

200501224A

厚生労働科学研究研究費補助金

健康科学総合研究事業

Bangladesh及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域に  
おいて地下水を(安全な)水道水源とする実現可能性評価に関する研究

平成17年度 総括研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所

徳永 裕司

分担研究者

宮崎大学工学部

横田 漠

聖マリアンナ医科大学

山内 博

北海道大学大学院工学研究科

大野 浩一

国立保健医療科学院

国包 章一

平成18(2006)年3月

# 目 次

## I. 総括研究報告

- Bangladesh及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域において地下水を  
 (安全な) 水道水源とする実現可能性評価に関する研究 ..... 1  
 徳永 裕司

## II. 分担研究報告

1. ヒ素汚染の地下水を飲用する住民の尿・毛髪等からのヒ素暴露評価  
 と健康影響に関する研究 ..... 19  
 徳永 裕司
2. Bangladeshに設置した砒素除去装置の性能および除去汚泥の処分 ..... 45  
 横田 漠
3. 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 ..... 55  
 山内 博
4. 給水システムの実現可能性評価 (陰膳調査による包括的なヒ素摂取量の  
 推定と調理用水の給水により得られる改善効果) ..... 65  
 大野 浩一

厚生労働科学研究費（健康総合研究事業）

総括研究報告書

バングラデシュ及び中国を中心とする地下水のヒ素汚染地域において地下水を（安全な）水道水源とする実現可能性評価に関する研究

主任研究者 徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部長

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約4700万人、中国で約300万人とされている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は20数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。各研究者は次のテーマを中心に本年度の研究を実施した。

徳永主任研究者：平成17年6月13日～14日にかけて、北海道大学大野先生のグループと一緒にバングラデシュ・チャパインワブガンジ地区チュナカリ村をラシャヒ大学 M. Hamidur Rahman 教授、Bilkis Bergum 準教授及びラシャヒ医科大学の A. K. B. Zaman 助教授と一緒に訪れ、ヒ素被害家族の特定とヒ素被害家族から尿及び毛髪を採取し、種々の測定を実施した。また、この地域でヒ素フリーな地下水を供給するため、深層地下水の利用を計画した。その計画の経緯を報告する。また、平成18年2月4日～5日にかけて、国包分担研究者と一緒にチュナカリ村を訪れ、深層の管井戸及びヒ素除去装置の Gravel Sand Filter の設置状況の調査並びに水及びヒ素除去処理後の飲料水並びにヒ素被害家族からの尿及び毛髪の採取を行った。それらの結果を報告する。

横田分担研究者：バングラデシュに設置した Gravel Sand Filter のヒ素除去性能の保持及び排出されるヒ素汚泥の処分方法について研究する。平成15年1月～平成18年1月の間の3年間のヒ素除去性能の履歴とメンテナンス方法及び沈殿汚泥の処分に関する研究の報告を行う。

山内分担研究員：内蒙古自治区包頭市郊外に居住する村民430世帯、2080名から96名を選出し、皮膚科的検診を行った。皮膚科的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暴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調査した。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。

大野分担研究員：陰膳法に基づくヒ素摂取量の推定を行った。陰膳法をベースにして、コメ・チャパティ・スープ類・固形物と分類した食事からのヒ素濃度を分析することで、次の報告を行う。（1）水からのヒ素摂取量と食料からのヒ素摂取量の比較、（2）飲料水からのヒ素摂取量と炊飯用水やその他調理用水からのヒ素摂取量の推定、最後に掘り井戸に水源を変えたことによるヒ素摂取量の削減効果と現状における問題点について考察。本年度の研究においては、実験室により段階的にヒ素濃度を変化させた水を用いて、バングラデシュ方式で炊飯した場合の炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の変化についても報告する。

分担研究者

徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 部長  
横田 漢 宮崎大学工学部 教授  
山内 博 聖マリアンナ医科大学 助教授  
大野浩一 北海道大学大学院工学研究科 助手  
国包章一 国立保健医療科学院 部長

#### A. 研究目的

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約 4700 万人、中国で約 300 万人と言われている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は 20 数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。特に、バングラデシュにおけるヒ素汚染は非常に深刻で、2003 年 3 月に開催された世界水フォーラム（京都）においても、早急に解決すべき問題の一つとして取り上げられた。この国のヒ素汚染に対して、数多くの国際機関が調査し、安全な水供給の施策を行ってきた。しかし、ヒ素汚染問題に対する根本的な解決の糸口はみられていない。この原因として、ヒ素処理前後でのヒ素暴露量の推定がなされていない、給水体制の面からヒ素処理水の確保が十分でない、ヒ素処理装置の維持管理の問題、ヒ素処理後のヒ素含有汚泥による 2 次的な環境汚染の問題が指摘できる。

本年度は徳永主任研究者、大野及び国包分担研究者については、平成 17 年 6 月 13 日～14 日にかけて、徳永主任研究者と大野分担研究者のグループは、バングラデシュ・チャパynaワブガンジ地区チュナカリ村をラシャヒ大学地質・鉱山学部の M. Hamidur Rahman 教授、同大学芸術学部の Bilkis Bergum 準教授及びラシャヒ医科大学皮膚科学科の A. K. B. Zaman 助教授と一緒に訪れ、ヒ素被害家族の特定とヒ素被害家族から尿及び毛髪を採取し、種々の測定を実施したので報告する。また、徳永主任研究者はこの地域でヒ素フリーな地下水を供給するための施設として深層地下水の利用を計画した。地下の浅い砂層の第一帯水帯は

ヒ素汚染が激しいため、粘土層の下の第二帯水帯の深層地下水を飲料水に用いることを考えた。その試掘の経緯を報告する。また、平成 18 年 2 月 4 日～5 日にかけて、徳永主任研究者と国包分担研究者はバングラデシュ・チャパynaワブガンジ地区チュナカリ村を M. Hamidur Rahman 教授、Bilkis Bergum 準教授及び A. K. B. Zaman 助教授と一緒に訪れ、深層の管井戸及びヒ素除去装置の Gravity Sand Filter (GSF) の村民への贈与式と管井戸の水及びヒ素除去処理後の飲料水並びにヒ素被害家族からの尿及び毛髪の採取を行った。これに関しては、給水状況及びヒ素処理前後でのヒ素量の報告を行う。

横田分担研究者は、コミュニティ用の GSF 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、ここ数年間、メンテナンスの簡単化、ヒ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。この報告書では過去 3 年間のヒ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、ヒ素汚泥の処理処分方法の成果についても報告している。

山内分担研究者は、慢性ヒ素中毒患者に対してヒ素の暴露量の軽減のみで、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暴露の停止もしくは軽減後の 5 年間に渡り実施した。

大野分担研究者は、陰膳法に基づくヒ素摂取量の推定を行った。陰膳法は、対象住民が実際に食べている食事を重量も含めて同じように複製してもらいサンプルとする方法である。この陰膳法をベースにして、コメ・チャパティ・スープ類・固形物と分類した食事のヒ素濃度を分析することで、以下の検討を行った。第一に、水からのヒ素摂取量と食料からのヒ素摂取量の比較を行った。第二に、飲料水からのヒ素摂取量と炊飯用水やその他調理用水からのヒ素摂取量の推定、最後に dug well に水源を変えたことによるヒ素摂取量の削減効果と現状における問題点について考察を行った。更に、平成 16 年度

の分担研究において、炊飯用水中のヒ素濃度が高い場合に炊飯後のコメ中ヒ素濃度が精米の時点よりも大きくなること、及び炊飯用水濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の間に相関が見られることを示した。本年度の研究においては、実験室により段階的にヒ素濃度を変化させた水を用いて、バングラデシュ方式で炊飯した場合の炊飯前後のコメ中ヒ素濃度の変化について検討を行った。

