

び0.178mg/L (H. 18) であり、人工池の表面水の砒素濃度は0.054mg/L (H. 17) および0.057mg/L (H. 18) と両年で変わらなかった。しかし、汚

積にもとづいて、より効果のある基準をつくる必要がある。また、リン以外の競合イオン、例えばケイ酸イオンについても検討する必要がある。

表一2 砒素汚泥槽および人工池中の砒素濃度と細菌数  
(A) Sep. 2005

Source	Colony forming unit (cells/ml)					
	-	0.01g As/L	0.1g As/L	1g As/L	10g As/L	
Sludge tank	Surface water	$3.0 \times 10^6$	$8.1 \times 10^5$	$8.0 \times 10^5$	$6.5 \times 10^4$	$5.0 \times 10^2$
	Filtrate of sludge	$6.7 \times 10^5$	$6.5 \times 10^5$	$6.6 \times 10^5$	$1.0 \times 10^3$	$4.6 \times 10^2$
Artificial pond	Surface water	$2.3 \times 10^5$	$2.3 \times 10^5$	$2.3 \times 10^5$	$5.2 \times 10^4$	$4.8 \times 10^2$
	Filtrate of sediment	$5.5 \times 10^5$	$5.5 \times 10^5$	$5.5 \times 10^5$	$1.1 \times 10^3$	$5.1 \times 10^2$

(B) Aug. 2006

Source	Colony forming unit (cells/ml)					
	-	0.01g As/L	0.1g As/L	1g As/L	10g As/L	
Sludge tank	Surface water	$6.9 \times 10^6$	$6.8 \times 10^5$	$3.8 \times 10^5$	$5.3 \times 10^4$	$4.7 \times 10^2$
	Filtrate of sludge	$1.1 \times 10^7$	$1.3 \times 10^6$	$6.8 \times 10^5$	$1.2 \times 10^3$	$4.8 \times 10^2$
Artificial pond	Surface water	$1.3 \times 10^7$	$9.9 \times 10^5$	$4.0 \times 10^5$	$5.2 \times 10^4$	$5.3 \times 10^2$
	Filtrate of sediment	$1.3 \times 10^7$	$1.4 \times 10^6$	$5.5 \times 10^5$	$1.0 \times 10^3$	$5.2 \times 10^2$

泥タンクの底部汚泥および人工池の底部泥を吸引ろ過液の砒素濃度はそれぞれ、1.347mg/L (H. 17)、0.320mg/L (H. 18) および0.086mg/L (H. 17)、0.043mg/L (H. 18) であった。H. 17 と H. 18 でタンク汚泥中の砒素濃度がかなり異なっていた。汚泥タンク中はH. 17 では還元状態であったが、H. 18 では酸化状態であった。それが影響しているかもしれない。

さらにどの試料でも僅かであるが、両年とも有機砒素 (MMA, DMA) を確認することができた。また、これらの細菌を標準寒天培地—塗布平板培養法によって培養実験を行ったが、両年とも砒素汚泥槽及び人工池において、砒素濃度にかかわらず  $10^5$  cells/ml 以上の生菌数を示し、砒素の影響は見られなかった。さらに、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。

### C. 考察

B. 述べた競合イオンに関する設計基準は4基のGSFの稼働実態から得られたものであり、精度が十分ではない。今後のGSF設置に伴うデータ蓄

積砒素汚泥槽の上澄み液の砒素濃度は、0.123～0.178mg/L (H. 17～H. 18) と高濃度であるが、この上澄み液中でも細菌は  $10^5 \sim 10^7$  cells/ml (H. 17～H. 18) 以上生息していた。これは同槽の沈殿汚泥中でも同様であり、還元下 (ORP=-200mv: H. 17)、または酸化下 (ORP=+200mv: H. 18) での砒素耐性能のある微生物の活動が確認された。

汚泥槽の上澄み液が流入している人工池では表面水の砒素濃度が0.054mg/L (H. 17)、0.057mg/L (H. 18)、底部泥からの砒素溶出試験濃度が0.086mg/L (H. 17)、0.043mg/L (H. 18) と高濃度であるが、ここでも、砒素耐性能のある微生物の活動が確認された。

この砒素耐性能のある微生物の存在は、1000mg/L の砒素を含む培養実験によってもかなりの数のコロニーが出現した事実からも認められる。さらに、有機砒素 (MMA, DMA) の存在確認は、砒素の微生物による代謝活動をも示唆するものであった。

### D. 結論

バングラデシュでは表面水や深層地下水が利用

できない高濃度砒素汚染村の存在が明らかとなつてきている。JICA/AAN プロジェクトなどではGSFを10~20基設置するようになってきている。本研究でつくられた設計基準はすぐ適用されるようになる。その性能を踏まえてGSFはさらに合理的なものへと発展してゆくことであろう。

人工池や砒素汚泥槽内における砒素耐性微生物

## E. 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) Hiroshi Yokota, *et al.*, "Collaboration between NGO and University of Miyazaki and Asian Arsenic Network for the mitigation of arsenic contamination in Ganges basin", Proc. of 1<sup>st</sup> Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countermeasures, keynote lecture, pp.47-58, Nov., 2006.
- 2) M.M. Hussainuzzaman, H.Yokota and K.Tanabe, "Arsenic Removal from Contaminated Groundwater of Bangladesh with Naturally Occurring Iron", Proc. of 1<sup>st</sup> Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countermeasures, pp.137-142, Nov., 2006.
- 3) K.Ohe, T.Oshima, Y.Baba, M.Shimoizu, Y.Miyake, T.Horikawa and H.Yokota, "Removal of Arsenic from Contaminated Groundwater by Iron Oxide", Proc. of 1<sup>st</sup> Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countermeasures, pp.162-165, Nov., 2006.
- 4) M.Miyatake, H.Yokota, K.Tanabe, M.M. Hussainuzzaman and S.Hayashi, "Sludge Treatment of Arsenic Removal Unit in Bangladesh and Removal of Arsenic using Microorganisms", Proc. of 1<sup>st</sup> Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countermeasures, pp.166-169, Nov., 2006.

や有機砒素の存在は、砒素汚泥の自然処理の確立へとつながってゆく。将来は砒素汚泥そのものを排水とともに人工池に流入させることも可能となるであろう。将来の設計基準となるものである。

- 5) Miah M., Hussainuzzaman, Hiroshi Yokota, "Efficiency of Arsenic Removal Unit working in Bangladesh and Cement Stabilization of its Sludge", Journal of ASTM International, Vol.3, No.4, pp.1-9, April 2006.

### 2. 学会発表

- 1) 伊藤 健一, 東谷 健一郎, 宮原 英隆, 成澤 桂, 池田 穂高, 倉 洋明, 福士 圭介, 川西 琢也, 佐藤 努, 米田 哲朗, 横田 漠, 「バングラデシュにおけるシュベルトマナイトを用いたヒ素汚染井戸水の浄化」, 第11回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 宮崎大学, pp. 19~26, 平成18年11月.

