

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の測定を行い、ヒ素除去された水を供給後、6ヶ月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 Rahman 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 Rahman 教授と一緒に試料採取を行うが、採取された試料を Rahman 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 Zaman 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 Zaman 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 Rahman 教授が保持する。

C. 結果及び考察

C-1. 管井戸と GSF 施設との組み合わせによる処理水中のヒ素濃度の管理

平成18年2月以降、各月ごとに送られてきた供給原水及び処理水中の鉄、マンガン及びヒ素濃

度を Table 1 に示した。昨年度の報告でこの地域の土壌中のヒ素はガンジスデルタの形成過程で水中の酸化鉄が沈殿するときにマンガン及びヒ素を取り込み共沈することを説明した。そのため、給水原水及び処理水の測定では、鉄、マンガン及びヒ素濃度を示した。

供給原水中の鉄濃度は、調査した平成18年2月～11月の間、5370～30950 ppb の範囲であるが、処理水では、10 ppb 以下～3504 ppb の範囲であり、GSF 施設での Fe(II)イオンが空気中の酸素により酸化され、酸化鉄として沈殿して鉄濃度が低下したことが明らかになった。マンガン濃度は処理水でも大きく低下しなかったが、ヒ素濃度は明らかに低下し、供給原水中のヒ素の 193 ppb～291 ppb が処理水中では 21 ppb～59 ppb となった。平成18年5月の処理水でのヒ素量が 59 ppb であったが、この原因として、住民の処理水の使用量が多すぎ、GSF 施設の処理能力を超えた容量の原水が使われたために起こった現象であると考えられた。バングラデシュの飲料水中のヒ素濃度は 50 ppb 以下であり、一時的に 59 ppb の水を供給したこともあったが、今回の実験期間を通じて、ほぼ安全な水をヒ素被害家族に供給することができたと考えられた。

C-2. チュナカリ村のヒ素被害患者のヒ素症状

昨年度の平成17年6月の調査、平成18年2月の調査及び平成18年8月の調査で 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を実施した。その結果を Table 2 に示した。各調査日に不在であったヒ素被害患者は「－」で示してある。なお、調査開始の平成17年6月時点でのヒ素被害家族18家族中のヒ素被害患者の総数は25名であったが、平成18年2月の時点での他地域へ2家族が移動しており、調査対象家族数は16家族となっていた。6ヶ月間の安全な水の供給後の調査である平成18年8月の調査では、皮膚科医の診断により、かなりのヒ素被害患者の重傷度が軽減していることが観察され、その結果を Table 2 の表から見ることができた。

C-3. 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1 cm 伸びると言われている。ヒ素被害家族から得られた毛髪の根元から3 cm までのものを用い、その中のヒ素濃度の測定を行った。平成18年2月の調査では、16家族の48名から毛髪を採取することができた。平成18年8月の調査では、16家族の62名から毛髪を採取することができた。平成17年6月、平成18年2月及び8月の毛髪中のヒ素濃度の結果と合わせてTable 3に示した。

平成17年6月の調査で採取した63名の毛髪中のヒ素の平均値は6.23 mg/kg であり、最小値は、この方法でのヒ素の検出限界 0.04 μ g/kg 以下であり、最大値は20.7 mg/kg であった。平成18年2月の48名の毛髪中のヒ素濃度の平均値は2.03 mg/kg であり、最小値は0.04 μ g/kg 以下であり、最大値は25.68 mg/kg であった。GSF 施設を設置する前の平成17年6月と平成18年2月の毛髪中のヒ素濃度を比較した時、平成18年2月のデータは平成17年6月のデータの0.32倍であり、バングラデシュの雨期と乾期の違いによる季節要因が考えられた。また、平成18年8月の調査では採取した60名分の毛髪中のヒ素濃度の平均値は、0.43 mg/kg であり、最小値は0.04 μ g/kg 以下であり、最大値は3.21 mg/kg であった。平成18年2月以降、6ヶ月間、GSF 施設で処理した水をヒ素被害家族に供給することにより、毛髪中のヒ素濃度の明白な低下が観察された。

平成18年2月の調査で最高濃度の毛髪中のヒ素濃度25.68 mg/kg を示した010-Bの男性(41才)はヒ素被害患者ではなかった。同様に、平成18年8月の調査で最高濃度の毛髪中のヒ素濃度3.21 mg/kg を示した005-Bの男性(28才)もヒ素被害患者ではなかった。

平成18年2月の調査でのヒ素被害者(17名)の毛髪中のヒ素量の平均値は1.47 mg/kg であり、ヒ素被害の症状が発症していない人(31名)の毛髪中のヒ素量の平均値は2.33 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つ

たが、平均値で見た場合、ヒ素被害の症状が発症していない人の毛髪中のヒ素濃度が高い傾向を示した。

同様に平成18年8月の調査でのヒ素被害患者(19名)の毛髪中のヒ素量の平均値0.44 mg/kg 及びヒ素被害の症状が発症していない人(41名)の毛髪中のヒ素量の平均値0.42 mg/kg であり、両者の間には統計的に有意な差が認められなかった。(Table 4)

C-5. ヒ素被害家族から得られた尿中のヒ素代謝物

平成18年2月の調査で採取した50名のヒ素被害家族から得られた尿中のヒ素代謝物を測定した。尿中の creatinine 量 (mg/mL) 及び尿中の creatinine 量 (mg/L) で補正してヒ素代謝物量をTable 5に示した。

尿中 creatinine の平均値は0.785 mg/mL であり、最大値は2.185 mg/mL、最小値は0.197 mg/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、11.8、123.3、20.1 及び5.6 ng/mg creatine であった。尿中の全ヒ素量は17.9~533.0 ng/mg creatine であり、その平均値は160.7 ng/mg creatine であった。平成17年6月の調査での尿中ヒ素代謝物の測定データであるAs(III)、DMA、MMA 及びAs(V)の平均値の56.2、412.7、73.5 及び28.9 ng/mg creatine と比較して平成18年2月のデータは0.21倍、0.30倍、0.27倍及び0.19倍と明らかに低い値を示した。

Table 6-1 にヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量を示し、Table 6-2 にヒ素患者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。

同様に、平成18年8月に調査で採取した66名のヒ素被害家族から得られた尿中のヒ素代謝物を測定した。尿中の creatinine 量 (mg/mL) 及び尿中の creatinine 量 (mg/L) で補正してヒ素代謝物量をTable 7に示した。

尿中 creatinine の平均値は0.696 mg/mL であり、

最大値は2.747 mg/mL、最小値は0.005 mg/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、80.2、1112.4、120.0 及び72.5 ng/mg creatine であった。尿中の全ヒ素量は25.5～11620.4 ng/mg creatine であり、その平均値は1385.1 ng/mg creatine であった。平成18年2月の調査での尿中ヒ素代謝物の測定データであるAs(III)、DMA、MMA 及びAs(V)の平均値の56.2、412.7、73.5 及び28.9 ng/mg creatine と比較して平成18年2月のデータの6.7倍、9.2倍、6.0倍及び12.7倍と明らかに高い値を示した。しかし、平成17年6月の尿中のAs(III)、DMA、MMA 及びAs(V)の平均値と比較して平成18年8月のデータはデータの1.4倍、2.7倍、1.6倍及び2.5倍であった。この時期は雨期の高温多湿な季節であり、飲料水量の多さが尿中のヒ素代謝物の量に影響していることが示唆された。

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、平成17年6月、平成18年2月及び8月の調査で得られた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 8に示した。また、両者の比が正常範囲を超えるヒトの結果をTable 9に示した。5名ともヒ素症状を発症していなかった。平成17年6月の調査で異常を示していた018-CのヒトはMMA/DMA比が1195.1%と非常に多くのヒ素代謝物をMMAの形で尿中に放出しており、尿中の全ヒ素量は161.7 ng/mg creatinine であった。平成18年2月の調査では、MMA/DMA比が17.5%と正常値(全ヒ素量は100.3 ng/mg creatinine)であった。しかし、平成18年8月の調査では、その比が75.1%(全

