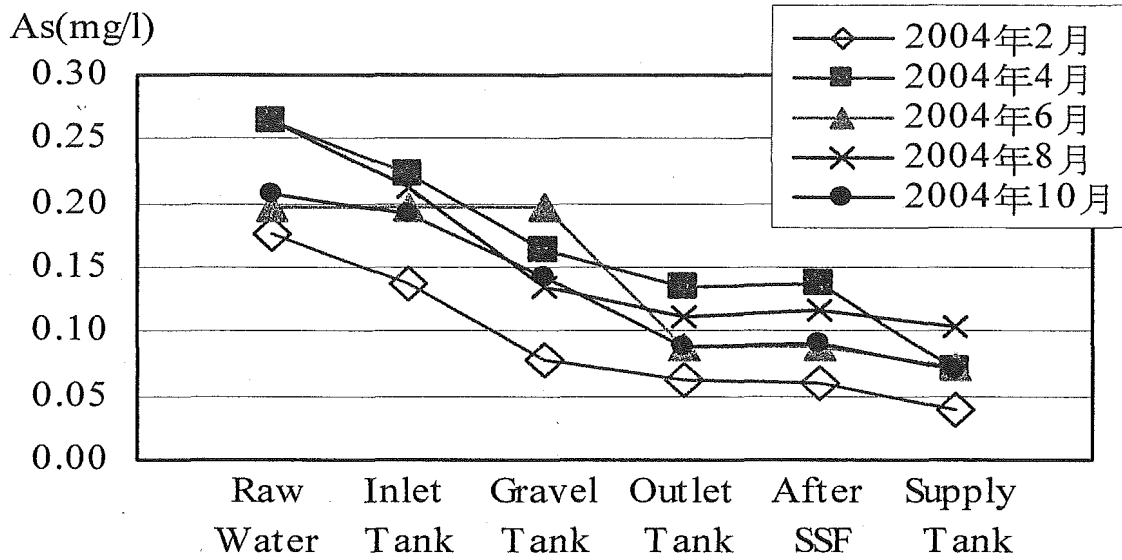


Fig.3 GSF のモニタリング結果 (2004 年 2,4,6,8,10 月分)

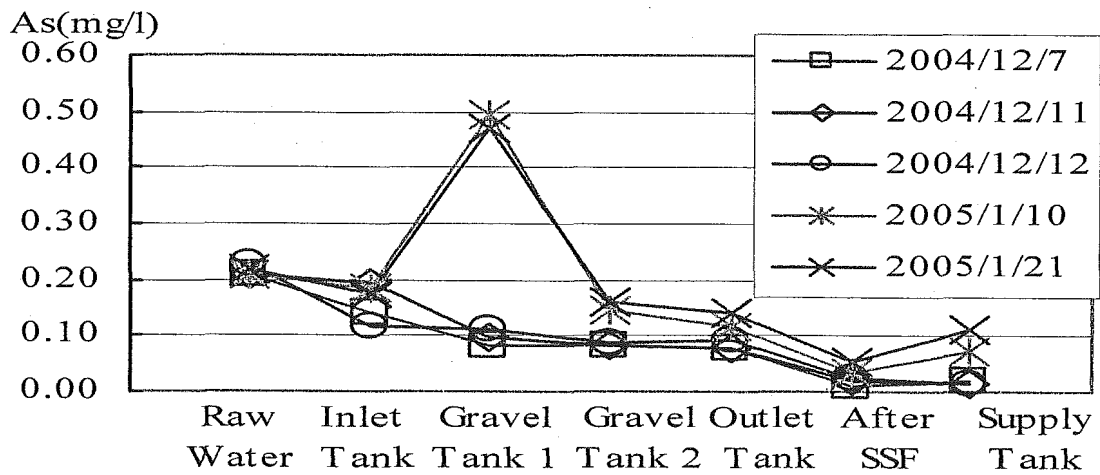


Fig.4 改良後の GSF の砒素除去性能(2004 年 12 月)