## B. 研究方法

### B-1. 安全な水の供給

#### B-1-1. 深層管井戸の試掘

平成17年7月～9月にかけてチャパイナワブガンジ地区チュナカリ村において深層管井戸の試掘調査が Rahman 教授の指導の下、ダッカ市の業者を使って実施された。第1の候補地はモスクの前の村落共同体の president が所有する広場の一角であった。その写真を Photo 1 として示した。平成17年3月、前回訪問の際に村落共同体の president から深層管井戸の試掘の了解を得ていた場所であった。第1の候補地の深度400フィートまで掘り進んだ。その段階で120フィートから10フィート毎に土壌の採取を実施した。また、250フィートの部分で地下水を採取した。採水した地下水中のヒ素濃度の測定結果を待つため、管井戸の試掘を一時中断した。その一時中断の段階で掘削地の管の部分の閉塞が発生し、それ以上掘り進むことが出来なくなった。そこで、その近くの第2の候補地を選択し、2回目の試掘が開始された。その地点で760フィートまで掘り進んだが深層地下に存在する砂利や岩石が邪魔をし、それ以上掘り進むことが不可能になった。表層から10フィート毎に土壌を採取し、土壌の検査を行った。400フィートまでは第1の候補地のものと同じ地層であったが、400フィート～420フィートまで粘土層、420～480フィートまで砂層となり、480～670フィートまで粘土層に代わり、670～710フィートまで砂層となった。それ以降760フィートまでは粘土層でそれ以降は掘削を中断した。420～480フィートまで砂層あるいは670～710フィート

採水のための帯水帯として不適切な砂層であった。場所を第1の候補地から150m離れた地点に変更し、第3の候補地での掘削を開始した。この地点で地下水を採水するために90フィートの管井戸を試掘し、水の資料を採取した。更に、その近くで深層管井戸を試掘し、760フィートまで掘り進んだが、前回の深層管井戸で発生したのと同様な地層、砂利とに岩石混じりの層に阻まれ、それ以上掘り進むことが不可能になった。また、この地点でも、表層から250フィートまでは砂層であり、250フィート～760フィートまで粘土層であった。地下水を採水するための帯水帯としては不適切なものであることが分かった。

#### B-1-2. 管井戸と Gravel Sand Filter 施設との組み合わせ

第一帯水層の下の粘土層を突き抜けて第二帯水層のヒ素フリーな水の供給を計画したが、760フィートの部分で岩石混じりの層にぶつかったため、B-1-1の計画は断念せざるを得なかった。

そこで、第一帯水帯の砂層と粘土層の部分（深度約250フィートの部分）に深層の管井戸を設置し、手押しポンプでくみ上げた地下水を Gravel Sand Filter(GSF)の施設でヒ素を除去することを計画した。バングラデシュの地下水には鉄(II)イオンが多く含まれており、地上に汲み上げられた地下水中の鉄(II)イオンは空気中の酸素によって、容易にかつ迅速に酸化され、酸化鉄の沈殿を形成する。この沈殿の形成段階で水中のヒ素を取り込み一緒に沈殿する。バングラデシュの地下水のこの性質を利用して水中のヒ素を除く GSF の施設を併用する方式を考えた。

この方式は日本の Non-profitable Government Organization (NGO)のアジアヒ素ネットワーク(AAN)がバングラデシュの地下水のヒ素汚染地域で安全な水を住民に供給する活動の一つの選択肢として利用している方法である。AAN バングラデシュはその方式以外に表層水（湖沼水）を砂濾過で濾過した後に殺菌して用いる Pond Sand Filter の施設、掘り抜き井戸の水を砂濾過で濾過した後に殺菌して用いる方法を地域特性に応じて併用しな

がら、地下水のヒ素汚染地域のバングラデシュ・ジョソール県サムタ村・マルア村などで活動を続けている。GSF 施設の建設を AAN バングラデシュに依頼することにした。

深層の管井戸（深度約 250 フィート）は平成 17 年 1 月、Rahman 教授の指導もとダッカ市の業者が掘削し、手押しポンプの設置を実施した。平成 17 年 12 月、AAN バングラデシュが GSF 施設の建設に取りかかり、約 1 ヶ月の建設期間を経て平成 18 年 1 月末に GSF 施設が完成した。ヒ素被害家族への安全な水の給水が平成 18 年 2 月初旬から開始された。

#### B-1-3. GSF 施設の性能

ヒ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、そのヒ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、ヒ素と鉄の接触時間及び砂利槽内の水の速度がヒ素除去上のキーポイントとなる。また、鉄との共沈ヒ素が本装置内で再溶出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ヒ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、地下水中のヒ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。

#### B-1-4. GSF 施設のメンテナンス

目詰まりやヒ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ヒ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 ヒ素センターの AAS による測定：1 回/月）、②ヒ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-1-5. ヒ素汚泥のヒ素含有量及び成分分析

ヒ素除去装置から排出される汚泥は、ヒ素汚泥槽で沈殿・貯蔵されている。その成分分析を行った。

#### B-1-6. ヒ素汚泥の固化処分実験

ヒ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た。

#### B-1-7. 水の中のヒ素及び鉄の測定

バングラデシュ・チュナカリ村の深層管井戸あるいは GSF 装置で処理された水約 10 ml をポリエチレン製の共栓付き容器に入れ、濃硝酸 1 滴を加え、日本に持ち帰った。試料溶液 100  $\mu$ l を reodyne 製 loop-injector に注入し、島津製 LC-10AT 型液体クロマトポンプで 1.0 ml/min の流量で HP4500 型 ICP/MS 装置に送液し、試料溶液中のヒ素及び鉄量を測定した。ヒ素及び鉄量は、各 10、100 及び 1000 ppb を含む水溶液を調製し、その 100  $\mu$ l を用いて作成した検量線より求めた。ICP-MS 装置の各パラメータは下記のものであった。

RF 出力：1249 W、RF 反射：5W 以下、プラズマガス流量：アルゴンガス 15 L/min、キャリアガス流量：アルゴンガス 0.8 L/min、モニタリング質量 m/z 75 (As)、54 (Fe)、積分時間：0.1 sec、スキューン回数：1 回

#### B-1-8. 土壌中のヒ素及び鉄の測定

土壌をシャーレ上に厚さがほぼ均等になるように載せ、オープン中に入れ、50°C で 24 時間乾燥した。その約 0.5 g を精密に量り、テフロン製容器に入れ、硝酸/過酸化水素水/水混液 (3:2:2) 7 ml を正確に加え、密栓して一晩放置した。MARS 5 型 microwave oven (CEM 社) にテフロン製容器を装着

し、3段階の加熱条件で疎解を行った。第1段階は70 PSIまで昇温時間20分、そのPSIで10分間、第2段階は120 PSIまで昇温時間5分、そのPSIで10分間、第3段階は150 PSIまで昇温時間5分、そのPSIで10分間行った。疎解後、30分間放冷し、シリQ水を加えて正確に25mlとし、ミリポアフィルター（口径0.45 μm）を用いてろ過し、そのろ液を試料溶液とした。測定装置は島津製LC-10AD型HPLCポンプを連結したHP4500型ICP-MS装置を用い、1ml/minの送液を行った。試料溶液100 μlをピコ製のReodyneループインジェクターを用いて注入し、ヒ素の測定を行った。ヒ素及び鉄量は、各10、100及び1000 ppbを含む硝酸/過酸化水素水/水混液(3:2:2)の5倍希釈液を用いて調製し、その100 μlを用いて作成した検量線より求めた。ICP-MS装置の各パラメータは下記のものであった。

RF出力：1249 W、RF反射：5W以下、プラズマガス流量：アルゴンガス15 L/min、キャリアガス流量：アルゴンガス0.8 L/min、モニタリング質量m/z 75(As)、54(Fe)、積分時間：0.1sec、スキャン回数：1回

## B-2. 毛髪中のヒ素の分析

毛髪は根元から約3 cmまでの長さものをミリQ水で洗浄後、アセトンで脱脂した後、ろ紙上に広げ乾燥した。その約10~30mgを精密に量り、テフロン製容器に入れ、硝酸/過酸化水素水混液(3:1)5mlを正確に加え、密栓して一晩放置した。MARS 5型 microwave oven (CEM社)にテフロン製容器を装着し、3段階の加熱条件で疎解を行った。第1段階は80 PSIまで昇温時間20分、そのPSIで10分間、第2段階は120 PSIまで昇温時間5分、そのPSIで10分間、第3段階は150 PSIまで昇温時間5分、そのPSIで10分間行った。疎解後、30分間放冷し、シリQ水を加えて正確に25mlとし、試料溶液とした。測定装置は島津製LC-10AD型HPLCポンプを連結したHP4500型ICP-MS装置を用い、1ml/minの送液を行った。試料溶液100 μlをピコ製のReodyneループインジェクターを用いて注入し、ヒ素の測定を行った。予め作成した検量線より試