分担研究者：山内 博（北里大学医療衛生学部公衆衛生学）

研究要旨：厚生労働科学研究費を基に推進している、アジアや中南米諸国における大規模な慢性ヒ素中毒問題に対して、JICA、日本赤十字社、文部科学省科学研究費などによる活動と共に、当該研究費は問題の改善や予防対策に貢献がなされた。具体的な研究成果として、患者に対して一日のヒ素暴露量を1年間100 $\mu$ g/日以下に制限したことにより、角化症と色素沈着・脱色は回復し、同時に角化症による痛みも消失することを確認した。このとき使用した井戸水中ヒ素濃度は0.037ppmであった（中国の飲料水基準以内：0.05ppm）。他方、対象者に実施した尿中ヒ素検査と発ガン性のリスク評価の検査（尿中8-OHdG）において、ヒ素暴露を停止し1年後の検査では、尿中ヒ素濃度は約1/2に低下し、そして、尿中8-OHdGは正常値範囲に回復し、将来の発ガン性のリスクの軽減に寄与することが示唆され、国際的なヒ素暴露と発ガン性の予防対策に貢献するが期待された。

他方、パイプ方式の給水システムは中国内においては多くの場所で可能と推測されるが、国土が広大なためにその限りでないことも明らかになった。このために、地域においては、高濃度に汚染された井戸水から無機ヒ素の除去システムが必要である。その持続的な管理、そして最も重要なことは、除去して回収した無機ヒ素の安全な処理システムの課題が重要な問題であることなども明らかとした。

#### A. 研究目的

近年、自然由来のヒ素による大規模な健康障害がインド、バングラディッシュ、中国、チリ、メキシコ、アルゼンチン、そして、最近、ネパール、ベトナム、カンボジアをはじめ東アジアに拡大している。現在の推計では約5000万人の高濃度ヒ素暴露者（慢性ヒ素中毒患者に発展する者）が存在し、このうちインド・バングラディッシュが約4700万人、中国が約300万人、危険性のあるヒ素暴露者は約1億人である。すなわち、現在の地球上において有害物質暴露からの最も深刻な健康障害は「ヒ素」によるものと国際的に認識され始めた。

慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、ヒ素による発癌の潜伏期は約30-50年である。一方、患者の多くは農民で経済的に低所得者であり、患者の手や足に認められる重度な「角化症」は、生活や労働に対し

て辛い影響（痛みを伴う）を生じている。さらに、高濃度なヒ素暴露者には妊婦や低年齢者が多く存在し、ヒ素暴露による中枢神経障害が懸念されている。

従来からの活動から、慢性ヒ素中毒の改善は無機ヒ素の暴露量の軽減により可能との考えを持ってきた。US-EPAも無影響量を成人の場合、0.8 $\mu$ gAs/kg/dayを提唱している。従来、世界各地の慢性ヒ素中毒の改善における各プロジェクトが成功していない背景には、「ヒ素中毒発症のメカニズム理論」の欠損であると考えられる。筆者は患者に対して一日のヒ素暴露量を100 $\mu$ g以下に制限することを提案している。現在、中国の飲料水基準は0.05ppmであり、一日の飲料水消費量を約3リッターとした場合、WHO、EU、米国、日本などの飲料水基準（0.01ppm）とは異なり、100 $\mu$ g以内を目指すことは困難と考えている。

この研究では、慢性ヒ素中毒患者に対してヒ素の暴露量の軽減を目的として、中国の飲料水ヒ素基準を満たす飲料水をパイプ方式で給水した場合の効果と問題点を整理した。

## B. 研究方法

### 調査場所と対象者

調査場所は内蒙古自治区包頭市土黙特右旗（包頭市の西 40 km、フルホト市の東 120 km の位置）であり、人口は 34 万人、17 村からなっている。生活は農業が主体である。住民は漢民族と蒙古民族である。

調査は、日本側は山内博と中国医科大学公衆衛生院院長教授孫貴範との国際共同研究である。これに、事業推進者として、包頭市衛生局局長、副局長、地方病担当者、防疫研究所所長、土黙特右旗共産党書記、土黙特右旗長、水質担当者等が参加し、事業説明と現地見学から調査を実施した

従来、村落には 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。なお、各家庭にある井戸水は体の洗浄、家畜には使用した。

### 慢性ヒ素中毒患者：

土黙特右旗の人口は約 34 万人で、このうち慢性ヒ素中毒患者が多数居住している地域の一部に井戸水の改水が実施された。第一期の対象は 14 村、住民は約 11000 名で、その 10% に慢性ヒ素中毒の症状が確認されている。患者主要症状は皮膚色素沈着と色素脱色、そして、手の平と足の裏の重度な角化症である。

### 飲料水の改善

村民に配水される井戸水中ヒ素濃度は中

国の飲料水基準 0.05mg/L(ppm)以内で、地下水に対する化学的な処理は実施されていない。配水工事は村民の労働負担で実施されている。水源から各村までは塩化ビニール製の配管や鋼鉄製配管が組み合わされ、村まで配管されていた。村の各家庭には給水栓付きの配管がなされていた。一日の給水時間は朝 8 時から 11 時で、水は陶器製の瓶に蓄えられている。

## 慢性ヒ素中毒の改善の検証

### 研究方法

- ◇ 中国医科大学医師団による検診
- ◇ 問診表によるアンケート調査
- ◇ 写真撮影とビデオ撮影
- ◇ 井戸水、食事中からの化学形態別のヒ素濃度の測定
- ◇ 尿、血液、頭髮中化学形態別のヒ素濃度の測定
- ◇ PIXE (Particle Induced X-ray Emission) 法での多元素同時分析
- ◇ 酸化的 DNA 損傷の指標である尿中 8-hydroxy-2-deoxy-guanosine (8-OH dG) の測定
- ◇ 血中抗酸化物質・過酸化脂質、ビタミン類の測定

### 倫理面

インホームドコンセント：調査対象者への研究目的の説明と承諾は、調査場所が中国であることから、国際共同研究者が所属する中国医科大学の倫理委員会の承諾を得て、同大学公衆衛生院院長孫貴範教授により行われる。書式は中国語であるが、我が国の形式は十分に反映されている。

## C & D 結果と考察

### 井戸水からの無機ヒ素の軽減による健康障害の回復

慢性ヒ素中毒患者におけるヒ素暴露中と暴露停止後 1 年目の尿中ヒ素濃度の比較し

た結果、約 1/2 に低下していることが確認された。これに伴い、皮膚症状の変化は、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。

他方、慢性ヒ素中毒において最も重要な案件として、将来の発ガン性の予防対策である。この問題に関して、対象者に実施した酸化的 DNA 損傷検査において、ヒ素暴露を停止し、1 年後の検査では対象者の酸化的 DNA 損傷が正常値範囲に回復した。すなわち、ヒ素暴露の停止により角化症と酸化的 DNA 損傷は並行して改善するプロセスの存在することが国際的に最初に科学的な証明となった。

次に、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（村民の移動）。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。

