

厚生労働科学研究費（健康総合研究事業）

分担研究報告書

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

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

協力研究員 内野 正 国立医薬品食品衛生研究所・環境衛生化学部 主任研究員

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ある。本研究では、地下水のヒ素汚染地域のバングラデシュにおいて、地域を限定した住民を対象にした安全な飲料水の給水システムの確立と安全な水を供給する前後での尿・毛髪中のヒ素代謝物の動態の変化の検討と安全な水を供給することによるヒ素被害の低減による各種のバイオパラメーターの変化を検討する。

昨年度は、バングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地の協力者の調査を中心に行った。平成 16 年 12 月 4 日～9 日にかけてバングラデシュ国際下痢性疾患研究センター（ICCD, B）では Dr. Mahfuzar Rahman がパートナーとして対応した。ICCD, B の Matlab 地区では、Matlab 地域センターが 2002 年より、Arsenic Matlab 計画を実施し、ヒ素患者数、井戸水中のヒ素量の調査を行っている。この地区のヒ素患者数は 506 名であった。共同研究のパートナーとしての ICCD, B の Matlab 地区は NGO の BRAC の協力のもと、各国の研究者と既に共同研究を行っており、新たに新規で参入するのは無理ではないかとの結論に達した。平成 17 年 2 月 28 日～3 月 3 日にかけてバングラデシュ・ラシャヒ市 Chapai Nawabganj 地区をラシャヒ大学の Hamidur Rahman 教授をパートナーとして訪れた。地下水のヒ素汚染が激しく、100 人規模のヒ素患者が発生している CHUNAKHALI 村、BAHARAM 村及び RAZARAMPUR 村を訪れ、ヒ素患者と話をすると同時に deep tubewell の建設が可能かどうかの調査を行った。その結果、この地点を deep tubewell の掘削の候補地とし、安全な水の供給のプログラムを進めることにした。

本年度は、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・チャパイナ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。また、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、国立保健医療科学院の国包部長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を採取を行った。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。

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。本研究では、地下水のヒ素汚染地域のバングラデシュにおいて、地域を限定した住民を対象にした安全な飲料水の給水システムの確立と安全な水を供給する前後での尿・毛髪中のヒ素代謝物の動態変化の検討と安全な水を供給することによるヒ素被害の低減による各種のバイオパラメーターの変化を検討する。昨年度は、バングラデシュにおける地下水のヒ素汚染地域でヒ素被害住民が存在し、かつ安全な水を供給することが可能な地域の選定並びに現地での協力者の調査を中心に行い、バングラデシュ・チャパイナワブガンジ地区チュナカリ村を調査の候補地に決定した。

本年度は平成 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・チャパイナ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、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、国立保健医療科学院の国包部長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 Gravity Sand Filter 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。

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たため、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)のアジア砒素ネットワーク(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11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-2. 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10ml をポリエチレン製の栓付き容器に入れ、濃硝酸1滴を加え、日本に持ち帰った。試料溶液 100 μ 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 1.0ml/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 μ 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：0.1sec、スキャン回数：1回

B-3. 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℃で24時間乾燥した。その約0.5g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)7ml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、シリカ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 μ m)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 μ lをビーク製の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 μ 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ようなであった。

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-4. ヒ素汚染家族から尿及び毛髪採取

平成17年6月13~14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・チャパイナワブガンジ地区チュナカリ村をRahman教授、Bergum準教授及びZaman助教授と一緒に訪れた。Rahman教授、Bergum準教授の先導のもと、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構成員78名に対して実施された。その結果、ヒ素被害者が発生している18家族が選定され、尿及び毛髪が採取された。各構成員から採取された尿は75名分であり、毛髪は65名分であった。

尿は早朝の最初の尿が採取され、10mlのポリエチレン製共栓付き容器に採取された。毛髪は

側頭部から約0.1~0.5g採取し、チャック付きのプラスチック製袋に入れて保管した。現地において、採取後の尿は現地では冷凍庫に保管し、保冷容器に入れて携行手荷物として日本に輸送された。輸送された尿は、研究室では-30 $^{\circ}$ Cのfreezerと-80 $^{\circ}$ Cのdeep freezerの2カ所に保管され、測定には-30 $^{\circ}$ Cのfreezerに保管したものを使用時に解凍して用いた。

B-5. 毛髪中のヒ素の分析

毛髪は根元から約3cm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、シリカ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 μ lをビーク製の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ようなであった。

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-6. 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 μ lにHPLCの移動相200 μ lを加え、その20 μ lをHPLC-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20 μ l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 μ

eq/col)、カラム温度：35°C、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

下記のようにであった。

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-7. 尿中クレアチニンの測定

尿をミリQ水で10倍希釈し、その液0.5mlを用いてJaffe反応を応用したクレアチニンテストワコーのキットにて測定を行った。

B-8. 尿中 8-オキシデオキシグアノシン(8-OHdG)の測定

尿50 μ l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-9. 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

C-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。その結果をTable 1に示した。また、Table 1-1には土壌の質を示した。

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ることが試

掘に立ち会った Rahman 教授より報告された。

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250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。土壌中の鉄とヒ素量を深度に応じてプロットし、Fig.1に示した。

Fig.1の砂層と粘土層に変換する部分を矢印で示した。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ることが分かった。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結果を示していないことが明らかになった。

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。その結果をTable 1-2に示した。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、試掘が中止された。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及び409mg/kgであった。Fig.1-2に採取した土の深度とヒ素あるいは鉄の関係を示した。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。

Fig.1-3に土壌中のヒ素濃度と鉄濃度関係を示した。両者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。Fig.1-3に土壌中の鉄濃度とマンガン濃度の関係を示した。この場合も両者の間には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された。

C-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査は終了した。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。その結果をTable 2に示した。

