

学 位 論 文 題 名

Risk management of arsenic and boron in the Toyohira River Basin

（豊平川流域におけるヒ素及びホウ素のリスク管理）

学位論文内容の要旨

本研究は、環境水中に存在し健康影響リスクを有するヒ素及びホウ素のリスク管理に関するものである。本研究の対象地域として、上水道の水源流域にヒ素及びホウ素の汚染源が存在する豊平川流域を選定し、5 年におよぶ流域調査、及び浄水場、下水処理場の機能解析、実験室における処理実験を実施し、ヒ素及びホウ素の汚染の実態、物質収支、及び処理施設の機能を明らかにした。その結果、測定に多大な時間、労力、及び高価な測定機器を必要とするヒ素及びホウ素の水道原水中の濃度あるいは浄水場での処理状況等を、常時それらの物質の濃度を直接測定して監視することは難しく、結果としてヒ素除去のための凝集処理プロセス、酸化プロセスが十分に行われていないという問題点を明らかにした。その対策法として、様々な検討を行った結果、水道原水中のヒ素濃度の代替指標としては河川流量が、またヒ素の浄水場での凝集処理状況の迅速なモニタに関しては、紫外部 260nm の吸光度（E260）が有効であることを明らかにした。以下に各章の要旨を示す。

1 章では本研究の背景、目的及び研究の範囲について述べてある。本研究の目的は、豊平川流域におけるヒ素及びホウ素の汚染実態を明らかにし、さらにそれらのリスク管理を適切に行うために水道原水中の濃度レベルおよび処理状況を簡易に予測する指標を提案すること、またヒ素及びホウ素の上下水道システムにおける収支から、システム全体のリスク管理のための対策を提案することである。

2 章では、ヒ素及びホウ素について、その物理化学的特徴、毒性等について文献調査を行った結果をまとめた。特にヒ素については古くからその毒性が知られており、健康影響に関する報告が多く存在するため、世界各地で自然由来のヒ素による飲料水起因の健康被害が起こっている事例について国別にまとめた。これにより、現在も飲料水由来のヒ素による健康被害は進行中であり、ヒ素の適切なリスク管理が必要であると言える。また、ホウ素については動物実験においては健康影響が明らかであるが、長期間暴露によるヒトへの影響はまだ明らかではない。しかし、健康影響が懸念される物質であり、また海水を始めとして地下水や温泉水に高濃度含まれ、さらに通常の処理で除去されないことから、水源

レベルでの適切なリスク管理が必要な物質である。

3章では、豊平川上流部における調査によって、水道原水を取水している地点よりも上流部における豊平川の河川水中でのヒ素及びホウ素の挙動、及び他の無機物質との関係等について明らかにした。豊平川は水力発電の放流水等により、河川流量が時々刻々と変化する。したがって、ヒ素やホウ素の濃度が流量変動にともない変化する。そこで、水道原水中のヒ素、ホウ素のリスク管理をするためには、これらの原水中の濃度を監視する必要があるが、これらの測定には高価な測定機器と前処理に時間を必要とし、常時濃度を測定することは現実的ではない。そこで、自動計測が可能な塩化物イオンと河川流量がこれらの河川中での濃度と良い相関関係を示したことから、これらがヒ素及びホウ素の水道原水中の濃度の指標と成り得ることが示された。