ヒ素量は775.3 ng/mg creatinine)と異常な範囲に戻っていた。平成17年6月の調査で異常を示していた011-Bのヒトは(DMA+MMA)/Total As比が14.1%と非常に低く、大部分を無機ヒ素の形(全ヒ素量は205.8 ng/mg creatinine)で放出していた。このヒトの平成18年2月及び8月の調査は、その比が96.2%と90.4%となっており、正常な範囲に戻っていた。平成18年8月の調査で003-Dと010-Cのヒトから得られた尿中のMMA/DMA比が125.7%と488.3%を示し、異常値であった。また、004-Dのヒトは無機ヒ素のAs(V)(全ヒ素量は3755.8 ng/mg creatinine)しか検出されていなかった。

D. 結論

1. 供給原水中のヒ素濃度は193 ppb～291 ppbであったが、GSF装置で処理することにより、処理水中のヒ素濃度を21 ppb～59 ppbとすることができ、この水をヒ素被害家族16家族に平成18年2月～11月まで供給した。
2. 安全な水の供給後の6ヶ月間の調査(平成18年8月)では、皮膚科医の診断により、かなりのヒ素被害患者の重傷度が軽減していることが観察された。
3. 平成17年6月の調査で採取した63名の毛髪中のヒ素の平均値は6.23 mg/kg、平成18年2月の48名の毛髪中のヒ素濃度の平均値は2.03 mg/kgと比較して、安全な水供給6ヶ月後の平成18年8月の調査での62名分の毛髪中のヒ素濃度の平均値は0.43 mg/kgであり、明らかに毛髪中のヒ素量の低下が観察された。
4. 平成18年2月に採取した尿中のヒ素代謝物量、As(III)、DMA、MMA 及びAs(V)の平均値は、それぞれ、11.8、123.3、20.1 及び5.6 ng/mg creatine であった。尿中の全ヒ素量は17.9～533.0 ng/mg creatine であり、その平均値は160.7 ng/mg creatine であった。平成17年6月の調査での尿中ヒ素代謝物の測定データであるAs(III)、DMA、MMA 及びAs(V)の平均値の56.2、412.7、73.5 及び28.9 ng/mg creatine

と比較して平成18年2月のデータは0.21倍、0.30倍、0.27倍及び0.19倍と明らかに低い値を示した。

5. 平成18年8月に採取した尿中のヒ素代謝物、As(III)、DMA、MMA及びAs(V)の平均値は、それぞれ、80.2, 1112.4, 120.0及び72.5 ng/mg creatineであった。平成18年2月の調査での尿中ヒ素代謝物の測定データであるAs(III)、DMA、MMA及びAs(V)の平均値の56.2, 412.7, 73.5及び28.9 ng/mg creatineと比較して平成18年2月のデータの6.7倍、9.2倍、6.0倍及び12.7倍と明らかに高い値を示した。しかし、平成17年6月のデータの1.4倍、2.7倍、1.6倍及び2.5倍であった。
6. 平成17年6月、平成18年2月及び8月の調査で得られた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の比率を求めた。その結果を5名が正常なヒトとの違いを示したが、その5名ともヒ素症状を発症していなかった。
7. 平成17年6月の調査で異常を示していた011-Bのヒトは(DMA+MMA)/Total As比が14.1%と非常に低く、大部分を無機ヒ素の形(全ヒ素量は205.8 ng/mg creatinine)で放出していた。このヒトの平成18年2月及び8月の調査は、その比が96.2%と90.4%となっており、正常な範囲に戻っていた。
8. 平成18年8月の調査で003-Dと010-Cのヒトから得られた尿中のMMA/DMA比が125.7%と488.3%を示し、異常値であった。また、004-Dのヒトは無機ヒ素のAs(V)(全ヒ素量は3755.8 ng/mg creatinine)しか検出されていなかった。

E. 研究発表

1. 論文発表

1) Hiroshi Tokunaga, Tadashi Uchino, Yoshiaki Ikarashi, Md. Hamidur Rahman : Geochemical Occurrence of Arsenic, Iron and Manganese in Groundwater of a Part of Chapai Nawabganji

District in Bangladesh, J. Environ. Sci. Health, in press (2007).

2. 学会発表

- 1) H. Tokunaga: Evaluation of urinary arsenic metabolites, urinary 8-OHdG and arsenic in hairs in arsenic-affected families in Bangladesh, Recent Trends in Health Science Research (Vellore Institute of Technology, India), August 2006
- 2) 徳永裕司、内野 正、五十嵐良明: 「Bangladeshの地下水ヒ素汚染地域で地下水を飲料水とする住民から得られた尿中ヒ素代謝物及び8-OHdGについて」、第43回全国衛生化学技術協議会年会、平成18年11月。
- 3) 内野 正、五十嵐良明、徳永裕司: 「Bangladeshの地下水ヒ素汚染地域で地下水を飲料水とする住民から得られた毛髪中ヒ素濃度及び土壌中ヒ素、鉄、マンガン濃度について」、第43回全国衛生化学技術協議会年会、平成18年11月。
- 4) H. Tokunaga, T. Uchino, A. K. B. Zaman, M. Rahman : Evaluation of Urinary Arsenic Metabolites, Urinary 8-OHdG and Arsenic in Hairs Obtained from Arsenic-affected Families in Bangladesh, Arsenic-sympo in MIYAZAKI 2006, November 2006.
- 5) Md. H. Rahman, H. Tokunaga, K. Ohno: Human Health Hazard and Arsenic Pollution in the Groundwater of Bangladesh, Arsenic-sympo in MIYAZAKI 2006, November 2006.

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

Table 1 Fe, Mn and As in raw water and treated water

Collected date	kind of water	Fe	Mn	As
February, 2006	raw water	5370	441	291
	treated water	216	264	21
March, 2006	raw water	6261	238	189
	treated water	1508	171	50
April, 2006	raw water	11040	470	229
	treated water	698	152	33
May, 2006	raw water	9170	223	210
	treated water	2595	119	59
June, 2006	raw water	12020	372	194
	treated water	<10	23	39
July, 2006	raw water	7038	333	227
	treated water	<10	650	46
August, 2006	raw water	11000	339	193
	treated water	2163	155	34
September, 2006	raw water	4496	132	127
	treated water	557	167	38
October, 2006	raw water	8003	310	219
	treated water	<10	171	46
November, 2006	raw water	30950	10370	289
	treated water	3504	44	31
December, 2006	raw water	3962	292	148
	treated water	331	115	28
January, 2007	raw water	19975	445	220
	treated water	5474	210	34
February, 2007*	raw water	7760	-	260
	treated water	<10	-	37