料中のヒ素量を求めた。ICP-MS装置の各パラメータは下記のものであった。

RF出力：1249 W、RF反射：5W以下、プラズマガス流量：アルゴンガス15 L/min、キャリアガス流量：アルゴンガス0.8 L/min、モニタリング質量m/z 75(As)、積分時間：0.1sec、スキャン回数：1回

## B-3. 尿中のヒ素代謝物の測定

尿中のヒ素化合物の分析は、尿検体200 μlにHPLCの移動相200 μlを加え、その200 μlをHPCL-ICP/MS装置に注入し、測定を行った。予め30 ppb及び150 ppbのAs(III)、As(V)、MMA及びDMAを含むHPLCの移動相溶液200 μlを用いて作成した検量線より、尿中のヒ素化合物濃度を求めた。用いたHPLC条件は以下の通りであった。(HPLC条件)

検出器：Agilent 7500型 ICP/MS装置

カラム：Gelpack GL-IC-A15(4.6mm i. d. ×150mm, 基材樹脂：ポリメタクリレート、官能基：アルカノールアミン、イオン交換容量：70 μeq/col)、カラム温度：35℃、移動相：10mMリン酸緩衝液(pH6.0)、流量：0.9 ml/min

Agilent 7500型 ICP/MS装置の各パラメータは下記のものであった。

RF出力：1500 W、RF反射：<5W、プラズマガス流量：アルゴンガス15 L/min、キャリアガス流量：アルゴンガス0.90 L/min、モニタリング質量m/z35(Cl)、75(As)、積分時間：0.3sec、スキャン回数：1回

## B-4. 尿中 8-オキシデオキシグアノシン(8-OHdG)の測定

尿50 μlを用い、8-OHdGのモノクローナル抗体と酵素標識抗体を用いたNew 8-OHdG Check(日本老化制御研究所)のキットにて測定を行った。

## B-5. 中国内蒙古自治区包頭市郊外での調査

### B-5-1. 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暴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-5-2. 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-5-3. 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。

#### B-6. ヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量

##### B-6-1. バングラデシュ方式で炊飯した場合のコメ中ヒ素濃度変化に関する実験

(1) 試料: コメ試料として、ナワブガンジ地区近郊のチュナカリ村で市販されている 3 種類のコメを使用した。3 種類のコメの名称は Samsu China Variety (以下 SCV)、IRRI 28 Variety (以下 IRR)、Fine Variety Rice (以下 FVR) であり、前 2 種は普段住民が摂取しているコメであり、FVR は精米方法の異なるやや高価なコメだと言うことである。炊飯用水としては、札幌市内でヒ素濃度が低い浄水場の急速砂ろ過後水 (塩素添加前) を使用した。この水のヒ素濃度は 0.0003mg/L と無視で

きるほど小さかった。

(2) 炊飯実験方法: バングラデシュにおける炊飯方式は日本の場合とは異なり、大量の水でコメを炊きその後余った水を捨てる。本実験ではバングラデシュ式の炊飯を以下の手順で再現した。まず、コメ 50g に洗米用水 100g を使用、30 秒間洗米し水を交換する。これを 3 回繰り返す。次に、ガラス鍋に炊飯用水 250g を入れ、ガスコンロにて沸騰させる。洗米後のコメを入れ、10 分間一定の火力で煮る。その後、湯を捨てる。最後に 5 分間蒸らす。

(3) コメ中ヒ素濃度の分析: 炊飯前・炊飯後のコメ中ヒ素濃度は共に以下の方法で分析した。試料を凍結乾燥後、ミルにて粉碎。その後、マイクロウェーブ抽出装置 (Ethos TC: Milestone General, USA) にて所定の条件で抽出を行った。その際、抽出溶媒として硝酸と過酸化水素 (共に ultrapure grade, 関東化学 (株)) を 4:1 の割合で使用した。抽出液を希釈後 ICP-MS (HP4500: Agilent, USA) にてヒ素濃度の分析を行った。なお、標準試料 (コメ SRM1568a: NIST, USA) を用いて、この分析法の精度・確度を確認した。

#### B-6-2. 陰膳調査によるヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量の推定

(1) 調査内容: 調査は、バングラデシュ国のナワブガンジ地区郊外にあるチュナカリ村で 2005 年 6 月に行った。調査は徳永主任研究者と共同で行い、当方は水と食料に関する調査を行った。本調査における調査対象は 18 家庭 65 人である。なお、調査では聞き取り調査とサンプル採取を行った。聞き取り調査は、飲水量に関する調査及び過去に使用していた水源に関する調査を行った。飲水量は各家庭で使用している飲料水用コップの容量を量り記録した。さらに家庭の全員にカードを配布し、24 時間にそのコップで水を飲んだ回数を記録してもらう方法を用いた。

食料のサンプル採取は、各家庭の代表者 1 人を選定した。代表者の多くは何らかの慢性ヒ素中毒の症状を持っていた。代表者の 1 日分の食事 (朝飯・昼飯・晩飯) を複製してもらい、陰膳として採



取した。陰膳を、コメ・チャパティ・スープ類・固形物の4種に分類し、それぞれの重量を測定、これを代表者の1日食品摂取量とした。代表者以外の構成員の食品摂取量については、代表者との食品摂取量の比率について聞き取り調査を行い推定した。食料の他には、各家庭が飲用している水及び過去に使用していた水源が現存している場合は、その水も採取した。

- (2) 総ヒ素濃度の分析: 飲料水のヒ素濃度は、サンプルに約 1%(v/v)となるように硝酸 (ultrapur grade, 関東化学(株))を添加し、ICP-MS で分析した。食品サンプルの総ヒ素分析は次の通りである。まず、固体類のサンプルは凍結乾燥し、ミルにて粉碎した。その後、スープ類は 1g-wet、それ以外のサンプルは 0.5g-dry に対して、硝酸 3mL と過酸化水素 2mL (ultrapur grade, 関東化学(株))をそれぞれ添加し、マイクロウェーブ抽出装置にて最高温度 200°C、45 分の条件で分解、抽出液を希釈後 ICP-MS にて定量を行った。なお、標準試料 2 種類 (コメ SRM1568a: NIST, USA 及び日常食 SRM1548a: NIST, USA)を用いて、この分析法の精度・確度を確認した。

#### B-7. 倫理面への配慮

研究の目的はバングラデシュの地下水のヒ素汚染地域において、ヒ素除去された水を供給し、供給前後でのヒ素による健康被害の改善効果を調査するものである。採取する試料は、飲料水、調理後の食品及びヒ素被害家族からの尿及び毛髪である。飲食物として体内に取込まれる全ヒ素量の測定及び尿、毛髪中に排出されるヒ素代謝物を含めた全ヒ素量、発ガンのバイオマーカーとして知られている尿中 8-オキシグアノシンの測定を行い、ヒ素除去された水を供給後、1年間でのヒ素被害状況の改善効果を調査する。研究によって生ずる倫理的危険性はヒ素被害患者の情報が、本人が意図しなくても流布されることである。

「人体より採取された材料」提供者の人権の擁護ため、提供者の氏名、性別、年齢はバングラデシュ側のパートナーのラーマン教授が保持する。研究者はそれらの匿名化されたデータを用いて解

析を行う。試料・情報は連結可能匿名化されたものである。申請者は試料採取する際にラーマン教授と一緒に試料採取を行うが、採取された試料をラーマン教授が、再度、新たな番号付けを実施し、その情報を研究者に提示するため、個人識別情報を知り得ない状況である。なお、本調査を実施するに当たり、「疫学研究に関する倫理指針」の個人情報保護の項目に従う。

調査対象者への研究目的の説明と承諾は、調査場所がバングラデシュであることから、国際共同研究者が所属するバングラデシュ・ラシャヒ医科大学皮膚科教室のザーマン助教授 (医師) の倫理委員会の承諾を得て、行う。材料の提供の際は、ヒ素被害家族の診察をザーマン助教授が実施しながら、同意を得る。書式は現地語であるが、対象者全員から承諾書を得る。これらの承諾書はラーマン教授が保持する。