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。その結果をTable 3に示した。

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。Table 2で示され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ることが観察された。また、上澄液を用いて試料液中のヒ素を測定し、その結果をTable 4に示した。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Table 5に示した。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368～405ppb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-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。施設の写真をphoto 3および4に示した。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慢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の鉄(II)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GSP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。その結果をTable 6に示した。

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-4. チュナカリ村のヒ素被害家族

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。構成家族及び構成員の性別、年齢及びヒ素被害の有無をTable 7に示した。

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。ヒ素患者は「+」で示したが、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。

Table 8にZaman 皮膚科医がヒ素患者25名の症状を診断した結果を示した。その内訳は、患者の発症期間、hyperkeratosis の発症の部位、I(非常に軽度)～V(非常に重度)に分けた発症の重傷度合、患部の痛み、melanosis の発症の部位と重傷度(slight, weak, strong の3段階)を示した。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。001-Aで示された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。手の平の写真をPhoto 5として示した。

016-Aで示された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。背中の写真をPhoto 6として示した。

C-5. ヒ素被害家族から得られた毛髪中のヒ素濃度

毛髪は1ヶ月に約1cm伸びると言われている。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6.72mg/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3cm、17～20cm及び37～40cm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, 8.9mg/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、010-Cで示された35才の女性では、0～3cm、17～20cm及び37～40cmでは、それぞれ、20.7, 3.2及び2.2mg/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。015-A で示された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。また、017-B で示された35才の女性は、それぞれ、3.9, 4.5及び23.7 mg/kgのヒ素量であり、毛髪の17-20cmと37-40cmの間、即ち、2年前と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-5. 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。その結果をTable 10に示した。皮膚科医の診察では、78名が対象であったが、尿の採取が困難な人もいたため、尿が提供された人数は75名となった。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)で補正してTable 10に示した。

尿中creatinineの平均値は0.486mg/mlであり、最大値は2.352mg/ml、最小値は0.066mg/mlであった。Creatine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28.9ng/mg creatineであった。尿中の全ヒ素量は54.9~5492.1ng/mg creatineであり、その平均値は571.3ng/mg creatineであった。

Table 11-1 にヒ素患者の尿中のヒ素代謝物量を示し、Table 11-2 に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ず、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-6. 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、その結果をTable 12に示した。

Table 12から分かるように(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。011-Bで示された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観察された。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45.8ng/mg creatine、As(V)が129.3ng/mg creatineであり、メチル体のDMAが29.5ng/mg creatine、MMAが1.1ng/mg creatineであった。011-Bの男性はヒ素症状を発症していなかった。011の家族の011-A、011-B及び011-Cの尿中の全ヒ素量は、それぞれ、65.8, 205.8及び106.6ng/mg creatineと同一家族内での大きな変化が観察されていなかった。それ以外の人々の尿中の全ヒ素に対するヒ素のメチル化体の排泄量は正常人で排泄される比率と同じ結果を与え、検討した74人の肝臓でのヒ素のメチル化能に異常な傾向は観察されなかった。

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。018-Cで示された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。018-CはMMAからDMAにメチル化する酵素の活性が弱く、MMAの形で尿中に排泄し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。018家族A~Fの6人の尿中の全ヒ素排泄量は148.1~412.1ng/mg creatineの範囲であり、他の家族の尿中の全ヒ素量と大きな隔たりはなかった。

C-7. 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結果を Table 13 に示した。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。002-F の 20 歳の女性の尿中 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。

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、G S P 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。

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) T. Uchino, T. Roychowdhury, M. Ando, H. Tokunaga: Intake of arsenic from water, food composites and excretion through urine, hair from a studied population in West Bengal, India, *Food Chem. Toxicol.*, **44**, 455-461 (2006).

