

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23404003

研究課題名(和文)スリランカにおける飲料水中の高濃度フッ素の現状把握と鳥骨炭による除去

研究課題名(英文) Situation of fluoride contamination in well waters in Sri Lanka, and removal of fluoride by chicken bone char

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) 7,300,000円、(間接経費) 2,190,000円

研究成果の概要(和文)：スリランカ北部や南東部の乾燥地域では、地下水中のフッ素濃度が高く、これを飲むことにより、フッ素症を患っている住民が多数存在する。本研究ではスリランカの井戸1300か所について調査を行い、フッ素濃度の地理的な特性を把握した。フッ素濃度が高い地域においてフッ素を除去することを目的として、鶏の骨を炭化して製造した鳥骨炭を用いた吸着フィルターをスリランカの民家に設置して使用してもらった。その結果、鳥骨炭560gを用いたフィルターで1.8mg/Lのフッ素を含む井戸水1400Lの処理が可能であることがわかった。

研究成果の概要(英文)：In the dry zone of Sri Lanka, such as north central province and southeast province, fluoride concentration in the well water is high enough to cause dental fluorosis and bone fluorosis. In this research, we measured 1300 well waters to determine the fluoride concentration of the well water in the whole country. According to the analytical result, a spatial distribution map for fluoride was created.

To remove fluoride from well water, chicken bone char(CBC) was produced by pyrolysis at 600 C for 1 hour. Fluoride removal filter packed with CBC was operated by a family in Dambulla city of Sri Lanka to confirm the performance of the filter. It was revealed that 1400 L of the well water, which is equivalent to the averaged consumption of water for 140 days in a family with 4 person, could be treated by the filter containing 560 g of CBC. A kinetics model, which reproduced the fluoride concentration of treated water quite well, was established based on the first-order reaction.

研究分野：複合領域

科研費の分科・細目：環境技術・環境材料

キーワード：スリランカ フッ素 鳥骨炭 地下水 アパタイト

1. 研究開始当初の背景

平成 22 年 3 月にスリランカの国家上水排水庁から、飲料水のフッ素汚染がスリランカの重要課題として提示され、協力を求められた。具体的には北部中央州の Anuradhapura 地域において斑状歯が多くの住民に見られ、腎障害も見られるなど、高濃度フッ素によるとみられる健康障害が発生している。スリランカでは長期の内戦のため、フッ素濃度の地理的分布などは分かっていない。現地では分光光度計など基本的な分析装置もない。フッ素汚染の実態は、歯科医であり北部中央州の Provincial director of Health でもある Dr. Bandara による調査が実施されているが、疫学調査が主体で水質調査は十分になされてはいない。21 年 5 月に内戦が終結し安全が確保されたこと、Dr. Bandara による調査によって健康被害が明らかになったこと、スリランカ側から強い要請があったことから(1)フッ素汚染の実態解明と(2)フッ素除去の研究に着手した。

2. 研究の目的

本研究では、スリランカにおけるフッ素の地理的分布を明らかにすること、また、宗教的に抵抗感の無い鳥骨炭を用いたフッ素除去フィルターを開発し、現地の井戸水からのフッ素の除去を目的とする。

3. 研究の方法

(1) フッ素汚染の実態解明

スリランカにおけるフッ素の地理的分布を明らかにするために、現地の国家上排水庁ならびにルナ大学の協力を得て、スリランカ全土の井戸水のサンプリングを実施した。井戸の総数は 1,304 か所である。井戸の位置は GPS で緯度経度を把握した。井戸水は現地ですッ素の簡易分析を行い、住民に飲料用として利用可能な井戸を提示した。また、現地ですッ素をろ過し、水質を安定させた後、日本に持ち帰り、フッ素などのイオン成分ならびに金属成分をイオンクロマトグラフならびに ICP-MS を用いて分析した。分析結果は、GIS ソフト QGIS 上で分布地図を作製した。また、ORIGIN9.1 を用いて当濃度線図も作成した。

