

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 30 年 6 月 15 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05120

研究課題名(和文)スリランカにおける慢性腎臓病の原因調査と飲料水中からのフッ素除去

研究課題名(英文) Investigation of the cause of chronic kidney disease of unknown etiology and fluoride removal from drinking water in Sri Lanka

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) 10,500,000円

研究成果の概要(和文)：カドミウム、鉛、クロム、ヒ素はCKDuの原因物質ではないと明確に結論付けることができた。CKDu患者の症状はネオニコチノイド中毒による症状と矛盾しなかったが、ネオニコチノイドがCKDuに関わっていると判断するには至らなかった。アヌラダプラに炭素電極電解法によるフッ素除去装置を設置した。フッ素濃度を2.1 mg/Lから0.4 mg/L程度にまで低下させることができ、スリランカの飲料水基準である1 mg/Lを下回る水質を得ることができた。炭素電極電解法の後段に鳥骨炭フィルターを設置したハイブリッド方式のフッ素除去装置を2カ所設置し、フッ素濃度を0 mg/Lにまで下げることができた。

研究成果の概要(英文)：According to the measurement results of cadmium, lead, chromium and arsenic in drinking water, rice, tea leaves and urine, it was concluded that cadmium, lead, chromium and arsenic were not the cause of chronic kidney disease of unknown etiology (CKDu) prevailing in Sri Lanka. The diagnostic of the CKDu was consistent with that of neonicotinoid poisoning; however, the conclusive evidence of the relationship between neonicotinoid insecticides and CKDu was not found. A new electrolysis system using carbon electrodes to remove fluoride was installed in Anuradhapura to supply drinking water to the residents. The fluoride concentration was successfully reduced from 2.1 mg/L to 0.4 mg/L, which was well below the Sri Lankan standard of 1 mg/L. Two electrolysis systems using carbon electrodes followed by chicken bone char filters installed in Sri Lanka could remove fluoride to the level of 0 mg/L.

研究分野：環境水質学

キーワード：スリランカ 慢性腎臓病 フッ素 ネオニコチノイド 炭素電極電解法

### 1. 研究開始当初の背景

スリランカの井戸水約 1,400 か所の水質調査を行った結果、フッ素濃度がスリランカの飲料水基準 0.6mg/l を超える地域が国土全体の約 40% にのぼり、特に北部中央州と南部州ではフッ素濃度が高かった。これらの地域のフッ素症の罹患率は極めて高く、中学生の 90% が斑状歯であるとの報告がある。さらに北部中央州のフッ素濃度の高い地域では原因不明の慢性腎臓病(CKDu)が多発し、現在でも大きな社会問題である。CKDu は水道水がひかされている地域では発生が無いとされることから飲料用の井戸水に原因の一つがあると考えられている。前述の井戸水の水質調査の結果、CKDu 多発地域と井戸水中のフッ素濃度が高い地域は重なっていることが判明し、フッ素濃度と CKDu との関係が疑われた。しかしながら、フッ素濃度が高いということだけでは CKDu 多発の原因とはならないのは他国の状況などから明らかであり、フッ素と共役する物質の存在が示唆された。

一方、ネオニコチノイド系農薬は腎障害を引き起こす。図-1 に示すようにネオニコチノイド系殺虫剤の出荷量増加と CKDu の罹患率の増加の推移は一致した傾向を示していた。そこでネオニコチノイド系農薬がフッ素と共役して CKDu の原因となっている可能性が高いと考えた。

フッ素症対策として、現地ではアルミを電極としたアルミ電極電解法が用いられているが、処理水質が悪く半数が運転を停止していたため、新規なフッ素処理法が求められていた。