2. 学会発表

- 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。

F. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

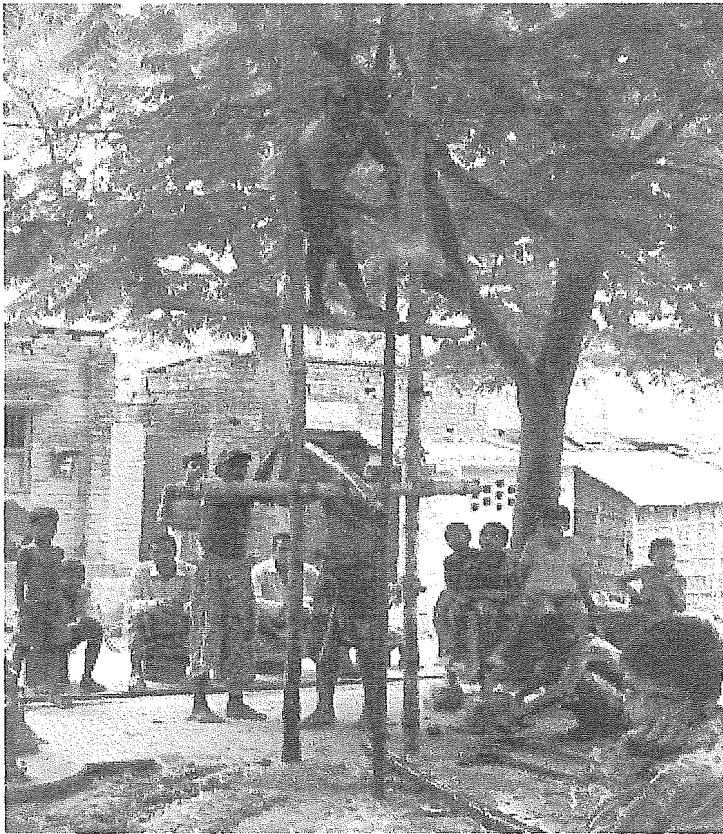


Photo 1. 深層管井戸の試掘の第1候補地での試掘風景

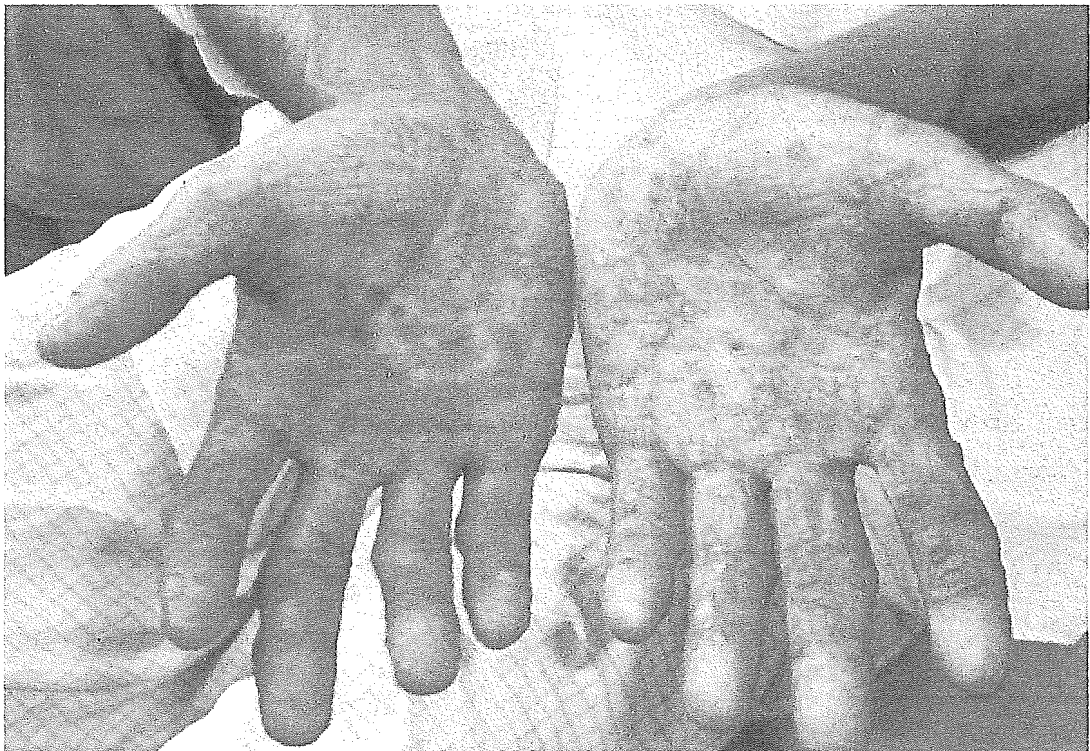


Photo 2. ヒ素被害者(018-A)の手の平の Hyperkeratosis

Table.1 As and Fe concentrations in soil when digging the first deep tubewell

1	Sample No.	depth (ft)	Fe (mg/kg)	As(mg/kg)	lithology
2	Sample-1	120-130	6182	0.668	very fine sand grey in color
3	Sample-2	130-140	8454	0.637	medium to fine sand grey in color
4	Sample-3	140-150	4988	0.716	medium to fine sand grey in color
5	Sample-4	150-160	4562	0.484	medium to fine sand grey in color
6	Sample-5	160-170	5074	0.523	medium to fine sand grey in color
7	Sample-6	170-180	4242	0.413	coarse grained sand grey in color
8	Sample-7	180-190	3513	0.373	coarse grained sand grey in color
9	Sample-8	190-200	4580	0.398	coarse grained sand grey in color
10	Sample-9	200-210	4687	0.457	fine grained sand whitish in color
11	Sample-10	210-220	6867	0.399	fine grained sand whitish in color
12	Sample-11	220-230	5993	0.441	fine grained sand whitish in color
13	Sample-12	230-240	6994	0.439	fine grained sand grayish in color
14	Sample-13	240-250	6778	0.437	very very fine grained sand grayish in color
15	Sample-14	250-260	11535	3.29	plastic clay
16	Sample-15	260-270	14184	3.96	plastic clay
17	Sample-16	270-280	16755	4.14	plastic clay
18	Sample-17	280-290	14187	4.05	plastic clay
19	Sample-18	290-300	16711	3.44	plastic clay
20	Sample-19	300-310	18720	3.37	plastic clay
21	Sample-20	310-320	17906	3.51	plastic clay
22	Sample-21	320-330	15762	3.45	plastic clay
23	Sample-22	330-340	16101	3.51	plastic clay
24	Sample-23	340-350	18843	3.38	plastic clay
25	Sample-24	350-360	15878	3.40	plastic clay
26	Sample-25	360-370	20598	2.48	plastic clay
27	Sample-26	370-380	20331	3.02	plastic clay
28	Sample-27	380-390	18157	4.65	plastic clay
29	Sample-28	390-400	20266	3.04	plastic clay