#### 問題点：

1) 中国における地方地域（農村部）の社会インフラ整備は十分でなく、今回のようなパイプ方式の飲料水給水（中国の飲料水基準内；0.037ppm）を一日に数時間、各家庭に実施し、飲料水と料理に使用した。しかし、これらの施設の耐久性や維持、管理には様々な問題が生じ、一貫した給水の継続は無理であった。なお、地方行政担当者は最大限の努力をしての結果であった。給水が故障している間は、以前使用していた無機ヒ素汚染井戸水を使用するほか無く、平均して半年間の暴露の再現があり、ヒ素中毒の改善には大きく影響が確認された。

2) パイプ方式の給水システムは中国内においては多くの場所で可能と推測されるが、国

土が広大なためにその限りでないことも明らかになった。このために、地域においては、高濃度に汚染された井戸水から無機ヒ素の除去システム（簡易的な除去システム；吸着剤やフィルター）が必要である。しかし、その持続的な管理、そして最も重要なことは、除去して回収した無機ヒ素の安全な処理システムの課題が重要な問題として明らかになってきた。除去や回収された高濃度な無機ヒ素の放置は、新たなヒ素中毒の原因となることが危惧される。中国にはこの方面の技術や知識はなく、著者らが開発した無機ヒ素の無毒化システムが将来期待されると考えている。

3) 慢性ヒ素中毒の改善に使用した井戸水中のヒ素濃度は、中国の基準を満たすものであったが、本来、EPA, WHO, EU, 我が国では 0.01ppm を使用しており、中国の基準はヒ素の発ガン性の将来的な過剰発生には十分でない印象を感じている。この領域の研究はさらなる継続的に必要性であると強く感じている。

#### E 結論

無機ヒ素暴露の停止や軽減から、慢性ヒ素中毒の改善や予防、将来の発ガン性のリスクの軽減に対しては科学的な根拠を獲得した。

他方、中国においてはヒ素汚染されていない地下水の確保は可能であるが、患者発生地域が経済的に発展途上の地域であり、その維持管理や整備、機材の劣悪など様々な問題がある。さらに、広大な慢性ヒ素中毒の発生地域を十分に整備するには膨大な時間と経費が必要と感じ、非現実的と思われる。

今後の重要な課題として、井戸水から除去や回収した無機ヒ素の安全な無毒化システムが必要であり、すなわち、現在の慢性ヒ素中毒の拡大の防止と将来の予防対策に貢献が可能と考える。

#### F 研究発表

## 1. 論文発表

Shingo Kimura, Hiroshi Yamauchi et al. :  
Evaluation of urinary 8-hydroxydeoxyguanine  
in health Japanese people, Basic Clinical  
Pharmacol Toxicol., 98, 496-502, 2006

網中雅仁、山内博 : 尿中ポルフィリンを用いた無機ヒ素暴露の生物学的指標に関する研究、臨床環境医学 15 : 41-49, 2006

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.

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.

山内博 : ヒ素、救急医学、29: 605-607, 2005.

## 2. 学会発表

山内博 : 酸化・酸化修飾DNA損傷と尿中 8-OH dG、第 75 回日本衛生学会総会、新潟、2005. 3.

山内博 : ヒ素の毒性、日本学術会議、東京、2005. 5.

厚生労働科学研究費補助金(地域健康危機管理研究事業)

分担研究報告書

研究課題名: 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

分担研究課題名: 陰膳調査による包括的なヒ素摂取量の推定と安全な水の供給により得られる  
改善効果

分担研究者 大野 浩一 北海道大学大学院工学研究科 助手

研究要旨

バングラデシュ国のチュナカリ村にヒ素の簡易除去施設として GSF (Gravel Sand Filter)施設を設置し、GSF 水供給前(2005年6月)と GSF 水供給後(2006年8月)における水と食料からの1日ヒ素摂取量を飲水量調査および陰膳サンプルの分析によって推定し、調査対象者のヒ素摂取量にどのような変化が見られたかについて考察をおこなった。結果として、水と食料からのヒ素摂取量は、GSF 設置前  $0.15 \pm 0.11$  (範囲:  $0.043 - 0.49$ ) mg-As/day に対し、GSF 設置後は  $0.13 \pm 0.04$  ( $0.061 - 0.22$ ) mg-As/day となった。ヒ素摂取量を平均値で見ると  $0.02$ mg-As/day の減少であり、多少の効果は見られたが大きな改善ではなかった。しかし、標準偏差は  $0.11$  から  $0.04$  へと減少しており、このことはヒ素摂取量の家庭間でのばらつきが減少したことを意味している。特に、ヒ素摂取量の最大値が GSF 導入後に減少していることから、GSF の導入によってヒ素摂取量が多かった家庭に対する改善効果が大きかったと言える。各家庭のヒ素摂取量を詳細に調べた結果、GSF 導入前は(安全な水を十分に確保できずに)調理用水にヒ素汚染水を使用していたと考えられる家庭において、GSF 導入によりご飯由来のヒ素摂取量が減少していた。また、調査家庭全体においても全ヒ素摂取量におけるご飯の寄与率が GSF 設置前の  $56\%$  から GSF 設置後は  $40\%$  へと減少した。GSF 水を飲料水及び調理用水に十分な量を供給することの効果として、「水を運搬する労力が軽減されること」に加え、「飲料水のみならず調理用水にも安全な水を使用する家庭が増加し、調理用水由来のヒ素摂取量が減少すること」が考えられた。一方、GSF 処理水はヒ素で汚染された水を原水として簡易処理している水であるため、住民が以前飲料水源としていた「掘り井戸(dug well)」の水中ヒ素濃度よりは GSF 処理水ヒ素濃度がやや高くなってしまふという課題もあった。このため、飲料水由来の平均ヒ素摂取量は GSF 設置後に増加してしまっており、それ故にヒ素摂取量の平均値においては大きな改善効果を得ることができなかった。しかし、安全な水を給水することにより、調理用水由来のヒ素摂取量、特にご飯由来のヒ素摂取量が大幅に減少することが明らかとなったことから、今後、GSF の処理能力が向上すれば、飲料水由来のヒ素摂取量も減少することになり、調理用水由来のヒ素摂取の改善効果がより一層鮮明になると期待される。

## A. 研究目的

本研究は、ヒ素濃度の低い安全な水を供給することによって、住民のヒ素摂取量にどのような変化するかを調べることを目的とした。安全な水源としては、簡易ヒ素除去装置として Gravel Sand Filter(GSF)装置を調査対象地区であるバングラデシュ国チュナカリ村の集落に設置した。GSF 処理水を現地住民に配達してもらうことで調査対象家庭に安全な水を供給した。なお、GSF 設置は横田漠分担研究者(宮崎大学教授)の研究グループが中心となって行われた。

本研究では、水と食料からのヒ素摂取量を推定した。食料からのヒ素摂取量は陰膳サンプルの分析によって推定した。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。なお調査は徳永主任研究者と共同で行った。