February, 2007*: The analytical data were obtained from AAN Bangladesh

Table 2-1 Arsenic symptoms of arsenic-affected villagers

Check date	Sample No.	001-A	001-B	001-G	002-A	003-A	004-A	004-B	005-A	006-A	007-A	008-A	009-A	009-B	009-C
June 2005	Sex	F	M	M	F	F	F	M	F	F	F	F	M	M	M
	Age	40	42	20	55	60	60	30	55	35	60	50	77	32	35
	present or absent	present	present	absent	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present
	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	V	IV	III	V	IV	II	IV	IV	V	V	V	V	III	III
	pain	slight	strong	strong	weak	strong	slight	strong	slight	chest,back	slight	slight	slight	slight	strong
	melanosis	chest,back	chest,back	-	chest,back	chest,back	-	chest,back	strong						
	severity	strong	strong	-	strong	strong	-	strong	-	-	strong	weak	strong	strong	strong
	present or absent	present	present	absent	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present	absent
Feb. 2006	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	V	IV	III	V	IV	II	IV	IV	V	V	I	I	II	II
	pain	strong	-	strong	weak	strong	slight	strong	strong	strong	strong	slight	strong	strong	strong
	melanosis	chest,back	chest,back	-	chest,back	-	-	chest,back	chest,back	chest,back	back	chest,back	chest,back	chest	chest,back
	severity	strong	strong	-	strong	strong	-	strong	strong	strong	strong	slight	slight	strong	strong
	present or absent	present	present	present	present	absent	absent	absent	present						
	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	V	IV	II	V	IV	II	II	IV	I	II	I	I	I	III
pain	-	-	strong	-	weak	-	-	-	slight	slight	slight	slight	-	strong	
melanosis	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	-	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	
severity	strong	slight	strong	strong	strong	slight	-	-	slight	slight	slight	slight	slight	strong	
present or absent	present	present	absent	present	absent	absent	present	absent	present	present	present	present	present	present	
Aug. 2006	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	V	IV	IV	V	II	II	IV	II	I	II	I	I	I	III
	pain	-	-	strong	-	weak	-	-	slight	slight	slight	slight	-	-	strong
	melanosis	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	-	chest,back						
	severity	strong	slight	strong	strong	slight	-	-	slight	slight	slight	slight	slight	slight	strong
	present or absent	present	present	absent	present	absent	absent	absent	present						
	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	III	II	IV	IV	I	I	I	I	I	I	I	I	I	IV
pain	-	slight	-	weak	-	slight	-	-	-	slight	slight	slight	-	strong	
melanosis	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	-	-	-	-	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	
severity	strong	slight	-	weak	-	-	-	-	-	slight	slight	slight	slight	strong	
present or absent	present	present	absent	present	absent	absent	present	absent	present	present	present	present	present	present	
March. 2007	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	III	II	IV	IV	I	I	I	I	I	I	I	I	I	IV
	pain	-	slight	-	weak	-	slight	-	-	-	slight	slight	slight	-	strong
	melanosis	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	-	-	-	-	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back
	severity	strong	slight	-	weak	-	-	-	-	-	slight	slight	slight	slight	strong
	present or absent	present	present	absent	present	absent	absent	absent	present						
	duration of symptom	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer	>3 yer				
	hyperkeratosis	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole
	severity	III	II	IV	IV	I	I	I	I	I	I	I	I	I	IV
pain	-	slight	-	weak	-	slight	-	-	-	slight	slight	slight	-	strong	
melanosis	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	-	-	-	-	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	
severity	strong	slight	-	weak	-	-	-	-	-	slight	slight	slight	slight	strong	
present or absent	present	present	absent	present	absent	absent	present	absent	present	present	present	present	present	present	

Table 2-2 Arsenic symptoms of arsenic-affected villagers

Check date	Sample No.	009-D	009-E	010-A	011-A	012-A	012-B	013-A	014-A	015-A	016-A	017-A	018-A	018-C	
June 2005	Sex	M	M	M	M	M	M	F	F	F	F	M	M	M	
	Age	30	45	15	70	80	36	30	30	32	30	50	51	25	
	present or absent	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present	present	absent	
	duration of symptom	2 yeras	>3 yeras	2 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	
	hyperkeratosis	sole	palm,sole	palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole	sole	-	palm,sole	-	palm,sole	palm,sole		
	severity	II	IV	I	IV	V	IV	IV	IV	-	III	-	V	I	
	pain	-	-	slight	-	slight	weak	slight	slight	strong	strong	-	strong	slight	
	melanosis	chest,back	-	-	-	chest,back	-	chest,back	-	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	-	
	severity	slight	-	-	-	strong	-	weak	-	strong	strong	strong	strong	-	
	present or absent	present	absent	present	absent	present	absent	absent	absent	absent	present	present	present	present	absent
Feb. 2006	duration of symptom	2 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	2 yeras	>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras	
	hyperkeratosis	sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	palm,sole	-	palm,sole	palm,sole	palm,sole	
	severity	II	I	slight	strong	strong	strong	strong	strong	strong	IV	V	I		
	pain	-	chest	chest	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	chest,back	strong	strong	slight	slight	
	melanosis	chest,back	chest	chest	chest,back										
	severity	slight	slight	slight	strong	weak									
	present or absent	absent	absent	present	present	present	absent	absent	absent	absent	present	present	absent	present	present
	duration of symptom			>3 yeras	>3 yeras										
	hyperkeratosis			palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole								
	severity			I	I	II	II	I	I	I	I	I	I	II	II
Aug. 2006	pain			chest,back	chest,back	chest,back				slight	slight		slight	slight	
	melanosis			chest,back	chest,back	chest,back				chest,back	chest,back			chest,back	
	severity			slight	slight	slight				slight	slight			slight	
	present or absent	absent	absent	present	present	present	absent	absent	absent	present	present	absent	present	present	
	duration of symptom			>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras				>3 yeras	>3 yeras		>3 yeras	>3 yeras	
	hyperkeratosis			palm,sole	sole	palm,sole									
	severity			I	I	II	II	I	I	I	I	I	I	II	
	March 2007	present or absent	absent	absent	present	present	present	absent	absent	absent	present	absent	present	present	present
		duration of symptom			>3 yeras	>3 yeras	>3 yeras				>3 yeras		>3 yeras	>3 yeras	-
		hyperkeratosis			palm,sole	sole	palm,sole	palm,sole							
severity				I	I	II	II	I	I	I	I	IV	I	-	
pain				slight	slight	slight				slight		strong	slight	-	
melanosis				chest,back											
severity				slight	slight	slight				slight	slight	strong	slight	-	