#### C. 結果及び考察

##### C-1. 安全な水の供給

##### C-1-1. 地下水のヒ素汚染地域の土壌中のヒ素及び鉄濃度

バングラデシュ・チュナカリ村の第1の候補地で深度400フィートまで試掘した深層井戸の深度120フィートから10フィート毎に土壌を集め、各土壌中のヒ素濃度と鉄濃度を測定した。バングラデシュ及びインド・西ベンガル州の地下水のヒ素汚染地域では、地下水中のヒ素濃度と鉄濃度に相関関係があることが報告されているため、それらの報告を参考に土壌中のヒ素濃度と鉄濃度を測定したものである。

土壌は表面から深度250フィートまで目の粗さの違う砂層であった。それより下は400フィートまで粘土層が続いていた。第2の候補地での試掘では760フィートまで試掘したのであるが、粘土層は760フィートまで続いていた。

深度120フィート～250フィートの砂層中の鉄及びヒ素量は3513～8454mg/kgと0.399～0.716mg/kgの範囲であり、鉄及びヒ素の平均値は5609mg/kg及び0.491mg/kgであった。また、深度2

50フィート～400フィートの粘土層中の鉄及びヒ素量は11535～20598mg/kgと2.48～4.65mg/kgの範囲であり、鉄及びヒ素の平均値は17062mg/kg及び3.51mg/kgであった。砂層中と粘土層中の鉄とヒ素濃度の比を比べた時、粘土層中が3.0倍及び7.1倍と高かった。砂層から粘土層に変化する部分で明らかに土壌中の鉄量あるいはヒ素量が大きく変化していた。しかし、これら土壌中のヒ素濃度は世界の他の地域に比較して必ずしもヒ素濃度が高いというものではなかった。

次に、第二の深層管井戸を760フィートまで試掘し、地上から10フィート毎に土壌を採取した。400フィートまで試掘した第一の深層管井戸での土壌の分布と同じように250～260フィートの位置まで砂層が続き、420～480フィートまで砂層があり、その後粘土層が続いた後、670～710フィートで薄い砂層が観察された。760フィートまで粘土層であり、その時点で砂利や岩の地層となったため、試掘を中止した。ヒ素濃度は0.92～21.8 mg/kg、鉄濃度は3.74～47.14g/kg、マンガン濃度は96～871mg/kgであり、それらの平均値は、それぞれ、4.93mg/kg、g/kg 及び409mg/kgであった。ヒ素あるいは鉄濃度とも表層部分が多く、250フィートの砂層の部分まで低下し、420フィートの粘土層で増加し、420～480フィートの砂層で低下し、670～690フィートの砂層と粘土層の境界部分で上昇し、一番の高濃度を示した。土壌中のヒ素濃度と鉄濃度の間には、統計的に非常に有意な相関関係があった。バングラデシュあるいはインド・西ベンガル州のヒ素濃度の高い地域での管井戸を用いた地下水中のヒ素濃度と鉄濃度の間の有意な相関関係があることが報告されており、地下水中のヒ素濃度と鉄濃度の関係と同様な関係が明らかになった。同様に土壌中の鉄濃度とマンガン濃度の間にも統計的に有意な相関関係が成立し、地下水のヒ素汚染地域での管井戸から得られた水の鉄濃度とマンガン濃度の間には統計的に有意な相関性があるという報告を土壌中においても明らかにすることができた。

### C-1-2. 試掘管井戸から得られた地下水中のヒ素濃度

第一の候補地の深度250フィートの砂層と粘土層の変換部分で地下水の採水を行い、その水の中のヒ素濃度の測定を行った。手押しポンプを押し、濁りが無くなった状態で採水を開始した。採水の開始時間は午後10時であった。140mlの共栓付きのポリエチレン容器に首まで採水し、直ちに一定量の濃塩酸を加えた。同様に、手押しポンプを交代で押し続けながら、深夜12時～翌日の午後2時まで2時間毎に採水し、塩酸を加えた試料溶液を調整した。更に、午後3時半に最終の採水を行い、全部で10本の試料溶液を調整した後に連続的な採水の検計は終了した。この試料溶液をバングラデシュ国際下痢性疾患研究センター (ICDDR, B) に送付し、試料気化部にカーボングラファイト炉を用いる原子吸光光度法により測定を行った。

試料溶液中のヒ素量は355.8～531.0  $\mu\text{g}/\text{l}$  (ppb) の範囲であり、10回の採水した試料溶液のヒ素量の平均値は471.1ppbであった。17.5時間の間、手押しポンプにより一定の深度の地下水を採水した。地下水中のヒ素の濃度はバングラデシュの飲料水のヒ素基準の50ppbのほぼ9倍以上の高い値を示していた。この地域の住民は、管井戸から汲み上げた地下水をすぐに使うことはせず、バケツに汲み置き、2時間ほど空気に曝し、茶褐色の沈殿を除いた後にその上澄み液を飲料や調理用に供している。そこで、Rahman 教授の指示で、手押しポンプで汲み上げた水をバケツに2時間汲み置きし、十分に空気に曝し、その上澄液を140mlの共栓付きポリエチレン容器に入れ、一方は一定量の塩酸を加えたもの、他方は塩酸を加えないものを調整した。それらの水が国立医薬品食品衛生研究所 (NIHS) とバングラデシュ工科大学 (BUET) に送付され、試料溶液中のヒ素濃度の測定が実施された。

BUETでの測定値は1ppbであったが、NIHSでの測定値は塩酸を添加した場合は39.

7ppb、塩酸の未添加の場合は34.7ppbであった。塩酸の未添加の場合、地下水中に多量に存在する鉄(II)イオンと空気中の酸素が反応し、酸化鉄の沈殿が生じるが、塩酸を添加して液性を酸性側にして置くと沈殿の生成が妨げられ地下水中のヒ素の酸化鉄との共沈が妨害される。NIHSに送られてきた地下水は塩酸の添加の有無によらず両者とも無色澄明な液であった。地下水を採取した後、直ちに一定量の塩酸を加えてICCDR, Bに送り、測定されたものヒ素の値が高かったのは、塩酸の添加により酸化鉄の生成による酸化鉄とのヒ素の共沈が妨げられ、水中のヒ素が測定されたためと考察された。しかし、NIHSに送られたものは、バケツに汲み置きし、その上澄液を送ってきたため、水中の高濃度なヒ素が酸化鉄との共沈により除かれ、水中のヒ素量が減少したものと推測された。

第3の候補地の管井戸(深度86フィート)から採水された地下水を直ちに共栓付きポリエチレン容器に入れ、一方は一定量の塩酸を加えたものと塩酸を加えなかったものがNIHSに送付されてきた。塩酸を加えたものは無色澄明であったが、塩酸を加えなかったものは茶色の沈殿が生じていた。また、上澄液を用いて試料液中のヒ素を測定した。塩酸を添加した場合のヒ素量は299ppb、塩酸加えない場合は65.7ppbであり、酸化鉄の沈殿の発生の有無により、水中に存在するヒ素量が明らかに異なることが分かった。

管井戸とGravel Sand Filter施設との組み合わせにより、安全な水を住民に供給する計画を実施し、平成18年12月に第1の候補地に新たに設置した管井戸(深度250フィート)から手押しポンプから直接得られた地下水を140mlの共栓付きポリエチレン容器に入れ、直ちに濃硝酸を4, 6, 8及び10滴加えた後、栓をしてNIHSにEMS便にて送付してもらった。送られてきた水は無色澄明であった。送られてきた水の中の鉄及びヒ素量とそのpHを測定した。濃硝酸の添加量が4~10滴に増えるに従い、液のpHは2.61~1.81と低下した。鉄の量は13236~15884ppbと、またヒ素量は368~4

05ppbと増加した。濃硝酸の添加量が増えるに従い、pHが酸性側に傾き、酸化鉄としての沈殿が更に妨害され、鉄量及びヒ素量も高い値を与えたことが考えられた。この結果より、Rahman教授よりNIHSに地下水の品質を保証するために送られてくる水に関しては、「140mlの共栓付きポリエチレン容器に首の部分まで水を入れ、濃硝酸を更に10滴添加する」という操作をお願いすることにした。