具体的には、バングラデシュ国のチュナカリ村にヒ素の簡易除去施設として GSF (Gravel Sand Filter)施設を設置し、GSF 水供給前(2005年6月)と GSF 水供給後(2006年8月)における水と食料からの1日ヒ素摂取量を飲水量調査および陰膳サンプルの分析によって推定し、調査対象者のヒ素摂取量にどのような変化が見られたかについて考察をおこなった。

## B. 研究方法

### 1. 調査内容について

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(GSF水供給前)と2006年8月(GSF水供給から約半年後)に行った。調査は徳永主任研究者と共同で行い、分担研究者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2005年調査時は18家庭だったが、2006年調査時は2家庭が引っ越してしまっており、16家庭に減少した。なお、調査では飲水量調査(自己記録方式による)とサンプル採取を行った。

### 2. サンプル採取

飲料水のサンプルは、2005年の調査では各家庭が飲料用に使用している水源(Tubewell または dug

well)の水を採取した。2006年の調査における飲料水サンプルはGSF出口の水を全16家庭における飲料水サンプルとした。

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、ご飯・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。以下に具体的な方法を記す。

- ① 調査対象の家庭を訪問し、協力者を一人選ぶ
- ② その協力者の24時間分の陰膳(朝、昼、晩)を作成してもらい、取り置きしてもらう。
- ③ 回収時にそれぞれの食事の内容と重量を記録する

このようにして、調査対象家庭の陰膳採取と、食品摂取量のデータを得た。副食固体に該当する食物は各食物の摂取量と同じ比率になるように、陰膳の全量をミキサーでホモジナイズしたのち、その一部を持ち帰った。コメ、チャパティ、その他の食品については研究室に持ち帰った後凍結乾燥させ、ポリエチレンバッグに保存した。なお、凍結乾燥を48h行い、凍結乾燥前後の重量を量り、含水率を測定した。含水率算出式は以下に示す。副食液体については研究室に持ち帰り後、 $-80^{\circ}\text{C}$ で保存した。

### 含水率算出方法

$$W = (A - B) / A * 100$$

W:含水率,% A=凍結乾燥前の重量 B=凍結乾燥後の重量

### 3. 総ヒ素濃度の分析

飲料水のヒ素濃度は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。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(副食液体)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(いずれも、ultrapur grade, 関東化学製)を添加後、マイクロウェーブ抽出装置(Ethos TC, Milestone General 製)で分解、抽出液を希釈後ICP-MS



(HP4500, Agilent 製) にて定量を行った。内標純物質としてはイットリウム(Y, 質量数 89)を用いた。

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、分析の精度・確度を確認した。

#### 4. ヒ素摂取量の計算方法

各個人の水と食物由来のヒ素摂取量は以下の方法で推定した。飲水量は調査により得られた値、各カテゴリーの摂取量は陰膳調査により得られた値を用いている。

A: 飲料水からのヒ素摂取量

(飲料水中ヒ素濃度[mg/L]) × (飲水量[L/day])

B: スープ類(副食液体)からのヒ素摂取量

(スープ中ヒ素濃度[mg/kg wet wt])

×(スープ類摂取量 [kg wet wt/day])

C: 固体 i からのヒ素摂取量(i: ご飯、副食固体、チャパティ類)

(固体 i 中のヒ素濃度 [mg/kg dry wt])

×(固体 i の摂取量[kg wet wt/day]) × (1- 含水率[-])

#### (倫理面への配慮)

本研究では、「人体より採取された材料」は直接使用していない。しかし、共同調査を行う徳永主任研究者が毛髪及び尿などを採取していることから、徳永主任研究者と同様の配慮をしている。

### C. 研究結果と考察

#### 1. 飲水量調査および飲料水質について

表 1 に調査対象者の飲水量を示す。成人男性と成人女性の飲水量の平均値は、2.54 と 2.24L/day/人となり、両者ともに 2005 年度の結果の 3.1 と 2.9L/day/人より低い値だった。これは 2005 年の調査時の最高気温が約 38℃(2日間とも)だったのに対し、2006 年調査時の最高気温は、35.5℃(初日)、33.5℃(2日目)、31.4℃(3日目)とやや低かったことが理由の一つに考えられた。図 1 に各家庭の昨年度と今年度の飲料水のヒ素濃度を示す。すべての家庭で GFS の水(0.019mg-As/L)を飲料しており、飲料水からのヒ素摂取量の平均値と範囲は、0.042mg-As/day (範囲:

0.010-0.161, n=59)であった。

サンプリングと同時に、昨年度の水源地と近場の水源地についてのインタビューを行った。このインタビューを行った理由は、昨年度に調理用水のヒ素濃度が飲料水と異なり、かつヒ素濃度が高かったため、調理用水には手身近にあるヒ素濃度の高い水源を利用してしまっているのではないかと考えたからである。その結果、昨年度の飲料水源地までの家からの距離の平均と範囲は、100m (範囲: 8-278, n=14)であった。また、近場の水源のヒ素濃度の平均と範囲は、0.333mg-As/L (範囲: 0.00095-1.018, n=16)であった。過去の飲料水源地までは家から離れていて、手身近な水源はヒ素濃度が高い傾向があるということが分かった。このことから、GSF 水を配布して水汲みにかかる負担を軽減させることは重要であったと考えられる。

#### 2. 食物中のヒ素濃度について

図 2 に昨年度と今年度の各サンプルのヒ素濃度を示す。棒グラフが今年度の平均ヒ素濃度で、×印が昨年(2005年)度の平均ヒ素濃度である。これを見ると、昨年度に比べて今年度は平均ヒ素濃度が低減しているのが分かる。各食物のヒ素濃度の平均値は米飯: 0.275mg-As/kg-dry (範囲: 0.061-0.557, n=16)、生米: 0.306mg-As/kg-dry (範囲: 0.012-0.666, n=16)、副食固体: 0.194mg-As/kg (範囲: 0.097-0.554, n=16)、副食液体: 0.039mg-As/kg (範囲: 0.015-0.066, n=4)、朝食のチャパティ・ダンゴ類: 0.133mg-As/kg-dry (範囲: 0.047-0.282, n=14)であった。

次に、図 3 に昨年度と今年度の米飯のヒ素濃度の相関を示す。今年度の方が全体的に低い値となっている。本研究室の調査により、炊飯用水にヒ素濃度の大きい水を用いた場合、炊飯後にコメのヒ素濃度が上昇することがわかっている。このことから、昨年度は炊飯用の調理用水のヒ素濃度が高かったが、今年度は低かったことになる。また、図 4 に朝食・副食固体に関しての昨年度と今年度のヒ素濃度の相関を示す。米飯と同じように今年度のヒ素濃度の方が全体的に低い値となっていた。さらに、昨年度と今年度で朝食にだんご(のようなもの)を食べていた家庭では、

今年度は大きくヒ素濃度が低減していた。これらは調理用水のヒ素濃度が低減したこと起因していると考えられる。副食液体のヒ素濃度については、今年度はサンプル数が少なかったため、調理用水の影響が分からなかった。