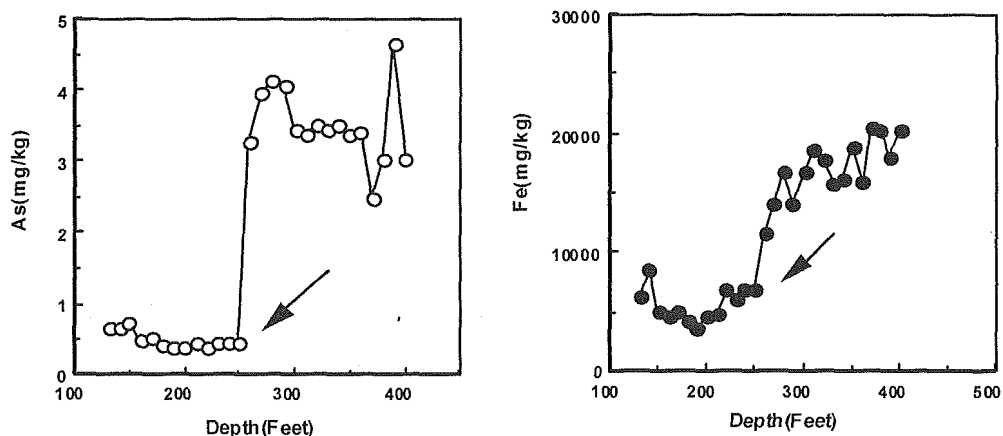


Fig.1 Relationship between As or Fe in sediment and depth

Table 1-2 As, Fe and Mn concentrations in soil when digging the second tubewell

	depth (ft)	soil type	As(mg/kg)	Fe(g/kg)	Mn(mg/kg)
1	0~10	sand	12.3	31.631	619
2	10~20	sand	6.09	23.275	443
3	20~30	sand	4.06	21.405	420
4	30~40	sand	1.85	11.287	359
5	40~50	sand	8.77	27.163	491
6	50~60	sand	2.52	12.645	266
7	60~70	sand	1.32	10.021	486
8	70~80	sand	2.65	7.212	226
9	80~90	sand	1.55	7.470	171
10	90~100	sand	1.62	7.364	226
11	100~110	sand	0.924	3.743	95.5
12	110~120	sand	1.09	5.157	219
13	120~130	sand	1.92	9.185	322
14	130~140	sand	2.07	9.402	201
15	140~150	sand	1.83	6.829	184
16	150~160	sand	1.51	5.085	145
17	160~170	sand	1.76	5.215	245
18	170~180	sand	1.55	6.394	306
19	180~190	sand	2.13	12.890	659
20	190~200	sand	1.99	12.102	516
21	200~210	sand	2.08	12.578	709
22	210~220	sand	1.95	10.486	627
23	220~230	sand	1.79	6.664	312
24	230~240	sand	1.97	6.484	263
25	240~250	sand	3.21	5.125	192
26	250~260	sand	4.79	17.605	352
27	260~270	cray	1.75	5.299	193
28	270~280	cray	6.01	17.262	431
29	280~290	cray	6.27	20.245	464
30	290~300	cray	4.36	11.054	305
31	300~310	cray	5.74	20.885	483
32	310~320	cray	5.62	18.107	427
33	320~330	cray	6.93	24.748	539
34	330~340	cray	7.14	25.041	524
35	340~350	cray	5.13	17.052	374
36	350~360	cray	6.42	19.144	422
37	360~370	cray	7.85	24.802	535
38	370~380	cray	7.45	22.135	503
39	380~390	cray	6.47	19.946	467
40	390~400	cray	4.17	9.980	268
41	400~410	cray	5.52	19.409	434
42	410~420	cray	4.98	13.283	333
43	420~430	sand	6.05	12.116	266
44	430~440	sand	3.98	11.868	287
45	440~450	sand	4.73	14.069	308
46	450~460	sand	5.45	16.873	338
47	460~470	sand	4.2	17.937	452
48	470~480	sand	3.44	19.355	507
49	480~490	cray	4.4	15.834	305
50	490~500	cray	5.47	21.995	431
51	500~510	cray	5.52	21.262	431
52	510~520	cray	6.65	26.007	538
53	520~530	cray	5.91	22.117	493
54	530~540	cray	5.21	19.728	428
55	540~550	cray	3.97	12.604	270
56	550~560	cray	3.75	12.177	249
57	560~570	cray	4.18	13.014	285
58	570~580	cray	4.13	15.616	325
59	580~590	cray	4.88	18.213	375
60	590~600	cray	4.34	14.093	313
61	600~610	cray	6.36	20.990	398
62	610~620	cray	6.26	26.042	462
63	620~630	cray	6.47	17.849	354
64	630~640	cray	4.66	22.094	457
65	640~650	cray	5.48	27.553	538
66	650~660	cray	6.67	28.668	594
67	660~670	cray	4.86	20.671	600
68	670~680	sand	21.8	30.770	484
69	680~690	cray	17.5	43.503	710
70	690~700	sand	9.55	46.140	871
71	700~710	sand	2.7	16.992	359
72	710~720	cray	5.14	30.015	578
73	720~730	cray	3.9	24.508	489
74	730~740	cray	6.97	34.585	615
75	740~750	cray	8.92	44.952	718
76	750~760	cray	4.09	23.900	484
	average		4.93	17.723	409
	MAX		21.80	46.140	871
	MIN		0.92	3.743	96