### C-1-3. 管井戸・手押しポンプとGSF施設から得られた水中の鉄、マンガン及びヒ素濃度と飲料水のヒ素被害家族への供給

平成18年2月3日~4日の2日間、バングラデシュ・チュナカリ村に完成した管井戸・手押しポンプとGSF施設を訪れた。管井戸の深度は250フィートであり、この地域での第1の砂層である帯水層と水の透過を妨害する粘土層の接点の部分に採水管の先端が位置している。GSF施設は手押しポンプで導入された地下水が緩やかな傾斜の施設内を流れる間に空気中の酸素により地下水中の鉄(II)イオンが酸化され、酸化鉄としての沈殿を生じ、その沈殿の中に地下水中に溶存したヒ素を取り込み、沈殿物として除去するものである。上澄み液は砂濾過地を通り、取水栓の部分に来る。この地点でカルキの溶かされた水が滴下され、殺菌の役目をする。その後、水を蛇口から採水する。

2月3日~4日に得られた手押しポンプの水とGSF施設での処理後の水に1滴の濃硝酸を添加した共栓付きポリエチレン容器に入れて日本に持ち帰り、その水の中の鉄、マンガン及びヒ素量を測定した。

2月3日と4日での地下水原水での鉄量は3237ppbと5370ppb、ヒ素量は153ppbと291ppbと高いもののGSP施設で処理することにより酸化鉄としての鉄の減少(107ppbと216ppb)と同時にヒ素量も減少(19ppbと21ppb)していた。

その結果、住民への水の供給が可能であると判断し、2月10日以降、Rahman教授の指導の下、現地でのヒ素被害家族20家族に水の貯蔵容器を供与

すると同時に水約101/人/日(飲料用と料理用)の供給を開始した。

#### C-1-4. GSF 施設の性能

平成15年6月から平成17年1月の間のGSF装置のヒ素除去性能を検討した。平成15年6月～平成15年12月の調査では、管井戸の原水のヒ素濃度の200～300ppbのヒ素濃度がバングラデシュの飲料水のヒ素濃度の50ppb未満を示していた。しかし、平成16年4月～10月の調査では、管井戸の原水中のヒ素濃度は変わらないものの最終の供給段階でのヒ素濃度は50～100ppbを示し、GSF施設の機能の低下が観察された。その結果、平成16年12月にGSF施設の改良を加え、平成17年1月でのGSF装置のヒ素除去性能は50ppb未満となり、改良により、ヒ素除去能の改善が見られた。

#### C-1-5. ヒ素汚泥のヒ素含量及び成分分析

ヒ素除去装置から排出される汚泥は、ヒ素汚泥槽で沈殿・貯蔵されている。ヒ素が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。

#### C-1-6. ヒ素汚泥の固化処分実験

ヒ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た。セメントの添加割合は、汚泥重量の20%、10%、2%、0%であった。20%添加の場合、溶出試験によるヒ素濃度は0.02～0.04mg/Lであり、現地の基準をクリアしている。その際、汚泥中のヒ素はわずか、その0.01～0.53%しか溶出しなく、90%以上のヒ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であった。セメント添加量の場合、ヒ素の溶出濃度、溶出量及び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%)で

あった。

### C-2. チュナカリ村のヒ素被害家族の検討

#### C-2-1. チュナカリ村のヒ素被害家族の状況

平成17年6月12日～14日にかけてRahman教授、Bergum準教授の先導の下、各家庭を訪問し、Zaman皮膚科医の住民診察により、ヒ素被害者及びヒ素被害の未発症者の診断が実施された。その結果、ヒ素被害が発生している18家族が選定され、その構成員78名がこの調査で確定された。

男性39名、女性39名であり、年齢は3才～80才まで広く分布していた。各家族に少なくとも1名のヒ素患者が存在し、ヒ素患者の総数は25名であった。

Zaman皮膚科医により、ヒ素患者25名のヒ素症状が診断された。ほとんどのヒ素患者が手の平あるいは足の裏にhyperkeratosisを発症しており、何らかの痛みを伴っていた。25名中の17名が胸と背中にmelanosisを発症しており、17名の内、12名が強い症状を示していた。40才の女性は強いhyperkeratosisと強いmelanosisを示しており、手の平の部分の肉腫様の症状が観察された。また、30才の婦人は、手の平あるいは足の裏にhyperkeratosisを発症していなかったが、胸、背中にrain drop状のmelanosisの症状を示していた。

#### C-2-2. 毛髪中のヒ素の分析

ヒ素被害家族の構成員63名から得られた毛髪の根元から3cmまでのものを用い、その中のヒ素濃度の測定を行なった。その結果をTable 9-1に示した。皮膚科医の診察では、78名が対象であったが、毛髪の採取が困難な人もいたため、毛髪が提供された人数は63名となった。63名の毛髪中のヒ素の平均値は6.23mg/kgであり、最小値は0.1mg/kg、最大値は20.7mg/kgであった。毛髪中のヒ素量が最も高い人は010-Cで示された35才の婦人であったが、ヒ素症状を示していないことが皮膚科医により診断されている。ヒ素被害者(22名)の毛髪中のヒ素量の平均値は5.61mg/kgであり、ヒ素被害の症状が発症していない人(40名)の毛

髪中のヒ素量の平均値は6.72 mg/kgであった。両者の間には統計的に有意な差が認められなかった。

次に女性の髪を用い、根元から3 cm、17~20 cm及び37~40 cmの部分を用い、その部位での毛髪中のヒ素濃度を測定した。その結果をTable 9-2に示した。それぞれの部位での平均値は、それぞれ、6.3, 7.0, 8.9 mg/kgであり、毛髪の試験した部位が根元から遠くなる程ヒ素量が高くなる傾向にあるが、統計的に有意な差は認められなかった。しかし、個別的に観察した場合、35才の女性では、0-3 cm、17-20 cm及び37-40 cmでは、それぞれ、20.7, 32及び22 mg/kgの値をほとんど同じようにヒ素を飲料水あるいは食品から取り入れていることが分かった。また、32才の女性は、それぞれ、11.7, 15.5及び23.7 mg/kgと毛髪の根元に行くに従い、ヒ素量が減少しており、経口的に摂取するヒ素量が減少していることが分かった。更に、他の35才の女性の場合、毛髪中のヒ素量は、それぞれ、3.9, 4.5及び23.7 mg/kgのヒ素量であり、毛髪の17-20 cmと37-40 cmの間、即ち、1年半前と3年前の間に経口的に摂取するヒ素量が大きく減少していることが観察された。

#### C-2-3. ヒ素被害家族から得られた尿中のヒ素代謝物

ヒ素被害家族の構成員75名から得られた尿中のヒ素代謝物を測定した。尿は早朝の第一番目の尿を採取した。尿中のヒ素代謝物の濃度は尿中のcreatinine量(mg/ml)で補正した。

尿中creatinineの平均値は0.486 mg/mlであり、最大値は2.352 mg/ml、最小値は0.066 mg/mlであった。creatinineで補正後の尿中のAs(III)、DMA、MMA及びAs(V)の平均値は、それぞれ、56.2, 412.7, 73.5及び28.9 ng/mg creatinineであった。尿中の全ヒ素量は54.9~5492.1 ng/mg creatinineであり、その平均値は571.3 ng/mg creatinineであった。

ヒ素患者の尿中のヒ素代謝物量をヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量の間には統計的な違いが観察されなかった。また、尿中ヒ素代謝物の平均値を見た場合、ヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量の平均値が高い値を示していた。

#### C-2-4. ヒ素代謝物から見たヒ素被害家族のヒ素メチル化能

体内に摂取された無機ヒ素は肝臓にてAs(III)に還元され、更に、メチル化酵素により代謝されてMMAあるいはDMAの形態となり、尿中に排泄される。正常人での尿中での(DMA+MMA)/Total Asの比率は70~90%と報告されている。また、正常人での尿中の比率は5~30%とされている。そこで、75名の尿中のヒ素代謝物の測定データを用いて(DMA+MMA)/Total AsあるいはMMA/DMAの比率を求めて検討した。