### 3. 陰膳調査によるヒ素汚染地域住民のヒ素摂取量の推定と安全な水供給前後の変化

2005年(GSF水供給前)と2006年(GSF水供給後)における調査対象16家庭代表者の水と食料からの1日ヒ素摂取量について図5に示す。水と食料からのヒ素摂取量は、平均値±標準偏差(最小値-最大値)として、2005年は $0.15 \pm 0.11$  (0.043-0.49) mg-As/day、2006年は $0.13 \pm 0.04$  (0.061-0.22) mg-As/dayとなった(図6)。平均値で見ると、0.02mg-As/dayの減少となり、多少の効果は見られたが大きな改善ではなかった。この理由については後ほど考察を行う。なお、各家庭代表者の各食品摂取量、飲水量、食品サンプルの含水率(48h凍結乾燥による測定値)、ヒ素濃度、ヒ素摂取量を付表として示す。

一方、標準偏差は0.11から0.04へと減少しており、このことはヒ素摂取量の家庭間でのばらつきが減少したことを意味している。特に、最大値がGSF水導入後に減少していることから、GSF水の導入によってヒ素摂取量が多かった家庭への効果が大きかったと言える。この理由は、GSF水を供給することによって調理用水、特に炊飯用水にヒ素濃度の低い水を使用するようになったことが大きいと考えられる。ご飯からのヒ素摂取を平均値±標準偏差(最小値-最大値)の形で示すと2005年は $0.090 \pm 0.079$  (0.014-0.31) mg-As/dayだったものが2006年には $0.053 \pm 0.030$  (0.0077-0.11) mg-As/dayまで減少している。全ヒ素摂取量に対する割合の変化としては、GSF設置前は56%がご飯由来のヒ素摂取だったものがGSF設置後は40%にまで減少した(図6)。これは、GSF水供給前には一部家庭で(ヒ素濃度の低い水が十分に確保できないため)炊飯用水には手近にあるヒ素汚染された水を使っていたの

だがGSF水を供給することによって、炊飯用水にもヒ素濃度が低い水を使用することになったためと考えられた。

一方、飲料水由来のヒ素摂取量は、2005年には $0.023 \pm 0.027$  (0.0016-0.099)だったものが2006年には $0.053 \pm 0.030$  (0.0077-0.11)へと増加してしまっている。全ヒ素摂取量に対する割合としては、13%から43%へと増加している(図6)。これは、GSF水はヒ素で汚染された水を原水として簡易処理している水であるために、バングラデシュ水質基準値(0.05mg/L)よりは低い水(2006年8月調査時のGSF処理水ヒ素濃度は0.018mg/L)を供給できるものの、現地住民が以前、ヒ素濃度の低い飲料水源として使用していた「掘り井戸(dug well)」の水中ヒ素濃度(0.001~0.010mg/L程度)よりは高くなってしまっているためであった。このことがGSF水供給後のヒ素摂取量が平均値としては十分に改善しなかった原因であると考えられる。ただし、飲料水からのヒ素摂取量の推定は、住民が自己申告した水源中のヒ素濃度と飲水量を掛け合わせて推定したものであるため、食料からのヒ素摂取量と比較して信頼性が低い。特に、GSF供給前には、住民は必ず「掘り井戸」の水を飲んでいと推定しているが、実際に飲んでいたかどうかは断言できず、調理用水の場合と同様に手近にあるヒ素に汚染していた水を一部飲用していた可能性は否定できないし、本研究ではそのことに由来するヒ素摂取量の推定もできない。GSF水のようにヒ素濃度の低い水を充分量供給できることによって、そのような汚染水の不規則な飲用による過剰なヒ素摂取をさけることができる。

全体としては、GSFによる安全な水の供給により、以下の効果があったと考えられる。1つは、GSF水を供給することにより水を運搬する労力が軽減されたこと、そしてもう1つは、そのことにより調理用水にも安全な水を使用する家庭が増加し、調理用水由来のヒ素摂取量が減少したことである。今後、GSF水の処理能力が向上すれば、飲料水由来のヒ素摂取量も減少することになり、

調理用水中ヒ素濃度の改善効果がより一層明らかになると考えられる。

#### D. 結論

2005年(GSF水供給前)と2006年(GSF水供給後)における水と食料からの1日ヒ素摂取量について飲水量調査および陰膳サンプルの分析によって、水と食料からのヒ素摂取量を推定した。

その結果、GSF導入により、以前は安全な水の量を確保できずに調理用水にはヒ素で汚染されている水を使用していたと考えられた家庭において、ご飯由来のヒ素摂取量が減少したことが示された。GSF水を飲用と調理用に十分な量を供給することによって得られる効果として、1:水を運搬する労力が軽減されること、2:調理用水にも安全な水を使用する家庭が増加し、調理用水由来のヒ素摂取量が減少すること、が考えられた。一方、GSF水はヒ素で汚染された水を原水として簡易処理している水であるため、住民が以前飲料水源としていた「掘り井戸(dug well)」の水中ヒ素濃度よりはGSF処理水ヒ素濃度がやや高くなってしまうと言う課題も見られた。今後、GSF水の処理能力が向上すれば、飲料水由来のヒ素摂取量も減少することになり、調理用水中ヒ素濃度の改善効果がより一層明らかになると考えられる。

#### E. 研究発表

##### 1. 論文発表

1) Ohno, K., Yanase, T., Matsuo, Y., Kimura, T., Rahman, MH., Magara, Y., Matsui, Y., Arsenic intake via water and food by a population living in arsenic-affected area of Bangladesh, Science of the Total Environment, accepted (2007)

##### 2. 学会発表

1) 三崎富生, 草野真一, 大野浩一, 眞柄泰基, 松井佳彦, 攪拌強度及び攪拌時間がヒ素の凝集処理に及ぼす影響, 第57回全国水道研究発表会講演集, 長崎, 2006.5.24-26, pp.170-171.

2) Yanase, T., Matsuo, Y., Ohno, K., Magara, Y. and

Matsui, Y., Contribution of drinking water to the total daily intake of arsenic in Bangladesh, Proceedings of IWA 5th World Water Congress, Beijing, China, 10-14 September 2006.