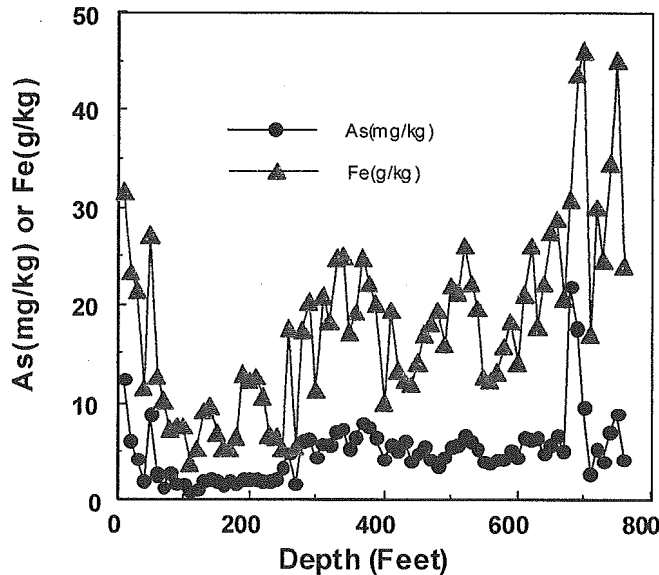


Fig. 1-2 As or Fe in soil obtained from each depth of tubewell

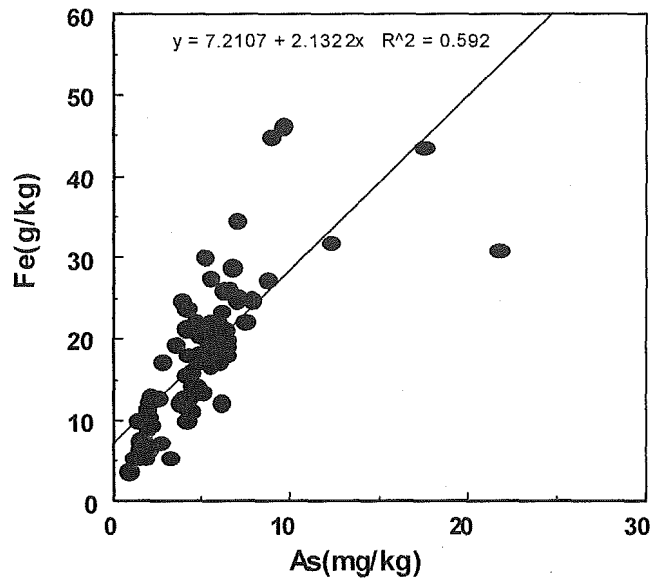


Fig.1-3 Relationship between As and Fe obtained from each depth of tubewell

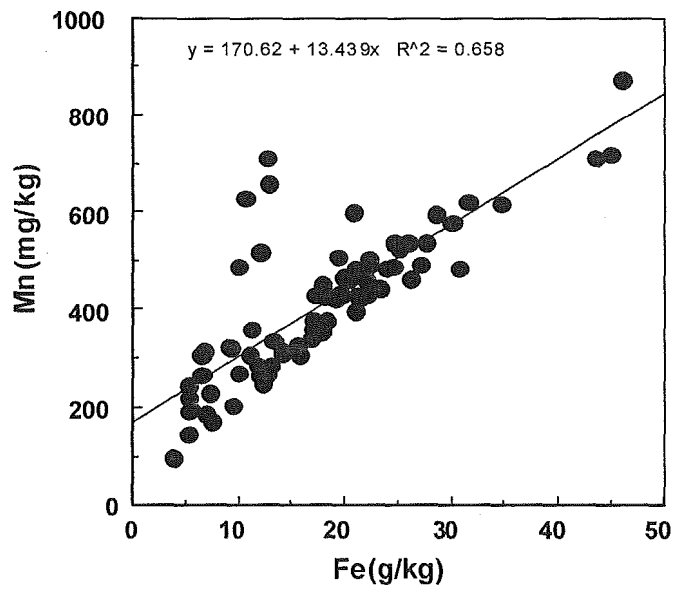


Fig.1-4 Relationship between Fe and Mn obtained from each depth of tubewell

Table.2 Arsenic concentrations in waters determined by ICDDR,B

	concentration (μ g/L)
Sample 1	479.0
Sample 2	519.4
Sample 3	524.7
Sample 4	456.8
Sample 5	472.1
Sample 6	415.9
Sample 7	531.0
Sample 8	490.2
Sample 9	355.8
Sample 10	465.7

Table.3 Arsenic(ppb) in waters determined by BUET and NIHS

	BUET (ppb)	NIHS (ppb)
HW 1	1	39.7
HW 2		34.7

HW 1: with acid obtained from First TW,
HW 2: without acid obtained from First TW

Table.4 Arsenic in waters determined by NIHS

	As (ppb)
HTW 1	299.0
HTW 2	65.7

HTW 1: with HCl, HTW 2: without HCl

Table 5. As and Fe concentration in tubewell water and pH of tubewell water

		conc. (ppb)	pH
TW 1	Fe	13236	2.61
	As	368	
TW 2	Fe	13884	2.35
	As	367	
TW 3	Fe	15958	1.99
	As	401	
TW 4	Fe	15884	1.81
	As	405	

TW 1: 4-drop adding, TW 2: 6-drop adding
TW 3: 8-drop adding, TW 4: 10-drop adding

Table 6 Analytical data of Fe, Mn and As in waters (unit: ppb)

Collected date		raw water	treated water
Feburary 3, 2006	Fe	3237	107
	Mn	422	271
	As	153	19
Feburary 4, 2006	Fe	5370	216
	Mn	441	264
	As	291	21

* collecting the samples in 10-ml containers which have one drop of conc. HNO₃

* raw water obtained from the deep tubewell (250-feet depth)

*treated water after treating the raw water with GSF facility

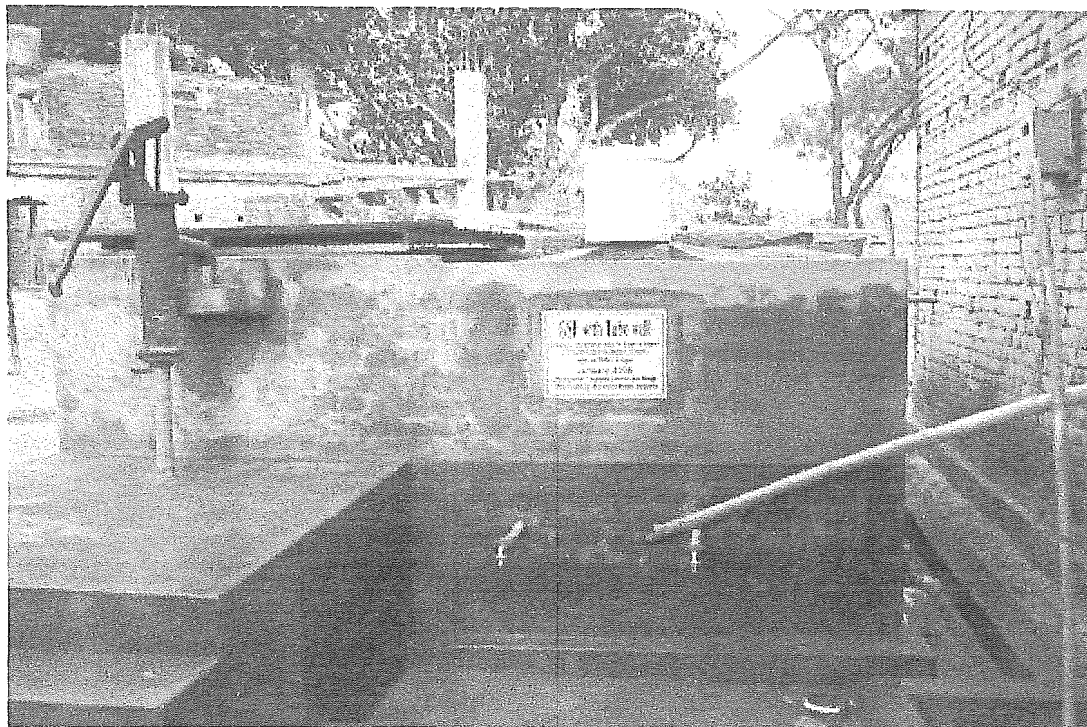


Photo 3 手押しポンプとGSF施設 (全面)

