

# 論文審査報告書

氏名	アヤラ スナリ ヘラス H. M. Ayala Sunali Herath
学位の種類	博士 (工学)
学位記番号	博環第1号
学位授与日	平成30年3月17日
論文題目	Public Health and Groundwater Quality in Sri Lanka and Defluoridation of Drinking Water In relation to Chronic Kidney Disease of unknown etiology (スリランカにおける公衆衛生と地下水水質ならびに飲料水からのフッ素除去原因不明の慢性腎臓病に関連して)
論文審査委員	(主査) 富山県立大学 教授 川上 智規 教授 楠井 隆史 教授 渡辺 幸一 准教授 手計 太一 福岡工業大学 客員教授 永淵 修

## 内容の要旨

スリランカは北緯 6°~8°、東経 79°~82°に位置する面積 65,610km<sup>2</sup>の島国である。気候帯は雨量によって南西部の湿潤地域とそれ以外の乾燥地域とに分かれる。気温は年間を通して 28°C~30°Cである。スリランカでは飲料水として地下水が広く利用されている。しかしながら、特に乾燥地域においては地下水に高濃度のフッ素が含まれることにより、それを飲用した住民には斑状歯や骨フッ素症などのフッ素症が蔓延している。また、スリランカの乾燥地域で多発し大きな社会問題となっている、原因不明の慢性腎臓病(CKDu)は、その発生地域が限定されていることから地下水が原因ではないかと疑われている。さらに、地下水にはフッ素症や CKDu 以外にも疾病の原因となる物質が含まれている可能性も否定できない。しかしながらスリランカではこれまで内戦が続いたこともあり、地下水水質はほとんど調査されていない。また、地下水以外にコメに含まれるヒ素や重金属や農薬なども CKDu の原因として疑われているが、測定データが無く、関連性は不明である。

本研究では、まず、スリランカ全土の地下水の水質調査を行い、飲料水としての健康影響が出るレベルかどうかについて危険性を評価した。次に CKDu の原因として疑われている、ヒ素、カドミウム、鉛、クロム、農薬について飲料水やコメについて調査を行った。これらの結果、CKDu の原因として飲料水中のフッ素が最も疑われたため、飲料水からのフッ素除去を試みた。フッ素の吸着材には現地でも製造可能であり宗教上の問題の少ない鶏の骨を炭化した鳥骨炭を用いたフィルターを開発し、その性能向上

に関して検討した。本論文は全4章から構成されている。

第一章ではスリランカの井戸水の水質を調査し、健康影響が出るレベルかどうかを WHO の飲料水に関するガイドラインやスリランカの飲料水基準と比較検討した。また、各水質項目の CKDu 発生地域との地理的分布から原因物質の究明を試みた。スリランカ全土において、飲料水に利用されている井戸水 1435 か所についてヒ素や重金属を含む 23 項目の水質を調査し、それらの濃度分布を地図上に表した。その結果、CKDu 多発地帯とフッ素濃度が高い地域とが重なることを見出した。一方、従来 CKDu の原因の一つと考えられてきたヒ素に関しては、ヒ素を含む井戸は特定の地質の地域に限られ、それは CKDu 多発地帯とは無関係な地域であることが判明した。さらに重金属も CKDu の原因の一つと考えられてきたが、井戸水中のカドミウム、鉛、クロム等を測定した結果、高濃度で検出される井戸は存在しなかった。その一方で、フッ素、ヒ素、硝酸イオンは WHO の飲料水に関するガイドラインやスリランカの飲料水基準の濃度を超える地下水が多数存在し、対策が必要であることが判明した。

第二章ではコメやヒトの尿中のヒ素、カドミウム、鉛、クロムを測定し、CKDu との関連性を検討した。スリランカのコメに含まれるヒ素、カドミウム、鉛は、食品の国際規格である CODEX の基準を超えるような高い含有量のものではなかった。クロムは CODEX の基準は設定されていないが、日本のコメと比較して高いレベルではなかった。また、CKDu 発生地域と非発生地域のコメのヒ素、カドミウム、鉛、クロムの含有量には有意な差がなかった。腎臓機能の指標とされる人の尿中の L 型脂肪酸結合蛋白 (L-FABP) を測定し、カドミウム、鉛、クロムとの関連性について調べたが、L-FABP とそれらの重金属との関連性は見られなかった。これらの知見から、従来 CKDu の原因とされてきたヒ素や重金属の影響を明確に否定できた。さらに、地下水やコメに含まれる 245 種類の農薬について調べたが、検出されるものはなかった。