(2) フッ素除去

鳥骨炭を用いた井戸水からのフッ素の除去法では、鳥骨を温度や加熱時間など様々な条件で炭化し、フッ素除去に最適な製造条件を探索した。また、フッ素除去に対する水温や粒度の影響などを調べた。確立した製造法により製造した鳥骨炭を用いて、実験室内で鳥骨炭 110 g を用いたカラム吸着実験を実施した。その結果に基づき、吸着は一次反応に従うとした吸着モデルを構築した。モデルの

検証のため、鳥骨炭を用いた家庭用フィルターを設計し(図-1)、2013 年 9 月よりスリランカのダンブッラ市の一般家庭に設置し運転を開始し、処理水の水質を継続的にサンプリングすることによって調べた。鳥骨炭は 558 g を使用した。井戸水のフッ素濃度は 1.8 mg/L であった。

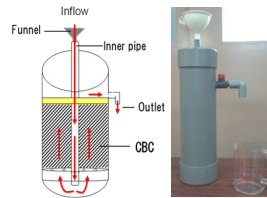


図-1 鳥骨炭を用いた家庭用フィルター

4. 研究成果

(1) フッ素汚染の実態解明

図-2 にスリランカの地区名とサンプリング地点を示す。このようにスリランカほぼ全土でサンプリングを実施した。各地区のサンプル数を表-1 に示す。

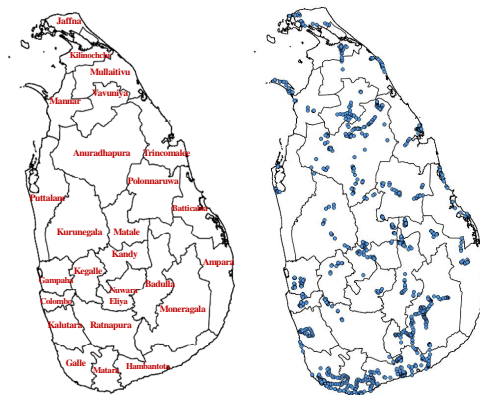


図-2 スリランカの地区名とサンプリング地点

表-1 各地区のサンプリング数(n)

| 地区名 | n | 地区名 | n |
|--------------|-----|--------------|-------|
| Ampara | 66 | Kurunegala | 32 |
| Anuradhapura | 187 | Mannar | 32 |
| Badulla | 65 | Matale | 61 |
| Batticaloa | 30 | Matara | 75 |
| Colombo | 25 | Moneragala | 141 |
| Galle | 86 | Mullaitivu | 23 |
| Gampaha | 25 | Nuwara Eliya | 8 |
| Hambantota | 142 | Polonnaruwa | 56 |
| Jaffna | 23 | Puttalam | 28 |
| Kalutara | 31 | Ratnapura | 30 |
| Kandy | 25 | Trincomalee | 28 |
| Kegalle | 30 | Vavuniya | 30 |
| Kilinochchi | 25 | Total | 1,304 |

また各地区の平均フッ素濃度を表-2 に示す。

表-2 各地区の平均フッ素濃度

| 地区名 | F ⁻ (mg/l) | 地区名 | F ⁻ (mg/l) |
|--------------|--------------------------|--------------|--------------------------|
| Ampara | 0.8 | Kurunegala | 0.7 |
| Anuradhapura | 1.1 | Mannar | 0.4 |
| Badulla | 0.6 | Matale | 0.4 |
| Batticaloa | 0.2 | Matara | 0.1 |
| Colombo | 0.0 | Moneragala | 1.4 |
| Galle | 0.1 | Mullaitivu | 0.1 |
| Gampaha | 0.0 | Nuwara Eliya | 0.0 |
| Hambantota | 0.6 | Polonnaruwa | 0.8 |
| Jaffna | 0.2 | Puttalam | 0.3 |
| Kalutara | 0.1 | Ratnapura | 0.1 |
| Kandy | 0.2 | Trincomalee | 0.8 |
| Kegalle | 0.1 | Vavuniya | 0.8 |
| Kilinochchi | 0.2 | | |