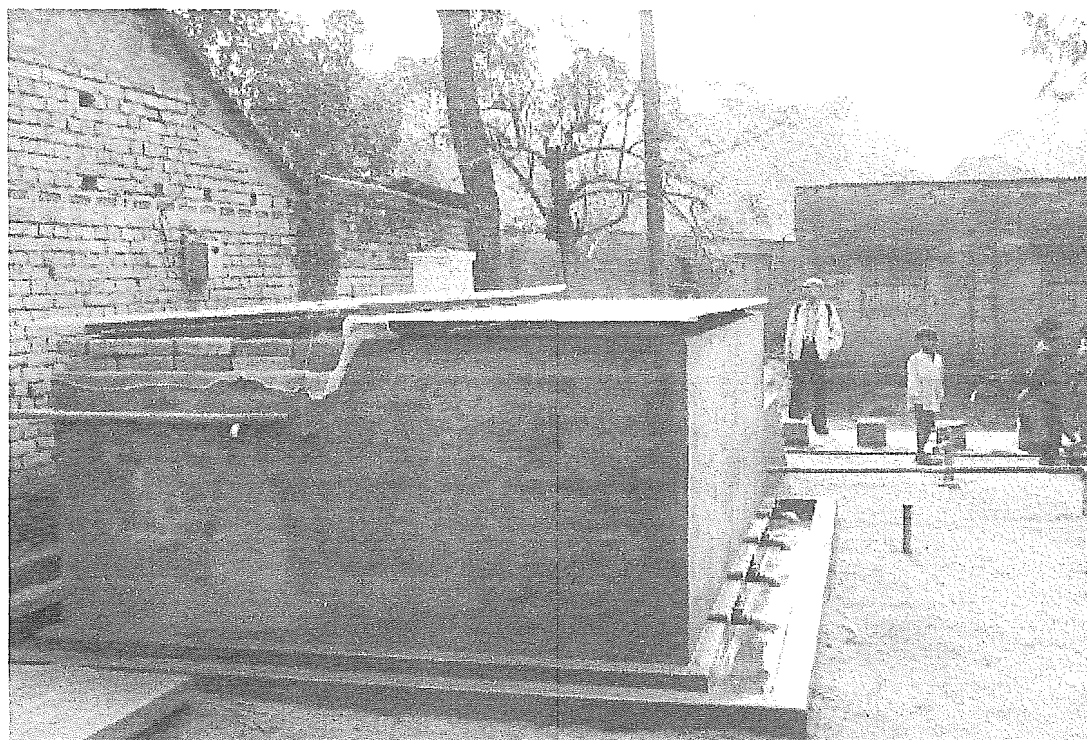


Photo 4 手押しポンプとGSF施設 (後方)

Table 7 Sample Information

	Date	Sample No.	Sex	Age	arsenicosis
1	13/6/05	001-A	F	40	+
2		001-B	M	42	+
3		001-C	M	16	-
4		001-D	F	13	-
5		001-E	F	7	-
6		001-F	F	9	-
7	13/6/05	002-A	F	55	+
8		002-B	M	65	-
9		002-C	M	28	-
10		002-D	F	24	-
11		002-E	M	19	-
12		002-F	F	20	-
13	13/6/05	003-A	F	60	+
14		003-B	M	55	-
15		003-C	M	25	-
16		003-D	F	15	-
17		003-E			-
18		003-F	F	20	-
19	13/6/05	004-A	F	60	+
20		004-B	M	30	+
21		004-C	F	20	-
22		004-D	M	3	-
23	13/6/05	005-A	F	55	+
24		005-B	M	28	-
25	13/6/05	006-A	F	35	+
26		006-B	F	11	-
27	13/6/05	007-A	F	60	+
28		007-B	F	8	-
29		007-C	M	4	-
30	13/6/05	008-A	F	50	+
31		008-B	M	60	-
32		008-C	M	18	-
33		008-D	F	11	-
34		008-E	M	9	-
35		008-F	F	2	-
36	13/6/05	009-A	M	77	+
37		009-B	M	32	+
38		009-C	M	35	+
39		009-D	M	30	+
40		009-E	M	45	+
41		009-F	F	28	-
42	13/6/05	010-A	M	15	+
43		010-B	M	41	-
44		010-C	F	35	-
45	13/6/05	011-A	M	70	+
46		011-B	M	26	-
47		011-C	F	60	-
48	13/6/05	012-A	M	80	+
49		012-B	M	36	+
50		012-C	M	50	-
51		012-D	F	35	-
52	14/6/05	013-A	F	30	+
53		013-B	F	4	-
54		013-C	M	8	-
55		013-D	M	40	-
56	14/6/05	014-A	F	30	+
57		014-B	F	15	-
58		014-C	F	10	-
59	14/6/05	015-A	F	32	+
60		015-B	M	40	-
61		015-C	F	10	-
62		015-D	F	8	-
63		015-E	F	5	-
64	14/6/05	016-A	F	30	+
65		016-B	M	70	-
66		016-C	F	60	-
67		016-D	M	40	-
68	14/6/05	017-A	M	50	+
69		017-B	F	35	-
70		017-C	M	20	-
71		017-D	M	13	-
72		017-E	M	18	-
73	14/6/05	018-A	M	51	+
74		018-B	F	40	-
75		018-C	M	25	-
76		018-D	M	16	-
77		018-E	M	6	-
78		018-F	F	3	-