表1 砒素汚泥の溶出試験結果

ID	採取日	質量 (g)	砒素溶出濃度 (mg/l)	砒素溶出量 (mg/kg)	pH	Eh (V)
①-1	2003/6/26	10.00~10.11	0.10~0.13	0.98~1.26	7.3~7.8	0.35~0.39
①-2	2003/7/26	10.02~10.52	0.05~0.06	0.46~0.62	7.5~7.9	0.35~0.38
①-3	2004/1/31	10.01~10.22	0.60~0.68	6.01~6.81	7.8~8.1	0.34~0.37
①-4	2004/3/27	10.04~10.20	0.06~0.20	0.56~1.94	8.0~8.2	0.32~0.35
①-5	2004/4/30	10.01~10.39	0.30~0.46	3.04~4.61	8.0~8.1	0.34~0.36
①-6	2004/5/29	9.98~10.10	0.37~0.53	3.71~5.30	7.8~8.1	0.32~0.35

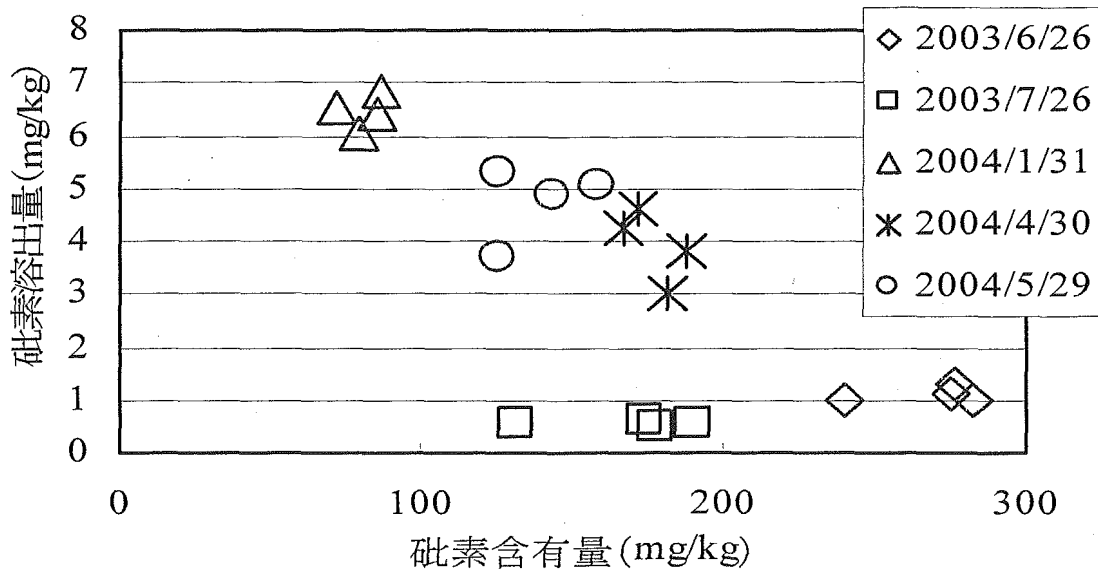


Fig.5 砒素汚泥中の砒素含有量と溶出量

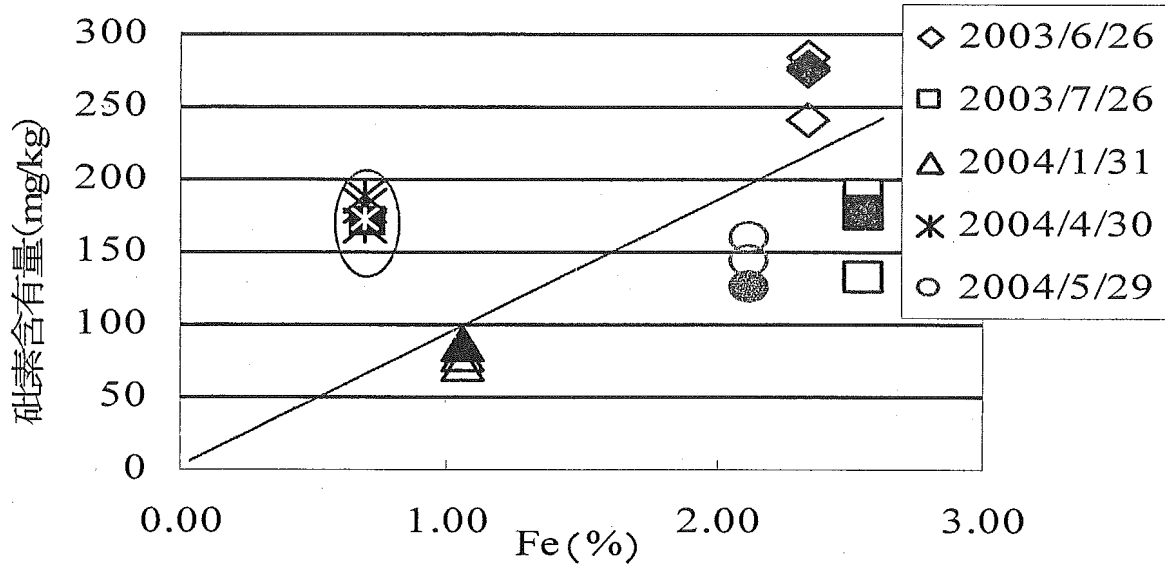


Fig.6 砒素汚泥中の砒素含有量と鉄含有量との

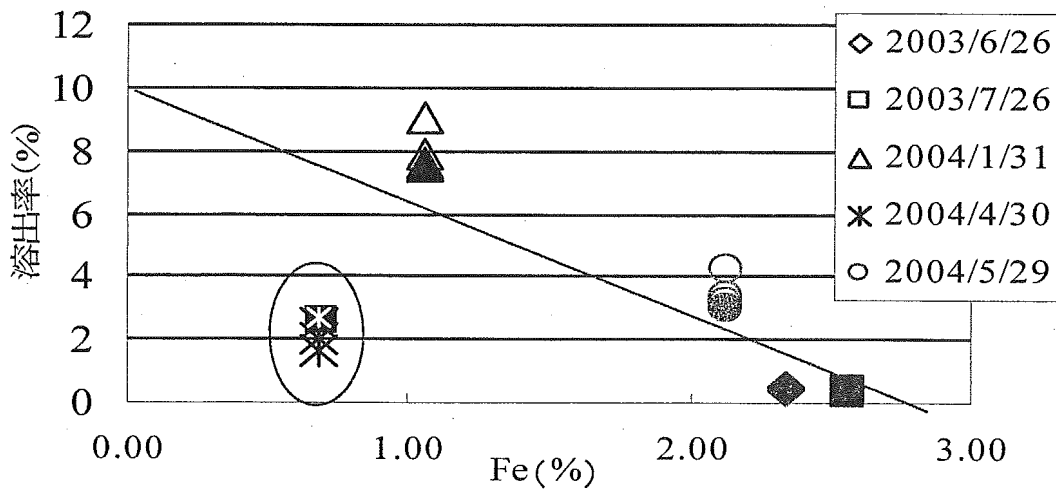


Fig.7 砒素汚泥の溶出率と鉄含有量との関係

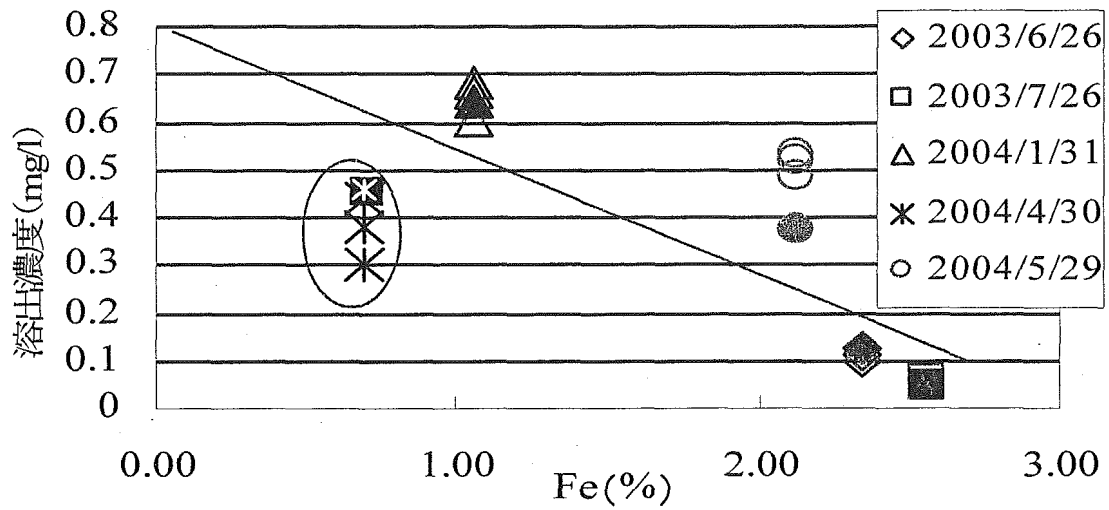