Table 3-1 Arsenic in hairs on June 2005, February 2006 and August 2006

	Sample No.	Sex	Age	arsenicosis	As (mg/kg) in hair		
					June 2005	Feb. 2006	Aug. 2006
1	001-A	F	40	+	1.30	n.d	n.d
2	001-B	M	42	+	8.20	n.d	n.d
3	001-C	M	16	-	8.10	-	n.d
4	001-D	F	13	-	0.10	4.71	n.d
5	001-E	F	7	-	1.80	n.d	n.d
6	001-F	F	10	-	-	0.51	n.d
7	001-G	M	20	-	-	-	1.86
8	002-A	F	55	+	3.20	n.d	n.d
9	002-C	M	28	-	13.30	1.62	n.d
10	002-D	F	24	-	1.90	9.18	n.d
11	002-E	M	19	-	7.30	1.76	0.13
12	002-F	F	20	-	14.20	4.91	0.16
13	003-A	F	60	+	3.30	12.04	0.58
14	003-B	M	55	-	8.90	-	-
15	003-C			-	-	-	0.29
16	003-D	F	15	-	5.10	1.02	2.13
17	003-E			-	8.60	-	-
18	003-F	F	20	-	3.30	2.21	1.86
19	004-A	F	60	+	3.30	0.28	n.d
20	004-B	M	30	+	7.80	0.93	-
21	004-C	F	20	-	1.70	0.44	0.90
22	004-D	M	3	-	-	-	0.43
23	004-E	F	30	-	-	n.d	-
24	005-A	F	55	+	6.20	1.43	1.72
25	005-B	M	28	-	12.10	3.07	3.21
26	006-A	F	35	+	4.90	n.d	0.05
27	006-B	F	4	-	-	-	-
28	007-A	F	60	+	3.30	0.10	n.d
29	007-B	F	8	-	4.20	n.d	0.921
30	007-C	M	4	-	-	n.d	1.28
31	008-A	F	50	+	12.60	2.23	2.27
32	008-B	M	60	-	3.70	-	0.86
33	008-C	M	18	-	5.00	-	0.53
34	008-D	F	11	-	13.40	3.15	0.65
35	008-E	M	9	-	16.20	n.d	0.51
36	008-F	F	2	-	-	-	n.d
37	009-A	M	77	+	8.20	-	2.86
38	009-B	M	32	+	2.30	n.d	0.07
39	009-C	M	35	-	-	-	0.47
40	009-D	M	30	+	4.70	-	-
41	009-E	M	45	-	-	-	n.d
42	009-F	F	28	-	-	-	0.15
43	010-A	M	15	+	10.30	6.45	0.56
44	010-B	M	41	-	16.10	25.68	0.17
45	010-C	F	35	-	20.70	8.55	0.81
46	010-D	F	16	-	-	-	-
47	011-A	M	70	+	1.20	n.d	n.d
48	011-B	M	26	-	3.40	-	n.d
49	011-C	F	60	-	2.40	n.d	n.d
50	012-A	M	80	+	3.40	-	n.d
51	012-B	M	36	+	4.80	-	n.d
52	012-C	M	50	-	1.40	-	-
53	012-D	F	35	-	2.30	-	n.d
54	013-A	F	30	+	0.70	-	-
55	013-B	F	4	-	-	-	-
56	013-C	M	8	-	3.00	-	-
57	013-D	M	40	-	2.00	-	-
58	014-A	F	30	+	8.50	-	-
59	014-B	F	15	-	9.50	-	-
60	014-C	F	10	-	2.40	3.00	-
61	015-A	F	32	+	11.70	-	n.d
62	015-B	M	40	-	7.10	n.d	n.d
63	015-C	F	10	-	11.00	n.d	n.d
64	015-D	F	8	-	11.90	n.d	n.d
65	015-E	F	5	-	11.90	n.d	n.d
66	016-A	F	30	+	7.00	n.d	n.d
67	016-B	M	70	-	5.90	n.d	n.d

Table 3-2 Arsenic in hairs on June 2005, February 2006 and August 2006

	Sample No.	Sex	Age	arsenicosis	As (mg/kg) in hair		
					June 2005	Feb. 2006	Aug. 2006
68	017-B	F	35	-	3.90	-	n.d
69	017-C	M	20	-	2.50	-	0.06
70	017-D	M	13	-	2.80	n.d	-
71	017-E	M	51	+	3.60	n.d	0.05
72	018-A	M	51	+	3.60	n.d	0.26
73	018-B	F	40	-	6.70	n.d	n.d
74	018-C	M	25	-	2.60	n.d	n.d
75	018-D	M	26	-	-	n.d	n.d
76	018-E	M	6	-	7.30	-	n.d
77	018-F	F	15	-	-	n.d	-

Table 4 Arsenic in hairs obtained from non arsenic patients and arsenic patients

	Non arsenic patients				arsenic patients			
	Sample	June 2005	Feb. 2006	Aug. 2006	Sample	June 2005	Feb. 2006	Aug. 2006
2	001-C	8.10	-	0.00	001-A	1.30	0.00	0.00
3	001-D	0.10	4.71	0.00	001-B	8.20	0.00	0.00
4	001-E	1.80	0.00	0.00	002-A	3.20	0.00	0.00
5	001-F	-	0.51	0.00	003-A	3.30	12.04	0.58
6	001-G	-	-	1.86	004-A	3.30	0.28	0.00
7	002-C	13.30	1.62	0.00	004-B	7.80	0.93	-
8	002-D	1.90	9.18	0.00	005-A	6.20	1.43	1.72
9	002-E	7.30	1.76	0.13	006-A	4.90	0.00	0.05
10	002-F	14.20	4.91	0.16	007-A	3.30	0.10	0.00
11	003-B	8.90	-	-	008-A	12.60	2.23	2.27
12	003-C	-	-	0.29	009-A	8.20	-	2.86
13	003-D	5.10	1.02	2.13	009-B	2.30	0.00	0.07
14	003-E	8.60	-	-	009-D	4.70	-	-
15	003-F	3.30	2.21	1.86	010-A	10.30	6.45	0.56
16	004-C	1.70	0.44	0.90	011-A	1.20	0.00	0.00
17	004-D	-	-	0.43	012-A	3.40	-	0.00
18	004-E	-	0.00	-	012-B	4.80	-	0.00
19	005-B	12.10	3.07	3.21	013-A	0.70	-	-
20	006-B	-	-	-	014-A	8.50	-	-
21	007-B	4.20	0.00	0.921	015-A	11.70	-	0.00
22	007-C	-	0.00	1.28	016-A	7.00	0.00	0.00
23	008-B	3.70	-	0.86	017-E	3.60	0.00	0.05
24	008-C	5.00	-	0.53	018-A	3.60	0.00	0.26
25	008-D	13.40	3.15	0.65	average	5.40	1.47	0.44
26	008-E	16.20	0.00	0.51	MAX	12.60	12.04	2.86
27	008-F	-	-	0.00	MIN	0.70	0.00	0.00
28	009-C	-	-	0.47				
29	009-E	-	-	0.00				
30	009-F	-	-	0.15				
31	010-B	16.10	25.68	0.17				
32	010-C	20.70	8.55	0.81				
33	010-D	-	-	-				
34	011-B	3.40	-	0.00				
35	011-C	2.40	0.00	0.00				
36	012-C	1.40	-	-				
37	012-D	2.30	-	0.00				
38	013-B	-	-	-				
39	013-C	3.00	-	-				
40	013-D	2.00	-	-				
41	014-B	9.50	-	-				
42	014-C	2.40	3.00	-				
43	015-B	7.10	0.00	0.00				
44	015-C	11.00	0.00	0.00				
45	015-D	11.90	0.00	0.00				
46	015-E	11.90	0.00	0.00				
47	016-B	5.90	0.00	0.00				
48	017-B	3.90	-	0.00				
49	017-C	2.50	-	0.06				
50	017-D	2.80	0.00	-				
51	018-B	6.70	0.00	0.00				
52	018-C	2.60	0.00	0.00				
53	018-D	-	0.00	0.00				
54	018-E	7.30	-	0.00				
55	018-F	-	0.00	-				
	average	6.81	2.33	0.42				
	MAX	20.70	25.68	3.21				
	MIN	0.10	0.00	0.00				