Table 8 Arsenic symptoms of arsenic-affected villagers

	Date	Sample No.	Sex	Age	duration of symptom	hyperkeratosis	severity	pain	melanosis	severity
1	13/6/05	001-A	F	40	>3 years	palm, sole	V	slight	chest,back	strong
2		001-B	M	42	>3 years	sole	IV	strong	chest,back	strong
3	13/6/05	002-A	F	55	>3 years	palm, sole	V	weak	chest,back	strong
4	13/6/05	003-A	F	60	>3 years	palm, sole	III	strong	-	-
5	13/6/05	004-A	F	60	>3 years	palm, sole	II	slight	-	-
6		004-B	M	30	>3 years	palm, sole	IV	strong	chest,back	strong
7	13/6/05	005-A	F	55	>3 years	palm, sole	IV	slight	-	-
8	13/6/05	006-A	F	35	>3 years	palm, sole	V	slight	chest,back	strong
9	13/6/05	007-A	F	60	>3 years	palm, sole	V	slight	chest,back	weak
10	13/6/05	008-A	F	50	>3 years	palm, sole	V	slight	chest,back	strong
11	13/6/05	009-A	M	77	>3 years	palm, sole	II	slight	chest,back	strong
12		009-B	M	32	>3 years	palm	III	slight	chest,back	slight
13		009-C	M	35	>3 years	palm, sole	III	strong	chest,back	strong
14		009-D	M	30	2 years	sole	II	-	chest,back	slight
15		009-E	M	45	>3 years	palm, sole	IV	-	-	-
16	13/6/05	010-A	M	15	>3 years	palm, sole	I	slight	-	-
17	13/6/05	011-A	M	70	>3 years	sole	IV	-	-	-
18	13/6/05	012-A	M	80	>3 years	palm, sole	V	slight	chest,back	strong
19		012-B	M	36	>3 years	palm, sole	IV	weak	-	-
20	14/6/05	013-A	F	30	>3 years	sole	IV	slight	chest,back	weak
21	14/6/05	014-A	F	30	>3 years	-	-	slight	-	-
22	14/6/05	015-A	F	32	>3 years	palm, sole	III	strong	chest,back	strong
23	14/6/05	016-A	F	30	2 years	-	-	-	chest,back	strong(rain drop)
24	14/6/05	017-A	M	50	>3 years	palm, sole	V	strong	chest,back	strong
25	14/6/05	018-A	M	51	>3 years	palm, sole	I	slight	-	-

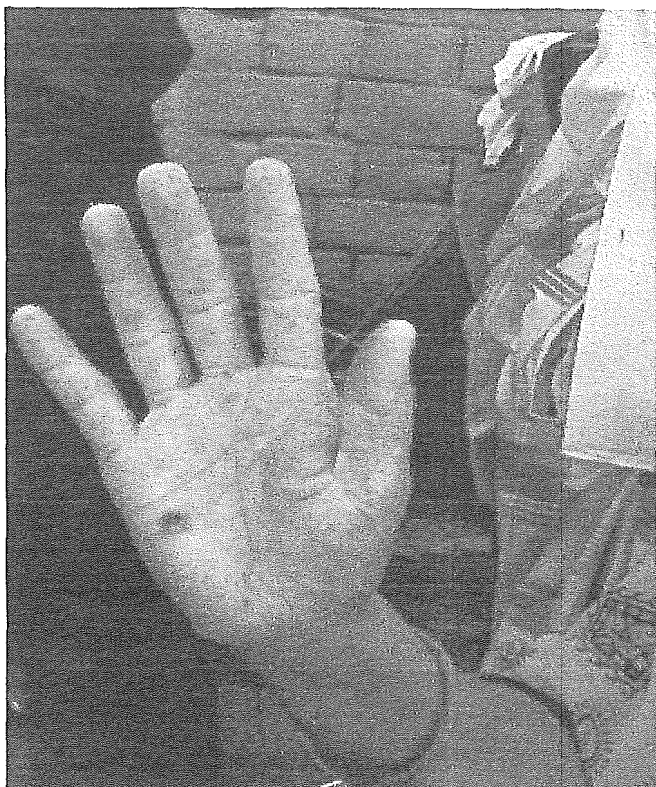


Photo 5 001-A の婦人の手の平 (肉腫の形成)