Fig.8 砒素溶出濃度と鉄含有量の関係

厚生労働科学研究費（健康総合研究事業）
分担研究報告書

無機ヒ素汚染井戸水の改水後における慢性ヒ素中毒の改善に関する研究：角化症
と色素沈着の変化

分担研究者：山内 博（聖マリアンナ医科大学）

中国内蒙古自治区包頭市ガンファンエン村での井戸水の改水における無機ヒ素曝露の軽減後、半年、1年、5年目に皮膚症状の改善を中心に検証した。井戸水改水直後の皮膚症状の改善は顕著であったが、その後の症状の改善は緩慢なものであった。その原因の一つとして、彼らの生活様式における一日の無機ヒ素曝露量は、井戸水の無機ヒ素濃度と飲水量(3-3.5L)から約100-150 μg の可能性があり、このレベルは角化症の改善に寄与しないことが推測された。さらに、無機ヒ素汚染のある井戸水を使用しての野菜の栽培から、食事からの無機ヒ素摂取量が加味されることも推測された。

次いで、山西省山陰県での検証作業から、5年間にわたる無機ヒ素曝露の軽減において、重症者の角化症は改善を見たが、軽症者の角化症や色素沈着は顕著な改善が期待されなかった。

このようなことから、慢性ヒ素中毒の皮膚症状の改善には、一日の無機ヒ素曝露量は100 μg を大きく下回る条件を設定すべきである。さらに、患者の生活環境には、無機ヒ素汚染された井戸は依然として各家庭に存在していることから、それらの使用には更なる注意や指導の必要性を強く感じた。

A. 研究目的

慢性ヒ素中毒の健康障害の一つに手掌と足底に生じる角化症の問題がある。この角化症の痛みで患者は生活や労働に支障をきたし、他人からは「さぼり病」と認識され精神的な打撃も受ける。この角化症の改善は慢性ヒ素中毒の改善、根絶、予防対策の事業のうち、最も重要と考えている。