(DMA+MMA)/Total Asの範囲は14.9~96.2%であり、その平均値は85.6%であった。26才の男性の(DMA+MMA)/Total Asの比率は14.9%であり、ほとんど大部分のヒ素が無機ヒ素として排泄されていることが分かった。実際の尿中のヒ素代謝物のパターンを見てみるとAs(III)が45.8 ng/mg creatinine、As(V)が129.3 ng/mg creatinineであり、メチル体のDMAが29.5 ng/mg creatinine、MMAが1.1 ng/mg creatinineであった。しかし、この男性はヒ素症状を発症していなかった。

MMA/DMAの比率を見た場合、その範囲は6.5~1195.1%であり、その平均値は31.6%であった。25才の男性のMMA/DMAの比率が1195.1%と異常に大きな値を与えた。この男性のMMAからDMAにメチル化する酵素は、その活性が弱く、MMAの形で尿中に排泄していることが観察された。この男性もヒ素症状を発症していなかった。

#### C-2-5. ヒ素被害家族の尿中8-OHdG

ヒ素被害家族の構成員75名から得られた尿中の8-OHdGのクレアチニンで補正後の測定をした。

癌化した場合、正常な DNA の分解により尿中の 8-OHdG の量が増加することが報告されている。構成員 75 名の尿中の 8-OHdG 量の範囲は 54.9 ~ 5492.1 ng/mg creatinine であり、その平均値は 571.3 ng/mg creatinine であった。ヒ素発症者の尿中の 8-OHdG が高値を示している人はいなかった。20 才の女性の尿中 8-OHdG が 5492.1 ng/mg creatinine の最も高い値を示していたが、ヒ素症状を発症していなかった。

### C-3. 中国内蒙古自治区包頭市郊外での調査

#### C-3-1. ヒ素暴露の実態

84 名のヒ素患者のうち半数以上は中国の飲料水基準 50 ppb 以上のヒ素汚染井戸水を飲んでいて、更に、300 ppb 以上の高濃度なヒ素汚染井戸水を用いている人が 17 名いた。

この村の患者における井戸水からのヒ素暴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。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てことが推測された。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と考えられた。

#### C-3-2. 安全な水供給後、1 年目での実態

ヒ素濃度 37 ppb の井戸水をパイプ方式で各家庭に配水し、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、尿からアルセノベタインは検出されなかった。患者の無機ヒ素暴露停止後の尿中ヒ素濃度 (IMD: 無機ヒ素 + MMA + DMA) は暴露中に比較して約 1/2 程度に減少していた。この尿中 IMD 濃度は日本人健康者の約 3 倍の濃度であった。井戸水からの無機ヒ素暴露の軽減により、皮膚症状の変化が見られ、ヒ素患者のヒ素暴露は約 1/2 に低下していた。そ

の結果、半年と 1 年目の検診の受診者は少なくなり 84 名から 33 名となった。無機ヒ素の高濃度暴露中に比較して、33 名中 20 名の手掌角化症の改善が見られ、11 名は変化がなく、2 名は角化症の増悪傾向が認められた。

色素沈着に関しては、21 名の患者のうち 14 名に改善が見られ、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暴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。

#### C-3-3. 安全な水供給後、5 年目での実態

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。無機ヒ素暴露の軽減から 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 50 ppb 以内で、この井戸水を生活水として使用している。この村で角化症の症状が最も悪く、そして、無機ヒ素暴露の軽減により 5 年目の観察ではやや改善が認められた。一方、ある家族の子供 3 人 (男性 2 名、女性 1 名) は無機ヒ素暴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た。しかし、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。

### C-4. ヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量

#### C-4-1. バングラデシュ方式で炊飯した場合のコメ中ヒ素濃度変化に関する実験

実験で使用した 3 種類のコメにおける、炊く前のコメ (精米) 中のヒ素濃度とその変動係数 (CV) 及び精米の含水率を測定した。平成 16 年度の研究では、

ナワブガンジ市内 18 家庭から採取した精米中のヒ素濃度は平均 0.22 mg/ kg-dry, 標準偏差は 0.11 mg/ kg-dry であった。それに対し、今回の 3 種の精米中ヒ素濃度は SCV: 0.21, IRR: 0.36, FVR: 0.033 [mg/ kg-dry]であり、SCV 種は以前の調査結果とほぼ同程度、IRR 種はやや高い濃度であった。FVR は昨年度の調査及び他の 2 種とはヒ素濃度が大きく異なり、かなり低い濃度であった。この原因の一つに精白方法の違いが考えられるが、詳細は不明である。炊飯用水中ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差を用いて検討した。炊飯用水中のヒ素濃度が高くなるに従って炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差が大きくなることが分かった。

炊飯用水中ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差との関係について回帰分析を行った。回帰直線の傾きに注目すると、SCV 種の 1.65, IRR 種 1.47 と比較して、FVR 種は 2.66 と大きな傾きとなった。FVR 種は SCV・IRR 種とはいろいろ異なる傾向を見せている。この傾きの違いが生じる可能性の 1 つとして、炊飯後の含水率の違いが考えられる。FVR 種は他の 2 種と比較して炊飯後の含水率が高かった。この理由は FVR 種の精米度合いが他の 2 種と比較して高いため、吸水速度が大きいと考えられる。ただし、炊飯用水中のヒ素(無機ヒ素)が水と同様の吸収特性を示すかどうかについては今後検討を行う必要がある。次に回帰直線の切片について着目して検討した。切片は FVR 種、SCV 種、IRR 種の順に大きかった。このことは、精米中のヒ素濃度と関連があることを示していた。つまり、炊飯用水中のヒ素濃度が低い場合、精米を洗米する時や大量の水で煮る時にコメ中のヒ素が一部水相へと移動することが考えられた。これらのことから、炊飯後のコメ中ヒ素濃度増加については、(1) 炊飯用水ヒ素濃度、(2) 精米ヒ素濃度 (3) 炊飯後の含水率増加という 3 つの要素で説明できると考えられた。

## C-4-2. 陰膳調査によるヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量の推定

### C-4-2-1. 飲水量調査

各ヒ素被害住民の飲水量の調査を行った。成人男性の飲水量は平均 2.8 l/d, メジアン 3.1 l/d, 成人

女性は平均 2.8 l/d, メジアン 2.9 l/d であり、成人に関しては男女とも飲水量の代表値としては約 3 l/day という結果が得られた。

### C-4-2-2. 過去と現在の水源中のヒ素濃度

過去と現在の水源中のヒ素濃度: 過去と現在の水源におけるヒ素濃度を検討した。住民が水源を変更した時期は、インタビュー結果では数年前から数ヶ月前となっており、家庭によって大きな違いがある。多くの家庭において水源を変更しており、それらは管井戸から掘り井戸への変更が多い。掘り井戸中のヒ素濃度は管井戸に比べてかなり低かった。

### C-4-2-3. 陰膳調査結果

陰膳調査で分析を行った各食品群別のヒ素濃度分布を検討した。食品群の中ではコメのヒ素濃度が高い傾向があった。また、コメについては炊いた後のコメ(ご飯)の他に精米も採取した。精米とご飯との比較を行うと、精米に比べてご飯の方がヒ素濃度の平均値が大きく、またばらつきが大きいという結果が得られた。

### C-4-2-4. 18 家庭代表者の 1 日ヒ素摂取量

各家庭の代表者の 1 日ヒ素摂取量を検討した。水と食料からのヒ素摂取量の平均値は 0.15 mg/ d, メジアンは 0.10 mg/d であった。ヒ素摂取量の分布形としては正規分布の形ではなく、やや偏った分布をなしていた。つまり、一部家庭においてヒ素摂取量が多い傾向が見られた。総ヒ素摂取量に対する各食品群(飲料水を含む)の寄与率を家庭毎に検討した。それぞれ食品群の寄与率は、平均値として飲料水 0.13、スープ類 0.044、ご飯 0.56、固形物 0.11、チャパティ類 0.16 であった。飲水量の寄与が 13% とあまり大きくないことから、住民の多くは、飲料水に関しては、ヒ素を高濃度に含んでいない水をすでに使用していることが推定できた。一方、ご飯からの寄与が平均 56% と大きく、また、寄与率のばらつきが大きいことから炊飯用水には飲料水とは異なりヒ素濃度の高い水を使用している家庭が一部存在する可能性が示唆された。