すなわち、本研究における解決すべき課題は飲料水からのフッ素の除去と慢性腎臓病の原因究明と対策があげられた。

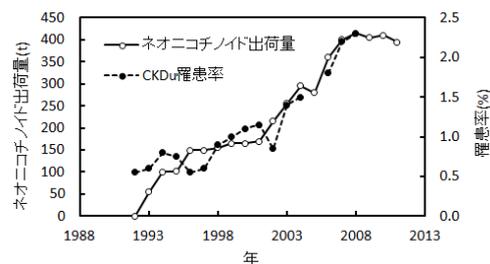


図1 ネオニコチノイド出荷量とCKDu 罹患率

### 2. 研究の目的

本研究ではフッ素症や CKDu 対策として、まず飲料水用の井戸水からフッ素を除去することを目的とした。アルミ電極電解法の代替として、炭素電極を用いた新しい電解法を開発し、鶏の骨を炭化した鳥骨炭フィルターによる吸着法と組み合わせてフッ素の除去を目指した。CKDu の原因究明として、井戸水、玄米、茶葉中のネオニコチノイド系農薬や CKDu 患者の尿中の代謝物に関して詳細な調査を実施した。

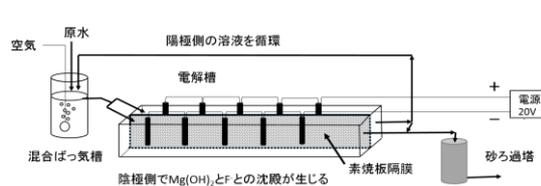


図-2 炭素電極電解法



図-3 スリランカアルミ電極電解法プラント



混合曝気槽 電解槽

図-4 炭素電極電解法

### 3. 研究の方法

井戸水からのフッ素の除去方法として、アルミ電極電解法に代わる手段として、炭素電極電解法を開発した。アルミ電極電解法はアルミを陽極に用い、溶解したアルミが水酸化アルミとなってフッ素と共沈する除去法であるが、処理水にアルミが残存して飲料水基準を守ることが困難である。また、味が悪い、アルミ電極が溶解したものを飲用することに抵抗があるなどの理由から、アマラダプラに建設された 11 基のうち、6 基は運転の中止を余儀なくされていた。本研究で開発した炭素電極電解法は、電解槽を隔膜で陽極と陰極とに隔て、電解を行うことで陰極側での pH 上昇に伴い生成する水酸化マグネシウムとフッ素とを共沈除去する方法である (図-2)。スリランカの井戸水はほとんどの場合マグネシウムを含んでいるので、原水に試薬は加える必要が無い。電極が溶解することもないため、長期連続運転が可能である。陽極側で塩素が発生するため、陽極側の液をわずかに処理水に混合することによって消毒も可能である。隔膜には現地で調達可能な素焼板を用いた。混合曝気槽は、原水と陽極側の酸性溶液を混合することによって、水酸化マグネシウムの生成を妨害する  $\text{HCO}_3^-$  (アルカリ度)

を除去するためのものである。2016年5月にスリランカ北部のアヌラダプラにおいて運転が停止しているアルミ電極電解法のプラント(図-3)を譲り受け、電解槽を素焼板を用いた電解槽に置き換え、混合曝気槽と追加することによって社会実装を図った(図-4)。電解槽、混合曝気槽と電源装置以外の沈殿槽、砂ろ過塔、処理水タンク、建屋などは既存のものをそのまま利用した。処理量は450 L/日であり、約25世帯に処理水を配水することが可能である。元々の処理装置は5つのコミュニティ100世帯に水を供給するものであるが、約1/4の能力のものを設置した。各コミュニティの長をはじめ、住民に対して説明会を実施し、装置のメンテナンスを依頼した。また、アヌラダプラにキャンパスのあるラジャラタ大学で処理水のフッ素濃度の分析を行う体制を整えた。

その後、電解槽の後段に鳥骨炭フィルターを備えたハイブリッド方式のプラントを、ラジャラタ大学構内に1基、アヌラダプラ市内の民家に1基を新たに設置し運転を開始した。鳥骨炭は鶏の骨を無酸素状態で600°Cで1時間炭化したものであり、フッ素の吸着除去能力に優れることがこれまでの研究で判明している。動物の骨であれば種類を問わないが、スリランカでは原料の調達可能性と宗教上の理由から鶏の骨を選択した。炭素電極電解法ではフッ素除去率は80%程度であり、処理水にフッ素が残留する可能性がある。一方、マグネシウムはほぼ100%除去できる。マグネシウムが無い状況では鳥骨炭はカルシウムを非常によく吸着するため、電解法の後段において鳥骨炭による処理を組み合わせることにより、フッ素の完全除去とマグネシウム硬度とカルシウム硬度の両方を除去できる。また鳥骨炭単独でフッ素の吸着除去を行うときに比べて、鳥骨炭の寿命を大幅に延長することができるというものである。処理能力はそれぞれ100 L/日である。