従来からの活動から、慢性ヒ素中毒の改善は無機ヒ素の曝露量の軽減により可能との考えを持ってきた。US-EPAも無影響量を成人の場合、56 µg/dayとしている。従来、世界各地の慢性ヒ素中毒の改善における各プロジェクトが成功していない背景には、「ヒ素中毒発症のメカニズム理論」の欠損であると考えている。筆者は患者に対して一日のヒ素曝露量を100 µg以下に制限することを提案している。現在、中国の飲料水基準は0.05 ppmであり、一日の飲料水消費量を約3リッターとした場合、WHO、EU、米国、日本などの飲料水基準(0.01 ppm)とは異なり、100 µg以内を目指すことは困難と考えている。

この研究では、慢性ヒ素中毒患者に対してヒ素の曝露量の軽減のみで、角化症と色素沈着・色素脱失の改善が認められるかを検証した。調査場所は中国において最も患者がたくさん発症している内蒙古自治区と山西省である。検証期間は過剰な無機ヒ素曝露の停止もしくは軽減後の5年間である。

B. 研究方法

B-1. 調査対象者

調査対象者は内蒙古自治区包頭市郊外に居住する村民で、この村の人口は430世帯、2080名である。村民は農業、牧畜で生計を立て、家族の生活と食習慣はほぼ同一である。村民から96名を選出し(図1)、皮膚科的検診を行った。皮膚科検診は中国医科大学と日本側の医師により実施された。過去の井戸水からのヒ素曝露の実態の解明に関して、井戸水の使用状況を詳細に聞き取りをした。