このように多くの地区で平均値がスリランカの飲料水基準の 0.6 mg/L を超えた。図-3 にフッ素の等濃度線図を示す。北部の Anuradhapura や Kurunegala、南部の Moneragala でフッ素濃度が高い。

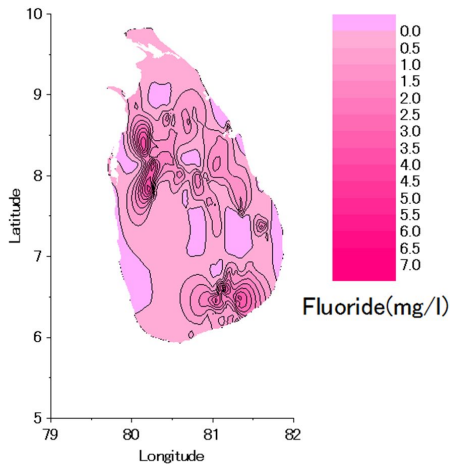


図-3 スリランカの井戸水中のフッ素濃度

(2) フッ素除去

実験室における吸着実験結果から吸着モデルを構築した。骨炭によるフッ素の吸着反応は一次反応に従うとして、最大吸着量に対する既吸着量の比から反応速度定数を推定するモデルを構築すると処理水の水質変化をよく再現することがわかった。

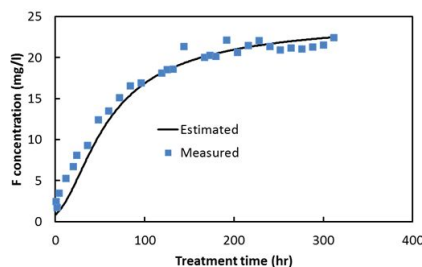


図-4 実験室における吸着実験結果から構築したモデルによるフッ素濃度の推算

図-4 はフッ素濃度を 25 mg/L に設定した時の実測値とモデルによる推算値との比較である。このモデルはフッ素濃度を 5 mg/L や 2.5 mg/L に設定した時も、処理水の水質変化をよく表現することができた。

そこでこのモデルをダンブッラの一般家庭に設置したフィルターでの運転結果に適用したところ、図-5 に示すように、実際の運転をよく再現することができた。フッ素濃度がスリランカの飲料水基準である 0.6 mg/L に達するまでに 1,400 L の飲料水を処理することができた。これは 4 人家族の水の使用量を 10 L/day とすると、140 日間使用できることを示している。

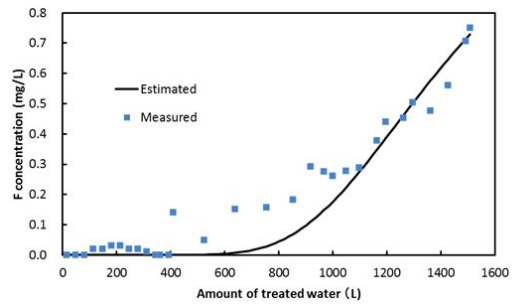


図-5 ダンブッラでの運転結果へのモデルの適用

また、フッ素の骨炭への吸着特性が溶液の硬度に大きく左右されることも判明した。図-6 に硬度の有無による Freundlich 吸着等温線の差異を示したが、特に低濃度領域で差が大きく、硬度がフッ素吸着を促進する。しかしながら本研究で用いたモデルは Freundlich 吸着等温線から最大吸着量を求め、既吸着量との比から反応速度定数を得ていることから、溶液の硬度による影響はモデルに織込み済みである。このことにより硬度が異なる水に対しても同じモデルが適用できるようになり実用性が向上した。