第三章では CKDu 対策として、飲料水からのフッ素除去を試みた。現地で利用可能な材料である鶏の骨を用いて作成した、鳥骨炭を吸着材としたフィルターを考案した。鶏の骨を用いたのは宗教上の問題を避けるためである。鳥骨炭は鶏の骨を無酸素状態で 600°C で 1 時間半加熱することによって作成した。23 kg の鳥骨炭(CBC)を約 10 mm 以下に砕き、直径 16cm の塩ビパイプに詰めたフィルターをスリランカで運転し、約 20 世帯の住民にフッ素を除去した飲料水を提供した。このフィルターによって 143 日間にわたり飲料水を住民に提供できた。その後、鳥骨炭の交換を 2 回実施し、約 1 年半の間運転を継続した。別に実験室で得た吸着実験結果から吸着モデルを作成し、現地のフィルターに適用した結果、現地フィルターによる処理水中のフッ素濃度変化を良く再現できた。このモデルは、まず、処理する地下水と鳥骨炭とを用いてフッ素に関する Freundlich 吸着等温式を実験的に求め、一定の濃度における平衡吸着容量を求める。次に、その平衡吸着容量と実際に鳥骨炭に吸着したフッ素量との差分から鳥骨炭によるフッ素の吸着速度定数を推算する簡易なものである。 Freundlich 吸着等温式を得ることができれば、あらゆる鳥骨炭フィルターに適用可能な汎用性の高いモデルである。

第四章では、鳥骨炭の吸着容量の増加を試みた。より小さいサイズ(106-212  $\mu\text{m}$ )の鳥骨炭を充填したフィルターを用いて実験室でフッ素の吸着実験を行った。その結果、Langmuir 吸着等温式から得られた鳥骨炭のフッ素の最大吸着容量が 5.8 mg-F/g-CBC であるのに対して、このフィルターでは 11 mg-F/g-CBC と約 2 倍の吸着容量が得られた。BET 比表面積は通常サイズの鳥骨炭も小さいサイズの鳥骨炭も約 140  $\text{m}^2/\text{g-CBC}$  で差異は無く、単純に表面積が増加したということでは無い。

また、使用済みの鳥骨炭に熱を加えることによって再生を試みた。フッ素で飽和した鳥骨炭を無酸素状態で加熱すると再びフッ素の吸着が見られた。様々な温度で加熱し最適再生温度を求めたところ、

400°Cで最も吸着容量が大きくなった。この時、吸着容量は通常の鳥骨炭が 6.2 mg-F/g-CBC であったのに対して、再生鳥骨炭は 2.0 mg-F/g-CBC の増加がみられ、合計 8.2 mg-F/g-CBC と、おおよそ 32% の増加がみられた。400°Cでの再加熱中、鳥骨炭に一旦吸着されたフッ素は減少しなかったため、再加熱によりフッ素の吸着サイトが解放されるのではなく、新たな吸着サイトが露出したものと考えられた。

## 審査の結果の要旨

本論文はスリランカで多発し、社会問題となっている原因不明の慢性腎臓病(CKDu)の原因調査と対策に関するものである。

第一章ではスリランカの井戸水の水質と CKDu 発生地域との地理的分布から原因物質の究明を試みた。スリランカ全土の飲料水に利用されている井戸水 1435 か所の水質を調査した結果、CKDu 多発地帯とフッ素濃度が高い地域とが重なることを見出した。一方、従来 CKDu の原因の一つと考えられてきたヒ素に関しては、ヒ素を含む井戸は特定の地質の地域に限られ、それは CKDu 多発地帯とは無関係であることが判明した。また、重金属も CKDu の原因の一つと考えられてきたが、井戸水中のカドミウム、鉛、クロム等を測定した結果、高濃度で検出される井戸は存在しなかった。一方、フッ素、ヒ素、硝酸イオンは WHO の飲料水に関するガイドラインの濃度を超える地下水が多数存在した。