次に、包頭市の村民を対象とした井戸水の改水からの慢性ヒ素中毒の角化症の改善に

関して、山西省太原市山陰県の住民でも検証した。なお、この調査は皮膚科的な検査結果のみである。

B-2. 井戸水中ヒ素濃度

この村には303箇所の井戸があり、これまで各家庭で使用されてきた。井戸水中ヒ素濃度は0.0001—1.79 ppmで、平均0.133 ppmであった。慢性ヒ素中毒の改善計画には、ヒ素濃度0.037ppmの井戸水をパイプ方式で各家庭に給水した。各家庭には午前中に2-3時間の給水があり、瓶などに溜める方式で、この水を飲料水や料理に使用した(図2)。なお、各家庭にある井戸水は体の洗浄、家畜には使用した。

B-3. 生体試料中のヒ素濃度

内蒙古自治区包頭市郊外に居住する村民96名の患者から尿を採取し、ヒ素を化学形態別に測定をした。尿中ヒ素濃度は尿中クレアチニンで補正を行った。

C. 結果と考察

井戸水からのヒ素曝露の実態に関して、図3に結果を示した。84名の患者のうち半数以上は中国の飲料水基準0.05 ppm以上のヒ素汚染井戸水を飲んでいて、さらに、高濃度なヒ素汚染井戸水0.3 ppm以上が17名に認められた。

この村の患者における井戸水からのヒ素曝露と皮膚症状について、多重ロジスティック回帰分析を行った(表1)。まず対象期間としたこの10年間について5年ごとで比較すると、5-10年前は角化症と色素沈着ともにオッズ比が有意に高い傾向が認められた。すなわち、この地域での慢性ヒ素中毒問題が表面化していない時代、村民はヒ素汚染された井戸水を知らずに飲んでいたことが推測された。なお、この5年間は井戸水のヒ素汚染が知られ、村の中での患者発生と井戸水との関係を経験的なルールで対処し、すなわち、危険が指摘される井戸水を村人間で回避していたことが(聞き取り調査で判明)、この表

1で裏付けられたと考える。

図5には、ヒ素濃度 0.037ppm の井戸水をパイプ方式で各家庭に給水を受けた1年後における、患者の尿中ヒ素濃度を比較した。この村民達は中国の内陸部で生活しており、海洋性の魚介類の摂取習慣はなく、このことから尿からアルセノベタイン（魚介類由来のヒ素）は検出されない。井戸水からは無機ヒ素（iAs）を摂取し、この無機ヒ素は肝臓中でメチル化されメチル化ヒ素（MA）とジメチル化ヒ素（DMA）に代謝され、その代謝過程は図4の結果に矛盾はしていない。患者の無機ヒ素曝露停止後の尿中ヒ素濃度（IMD：iAs+MA+DMA）は曝露中に比較して約1/2程度に減少していた。この尿中IMD濃度は日本人健常者の約3倍の濃度である。井戸水からの無機ヒ素曝露の軽減による皮膚症状の変化

図4に示したごとく、患者のヒ素曝露は約1/2に低下していることが確認された。半年と1年目の検診の受診者は少なくなり33名となった。無機ヒ素の高濃度曝露中に比較して、33名中20名の手掌角化症の改善が（図5）、11名が変化なし、2名に増悪の傾向が認められた。

色素沈着に関しては、21名の患者のうち14名に改善（図6）、変化なしが6名、そして、1名に増悪の傾向が認められた。

半年と1年目においては、井戸水からの無機ヒ素曝露の軽減から角化症と色素沈着は改善の傾向があり、重症者ほど顕著である傾向が感じられた。

次に、これらの患者群における5年目の皮膚症状の改善について調査を行った。検査した患者の数は徐々に少なくなり25名であった。無機ヒ素曝露の軽減から1年目を経過した段階からさらに5年目までの期間、手掌角化症の改善は2名においてのみ認められた。そして、色素沈着は3名のみであった。これに対して、手掌角化症の増悪1名、色素沈着の増悪が9名で観察された。