#### C-4-2-5. 一部の家庭でヒ素摂取量が十分に減少していない原因

代表者の水と食料からの1日ヒ素摂取量を検討した。その結果、一部の家庭では炊飯用水や調理用水にはヒ素濃度が低い飲料水とは別の水源が使用されている可能性が示唆された。そこで、飲料水ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差の関係を検討した。炊飯前後のヒ素濃度差分のほとんどが無機ヒ素であり、ヒ素濃度の増加は炊飯用水由来であり、飲料水と異なるヒ素汚染された水源を炊飯用水として使用している家庭があることが明らかとなった。また、調理用水についても検討を行った。固形分に関する検討は今回の調査ではできないので、スープ類中のヒ素濃度と飲料水中ヒ素濃度との比較を行った。4家庭で飲料水中ヒ素濃度よりもスープ類中のヒ素濃度の方が過度に大きい傾向が見られた。これらスープ類中のヒ素も形態別分析の結果、ほとんどが無機ヒ素であった。3家庭においては炊飯用水・調理用水共に同じ汚染水を使用していると推定された。しかし、1家庭の場合は炊飯用水から推定される水源ヒ素濃度とスープ類から推定される水源ヒ素濃度の間には大きな差があり、炊飯用水と調理用水には異なる水を使用している可能性があった。

今回の調査でインタビューをおこなった限りにおいては、調理用水や炊飯用水にも飲料水と同じ水源を使用しているという回答が全ての家庭で得られていたが、実際には一部の家庭では炊飯用水・調理用水には飲料水とは異なるヒ素で汚染されている水が使用されていることが明らかとなった。この原因としては、ヒ素濃度の低い場合が多い dug well の水を手に入れるためには家庭から数分程度歩く必要がある場合があるために、飲料水以外の用途に関しては家庭内で手近に存在する管井戸を使用している可能性があることが推測された。ヒ素濃度の低い水を供給する場合、炊飯用水・調理用水にも安全な水を使用するように指導することが重要であり、各戸給水をするのが望ましいと考えられた。

#### C-4-2-5. 過去と現在の水由来ヒ素摂取量の推定と安全な水の給水による摂取削減量の推定

水由来のヒ素摂取としては、飲料水・炊飯用水由

来・調理用水由来の3つを考慮した。飲料水からのヒ素摂取量は(水源のヒ素濃度)×(各個人の1日飲水量)で推定した。炊飯用水は(炊飯濃度のコメ中ヒ素濃度差)×(1日コメ摂取量)、調理用水は(スープ類ヒ素濃度)×(1日スープ類摂取量)で推定した。固形分についても調理用水を使用する場合があると考えられるが、本報告においては考慮していない。

一部家庭では過去の水源が現存していなかったため、推定可能な人数(n)は56人であった。この結果、ヒ素摂取量が0.1mg/dを超えていたのは53人であった。なお、0.1mg/dという値は、バングラデシュ水質基準値0.05mg/LにWHO等でガイドライン値設定時に一般的に使用される1日飲水量2Lを掛けたものである。以前の水由来ヒ素摂取量は平均1.6mg/dと計算され、過去にはかなりの量のヒ素を摂取していたことが推測された。現在の水由来推定ヒ素摂取量を検討した。現在において、水由来ヒ素摂取量平均値は0.069mg/dと過去の推定値に比べて96%もの摂取量削減が見られた。また摂取量が0.1mg/dを超えている人数は12人であり、水源を変えたことによりヒ素摂取量が大きく減少していることが示された。最後に、現在0.05mg/Lを超える井戸水を使用している家庭の水源を0.05mg/Lまで改善し、全ての家庭の水源ヒ素濃度を0.05mg/L以下とした場合の水由来ヒ素摂取量の推定した。現時点においても、飲料水については全調査家庭のうち1家庭を除いた17家庭で0.05mg/L以下の水源を飲料水として使用しているわけであるが、炊飯用水・調理用水については定かではない。この推定においては、炊飯用水・調理用水にも安全な水を給水することを考慮している。炊飯用水や調理用水にも使用できるほどの量の水を給水することにより、0.1mg/d以上の水由来ヒ素を摂取する人数は7人にまで減少した。また、水由来ヒ素摂取量の平均値も0.036mg/dとなり、現状の半分程度まで減少することが期待できる。

#### D. 結論

1. バングラデシュ側のパートナーとしては、ラシャヒ大学地質・鉱山学部の Hamidur Rahman 教授を選定し、Rahman 教授を中心



に安全な水を供給するため深層管井戸の試掘を行った。試掘の管井戸として、4本（深度400フィートを1本、深度86フィートを1本及び深度760フィートを2本）を掘削したが、地下水源として住民にヒ素フリーな水を与える目的に合致するものを得ることが出来なかった。

2. 試掘井戸の760フィートまでの掘削時に得られた10フィート毎の土壌を用い、それら土壌中のヒ素、鉄及びマンガンの濃度を求めた。土壌中のヒ素濃度と鉄濃度の間には、統計的に非常に有意な相関関係を示し、バングラデシュあるいはインド・西ベンガル州のヒ素濃度の高い地域での管井戸を用いた地下水中のヒ素濃度と鉄濃度の間の有意な相関性を裏付けるデータが土壌中の両者の濃度の関係からも明らかになった。また、同様に、土壌中の鉄濃度とマンガン濃度の間にも統計的に有意な相関関係が成立し、地下水のヒ素汚染地域での管井戸から得られた水の鉄濃度とマンガン濃度の間には統計的に有意な相関性があるという報告を土壌中の両者の濃度でも相関関係があることが明らかになった。
3. 第一帯水帯の砂層と粘土層の部分（深度約250フィートの部分）に深層の管井戸を設置し、手押しポンプでくみ上げた地下水をGravity Sand Filter(GSF)の施設でヒ素を除去することを計画し、実施した。
4. 地下水原水の鉄量は3000~5000 ppb、ヒ素量は150~300 ppbであったが、GSP施設で処理することにより、鉄量は107~216 ppbに減少すると同時にヒ素量も19~21 ppbに減少し、飲料用あるいは料理用に十分利用できることが明らかになった。
5. 平成17年6月12日~14日にかけてRahman教授、Bergum準教授の先導の下、各家庭を訪問し、Zaman皮膚科医の住民診察により、ヒ素被害者及びヒ素被害の未発症者の診断が実施された。ヒ素被害が発生している18家族が選定され、その構成員78名の診断が実施された。ヒ素患者の総数は25名であった。
5. ヒ素被害家族の構成員63名から得られた毛髪中のヒ素濃度の測定を行なった。毛髪中のヒ素の平均値は6.23 mg/kgであり、最小値は0.1 mg/kg、最大値は20.7 mg/kgであった。ヒ素被害者22名の毛髪中のヒ素量の平均値は5.61 mg/kgであり、ヒ素被害の症状が発症していない人40名の毛髪中のヒ素量の平均値は6.72 mg/kgの間には統計的に有意な差が認められなかった。
6. 女性の髪の毛の根元から3 cm、17~20 cm 及び37~40 cmの部分を用い、その部位でのヒ素濃度を測定した。それぞれの部位での平均値は、それぞれ、6.3, 7.0, 8.9 mg/kgであり、根元から遠くなる程ヒ素量が高くなる傾向にあるが、統計的に有意な差は認められなかった。
7. ヒ素被害家族の構成員75名から得られた尿中のヒ素代謝物を測定した。早朝尿を採取した。尿中のヒ素代謝物の濃度は尿中のcreatinine量(mg/ml)で補正して用いた。
8. ヒ素患者の尿中のヒ素代謝物量とヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量を分類して示した。両者の間には統計的な違いが観察されなかった。
9. 75名の尿中のヒ素代謝物の測定データを用いて(DMA+MMA)/Total Asの範囲は求めた。14.9~96.2%であった。14.9%の値を示したのは、011-Bの26才の男性であり、ヒ素症状が発症していなかったが、ほとんど大部分のヒ素が無機ヒ素として排泄されていることが観察され、肝臓でのヒ素のメチル化酵素の活性化が低いことが示唆された。
10. 75名の尿中のヒ素代謝物の測定データを用いてMMA/DMAの比率を検討した。018-Cの25才の男性のMMA/DMAの比率が1195.1%と異常に大きな値を与え、MMAからDMAにメチル化する酵素の活性が弱く、MMAの形で尿中に多く排泄されていることが観察された。この男性はヒ素症状を発症していなかった。
11. ヒ素被害家族の構成員75名から得られた