Table 5 Arsenic species in urines on February 2006

	Sample No.	creatinine (mg/mL)	As species (ng/mg creatinine)				Total As
			1) As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	
1	001-A	0.547	9.5	67.6	10.1	0.0	87.2
2	001-B	0.681	3.5	48.5	8.1	0.0	60.1
3	001-D	0.887	4.4	44.4	6.9	0.4	56.0
4	001-E	0.616	6.1	72.5	9.7	0.0	88.3
5	001-F	0.324	5.7	70.5	4.9	0.0	81.1
6	001-G	0.967	2.3	24.5	2.1	0.0	28.9
7	002-A	0.282	4.0	78.0	18.8	0.0	100.8
8	002-C	0.978	5.0	61.2	11.0	0.9	78.0
9	002-D	0.946	7.3	82.2	10.2	2.2	101.9
10	002-E	0.298	10.5	217.1	26.9	0.5	254.9
11	002-F	0.389	15.5	256.2	23.8	0.0	295.5
12	003-A	0.575	13.5	124.6	17.1	5.1	160.4
13	003-D	0.726	11.3	289.0	70.6	162.1	533.0
14	003-F	1.395	10.7	133.6	15.0	1.9	161.2
15	004-B	0.603	23.3	115.5	17.6	9.3	165.7
16	004-C	0.683	13.6	96.1	21.3	5.2	136.2
17	004-E	1.118	11.1	85.2	23.5	0.0	119.8
18	005-A	0.272	13.1	117.0	36.1	7.4	173.6
19	005-B	1.325	6.3	64.8	6.6	2.4	80.1
20	006-A	0.869	10.5	79.6	10.5	1.8	102.4
21	007-A	0.513	17.9	90.4	18.9	0.0	127.2
22	007-B	0.961	12.8	105.7	12.4	0.9	131.9
23	007-C	1.123	13.7	121.2	11.3	2.1	148.3
24	008-A	0.665	21.5	106.0	31.4	2.0	160.8
25	008-D	0.468	31.4	221.0	48.1	0.0	300.5
26	008-E	0.885	41.8	241.7	70.4	2.7	356.7
27	009-A	0.709	11.0	83.2	20.8	3.2	118.1
28	010-B	0.772	22.2	209.4	36.1	1.0	268.7
29	010-C	1.657	15.2	187.7	41.1	1.8	245.8
30	010-D	0.714	17.4	114.9	25.4	0.0	157.7
31	011-B	0.765	1.5	35.5	1.7	0.0	38.6
32	012-A	2.185	0.5	82.9	10.3	0.0	93.7
33	015-A	0.508	50.6	341.1	87.9	4.4	484.0
34	015-C	1.154	6.8	188.7	10.1	1.8	207.3
35	015-D	0.854	8.5	208.8	9.0	4.3	230.6
36	015-E	0.637	9.7	191.2	13.4	4.0	218.3
37	016-A	0.291	5.7	6.7	5.6	0.0	18.0
38	016-B	0.412	5.1	45.4	7.4	0.0	57.9
39	016-C	0.358	8.9	65.4	18.1	4.9	97.3
40	016-D	0.615	6.7	42.3	11.4	2.8	63.3
41	017-A	1.396	23.6	74.3	23.3	4.8	126.1
42	017-B	0.478	9.7	170.5	17.8	3.6	201.7
43	017-E	1.388	5.4	89.8	13.6	2.1	111.1
44	018-A	1.994	3.8	61.1	6.6	1.2	72.7
45	018-B	1.290	7.0	98.4	16.7	1.7	123.8
46	018-C	0.233	5.6	72.2	12.6	9.9	100.3
47	018-D	0.564	8.9	81.3	9.2	0.0	99.5
48	018-E	0.391	10.4	222.9	16.5	6.0	255.8
49	018-F	0.197	16.6	251.1	28.2	13.8	309.7
	Average	0.789	12.0	121.2	20.1	5.7	159.0
	MAX	2.185	50.6	341.1	87.9	162.1	533.0
	MIN	0.197	0.5	6.7	1.7	0.0	18.0

Table 6-1 Arsenic species obtained from non arsenic-affected villagers
on February 2006

	Sample No.	creatinine (mg/dL)	As species (ng/mg creatinine)				Total As
			1) As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	
1	001D	0.887	4.4	44.4	6.9	0.4	56.0
2	001E	0.616	6.1	72.5	9.7	0.0	88.3
3	001F	0.324	5.7	70.5	4.9	0.0	81.1
4	002C	0.978	5.0	61.2	11.0	0.9	78.0
5	002D	0.946	7.3	82.2	10.2	2.2	101.9
6	002E	0.298	10.5	217.1	26.9	0.5	254.9
7	002F	0.389	15.5	256.2	23.8	0.0	295.5
8	003D	0.726	11.3	289.0	70.6	162.1	533.0
9	003F	1.395	10.7	133.6	15.0	1.9	161.2
10	004C	0.683	13.6	96.1	21.3	5.2	136.2
11	004E	1.118	11.1	85.2	23.5	0.0	119.8
12	005B	1.325	6.3	64.8	6.6	2.4	80.1
13	007B	0.961	12.8	105.7	12.4	0.9	131.9
14	007C	1.123	13.7	121.2	11.3	2.1	148.3
15	008D	0.468	31.4	221.0	48.1	0.0	300.5
16	008E	0.885	41.8	241.7	70.4	2.7	356.7
17	010B	0.772	22.2	209.4	36.1	1.0	268.7
18	010C	1.657	15.2	187.7	41.1	1.8	245.8
19	010D	0.714	17.4	114.9	25.4	0.0	157.7
20	011B	0.765	1.5	35.5	1.7	0.0	38.6
21	015C	1.154	6.8	188.7	10.1	1.8	207.3
22	015D	0.854	8.5	208.8	9.0	4.3	230.6
23	015E	0.637	9.7	191.2	13.4	4.0	218.3
24	016B	0.412	5.1	45.4	7.4	0.0	57.9
25	016C	0.358	8.9	65.4	18.1	4.9	97.3
26	016D	0.615	6.7	42.3	11.4	2.8	63.3
27	017B	0.478	9.7	170.5	17.8	3.6	201.7
28	017E	1.388	5.4	89.8	13.6	2.1	111.1
29	018B	1.290	7.0	98.4	16.7	1.7	123.8
30	018D	0.564	8.9	81.3	9.2	0.0	99.5
31	018E	0.391	10.4	222.9	16.5	6.0	255.8
32	018F	0.197	16.6	251.1	28.2	13.8	309.7
	avrage	0.793	11.5	136.4	20.3	7.2	175.3
	MAX	1.657	41.8	289.0	70.6	162.1	533.0
	MIN	0.197	1.5	35.5	1.7	0.0	38.6

Table 6-2 Arsenic species obtained from arsenic-affected villagers
on February 2006

	Sample No.	creatinine (mg/dL)	1) As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	Total As
1	001A	0.547	9.5	67.6	10.1	0.0	87.2
2	001B	0.681	3.5	48.5	8.1	0.0	60.1
3	001G	0.967	2.3	24.5	2.1	0.0	28.9
4	002A	0.282	4.0	78.0	18.8	0.0	100.8
5	003A	0.575	13.5	124.6	17.1	5.1	160.4
6	004B	0.603	23.3	115.5	17.6	9.3	165.7
7	005A	0.272	13.1	117.0	36.1	7.4	173.6
8	006A	0.869	10.5	79.6	10.5	1.8	102.4
9	007A	0.513	17.9	90.4	18.9	0.0	127.2
10	008A	0.665	21.5	106.0	31.4	2.0	160.8
11	009A	0.709	11.0	83.2	20.8	3.2	118.1
12	012A	2.185	0.5	82.9	10.3	0.0	93.7
13	015A	0.508	50.6	341.1	87.9	4.4	484.0
14	016A	0.291	5.7	6.7	5.6	0.0	18.0
15	017A	1.396	23.6	74.3	23.3	4.8	126.1
16	018A	1.994	3.8	61.1	6.6	1.2	72.7
17	018C	0.233	5.6	72.2	12.6	9.9	100.3
	avrage	0.782	12.9	92.5	19.9	2.9	128.2
	MAX	2.185	50.6	341.1	87.9	9.9	484.0
	MIN	0.233	0.5	6.7	2.1	0.0	18.0