山陰県の村民は5年前から中国衛生部による井戸水の改善が行われ、各家庭にはパイプ

配管方式による給水が行われている。井戸水は化学処理されたものではなく、地下水そのまま、ヒ素濃度が0.05ppm以内で、この井戸水を生活水として使用している。

図7と8に示した患者は、この村で角化症の症状が最も悪く、そして、無機ヒ素曝露の軽減により5年目の観察ではやや改善が認められた。一方、図9に示した家族は、子供3人（男性2名、女性1名）は無機ヒ素曝露の軽減により角化症や色素沈着の増悪は予防できたと考えられる。父親の角化症の改善は十分なものではなかった。同様な傾向は、この村の多くの男性村民で認められた（図10）。

D. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Pi. J., Yamauchi H, Sun G, Yoshida T, Aikawa H, Fujimoto W, Iso H, Cui R, Waalkes MP, Kumagai Y.: Vascular dysfunction in patients with chronic arsenosis can be reversed by reduction of arsenic exposure. *Environ Health Perspect*, 113, 339-341, 2005.
- 2) 山内博、福田美穂、網中雅仁、吉田勝美：小児の脳障害に対する酸化的ストレスのバイオマーカー：ヒ素曝露を中心に、*臨床環境医学*, 14: 2-8, 2005
- 3) 山内博：ヒ素、*救急医学*, 29: 605-607, 2005.

2. 学会発表

- 1) 山内博：酸化的DNA損傷と尿中8-OH d G、第75回日本衛生学会総会、新潟、2005. 3.
- 2) 山内博：ヒ素の毒性、日本学術会議、東京、2005. 5.