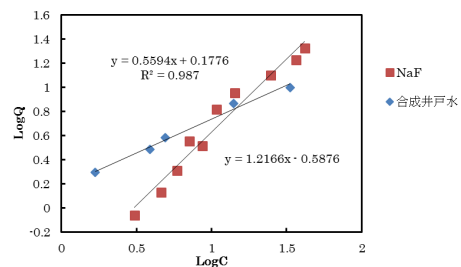


図-6 硬度の有無による Freundlich 吸着等温線の差異

従来、骨炭によるフッ素の吸着は、骨炭の主成分である、ヒドロキシアパタイトの OH 基と F とのイオン交換とされてきたが、このメカニズムでは硬度の影響を説明できない。そこで新しいメカニズムとして、溶液中のフッ素が骨炭に含まれるリン酸とイオン交換

をし、骨炭から溶出したリン酸と、溶液中のカルシウムとが難溶性のリン酸カルシウム塩（フルオロアパタイト）を生成することによりフッ素除去が促進される、という反応によるとすると、多くのフッ素吸着現象が説明できることを明らかにした。

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2件）

宮崎光，長澤詩織，本山亜友里，川上智規，酸処理を施した鳥骨炭による飲料水からのフッ化物イオン除去性能の向上，Journal of Ecotechnology Research（印刷中）

本山亜友里・川上智規・S.K. Weragoda・奥川光治・芹川裕加・袋布昌幹・高松さおり、スリランカにおける飲料水中のフッ素汚染の現状と対策、土木学会論文集 G（環境）Vol.68、No.7、III_517-III_523、2012

〔学会発表〕（計20件）

Tomonori Kawakami，Wataru Nishimura，Application of fluoride remover units in Sri Lanka，Workshop for the Joint Research Project，Tackle the 2 important issues of water resources in Tunisia: Sedimentation in reservoirs and Groundwater pollution by fluoride，2014.3、国立チュニジア農業学院

宮崎光・西野美紀・長澤詩織・川上智規・本山亜友里、硬度が鳥骨炭のフッ素除去に及ぼす影響、第48回日本水環境学会年会、2014.3、東北大学

西野美紀・宮崎光・長澤詩織・川上智規、電解と骨炭のコンビネーションによる地下水からの硬度とフッ素の同時除去、日本水環境学会年会、2014.3、東北大学

窪田一沙・川上智規・長澤詩織・本山亜友里、スリランカにおける井戸水の水質特性、平成25年度土木学会中部支部研究発表会、2014年3月、岐阜大学

KAWAKAMI Tomonori，Project overview，Safe drinking water supply in Sri Lanka，a collaborative research between Sri Lanka and Japan，Seminar on the water quality in Sri Lanka，2014.2，Kandy，Sri Lanka

NAGASAWA Shiori，KAWAKAMI Tomonori，MOTOYAMA Ayuri，S. K. Weragoda，Tushara Chaminda and SUDHARMA Yatigammana，The relationship between Chronic Kidney

Disease of unknown Etiology and the geographical distribution of fluoride and hardness in Sri Lanka，8th International Forum on Ecotechnology，2013.12，沖縄久米島

KAWAKAMI Tomonori，NAGASAWA Shiori，NISHINO Miki，MIYAZAKI Hikaru，MOTOYAMA Ayuri，S. K. Weragoda，Tushara Chaminda，Sudharma Yatigammana，Project overview-Safe drinking water supply in Sri Lanka，a collaborative research between Sri Lanka and Japan-，8th International Forum on Ecotechnology、2013.12、沖縄久米島

MIYAZAKI Hikaru，NAGASAWA Shiori NISHINO Miki，KAWAKAMI Tomonori，Chemical reaction involving in removing hardness from well water with chicken bone char，8th International Forum on Ecotechnology，2013.12、沖縄久米島