Table 7-1 Arsenic species in urines on August 2006

	Sample No.	creatinine (mg/mL)	As species (ng/mg creatinine)				Total As
			1) As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	
1	001-A	1.144	10.8	147.0	9.7	6.9	174.4
2	001-B	0.337	5.5	130.7	14.6	6.8	157.7
3	001-C	0.860	10.0	124.5	10.3	6.4	151.1
4	001-D	0.965	1.6	78.5	3.7	0.0	83.9
5	001-E	0.301	15.1	178.8	20.2	0.0	214.2
6	001-F	0.376	2.8	176.9	13.8	15.4	209.0
7	001-G	0.357	13.0	108.8	18.1	9.6	149.5
8	002-A	0.306	3.9	192.9	33.0	10.6	240.4
9	002-C	0.852	11.9	162.6	11.6	3.2	189.4
10	002-D	0.805	14.5	219.4	13.9	1.1	248.9
11	002-E	0.025	258.7	4997.7	367.5	89.0	5712.8
12	002-F	0.043	199.1	3965.6	220.4	0.0	4385.1
13	003-A	0.032	78.8	1877.1	161.1	0.0	2116.9
14	003-C	0.120	122.3	1617.4	174.6	18.8	1933.1
15	003-D	0.022	13.5	118.2	148.7	77.7	358.1
16	003-E	0.005	380.0	3345.5	372.6	0.0	4098.0
17	003-F	0.041	22.6	1115.0	108.4	0.0	1246.0
18	004-A	0.784	11.3	194.6	26.6	5.8	238.4
19	004-B	2.096	29.1	216.8	37.3	24.5	307.7
20	004-C	0.531	6.1	80.7	19.5	90.5	196.8
21	004-D	0.007	0.0	0.0	0.0	3755.8	3755.8
22	005-A	0.491	9.0	162.4	19.7	7.4	198.5
23	005-B	1.282	8.2	79.1	5.8	2.8	95.8
24	006-A	0.845	8.5	92.9	10.3	0.9	112.5
25	006-B	0.863	18.3	179.5	26.1	7.1	231.0
26	007-A	0.922	11.2	150.6	15.7	6.3	183.7
27	007-B	0.302	21.9	239.9	30.5	12.4	304.6
28	007-C	1.192	15.0	185.2	15.7	5.2	221.0
29	008-A	0.782	9.8	101.3	23.5	1.0	135.6
30	008-B	0.136	20.5	166.4	37.2	9.0	233.0
31	008-C	0.980	15.4	78.5	21.3	2.3	117.5
32	008-D	0.634	22.3	173.6	26.6	1.2	223.7
33	008-E	0.310	30.4	299.0	42.7	5.1	377.2
34	008-F	0.619	19.0	250.6	29.6	6.3	305.5
35	009-A	2.747	2.9	79.9	9.4	1.7	94.0
36	009-B	0.814	5.2	89.5	16.2	2.7	113.5
37	009-C	1.377	9.1	100.7	14.9	1.4	126.1
38	009-E	1.551	4.6	74.2	7.8	2.1	88.7
39	009-F	2.124	1.4	37.6	6.5	1.6	47.2
40	010-A	1.405	19.9	171.7	27.9	2.3	221.8
41	010-B	0.423	24.9	154.3	27.8	12.9	220.0
42	010-C	1.493	3.7	3.7	18.2	0.0	25.5
43	011-A	2.041	2.0	64.6	7.6	1.1	75.2
44	011-B	2.006	11.5	89.0	24.1	0.6	125.2
45	011-C	2.081	3.1	56.7	4.6	0.0	64.4
46	012-A	0.818	8.8	149.7	20.6	0.0	179.1
47	012-B	0.448	5.0	37.8	9.5	7.4	59.7
48	012-C	1.642	19.1	157.0	41.4	4.6	222.1
49	012-D	0.798	4.9	60.2	6.9	0.0	72.0
50	015-A	1.081	7.8	149.9	12.5	0.0	170.2
51	015-B	2.372	6.1	89.1	7.4	1.0	103.6
52	015-C	0.541	10.4	192.1	14.2	0.0	216.7
53	015-D	0.042	264.6	4272.4	275.6	25.0	4837.6
54	015-E	0.023	181.3	4258.0	271.4	0.0	4710.7
55	016-A	0.022	0.0	344.7	94.9	56.7	496.3
56	016-B	0.116	542.0	4724.8	463.2	87.4	5817.5
57	016-C	0.078	120.5	1098.5	104.3	30.5	1353.9

Table 7-2 Arsenic species in urines on August 2006

	Sample No.	creatinine (mg/mL)	As species (ng/mg creatinine)				Total As
			1) As(III)	2)DMA	3)MMA	4) As(V)	
58	017-B	0.067	283.5	10386.8	919.6	30.5	11620.4
59	017-C	0.050	715.5	3173.4	993.7	31.8	4914.5
60	017-E	0.029	499.5	3316.2	603.1	61.1	4479.9
61	018-A	0.166	166.5	4155.7	228.1	33.8	4584.0
62	018-B	0.112	106.7	1975.9	266.4	26.1	2375.0
63	018-C	0.035	63.2	401.4	301.3	9.4	775.3
64	018-D	0.021	105.8	1339.0	237.6	0.0	1682.4
65	018-E	0.035	276.9	5785.0	397.1	27.6	6486.6
66	018-F	0.015	395.5	5223.7	395.0	137.9	6152.2
	Average	0.696	80.2	1112.4	120.0	72.5	1385.1
	MAX	2.747	715.5	10386.8	993.7	3755.8	11620.4
	MIN	0.005	0.0	0.0	0.0	0.0	25.5

Table 8-1 Ratio of (DMA+MMA)/Total As and MMA/DMA on June 2005, February 2006 and August 2006

No.	Sample No.	arsenicosis	Data of June 2005		Data of February 2006		Data of August 2006	
			(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA) /Total(%)	MMA/DMA (%)
1	001-A	+	88.4	6.5	89.1	15.0	89.9	6.6
2	001-B	+	88.8	27.0	94.2	16.7	92.2	11.2
3	001-C	-	89.9	16.2	-	-	89.2	8.3
4	001-D	-	89.4	5.9	91.5	15.5	98.1	4.8
5	001-E	-	77.6	13.9	93.1	13.4	92.9	11.3
6	001-F	-	65.2	12.7	93.0	6.9	91.3	7.8
7	001-G	-	-	-	92.1	8.8	84.9	16.7
8	002-A	+	86.3	11.4	96.0	24.1	94.0	17.1
9	002-C	-	88.6	17.2	92.5	17.9	92.0	7.2
10	002-D	-	93.5	7.4	90.7	12.4	93.7	6.3
11	002-E	-	92.7	13.3	95.7	12.4	93.9	7.4
12	002-F	-	80.7	27.9	94.7	9.3	95.5	5.6
13	003-A	+	83.8	22.9	88.4	13.7	96.3	8.6
14	003-B	-	92.7	12.5	-	-	-	-
15	003-C	-	84.0	21.3	-	-	92.7	10.8
16	003-D	-	72.3	25.4	67.5	24.4	74.5	125.7
17	003-E	-	86.1	18.7	-	-	90.7	11.1
18	003-F	-	87.5	12.2	92.2	11.2	98.2	9.7
19	004-A	+	84.7	17.9	-	-	92.8	13.7
20	004-B	+	95.7	30.6	80.3	15.2	82.6	17.2
21	004-C	-	92.5	5.3	86.2	22.1	50.9	24.2
22	004-D	-	83.5	9.2	-	-	0.0	-
23	004-E	-	-	-	90.7	27.6	-	-
24	005-A	+	95.5	12.8	88.2	30.9	91.7	12.1
25	005-B	-	89.8	19.6	89.2	10.2	88.6	7.3
26	006-A	+	92.6	7.1	88.0	13.1	91.7	11.0
27	006-B	-	43.6	18.4	-	-	89.0	14.5
28	007-A	+	93.5	12.6	85.9	20.9	90.5	10.4
29	007-B	-	91.0	15.5	89.6	11.8	88.8	12.7
30	007-C	-	93.2	8.0	89.3	9.3	90.9	8.5
31	008-A	+	85.2	18.3	85.4	29.6	92.0	23.2
32	008-B	-	86.3	23.0	-	-	87.3	22.3
33	008-C	-	80.8	26.6	-	-	84.9	27.1
34	008-D	-	87.2	25.4	89.5	21.8	89.5	15.4
35	008-E	-	88.9	20.8	87.5	29.1	90.6	14.3
36	008-F	-	92.8	17.9	-	-	91.7	11.8
37	009-A	+	92.1	13.6	88.0	25.0	95.1	11.8
38	009-B	+	85.4	16.7	-	-	93.1	18.1
39	009-C	+	93.7	11.5	-	-	91.7	14.8
40	009-D	+	84.5	22.0	-	-	-	-
41	009-E	-	82.6	22.2	-	-	92.4	10.5
42	009-F	-	82.6	22.2	-	-	93.5	17.2
43	010-A	+	82.6	22.2	-	-	90.0	16.3
44	010-B	-	85.3	25.6	91.4	17.2	82.8	18.0
45	010-C	-	92.0	13.7	93.1	21.9	85.7	488.3
46	010-D	-	-	-	89.0	22.1	-	-
47	011-A	+	94.9	6.0	-	-	96.0	11.7
48	011-B	-	14.9	3.7	96.2	4.8	90.4	27.1
49	011-C	-	96.2	7.4	-	-	95.2	8.1
50	012-A	+	95.4	11.7	99.5	12.4	95.1	13.8
51	012-B	+	86.7	22.6	-	-	79.3	25.1
52	012-C	-	90.7	14.8	-	-	89.3	26.4
53	012-D	-	73.1	3.9	-	-	93.2	11.5
54	013-A	+	92.0	12.2	-	-	-	-
55	013-B	-	92.1	17.1	-	-	-	-
56	013-C	-	95.0	13.1	-	-	-	-
57	013-D	-	83.6	27.1	-	-	-	-
58	014-A	+	90.6	4.7	-	-	-	-
59	014-B	-	87.3	12.4	-	-	-	-
60	014-C	-	83.1	9.3	-	-	-	-
61	015-A	+	86.5	17.9	88.6	25.8	95.4	8.3
62	015-B	-	91.6	15.2	-	-	93.2	8.3
63	015-C	-	90.9	9.1	95.9	5.3	95.2	7.4
64	015-D	-	91.1	7.2	94.5	4.3	94.0	6.4
65	015-E	-	90.9	16.6	93.7	7.0	96.2	6.4