4章では、ヒ素及びホウ素を原水に含み、中間塩素処理を伴った急速砂ろ過システムを採用している浄水場において調査を行い、形態別ヒ素（懸濁性5価ヒ素、溶解性5価ヒ素、溶解性3価ヒ素）の除去状況を溶解性、懸濁性の鉄、マンガンの除去とともにみた。その結果、ヒ素は溶解性5価の状態ではろ過で除去されないため、急速ろ過システムにおいてヒ素の除去効率を上げるためには、ろ過池の手前までにヒ素を凝集剤を用いて懸濁性5価の状態にすることが不可欠であることが明らかになった。また、原水に3価のヒ素を含む場合には、自然ばっ気では十分に酸化されないことから、凝集剤添加以前に酸化剤を用いて3価のヒ素を5価に完全に酸化することが必要であることが明らかになった。溶解性5価ヒ素除去のために凝集剤が適切な量添加されているかを知るためには、浄水場において溶解性5価ヒ素の除去率を知る必要があるが、ヒ素の測定は高価な測定機器と前処理や測定にかなりの時間を要するため、ヒ素が安全なレベルまで除去されているかを知るために、ヒ素濃度を常時測定するのは容易なことではない。そこで、簡易かつ迅速に測定可能で、さらに自然水中に一般的に存在する紫外部260nmの吸光度（E260）の除去率で、ヒ素の除去率の予測を試みた。ヒ素を添加した自然水を用いたジャーテストを行った結果、E260除去率が70%以上であるように凝集剤を添加した時、溶解性5価ヒ素は90%以上除去され、基準値以下にコントロール可能なことが明らかになった。また、浄水場の凝集前後でのE260と溶解性5価ヒ素の除去率を調査したところ、E260の除去率は55%以下と低く、またこの時ヒ素の除去率も75%以下と低かった。したがって、実際の浄水場の凝集処理においても、E260除去率がヒ素の濃度レベルを基準値以下にコントロールできるような凝集剤注入率の簡易的な指標となることが明らかになった。

5章では、札幌市全ての下水処理場での流入下水、処理水、汚泥の調査から、札幌市の下水システムにおけるヒ素の流れを明らかにした。通常の活性汚泥法により、ヒ素は良く除去されていることが明らかになった。したがって、除去されたヒ素は汚泥中に移行し、その後汚泥処理センターあるいは下水処理場において焼却され、埋め立て処分される。3章

で述べた温泉地区の温泉排水を受け入れている下水処理場では、大量のヒ素が汚泥中に移行するが、その汚泥はヒ素含有量が少ない他の下水処理場の汚泥と混合して焼却されているため、汚泥を肥料などとして再利用することを困難にしていることを指摘した。

6章では、ヒ素及びホウ素のリスク評価を行った。ヒ素については、現在の浄水システムではヒ素の発がんリスクを 7×10^{-4} から 1.5×10^{-4} まで削減しているが、十分とは言えない。またホウ素については、通常の処理では全く除去されないことを明らかにし、膜処理のような高度処理を用いるか、あるいは水源の変更をするしか方法が無いことを指摘した。適切なリスク管理のためのヒ素及びホウ素の低減方法をいくつか提案し、コスト等を含めた比較検討を行った結果、ヒ素については現在の浄水処理に加えて凝集を強化することにより、リスクの削減は可能であり、追加の凝集剤にかかるコストは少なくて済むことが明らかになった。しかしこの場合、ヒ素を含む汚泥の発生量が増え、またホウ素のリスク削減効果は全く無い。そのため、代替水源の検討を行ったところ、ヒ素、ホウ素の主な発生源である温泉水が混入した直後の河川水を、浄水場取水地点よりも下流に放流して水道原水に混入しないようにするのが、ヒ素及びホウ素両方のリスク管理を考慮した場合に最適な方法であることが示された。

7章では本研究の総括を行い、本研究の結果は豊平川流域に限らず、上水道の水源流域がヒ素あるいはホウ素に汚染されているような他の地域に応用できることを示した。

学位論文審査の要旨

主査	教授	真柄泰基
副査	教授	高桑哲男
副査	教授	清水達雄
副査	教授	渡辺義公
副査	助教授	亀井翼

学位論文題名

Risk management of arsenic and boron in the Toyohira River Basin

(豊平川流域におけるヒ素及びホウ素のリスク管理)

地下水や湧水の影響を受ける地下水あるいは金属鉱山排水の影響を受ける水道水源を利用している地域では、ヒ素及びホウ素による健康障害や高い健康影響リスクが存在している。これらは、地質等自然由来であることから環境管理に適切な規制や管理技術が確立していないため、国際的にもその適正技術の開発が求められている。

本論文は、そのような影響を受けている豊平川流域を対象として、ヒ素及びホウ素の流出機構、水道及び下水道における健康影響リスクを同定するとともに、豊平川流域におけるリスク管理の現況とリスク削減のための方策を明らかにし、さらには、その方策にかかる経済的な評価を行ったものである。