KUBOTA Kazusa，NAGASAWA Shiori，MOTOYAMA Ayuri，KAWAKAMI Tomonori，S. K. Weragoda，Tushara Chaminda and SUDHARMA Yatigammana，Characteristics of pH，alkalinity，and nitrate of well water in Sri Lanka，8th International Forum on Ecotechnology，December 20，2013，Kumejima，Okinawa

長澤詩織・宮崎光・本山亜友里・川上智規・野々部領子、酸処理による鳥骨炭のフッ素除去性能の向上、第50回環境工学研究フォーラム講演集、101-103、2013.11、北海道大学

宮崎光・長澤詩織・本山亜友里・川上智規、骨炭による溶液中のフッ素除去メカニズム、第50回環境工学研究フォーラム講演集、104-106、2013.11、北海道大学

Tomonori Kawakami，Ayuri Motoyama，S.K. Weragoda，Tushara Chaminda G.G，S.K.Yatigammana，Well Water Quality in 14 districts in Sri Lanka - A collaboration research between Sri Lanka and Japan -，International Symposium on Advances in Civil and Environmental Engineering Practices for Sustainable Development，University of Ruhuna，27 September，2013

本山亜友里、川上智規、S.K.Weragoda、S.K.Yatigammana、Tushara Chaminda G.G、スリランカにおける井戸水の水質と健康影響、第13回環境技術学会 年次大会講演要旨集 80-81、2013.9、岐阜大学

T. Kawakami，A. Motoyama，Y. Serikawa，S.K.Weragoda，T. Masamoto and S. K.

Yatigamma, Sri Lanka - Japan Collaborative Research on Ground Water Quality in Chronic Kidney Disease of Unknown Etiology (CKDu) Prevalent Areas in Sri Lanka, Conference on Sri Lanka Japan Collaborative Research - 2013, 31 March 2013.

Weragoda S.K., Kawakami Tomonori, Motoyama Ayuri and Kodithuwakku S., Is Groundwater in Dry Zone, Sri Lanka Safe to Drink?, World Water Day Symposium 2013, 22 March 2013.

A. Motoyama, T. Kawakami, Y. Serikawa and S.K. Weragoda, Removal of fluoride from drinking water by chicken bone char, Second International Symposium on Water Quality and Human Health : Challenges Ahead, March 16, 2013, Kandy, Sri Lanka

Ayuri Motoyama, Tomonori Kawakami, Yuka Serikawa, S.K. Weragoda, The Spatial Distribution of Fluoride, Arsenic and Hardness in Well Water, and the Relationship between the Measured Chemical Variables and Chronic Kidney Disease of Unknown Etiology (CKDu) in Sri Lanka, 7th International Forum on Ecotechnology, December 15, 2012, Takaoka, Toyama

Hikaru Miyazaki, Shiori Nagasawa, Ayuri Motoyama, Tomonori Kawakami, Improvement in the Performance of Fluoride Removal by Acid Treatment on Chicken Bone Char, 7th International Forum on Ecotechnology, December 15, 2012, Takaoka, Toyama

Ayuri Motoyama, Tomonori Kawakami, S.K. Weragoda, Yuka Serikawa, The Spatial Distribution of Fluoride, Arsenic and Hardness in Well Waters in Sri Lanka, and the Relationship between the Components and Chronic Kidney Disease, The 4th IWA Asia-Pacific Young Water Professionals Conference, December 8, 2012, Tokyo

Weragoda S. K., Kawakami Tomonori, Motoyama Ayuri and Kodithuwakku S., Goals in drinking water supply and groundwater pollution: Field investigation in eight districts, Sri Lanka, The Tenth International Symposium on Southeast Asian Water Environment, November 8-10, 2012, Hanoi, Viet Nam

〔図書〕(計1件)

Tomonori Kawakami, Ayuri Motoyama, Shiori

Nagasawa, S. K. Weragoda, Tushara Chaminda, Atlas of the well water quality in Sri Lanka Sanduni printers (Pvt.) Ltd.2013.3
89 ページ

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

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