Table 8-2 Ratio of (DMA+MMA)/Total As and MMA/DMA on June 2005, February 2006 and August 2006

	Sample No.	arsenicosis	Data of June 2005		Data of February 2006		Data of August 2006	
			(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)
66	016-A	+	69.4	30.4	68.2	83.0	88.6	27.5
67	016-B	-	82.9	28.5	91.2	16.3	89.2	9.8
68	016-C	-	82.2	16.5	85.9	27.7	88.8	9.5
69	016-D	-	89.9	27.7	85.0	27.0	-	-
70	017-A	+	79.9	29.3	77.4	31.4	-	-
71	017-B	-	93.1	5.8	93.4	10.4	-	-
72	017-C	-	86.3	14.2	-	-	84.8	31.3
73	017-D	-	68.2	21.0	-	-	-	-
74	017-E	-	87.7	10.2	93.2	15.2	87.5	18.2
75	018-A	+	91.1	9.6	93.2	10.8	95.6	5.5
76	018-B	-	87.9	23.0	93.0	16.9	94.4	13.5
77	018-C	-	65.0	1195.1	84.5	17.5	90.6	75.1
78	018-D	-	94.2	6.5	91.0	11.4	93.7	17.7
79	018-E	-	85.7	21.2	93.6	7.4	95.3	6.9
80	018-F	-	92.4	10.6	90.2	11.2	91.3	7.6

Table 9 Urinary samples for abnormal ratio of (DMA+MMA)/Total As and of MMA/DMA

	Sample No.	arsenicosis	Data of June 2005		Data of February 2006		Data of August 2006	
			(DMA+MMA)/ Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA) /Total As(%)	MMA/DMA (%)	(DMA+MMA) /Total(%)	MMA/DMA (%)
1	003-D	-	72.3	25.4	67.5	24.4	74.5	125.7
2	004-D	-	83.5	9.2	-	-	0.0	-
3	010-C	-	92.0	13.7	93.1	21.9	85.7	488.3
4	011-B	-	14.9	3.7	96.2	4.8	90.4	27.1
5	018-C	-	65.0	1195.1	84.5	17.5	90.6	75.1

コミュニティ用砒素除去装置 GSF (Gravel Sand Filter) は、平成 15 年 1 月の 1 号基設置から現在までに 4 基がバングラデシュ現地で稼働している。平成 16 年度から 18 年度の 3 年間に砒素除去性能の改良やそのメンテナンスを通じて、また排出される砒素汚泥の処分の研究を通じて、GSF の設計方法を模索してきたが、平成 18 年度でその設計の基本的な基準を作り上げた。GSF は砂利槽と砂槽からなるが、砒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、砒素を 3 価鉄の共沈物として砂利槽内の砂利間隙中でトラップするものである。砂層は緩速砂ろ過槽の役割を与えられている。

砒素も共沈のためには 5 価砒素にならなければならない。そのためバッキ、砒素と鉄の接触時間およびリンなどの競合イオンの濃度がキーポイントとなる。バッキや接触時間については平成 16～17 年度で基準をえたが、競合イオンに関しては平成 18 年度に基準をつくりあげた。すなわち、GSF4 基の原水水質と処理水を同時期に一斉に調べて、各 GSF の水質と砒素除去性能の関連を分析した。その試験結果から、「リン濃度が低い（目安：0～0.7mg/L）場合には、Fe/As 値が 10 以上であれば、砒素除去性能は O.K であるが、Fe/As < 10 では GSF に屑鉄付加し、同値を 10 以上とする。また、リン濃度が高い（目安：1～2mg/L）場合には、Fe/As > 30 ならば O.K だが、Fe/As < 30 では GSF に屑鉄付加し、Fe/As > 30 とする。」という設計基準を得ている。

なお、砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿処理され、その上澄み液は人工池に放流されている。その沈殿汚泥の処分に関しては、「セメントを 2% 添加すれば、砒素溶出量は 0.05～0.11mg/L とわが国の第 2 溶出基準をクリアするので、2% セメント混合スラッジを遮水状態で地下貯蔵する」という基準を平成 17 年度までに定めている。砒素汚泥中の砒素含有量は、含有量試験の結果 100～300mg/kg が得られている。また、部分的には砒素が 2～4% と高濃度に集積していた。バングラデシュの砒素汚染地では砒素含有濃度は 10mg/kg 程度であるので、砒素汚泥中では高濃度に砒素が濃縮されているといえる。汚泥からの砒素回収は再資源化の面で今後重要な研究課題となる。

汚泥タンクの上澄み液は人工池に放流されるが、そこで砒素の自然浄化処理を 2 年間試みている。具体的には、自然環境下における砒素の有機化や高濃度砒素環境下における砒素耐性能に優れた菌の探索である。平成 18 年度ではその 2 年目のデータ分析を行っている。

汚泥タンクおよび人工池のいずれでも、僅かであるが平成 18 年度も前年と同様に、有機砒素 (MMA, DMA) を確認することができた。さらに、標準培養の結果、前年と同様に砒素濃度にかかわらず $10^5 \sim 10^7$ cells/ml 以上の生菌数を得ており、砒素の生菌への影響は見られなかった。1000mg/L の砒素を含む培地でもかなりの数のコロニーが両年とも出現したことから、砒素耐性能に優れた菌がかなり存在することが分かった。

A. 研究目的

バングラデシュでは飲料水の 95%を地下水に依存しているが、その地下水がほぼ全国的に砒素に汚染されている。我々は、コミュニティ用の砒素除去装置 GSF(Gravel Sand Filter)をバングラデシュのマリア村に開発・設置し、その性能を検討してきた。