1章では本研究の背景、目的及び研究の範囲について述べている。

2章では、ヒ素及びホウ素についてその物理化学的特徴、毒性等について文献調査を基に論じている。特にヒ素については世界各地で自然由来のヒ素による飲料水起因の健康被害が起こっている事例について国別にまとめた。これにより、飲料水由来のヒ素による健康被害は世界各国で深刻な状況にあり、有効な対策が行われていないことを明らかにし、ヒ素の適切なリスク管理技術の確立が必要であるとした。また、ホウ素については既存の汎用されている水処理技術では除去が出来ない物質であることから、その水環境への排出を抑制する等、水資源管理が不可欠な物質であることを明らかにした。

3章では、水道原水を取水している地点よりも上流部における豊平川中でのヒ素及びホウ素の挙動等について明らかにした。その結果、それらの発生源は定山溪温泉水および豊羽鉱山排水の固定発生源であり、その流出負荷量はほぼ一定であることから、河川水のそれらの濃度は河川水量に伴って変化することを明らかにした。しかし、豊平川にあっては、環境基準を遙かに超える濃度で存

在するため、水道水中のヒ素、ホウ素のリスク管理をするためには、これらの原水中の濃度を監視する必要がある。しかしこれらの測定は前処理に時間を要し、常時測定することは現実的ではないことから、自動計測が可能なヒ素と共存する塩化物イオンと河川流量を測定することにより、それらの濃度を迅速・簡便に予測することが可能であることを明らかにし、代替水質指標の有効性を明らかにした。

4章では、上水道システムにおけるヒ素及びホウ素の挙動を浄水システムを中心に明らかにした。水道原水中に存在するヒ素は溶解性の5価、3価ヒ素であり、懸濁性ヒ素の存在量は少ないことを明らかにした。そのため、懸濁性物質を除去対象とする既存の凝集沈殿処理では、溶解性5価、3価のヒ素の低減が十分でないことが明らかとなった。水道原水中に存在する溶解性のマンガンを酸化するため中間塩素処理を行っているが、これに伴って3価のヒ素は5価にまで酸化されるものの、浄水プロセス内で酸化された5価ヒ素も急速砂ろ過システムでは除去されていないことを明らかにした。

溶解性の5価のヒ素を除去するためには、5価のヒ素をアルミニウムフロックに十分凝析吸着させることが必要であり、そのためには懸濁物質を凝集するための凝集剤注入率管理から、5価ヒ素凝析を目途とする凝集剤注入率管理を行わなければならないことを明らかにした。凝集剤注入率を5価ヒ素濃度を測定しながら行うことは、その分析的特徴から工学的に限界がある。そこで、溶解性物質の凝集限界の指標として自然水中に一般的に存在するE260成分の除去率と溶解性ヒ素除去率の関係を明らかにし、E260除去率を指標とする凝集操作の有効性を明らかにした。

5章では、札幌市の下水道システムにおけるヒ素の挙動を明らかにした。定山溪地区の下水は高濃度で存在するため、そこから発生する汚泥中にはヒ素が高濃度で存在する。また、市内の下水処理場では水道水中のヒ素が汚水にそのまま存在し、さらには下水管へ浸入するヒ素を含有する地下水のヒ素が汚泥中に存在することを明らかにした。そのため、汚泥のコンポスト等資源利用を困難にしているとともに、埋め立て処分されている焼却灰中のヒ素によるリスクが大きなものとなっていることを明らかにした。

6章では、ヒ素及びホウ素のリスク評価を行い、ヒ素による水道水の発ガンリスクは 10^{-4} オーダーであることを明らかにした。このリスクをホウ素のリスクをも考慮して低減するための各種方策を比較検討したところ、温泉水が混入した直後の河川水を遮水して、浄水場取水地点より下流に放流することが有効な方法であるとした。

7章では本研究の総括を行い、上水道の水源流域がヒ素あるいはホウ素に汚染されているような他の地域に応用できることを示した。

これを要するに著者は、自然由来のヒ素及びホウ素に関して水道及び下水道という都市水代謝システムにおけるリスクを評価し、その管理のための方策を策定する手法を確立したものである。これは、自然由来等の有害無機物質のリスク管理工学の進歩に資するとともに、都市環境工学特に環境衛生工学に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格があるものと認める。