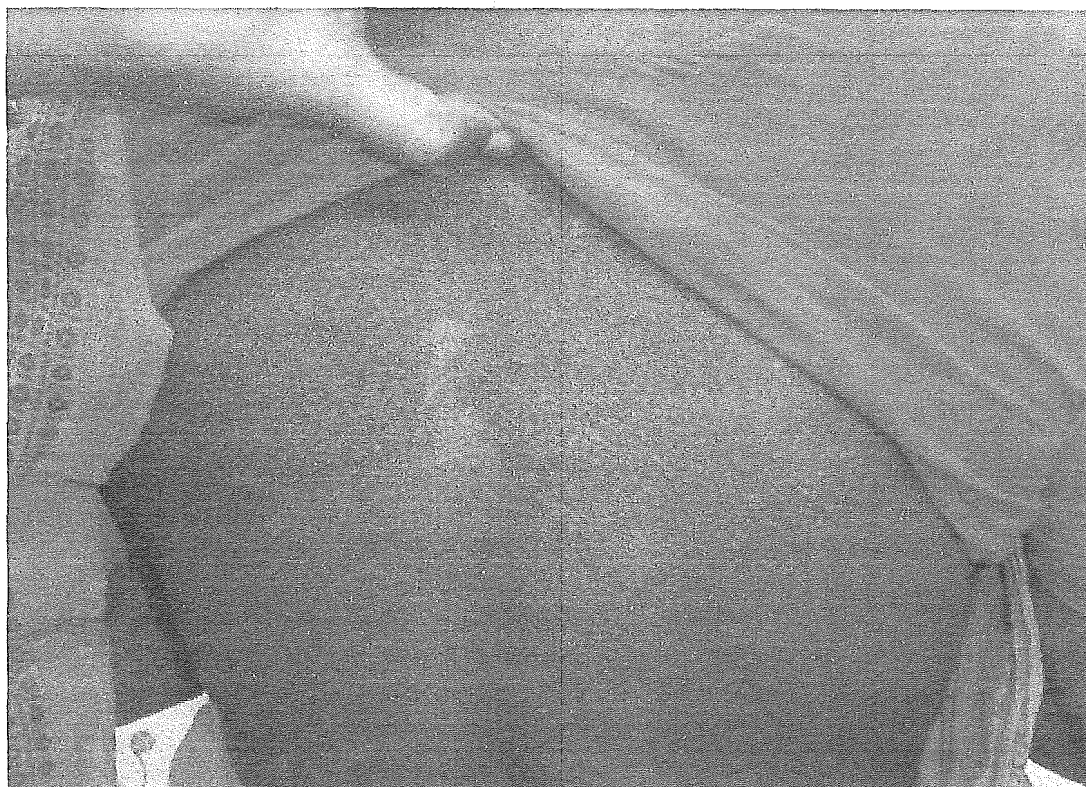


Photo 6 016-A の婦人の背中(melanosis- rain drop)

Table 9-1 As concentrations in hairs obtained from family members

Sample No.	Sex	Age	arsenicosis	As (mg/kg) in hair	Sample No.	Sex	Age	arsenicosis	As (mg/kg) in hair		
1	001-A	F	40	+	1.30	34	010-C	F	35	-	20.70
2	001-B	M	42	+	8.20	35	011-A	M	70	+	1.20
3	001-C	M	16	-	8.10	36	011-B	M	26	-	3.40
4	001-D	F	13	-	0.10	37	011-C	F	60	-	2.40
5	001-E	F	7	-	1.80	38	012-A	M	80	+	3.40
6	002-A	F	55	+	3.20	39	012-B	M	36	+	4.80
7	002-C	M	28	-	13.30	40	012-C	M	50	-	1.40
8	002-D	F	24	-	1.90	41	012-D	F	35	-	2.30
9	002-E	M	19	-	7.30	42	013-A	F	30	+	0.70
10	002-F	F	20	-	14.20	43	013-C	M	8	-	3.00
11	003-A	F	60	+	3.30	44	013-D	M	40	-	2.00
12	003-B	M	55	-	8.90	45	014-A	F	30	+	8.50
13	003-D	F	15	-	5.10	46	014-B	F	15	-	9.50
14	003-E			-	8.60	47	014-C	F	10	-	2.40
15	003-F	F	20	-	3.30	48	015-A	F	32	+	11.70
16	004-A	F	60	+	3.30	49	015-B	M	40	-	7.10
17	004-B	M	30	+	7.80	50	015-C	F	10	-	11.00
18	004-C	F	20	-	1.70	51	015-D	F	8	-	11.90
19	005-A	F	55	+	6.20	52	015-E	F	5	-	11.90
20	005-B	M	28	-	12.10	53	016-A	F	30	+	7.00
21	006-A	F	35	+	4.90	54	016-B	M	70	-	5.90
22	007-A	F	60	+	3.30	55	016-C	F	60	-	3.00
23	007-B	F	8	-	4.20	56	017-A	M	50	+	3.00
24	008-A	F	50	+	12.60	57	017-B	F	35	-	3.90
25	008-B	M	60	-	3.70	58	017-C	M	20	-	2.50
26	008-C	M	18	-	5.00	59	017-D	M	13	-	2.80
27	008-D	F	11	-	13.40	60	018-A	M	51	+	3.60
28	008-E	M	9	-	16.20	61	018-B	F	40	-	6.70
29	009-A	M	77	+	8.20	62	018-C	M	25	-	2.60
30	009-B	M	32	+	2.30	63	018-E	M	6	-	7.30
31	009-D	M	30	+	4.70					average	6.23
32	010-A	M	15	+	10.30					MAX	20.70
33	010-B	M	41	-	16.10					MIN	0.10

Table 9-2 As concentrations(mg/kg) in different parts of female hairs

Sample No.	age	arsenicosis	length from bottom of hair			
			0-3 cm	17-20 cm	37-40 cm	
1	001-A	40	+	1.3	13	14.9
2	001-D	13	-	0.1	0.3	0.1
3	002-A	55	+	3.2	1.2	5.1
4	002-D	24	-	1.9	6	5.3
5	002-F	20	-	14.2	17.8	13.1
6	003-A	60	+	3.3	3.1	3.5
7	003-D	15	-	5.1	6.5	3.9
8	003-F	20	-	3.3	6.8	5.3
9	004-A	60	+	3.3	3.4	5.8
10	004-C	20	-	1.7	0.2	5.5
11	005-A	55	+	6.2	7.2	11.5
12	006-A	35	+	4.9	1.8	1.2
13	008-A	50	+	12.6	5.5	4.6
14	008-D	11	-	13.4	7.3	10.6
15	009-F	28	-	8.4	4.8	11.7
16	010-C	35	-	20.7	32	22
17	011-C	60	-	2.4	5.2	-
18	012-D	35	-	2.3	2.3	4.8
19	013-A	30	+	0.7	4.7	-
20	014-A	30	+	8.5	6.2	7.8
21	014-B	15	-	9.5	6.9	6.8
22	015-A	32	+	11.7	15.5	23.7
23	016-A	30	+	7.0	4.4	-
24	017-B	35	-	3.9	4.5	23.7
25	018-B	40	-	6.7	8.1	3.8
			average	6.3	7.0	8.9
			MAX	20.7	32.0	23.7
			MIN	0.1	0.2	0.1