慢性腎臓病の原因調査に関しては、スクリーニングとして2016年に井戸水を15検体サンプリングし、ネオニコチノイドを含む245種類の農薬を分析した。2016年~2017年にかけて玄米と茶葉と尿検体を採取した。玄米にCKDu多発地域と非発地域一般家庭から分けてもらい、ネオニコチノイドと重金属を分析した。茶葉についてはCKDu患者が飲んでいる紅茶の葉を分けてもらい、ネオニコチノイド系農薬とその代謝物を分析した。尿についてはネオニコチノイドの代謝物、重金属、慢性腎臓病の指標であるL-FABPを分析した。濃度は単位クレアチニンあたりに補正した。

玄米は慢性腎臓病の多発地域から67検体、非発地域から24検体を採取した。茶葉は30検体を採取した。尿検体は両地域から84検体を採取した。

#### 4. 研究成果

アヌラダプラに設置した電解プラントは、当初フッ素濃度を2.1mg/Lから0.4mg/L程度にまで低下させることができ、スリランカの飲料水基準である1mg/Lを下回る水質を得ることができた。しかし、2016年10月頃より干ばつによる水不足のため運転の継続が困難となった。2017年度に新たな水源井戸から送液を開始したものの、その後も干ばつが継続したため水不足のため断続的にしか運転ができず安定的な運転データの取得が困難であった。

一方、電解法の後段に鳥骨炭フィルターを設置したハイブリッド方式では、ラジャラタ大学と一般の民家ともに原水のフッ素濃度が1-2 mg/Lであったが、電解槽の出口では約0.5-0.8 mg/Lであった。電解だけでもスリランカの飲料水基準を下回る水質が得られたが、その後段に設置した鳥骨炭フィルターを通過した後はフッ素濃度が0 mg/Lとなった。この状態は20 kgの鳥骨炭で約6か月運転を継続できた。また、カルシウムの吸着に関しては次第に吸着率が減少したが、運転開始後、3か月間はカルシウム濃度の減少が確認できた。

農薬の分析に関しては、スクリーニング目的でアヌラダプラで採取した15検体に対してネオニコチノイドを含む245種類の農薬の一斉分析を試みたが、いずれも検出限界以下(10 ug/L)であった。その後2017年度に検出下限を1/10-1/100に下げた高感度分析を実施するために、農薬の種類を44種類に絞り準備を整えたが、現地が干ばつのため稲作が実施できず農薬を使用しないという状況であった。そのため、8月に3サンプルのみをコントロールとして採取し、分析したが検出限界以下であった。その後、10月に降雨があり稲作が開始されたため、農薬散布時期である2018年1月にアヌラダプラのCKDu患者の居る家庭の井戸9本をサンプリングし、9種類のネオニコチノイドを下限值5ng/Lで測定したが、やはり検出されるものはなかった。井戸水、玄米、茶葉からのネオニコチノイドは検出されず、CKDuとの直接的な因果関係を明らかにすることはできなかった。

また、玄米中のカドミウム、鉛、クロム、ヒ素は、CKDu多発地域と非発地域との間に有意な差は見られなかった。またカドミウム、鉛、ヒ素の平均値はCODEXの基準値を下回っていた。カドミウムの最大値はCODEXの基準値を超えるものがあったが、CKDu多発地域と非発地域両地域とも濃度は同程度であった。なおクロムに関してはCODEXの基準が設定されていない。飲料水に関してもカドミウム、鉛、クロム、ヒ素は非常に低い濃度であり、両地域に有意な差も見られなかった。慢性腎臓病の指標の一つとされる尿中のL-FABP濃度に関してはCKDu患者ではL-FABP濃度が高く、非CKDu患者とは有意な差があった。一方L-FABP濃度と、尿中のカドミウ