尿中の8-OHdGを測定した。ヒ素発症者の尿中の8-OHdG値が他の家族に比べて高値を示していることはなかった。002-Fの20才の女性の尿中8-OHdGが5492.1 ng/mg creatinineとの最も高い値を示していたが、ヒ素症状を発症していなかった。

- 1 2. GSFのヒ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で除去されたヒ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からの排水をヒ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・分析により明らかにされることだろう。
- 1 3. 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暴露の軽減後、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暴露量は、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。
- 1 4. 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暴露の軽減において、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、一日の無機ヒ素暴露量は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。

15. 実験室において、バングラデシュ式の炊飯により炊飯用水中のヒ素濃度を変化させ、炊飯前後のコメ中ヒ素濃度変化について検討をおこなった。炊飯用水中のヒ素濃度と炊飯後のコメ中ヒ素濃度増加量の間には強い正の相関が見られ、2004年度の現地調査と同様の傾向が得られた。また、炊飯後のコメ中ヒ素濃度変化については、炊飯用水ヒ素濃度・精米ヒ素濃度・炊飯後の含水率増加分という3つの要素で説明できるであろうことが示された。
16. 陰膳調査により、ヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量を推定した。調査地域においては、慢性ヒ素中毒をもつ住民が多いことから、飲料水の水源を変更した家庭が多い。水由来のヒ素摂取として飲料水・炊飯用水・調理用水を想定し、それぞれの摂取量を推定した。その結果、飲料水からのヒ素摂取量については、水源を変更したことにより、大幅にヒ素摂取量が減少していると推定された。しかしながら、一部の家庭においては炊飯用水・調理用水に、飲料水とは異なるヒ素に汚染されている水を使用している可能性が示唆された。現在の飲料水の水源は、過去の水源と比較して遠方にあるために、炊飯用水や調理用水などまでには安全な水を確保できていない可能性が考えられた。
17. 現時点においては炊飯用水・調理用水からのヒ素摂取量の寄与が比較的大きく、これら炊飯用水・調理用水にもバングラデシュヒ素濃度基準値の0.05mg/L以下の水を給水することにより、住民の水由来ヒ素摂取量は現状よりも半分近く削減できることが期待される。全体的なヒ素摂取量削減の観点からは、炊飯用水や調理用水にも利用できる量の安全な水を給水するシステムの構築が望ましい。

## E. 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) Toshiyuki Tsuchiya, Toshiko Tanaka-Kagawa, Hideo Jinno, Hiroshi Tokunaga, Kazunori

- Sakimoto, Masanori Ando, Makoto Umeda : Inorganic arsenic compounds and methylated metabolites induce morphological transformation in two-stage BALB/c 3T3 cell assay and inhibit metabolic cooperation in V79 cell assay, *Toxicol. Sci.*, **84**, 344-351 (2005).
- 2) Richard Marcos, Valeria Martinez, Alba Hernandez, Amadeu Creus, Hiroshi Tokunaga, Domingo Quinteros: Metabolic Profile in Workers Occupationally Exposed to Arsenic: Role of GST Polymorphisms, *JOEM*, **48**, 334-341 (2006).
- 3) Conf. on Soil Mechanics & Geotechnical Engineering, pp.2379-2382, Spt., 2005
- 4) M. M. Hussainuzzaman, Y. Setoyama, D. Kataoka and H. Yokota, "Arsenic removal and sludge treatment for Gravel Sand Filter", 1<sup>st</sup> IWA-ASPIRE, Conference & Exhibition, Environmental Engineering Society of Singapore, *FFIWA-ASPIRE* index. htm, July, 2005
- 5) 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.
- 6) 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ストレスのバイオマーカー : ヒ素暴露を中心に、*臨床環境医学*, **14**: 2-8, 2005
- 7) 山内博 : ヒ素、*救急医学*, **29**: 605-607, 2005.
- 8) K. Ohno, A. Furukawa, K. Hayashi, T. Kamei and Y. Magara (2005) Arsenic contamination of groundwater in Nawabganj, Bangladesh, focusing on the relationship with other metals and ions, *Water Science & Technology*, **52** (8), 87-94
- 1) 徳永裕司、Tarit Roychowdhury、内野 正, Netai Das, Dilip Kumar Das : 「インド・西ベンガル州の地下水のヒ素汚染地域で生活する住民から採取した尿中のヒ素代謝物及び8-OHdG について」、*フォーラム 2005 : 衛生薬学・環境トキシコロジー*、平成16年10月。
- 2) 徳永裕司、Tarit Roychowdhury、内野 正, Netai Das, Dilip Kumar Das : 「インド・西ベンガル州の地下水のヒ素汚染地域で生活する住民から採取した尿及び毛髪中のヒ素化合物について」、*第12回ヒ素シンポジウム*、平成16年11月。
- 3) 内野 正、Tarit Roychowdhury、Netai Das, Dilip Kumar Das、徳永裕司 : 「インド・西ベンガル州の地下水のヒ素汚染地域で採取された土壌及び稲中のヒ素濃度について」、*第12回ヒ素シンポジウム*、平成16年11月。
- 4) 福田博之、埜嘉一、片岡大輔, M.M.Hussainuzzaman, 田辺公子、横田 漢、「バングラデシュで設置稼働中のヒ素除去装置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.
- 5) 松本直之、若林貢, M. M. Hussainuzzaman, 田辺公子、横田 漢、「ネパールにおける地下水ヒ素汚染の特徴〜トク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.
- 6) 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 漢、「火山灰質セラミックスのヒ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.
- 7) 若林貢、宮崎大学ヒ素研究グループ、九州大学谷研究室、AAN、「ネパールにおける地下水ヒ素汚染の特徴—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。
- 8) 田辺公子、若林貢、古結英樹、帖佐宣昭、瀬戸山充、宮武宗利、横田漢、「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。
- 9) 宮武宗利、林幸男、田辺公子、横田漢、「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。
- 10) 大栄薫、田貝泰之、大島達也、馬場由成、志水雅

## 2. 学会発表

之, 三宅義和, 堀河俊英, 横田漢, 「マグネタイト微粒子を用いたヒ素の吸着特性」、第12回ヒ素シンポジウム、岩手県立大学、pp. 36-37、2005年11月。

- 11) 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.
- 12) 山内博：ヒ素の毒性、日本学術会議、東京、2005. 5.
- 13) T. Yanase, K. Ohno, T. Kamei and Y. Magara (2005) Analysis of arsenic concentration in foods and the total daily intake of arsenic in Nawabganj, Bangladesh, *Proceedings of 1st IWA-ASPIRE Conference and Exhibition* [CD-ROM], Singapore, Jun. 2005
- 14) 中添真弥, 草野真一, 大野浩一, 亀井翼, 眞柄泰基(2005) 鉄系凝集剤 PSI によるヒ素及びE260 除去における2成分系吸着等温線の適用性に関する研究, 第56回全国水道研究発表会講演集, 米子市, 142-143, 2005.5
- 15) 草野真一, 大野浩一, 亀井翼, 眞柄泰基(2005) 鉄系凝集剤 PSI による金属類の凝集除去効果とE260 による迅速な処理性評価, 第56回全国水道研究発表会講演集, 米子市, 142-143, 2005.5
- 16) 松尾祐樹, 梁瀬達也, 大野浩一, 眞柄泰基 (2005) バングラデシュ井戸水ヒ素汚染地域における炊飯前後のコメ中ヒ素濃度変化について, 第12回ヒ素シンポジウム講演要旨集, 岩手県立大学, 80-81, 2005.11.5-6
- 16) 松尾祐樹, 梁瀬達也, 大野浩一, 松井佳彦, 眞柄泰基(2006) Bangladesh 井戸水ヒ素汚染地域住民に対する陰膳調査による水と食物からのヒ素摂取量の推定, 第40回日本水環境学会年会講演集, 於: 東北学院大学, p.258, 2006.3.15-18

#### F. 知的財産権の出願・登録状況

特になし