3) Ohno, K., Yanase, T., Matsuo, Y., Magara, Y., Matsui, Y., Effect of cooking water on the arsenic intake in Bangladesh, 5th IWA specialised conference on assessment & control of micropollutants/hazardous substances in water, 17-20 June 2007, Frankfurt/Main, Germany, accepted

#### F. 知的財産権の所得状況

特になし

表1 調査対象者の飲料水量の平均値±標準偏差と範囲（2006年の結果）

		平均値, L/d	範囲, L/d
成人 (>15歳)	男性(n=28)	2.54±1.68	0.76-8.60
	女性(n=20)	2.24±1.24	0.55-5.22
子供	男性(n=1)	1.01	-
	女性(n=20)	1.48±0.51	0.69-2.20

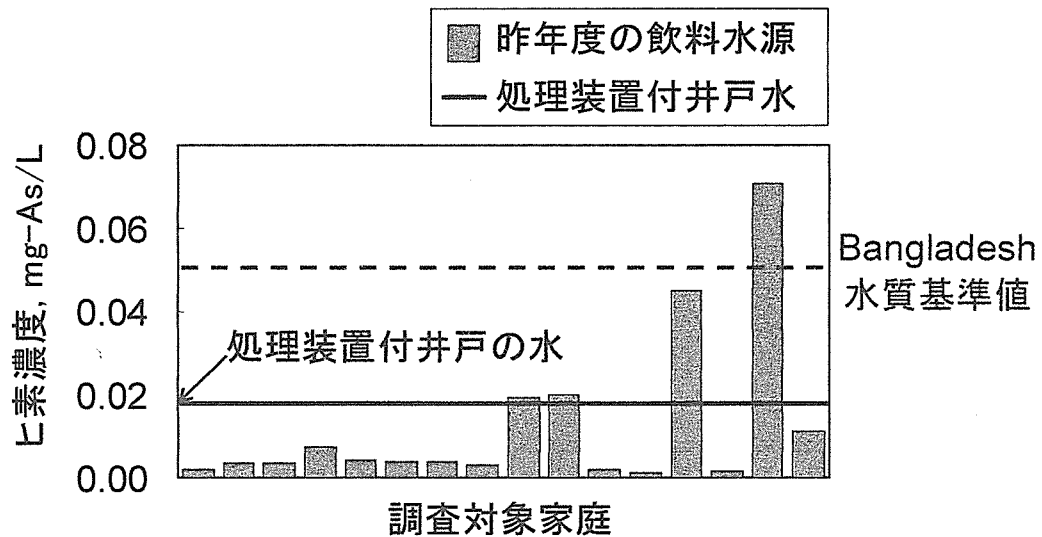


図1 各家庭の昨年度の飲料水とGSF水のヒ素濃度

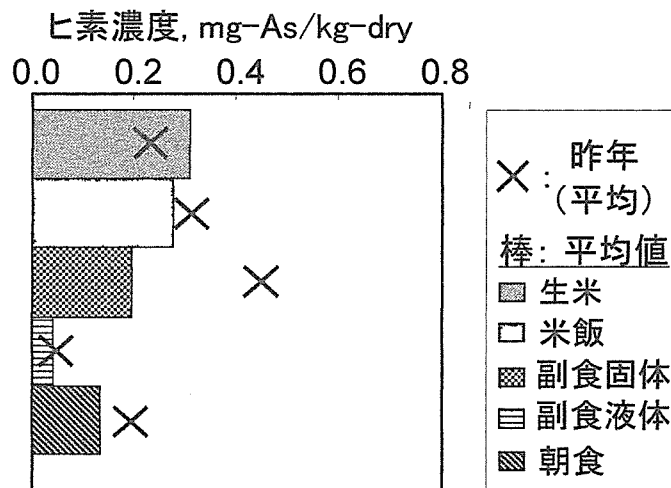


図2 各サンプルの総ヒ素濃度

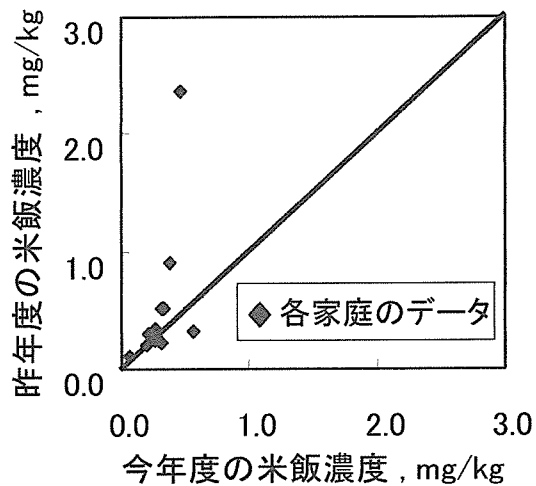


図3 昨年度と今年度の米飯のヒ素濃度の相関

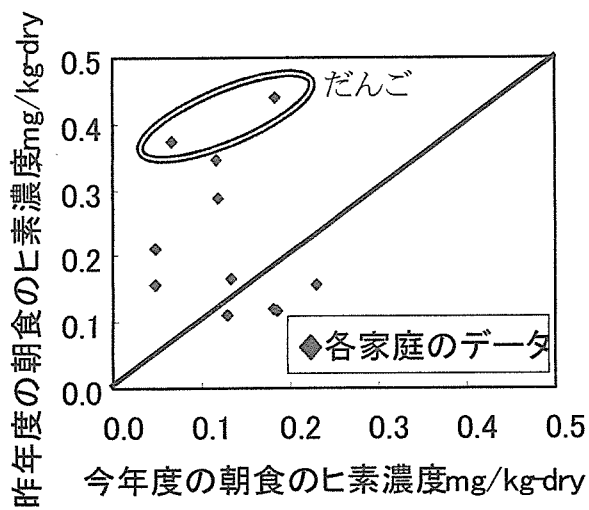
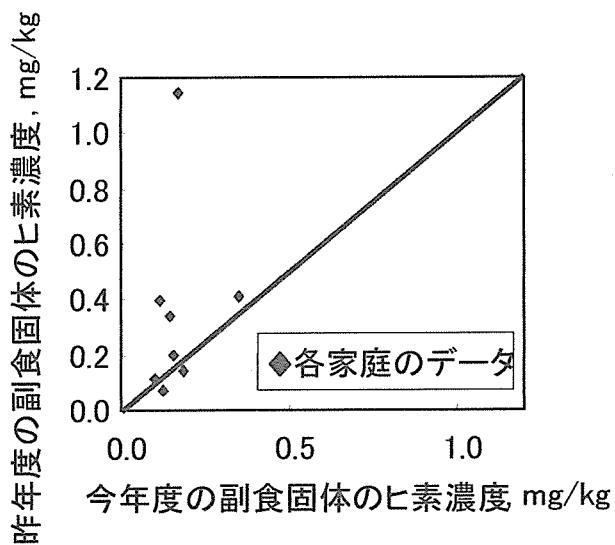