第二章ではコメやヒトの尿中のヒ素、カドミウム、鉛、クロムを測定し、CKDu との関連性を検討した。スリランカのコメに含まれるヒ素、カドミウム、鉛は、食品の国際規格である CODEX の基準を超えるような高い含有量のものではなかった。クロムは CODEX の基準は設定されていないが、日本のコメと比較して高いレベルではなかった。また、CKDu 発生地域と非発生地域のコメのヒ素、カドミウム、鉛、クロムの含有量には有意な差がなかった。腎臓機能の指標とされる人の尿中の L-FABP を測定し、尿中のカドミウム、鉛、クロムとの関連性について調べたが、L-FABP とそれらの重金属との関連性は見られなかった。これらの知見から、従来 CKDu の原因と考えられてきたヒ素や重金属の影響を明確に否定できた。

第三章では CKDu 対策として、飲料水からのフッ素除去を試みた。現地で利用可能な材料である鶏の骨を用いて作成した、鳥骨炭を吸着材としたフィルターを考案した。鳥骨炭は鶏の骨を無酸素状態で 600°C で 1 時間半加熱することで作成した。23 kg の鳥骨炭(CBC)を約 10 mm 以下に砕き、直径 16cm の塩ビパイプに詰めたフィルターをスリランカで運転し、約 20 世帯の住民に提供した。このフィルターによって 143 日間フッ素を除去した飲料水を住民に提供できた。その後、鳥骨炭の交換を 2 回実施し、約 1 年半の間運転を継続した。別に実験室で実施した吸着実験結果から吸着モデルを作成し、現地のフィルターに適用した結果、フッ素濃度の変化を良く再現できた。

第四章では鳥骨炭のフッ素の吸着容量の増加を目指して、より小さいサイズ(106-212  $\mu\text{m}$ )の鳥骨炭を充填したフィルターを用いて実験室で吸着実験を行った。その結果、Langmuir 吸着等温式から得られた鳥骨炭の最大吸着容量が 5.8 mg-F/g-CBC であるのに対して、このフィルターでは 11 mg-F/g-CBC と約 2 倍の吸着容量が得られた。BET 比表面積は通常サイズの鳥骨炭も小さいサイズの鳥骨炭も約 140  $\text{m}^2/\text{g-CBC}$  で差異は無く、単純に表面積が増加したということでは無い。

また、使用済みの鳥骨炭に熱を加えることによって再生を試みた。フッ素で飽和した鳥骨炭を 400°C で無酸素状態で加熱すると再びフッ素の吸着が見られ、吸着容量は通常の鳥骨炭が 6.2 mg-F/g-CBC であったのに対して、再生鳥骨炭では 8.2 mg-F/g-CBC の吸着容量があり、おおよそ 32%の増加がみられた。400°Cでの再加熱中、鳥骨炭に一旦吸着したフッ素の減少は見られなかったことから、再加熱によりフッ素の吸着サイトが解放されたのではなく、再加熱することによって、新たな吸着サイトが露出したものと考えられた。

本論文の内容は、スリランカで飲用されている地下水の健康影響を評価するとともに、CKDu の原因

解明ならびに対策につながるものであり、社会的要請に学術分野からの確に応えたものである。その研究の手法・結果には独創性が認められ、博士論文の研究方法論、得られた結果とその解釈が適切であり、的確な文章表現が与えられている。この成果は環境工学の衛生工学分野における工学的価値が認められる。本研究に関する発表論文は3編あり、すべて申請者が筆頭著者である。

審査委員会は、平成30年2月13日に博士論文の審査及び最終試験を行った。その結果、本論文は本学が学修の指針に定める評価項目を満たし、申請者は学術研究にふさわしい討論ができ、独立して研究を遂行する能力を有するものと判断された。よって、本論文は、博士（工学）の学位論文として合格であると認められた。