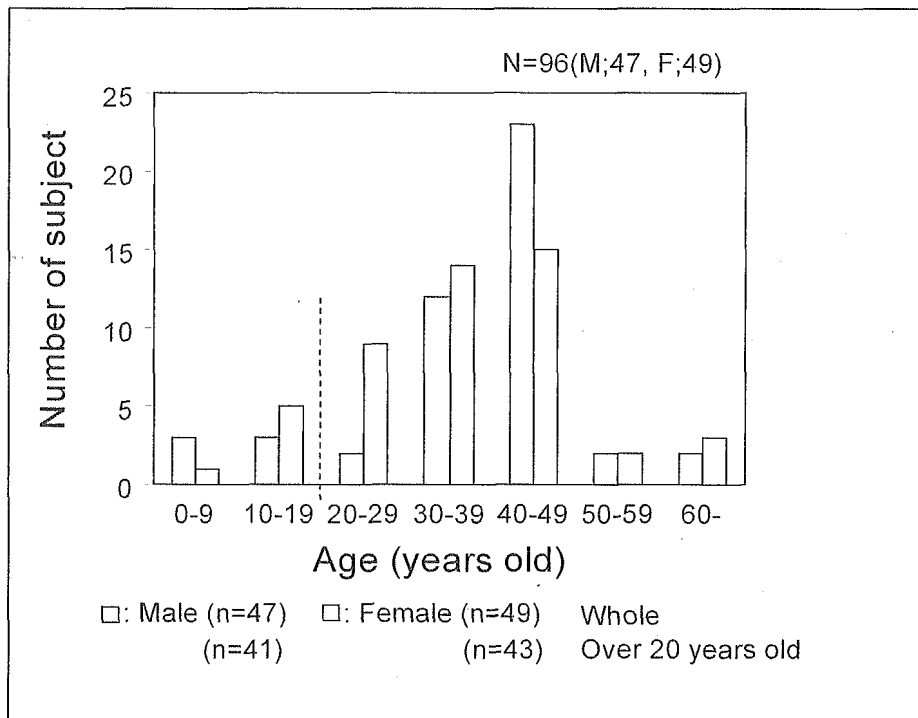


図1 調査対象者の年齢分布

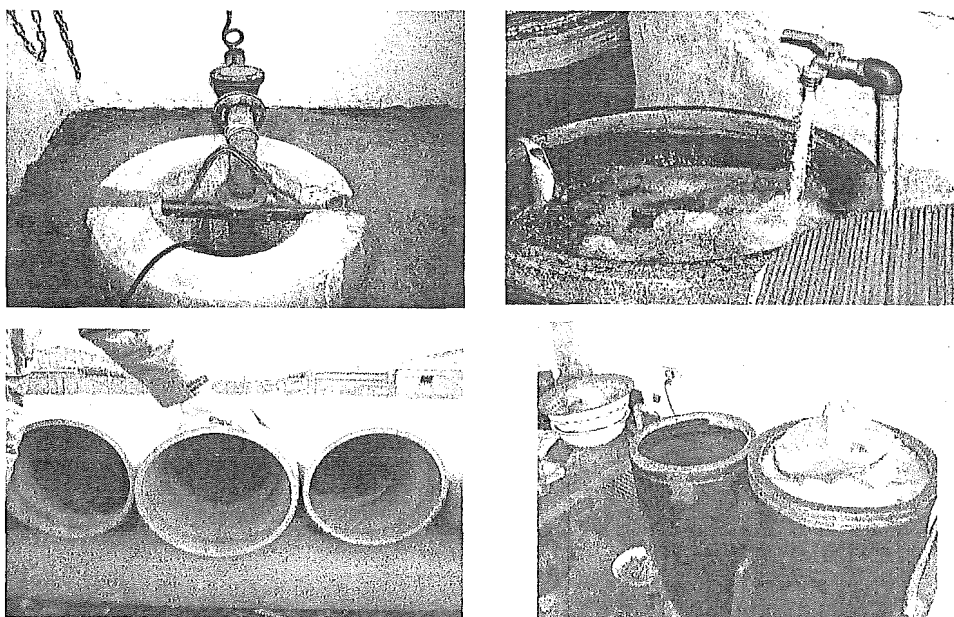


図2 慢性ヒ素中毒の改善に使用されているパイプ式給水の井戸水（化学的処理はない）

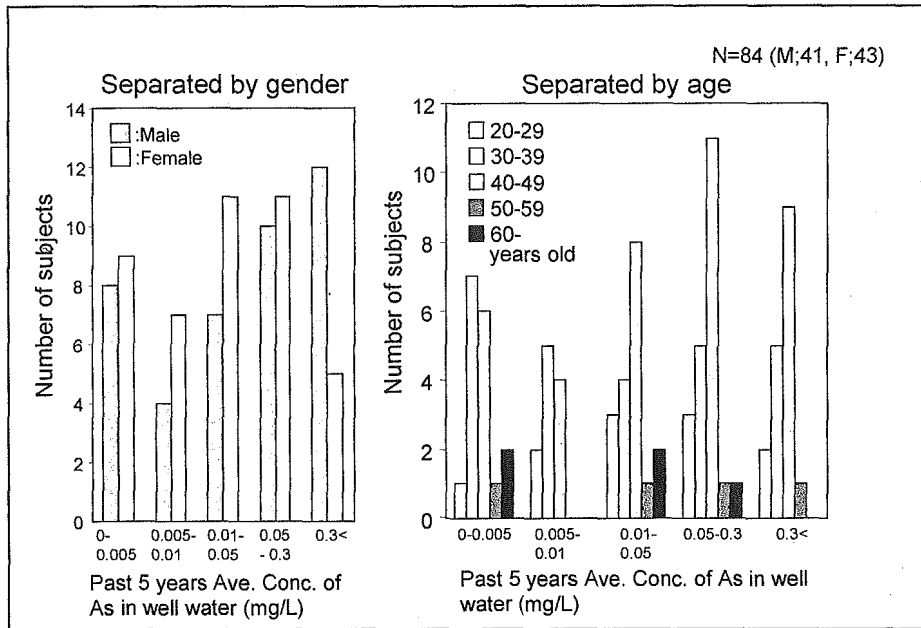


図3 慢性ヒ素中毒患者84名における、過去5年間におけるヒ素汚染井戸水の使用状況

表1 過去10年間の推定ヒ素曝露濃度と皮膚症状との関係（5年毎）

		Hyperkeratosis		Dyspigmentation		K and/or H	
	Period	Odds ratio	p-value	Odds ratio	p-value	Odds ratio	p-value
Exposure (with 5 categories)	past 5 years	2.384	0.019	2.534	0.084	2.936	0.004
	previous 5 years	0.918	0.762	0.966	0.928	0.758	0.325