図4 昨年度と今年度の副食(上)と朝食(下)のヒ素濃度の相関

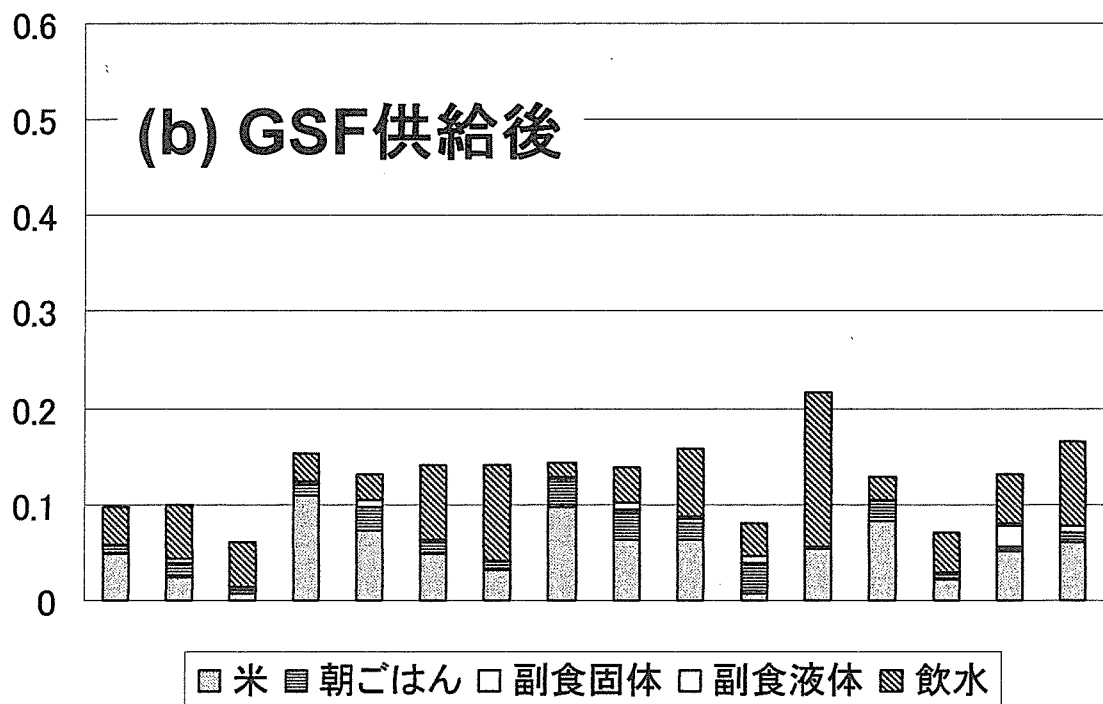
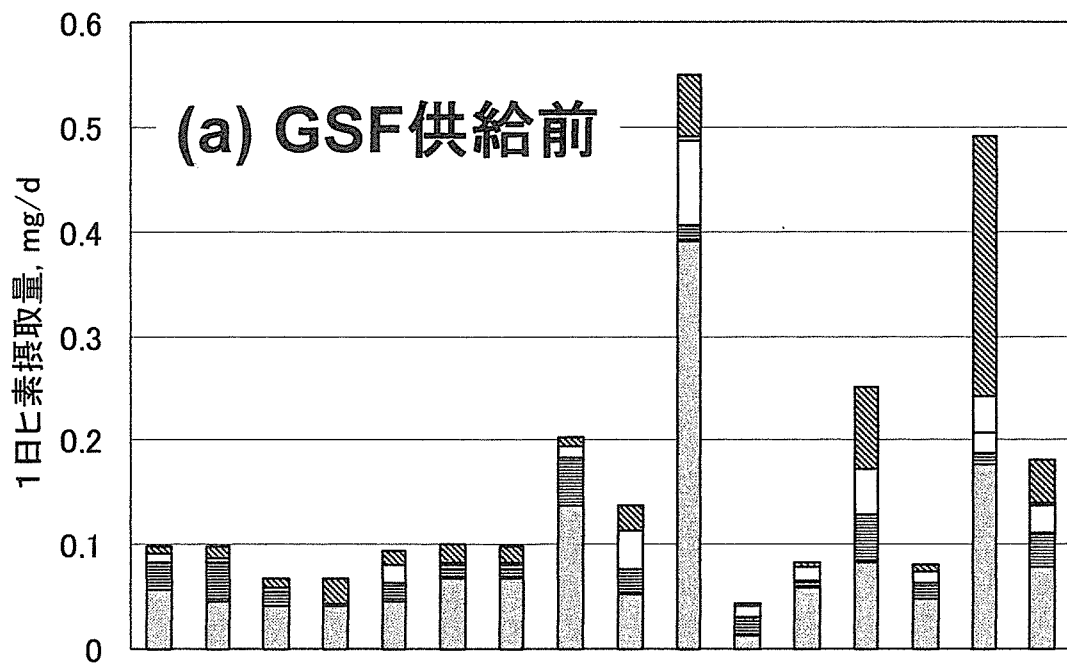
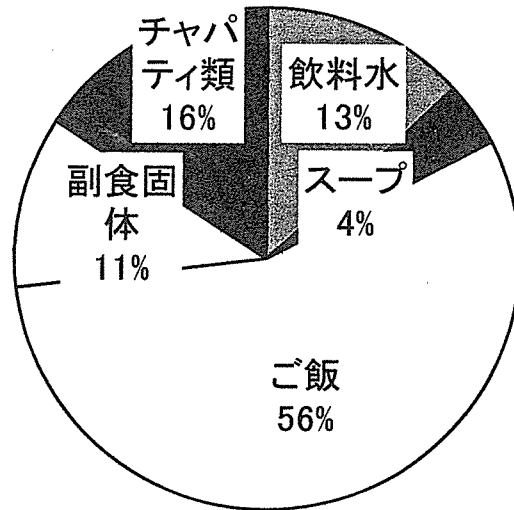


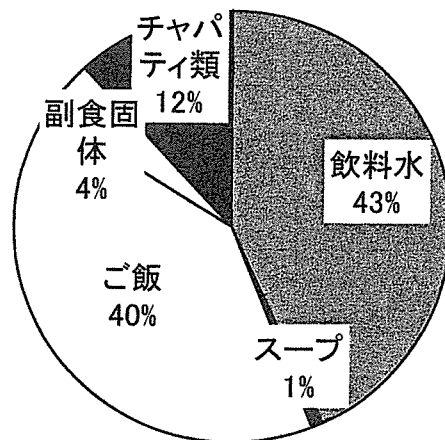
図5 GSF設置前後の水と食料からのヒ素摂取量の変化  
(陰膳調査を行った16家庭代表者の結果)

### (a) GSF供給前



0.15±0.11 mg-As/day

### (b) GSF供給後



0.13±0.04 mg-As/day

図6 GSF 設置前後のヒ素摂取量の変化、及び各カテゴリー別摂取割合について

付表 各家庭の代表者の食品摂取量、飲水量、ヒ素摂取量、食品サンプルの含水率（凍結乾燥法による）

重量, g-wet

family ID	性別	年齢	米飯	朝食	副食固体	副食液体	その他
1	女	41	656.3	557.0	114.0		
2	女	56	753.2	93.0	138.9		
3	女	61	445.1	162.5	185.5		
4	女	61	630.8	237.9	274.9		
5	男	29	1089.5		411.3		←含水率は米飯
6	女	36	733.8	169.0	95.3		
7	女	61	366.9	120.4	84.0		
8	男	61	915.4	266.3	437.8		
9	男	33	659.2	186.8	314.0	192.8	
10	男	16	793.0	132.7	349.4	23.1	チャパティ(晩飯分)
11	男	26	505.4	236.1			236.1
12	男	37	973.4	サンプルなし	210.3		
15	男	41	1175.3	196.2	108.3		
16	女	61	443.0	225.1	270.8		
17	女	36	532.7	57.1	183.9	78.8	チャパティ(晩飯分)
18	男	52	890.9	247.9	195.2		243.0