GSF は、地下水中に含まれる砒素と鉄が酸化状態で吸着・共沈する性質を利用し、この共沈物を Gravel Tank 内の砂利の間に沈殿させ地下水中の砒素除去を行うものである。GSF はここ 4 年間、メンテナンスの簡単化、砒素除去能力の向上のための実験を行ってきた。現在すでに 4 基がバングラデシュで稼働している。

以上のような研究活動を通じて、GSF の設計基準を検討してきた。すなわち、砒素除去にはバッキ、砒素と鉄の接触時間（流速）およびリンなど砒素と競合するイオン濃度などが砒素除去上のキーポイントとなる。バッキに関しては平成 16、17 年度で設計基準を得ており、また、流速に関しては 75~100cm/h（見かけの速度）としている。

残りの競合イオンについては、H. 18 年度の研究課題となっていた。また、砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿処理され、その上澄み液は人工池に放流されている。人工池での砒素の自然浄化処理を 2 年間試みている。具体的には、自然環境下における砒素の有機化や高濃度砒素環境下における砒素耐性能に優れた菌の探索である。平成 18 年度ではその 2 年目のデータ分析を行っている。本報告はこの 2 点に関するものである。

B. 方法及び結果

B-1. 競合イオンに関する設計基準

H. 18 年に GSF1~4 GSF4 基を対象に原水水質と処理水を同時期に一斉に調べて、各 GSF の水

質と砒素除去性能の関連を分析した。その結果、原水の砒素、鉄、リン濃度に応じて次のような

リン濃度 (mg/L)	Fe/As (濃度比)	性能
低い場合 (目安：0~0.7)	>10	O.K
	<10	鉄屑添加
高い場合 (目安：1~2)	>30	O.K
	<30	鉄屑添加

基準を得た。

表一1 リン、Fe/As と砒素除去性能

すなわち、リン濃度が低い（目安：0~0.7mg/L）場合には、Fe/As 値が 10 以上であれば、砒素除去性能は O.K であるが、Fe/As<10 では GSF に屑鉄付加し、同値を 10 以上とする。また、リン濃度が高い（目安：1~2 mg/L）場合には、Fe/As>30 ならば O.K だが、Fe/As<30 では GSF に屑鉄付加し、Fe/As>30 とする。

なお、現在稼働している 4 基の GSF の性能に関して、一斉試験を行った結果、図-2 を得ている。GSF No.1 では Fe/As の値は 20 だが、競合イオンのリン濃度が 1.2mg/L と GSF4 基の中で最高値であった。設計仕様によれば Fe/As 値は 30 以上でなければならないので、2006 年の 12 月に屑鉄を砂利槽 2 に装填し、現在その効果を測定中である。GSF No.2、No.3 ではリン濃度がそれぞれ 0.44mg/L、0.61mg/L と小さく、Fe/As 値がそれぞれ、38、15 と大きかったので、砒素除去が良いのであろう。GSF No.4 では原水の砒素濃度が 0.26 mg/L と 4 基の中で最高であったが、リン濃度が逆に 0.21mg/L と最低であり、Fe/As 値も 27 と高いため、砒素除去性能が良い。

GSF4 基のこれまでのデータをまとめれば、図-3のような結果をえている。No.1は初代の砒素除

を除去、ここまですでに80%以上が除去できている。砂利槽(2)以降の施設はほとんど機能していない

Arnsic Removal Performance (GSF1~4)

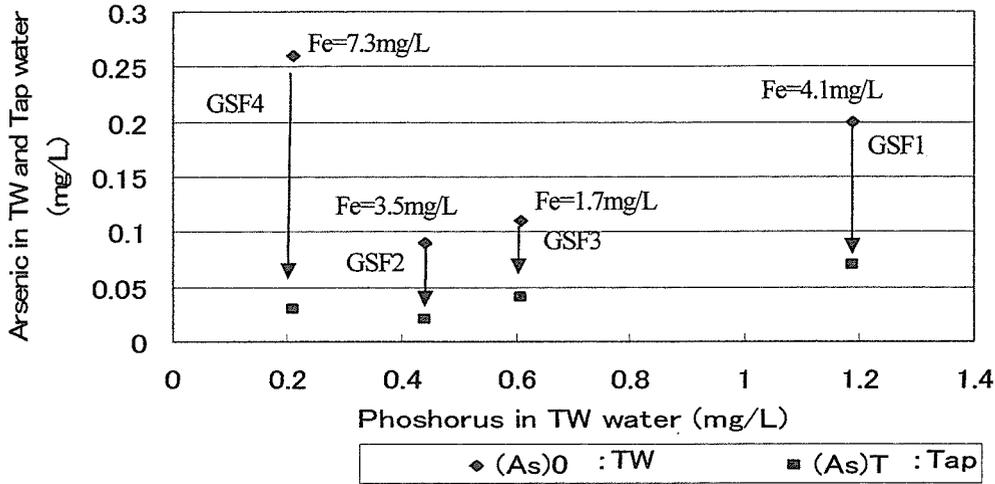


図-2 GSFNo.1~4の性能一斉試験結果

去装置であり、サイズが大きく、何度も改良を重ねてきた。原水は通常、砒素濃度は0.2~0.3mg/Lと高く、鉄濃度は3~4mg/Lである。No.2は原水の砒素濃度は0.07~0.10mg/Lで、Inlet槽で50%を

といえる。No.3は深さ約140メートルの深井戸を原水としている。手押しポンプで汲み上げたのち、Inlet槽に入る前に曝気路(aeration canal)を通過する構造になっているが、この部分のエアレーション機能は非常に高い。その他の機能は、もっとコンパクトにする改良する余地がある。No.4では原水の砒素濃度は0.2~0.25mg/L、鉄濃度は8~10mg/Lである。一番最近設計したものであり施設の性能は良いが、利用量が多いので時々砂の取り替えが必要である。現在、砂取り替え後のモニタリングをおこなっているところである。

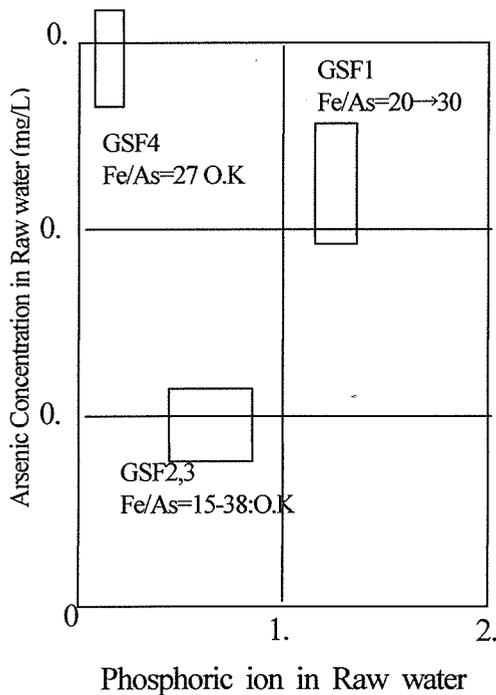


図-3 GSF1~4の性能関係

超える砒素を除去し、砂利槽(1)でさらに半分以上

B-2. 砒素汚泥の自然浄化について

砒素除去装置から排出される汚泥は、砒素汚泥槽で沈殿処理され、その上澄み液は人工池に放流されている。人工池内での砒素の自然浄化処理を2年間試みている。具体的には、自然環境下における砒素の有機化や高濃度砒素環境下における砒素耐性能に優れた菌の探索である。平成18年度ではその2年目のデータ分析を行っている。

平成18年度のデータを平成17年度のデータとともに示せば、表-2に示す通りとなる。

上澄み液の砒素濃度は0.123mg/L (H.17) およ