ム、鉛、クロム、ヒ素濃度を比較したが、関連性は見られなかった。これらの観点からもカドミウム、鉛、クロム、ヒ素は CKDu の原因ではないと明確に結論付けることができた。

L-FABP の高い尿からはネオニコチノイドの代謝物が検出された。インタビューの結果、CKDu 患者の症状はネオニコチノイド中毒による症状と矛盾することはなかったが、このことからネオニコチノイドが CKDu に関わっていると判断するには至っていない。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① H. M. Ayala S. Herath, Tomonori Kawakami, Shiori Nagasawa, Yuka Serikawa, Ayuri Motoyama, G. G. Tushara Chaminda, S. K. Weragoda, S. K. Yatigammana & A. A. G. D. Amarasooriya, Arsenic, Cadmium, Lead, and Chromium in Well Water, Rice, and Human Urine in Sri Lanka relation to Chronic Kidney Disease of unknown etiology., *Journal of Water and Health*, 16(2), 212-222, 2018
- ② H. M. Ayala S. Herath, Kazusa Kubota, Tomonori Kawakami, Shiori Nagasawa, Ayuri Motoyama, S. K. Weragoda, G. G. Tushara Chaminda & S. K. Yatigammana, Potential risk of drinking water to human health in Sri Lanka, *Environmental Forensics*, 18:3, 241-250, 2017
- ③ 川上智規・宮崎 光・今井裕規・小西美咲、電解法による井戸水からのフッ素除去、*沙漠研究* 27-1, 41-47, 2017
- ④ Yuki Imai, Shiori Yanagawa, Misa Konishi, and Tomonori Kawakami, REMOVING FLUORIDE FROM A HOT SPRING USING AN ELECTROLYSIS SYSTEM, *International Journal of GEOMATE*, Vol. 12, Issue 32, 101-106, 2017
- ⑤ H. M. Ayala S. Herath, Tomonori Kawakami & Masamoto Tafu, Regeneration of Exhausted Chicken Bone Char (CBC) to Optimize its Usage in the Defluoridation of Drinking Water, *Journal of Ecotechnology Research*, 18(3), 2016
- ⑥ TOMONORI Kawakami, AYURI Motoyama, YUKA Serikawa, The Comparison of Two Water Treatment Plants operating with different processes in Kandy City, Sri Lanka, *Journal of Ecotechnology Research*, Vol.18 No.1, 1-6, 2016

[学会発表] (計 21 件)

- ① Yuki Imai, Misa Konishi, Tomonori

Kawakami, Simultaneous removal of fluoride and arsenic from hot spring wastewater by electrolysis technique, IFE12, 2018.1, University of Hawaii at Manoa

- ② H. M. Ayala S. Herath, Tomonori Kawakami, Masamoto Tafu, The Extremely High Adsorption Capacity of Fluoride by Chicken Bone Char (CBC) in Relation to Its Finer Particle Size, *エコテクノロジーシンポジウム*, 2017.12, 富山国際大学
- ③ A. A. G. D. Amarasooriyal, T. Kawakami, Fluoride and Hardness Species Removal in Drinking Water by Novel Electrochemical Method, *エコテクノロジーシンポジウム*, 2017.12, 富山国際大学
- ④ 今井裕規, 小西美咲, 川上智規, 電解法を用いた温泉排水からのフッ素とヒ素との同時除去, *エコテクノロジーシンポジウム*, 2017.12, 富山国際大学
- ⑤ 稲垣雄馬, 山内誉, 今井裕規, 小西美咲, 川上智規, 鉄を吸着させた鳥骨炭による飲料水からのヒ素とフッ素との除去, 第 51 回日本水環境学会年会, 2017.3 熊本
- ⑥ 小西美咲, 今井裕規, 川上智規, 電解法による飲料水や排水からのヒ素の除去, 第 51 回日本水環境学会年会, 2017.3 熊本
- ⑦ 今井裕規, 小西美咲, 川上智規, 電解法による温泉排水からのフッ素の除去, 第 51 回日本水環境学会年会, 2017.3 熊本
- ⑧ B. M. J. K. Balasooriya, G. G. T. Chaminda, K. C. Ellawala, Tomonori Kawakami, Comparison of Groundwater Quality in Southern Province 5th International Symposium on Advances in Civil and Environmental Engineering Practices for Sustainable Development, 153-160, 2017.3, Galle, Sri Lanka
- ⑨ 川上智規, 飲料水からのフッ素除去-スリランカでの実例-, *沙漠学会シンポジウム*, 2016.12, 宮崎
- ⑩ Y. Imai, S. Yanagawa, M. Konishi, T. Kawakami, Removing fluoride from a hot spring using an electrolysis system, *GEOMATE 2016*, 2016.11, Bangkok
- ⑪ T. Kawakami, A. Motoyama, T. Chaminda G. G., S. K. Weragoda, Spatial Distribution of Fluoride in Well Water of Sri Lanka and its Removal, 16th Conference of the Science Council of Asia, 2016.5, コロンボ
- ⑫ 宮崎光, 西野美紀, 川上智規, 連続式電解法を用いた共沈による飲料水からのフッ素除去, 第 50 回日本水環境学会年会, 2016.3, 徳島
- ⑬ Tomonori Kawakami, Hikaru Miyazaki, Haruna Takahashi, Homare Yamauchi, Fluoride removal from well water by bone