含水率

family ID	米飯	朝食	副食固体	その他
1	0.69	0.943	0.91	
2	0.70	0.04	0.95	
3	0.71	0.67	0.94	
4	0.69	0.08	0.92	
5	0.75		0.83	
6	0.80	0.11	0.97	
7	0.72	0.42	0.97	
8	0.72	0.09	0.95	
9	0.70	0.31	0.93	
10	0.83	0.29	0.95	0.76
11	0.75	0.08		0.30
12	0.73		0.97	
15	0.73	0.11	0.95	
16	0.83	0.42	0.92	
17	0.71	0.31	0.91	0.66
18	0.67	0.25	0.90	0.33

飲水量, L

family ID	
1	2.05
2	3.03
3	2.53
4	1.52
5	1.36
6	4.14
7	5.22
8	0.76
9	1.85
10	3.73
11	1.89
12	8.60
15	1.32
16	2.12
17	2.80
18	4.67



付表 各家庭の代表者の食品摂取量、飲水量、ヒ素摂取量、食品サンプルの含水率（凍結乾燥法による）  
（続き）

ヒ素濃度, mg-As/kg-dry

family ID	米	朝ごはん	副食固体	副食液体	その他	飲水
1	0.24	0.28	0.15			0.019
2	0.10	0.18	0.55			0.019
3	0.06	0.07	0.14			0.019
4	0.56	0.05	0.18			0.019
5	0.27		0.13			0.019
6	0.32	0.09	0.26			0.019
7	0.31	0.13	0.26			0.019
8	0.38	0.12	0.16			0.019
9	0.32	0.23	0.11	0.04		0.019
10	0.46	0.18	0.17	0.07	0.36	0.019
11	0.06	0.18	0.10	0.01	0.03	0.019
12	0.20		0.19			0.019
15	0.27	0.12	0.11			0.019
16	0.29	0.05	0.10			0.019
17	0.33	0.13	0.35	0.04	1.15	0.019
18	0.21	0.05	0.16		0.03	0.019

ヒ素摂取量, mg-As/d

family ID	米	朝ごはん	副食固体	副食液体	その他	飲水
1	0.048714	0.009011	0.001539	0		0.038314
2	0.023278	0.01632	0.003843	0		0.056833
3	0.008196	0.003552	0.001671	0		0.047355
4	0.109048	0.011974	0.003977	0		0.028535
5	0.072487	0.02398	0.008628	0		0.025555
6	0.047839	0.014019	0.000762	0		0.07763
7	0.032421	0.009407	0.000671	0		0.09776
8	0.096891	0.028752	0.003518	0		0.014241
9	0.063952	0.029272	0.002348	0.007357		0.034578
10	0.064122	0.017046	0.00482	0.001528	0.001879	0.069808
11	0.007726	0.030672	0.007202	0	0.007202	0.035414
12	0.053882		0.001292	0		0.161145
15	0.083454	0.020323	0.000584	0		0.024706
16	0.021225	0.006227	0.002289	0		0.039667
17	0.050937	0.005091	0.02052	0.002827	0.014847	0.052356
18	0.061358	0.008733	0.00839	0	0.005378	0.087459

全ヒ素摂取量  
mg-As/d

0.098
0.100
0.061
0.154
0.131
0.140
0.140
0.143
0.138
0.159
0.088
0.216
0.129
0.069
0.147
0.171

### III. 研究成果の刊行に関する一覧表

発表者氏名	論文タイトル名	発表雑誌	巻号	ページ	出版年
Hiroshi Yokota et al.,	"Collaboration between NGO and University of Miyazaki and Asian Arsenic Network for the mitigation of arsenic contamination in Ganga basin"	Proc. of 1st Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countrmeasures, keynote lecture,		pp.47-58	2006
M.M Hussainuzaman, H.Yokota and K.Tanabe	Arsenic Removal from Contaminated Groundwater of Bangladesh with Naturally Occurring Iron	Proc. of 1st Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countrmeasures		pp.137-142	2006
K.Ohe, T.Oshima, Y.Baba, M.Shimoizu, Y.Miyake, T.Horikawa and H.Yokota	Removal Arsenic from Contaminater Groundwater by Iron Oxide	Proc. of 1st Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countrmeasures		pp.162-165	2006
M. Miyatake, H. Yokota, K. Tanabe, M.M. Hussainuzzaman and S.Hayashi	Sludge Teatment of Arsenic Removal Unit in Bangladesh and Removal of Arsenic using Microorganisms	Proc. of 1st Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countrmeasures		pp.166-169	2006
Miah M., Hussainuzzaman, Hiroshi Yokota	Efficiency of Arsenic Removal Unit working in Bangladesh and Cement Stabilization of its Sludge	Journal of ASTM International	13	pp.1-9	2006
Ohno, K., Yanase, T., Matsuo, Y., Kimura, T., Rahman, MH., Magara, Y.,	Arsenic intake via water and food by a population living in arsenic-affected area of Bangladesh	Science of the Total Environment		accepted	2007

#### IV. 研究成果の刊行物・別冊

## **Collaboration between NGO and University-----University of Miyazaki and Asian Arsenic Network for the mitigation of arsenic contamination in Ganges basin**

*Hiroshi Yokota, Kimiko Tanabe, Miah M. Hussainuzzaman, Mitsuhiro Sezaki  
Uninersity of Miyazaki*

### ***1. Introduction***

The chronic arsenic poisoning at Toroku mine in Takachiho, Miyazaki, Japan is the origin of health hazards and environmental pollution by arsenic in the world. It is 35th year anniversary from 1971 of the official recognition of the Toroku arsenic disease. The staff of UOM has performed the medical examination and supported the recovery of human right of Toroku patients more than 30 years.

From 1996 UOM has performed a lot of surveys and mitigation measures at the arsenic affected areas in Ganges basin with NGO, "Asian Arsenic Network" (AAN), developed from NGO which has supported the movement of Toroku patients.

The activities of UOM with AAN are mentioned here to consider how University should collaborate with NGO to get the solution of arsenic contamination problems in Asia.

### ***2. Toroku arsenic disease***

#### ***2.1 Situation of arsenic disease in Toroku***

Toroku mine had produced arsenic for a long time, from 1920 to 1962. Throughout the production, smoke containing arsenic had been emitted and hung over the Toroku valley for many years. As a result, cattle and crops had been affected and most of the people in the village had/have suffered serious health problems. There were 92 deaths in Toroku village, with the average age at death being only 39 years, during the mining operations. 20% of the deaths was children, which was caused from respiratory and gastrointestinal diseases through the poison air and water with arsenic.

When the Toroku arsenic disease was commonly known in 1971, 74 residents of Toroku village (34% of the population) complained of subjective symptoms of gastrointestinal dysfunction, respiratory trouble, kidney disease, cardiac illness and liver ailment. As of 20 February 2006, the number of officially acknowledged victims of arsenic poisoning in Toroku is 173. Many of the victims have already died mostly from cancer these 30 years, and the survivor is now very old. There are only 55 living victims left.