対象者84名（男性41名、女性43名）

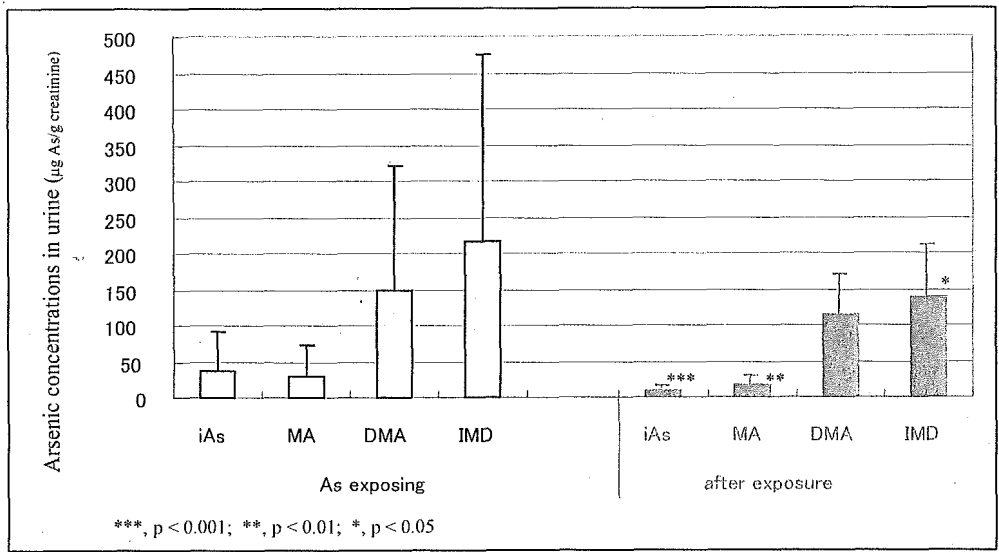
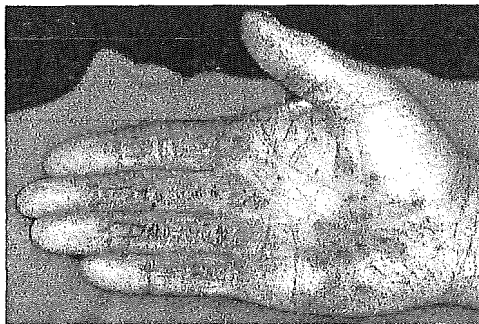
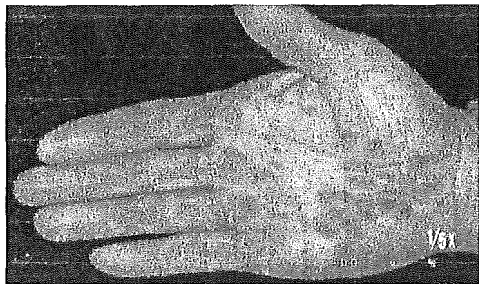


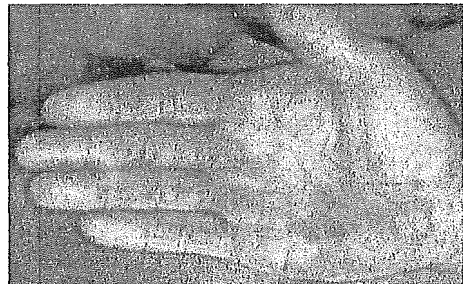
図4 慢性ヒ素中毒患者におけるヒ素曝露中と曝露停止後1年目の尿中ヒ素濃度の比較



ヒ素曝露中



ヒ素曝露停止半年後



ヒ素曝露停止1年後

図5 ヒ素曝露中と曝露停止後半年、1年目における角化症の改善傾向の一例