char Tunisia-Japan Symposium on Science, Society and Technology, 2016. 2, つくば

- ⑭ Suzuki Takumi, Hiroharu Ueta, Kawakami Tomonori, Arsenic removal from drinking water in Bangladesh by using a simple electrolysis system, 10th International Forum on Ecotechnology, 2015. 12, Yakushima
- ⑮ Yamauchi Homare, Miyazaki Hikaru, Kawakami Tomonori, Arsenic removal from drinking water by Chicken Bone Char doped with iron, 10th International Forum on Ecotechnology, 2015. 12, Yakushima
- ⑯ Takahashi Haruna, Yamauchi Homare, Kawakami Tomonori, H. M. Ayala S. Herath, Fluoride removal from drinking water by contact precipitation with bone char, 10th International Forum on Ecotechnology, 2015. 12, Yakushima
- ⑰ Yanagawa Shiori, Imai Yuki, Konishi Misa, Kawakami Tomonori, Hot Spring Project - Fluoride removal from wastewater from hot spring - by Center of Community, Toyama Prefectural University 10th International Forum on Ecotechnology, 2015. 12, Yakushima
- ⑱ Kawakami Tomonori, Miyazaki Hikaru, Takahashi Haruna, Yamauchi Homare, Safe water supply in developing countries focusing on fluoride and arsenic removal, 10th International Forum on Ecotechnology, 2015. 12, Yakushima
- ⑲ A. A. G. D. Amarasooriya, Hikaru Miyazaki, Tomonori Kawakami, Potential of Sri Lankan Apatite as a fluoride removal Agent from aqueous solution against various apatite materials, 6th International Conference on Structural Engineering and Construction Management, 2015. 12, Kandy, Sri Lanka
- ⑳ H. M. Ayala S. Herath, A. A. G. D. Amarasooriya, S. K. Weragoda, Kawakami Tomonori, COMMUNITY BASED FLUORIDE REMOVAL FILTER WITH CHICKEN BONE CHAR IN SRI LANKA, 6th International Conference on Structural Engineering and Construction Management, 2015. 12, Kandy, Sri Lanka
- ㉑ 川上智規, Ayala Herath, Sujithra Weragoda and Gayan Amarasooriya, 開発途上国における鳥骨炭を用いた飲料水からのフッ素除去, セラミック協会, 2015. 9, 富山

## 6. 研究組織

### (1) 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

### (2) 研究分担者

平 久美子 (TAIRA, Kumiko)  
東京女子医科大学・東京女子医科大学・講師  
研究者番号 : 10163148

池中 良徳 (KENAKA, Yoshinori)  
北海道大学・(連合) 獣医学研究科・准教授  
研究者番号 : 40543509

### (3) 連携研究者

袋布 昌幹 (TAFU, Masamoto)  
富山高等専門学校・その他部局等・教授  
研究者番号 : 50270244