

厚生労働科学研究費補助金

地域健康危機管理研究事業

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

平成16年度～18年度 総合研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所

徳永 裕司

分担研究者

宮崎大学工学部

横田 漠

北里大学医療衛生学部

山内 博

北海道大学大学院工学研究科

大野 浩一

国立保健医療科学院

国包 章一

平成19(2007)年3月

# 目次

I. 総括研究報告	
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	1
徳永 裕司	
II. 分担研究報告	
1. ヒ素汚染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 す研究	17
徳永 裕司	
2. バングラデシュに設置した砒素除去装置の性能および除去汚泥の処分	51
横田 漠	
3. 無機ヒ素汚染井戸水の改水後における慢性ヒ素中毒の改善に関する研究 ：角化症と色素沈着の変化	59
山内 博	
4. 給水システムの実現可能性評価（陰膳調査による包括的なヒ素摂取量の推定と調 理用水の給水により得られる改善効果）	65
大野 浩一	
III. 研究成果の刊行に関する一覧	75
IV. 研究成果の刊行物・別冊	77

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

主任研究者 徳永 裕司 国立医薬品食品衛生研究所 部長

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、慢性ヒ素中毒による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。ヒ素汚染の被害地として、バングラデシュ及び中国を候補地とし、ヒ素汚染地域の選定、ヒ素患者の特定、ヒ素被害家族への安全な水の供給の方策を検討した。

徳永主任研究者は、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 教授らと一緒に訪れ、ヒ素フリーな地下水を供給するため、深井戸の試掘調査 Gravel Sand Filter(GSF)施設の設置を行い、土壌中のヒ素含有量等の調査、ヒ素被害家族 16 家族から尿及び毛髪を採取し、種々の測定を行った。これらの結果を基にヒ素暴露評価と健康影響に関する考察を行った。横田分担研究者は、バングラデシュに GSF 施設 4 基を設置し、ヒ素除去性能のメンテナンス、排出されるヒ素汚泥の処分の研究を通じて、GSF の設計基準化を試みてきた。ヒ素と鉄の接触時間、リン濃度の高い原水での鉄屑の付加という方策を設定した。また、ヒ素汚泥の処分の研究としてのヒ素の自然浄化処理のため、ヒ素を効率よく有機化する優れた細菌の存在を明らかにした。山内分担研究者は、中国内蒙古自治区包頭市郊外を候補地に選び、96 名を選出し、中国医科大学と日本側の医師により皮膚科的検診を実施し、過去の井戸水からのヒ素暴露の実態の解明に関して、井戸水の使用状況を詳細に聞き取り調査した。更に、包頭市あるいは山西省太原市山陰県の村民を対象とした安全な水を供給し始めた後の慢性ヒ素中毒である角化症の改善に関して検証した。大野分担研究員は、バングラデシュ・チュナカリ村に設置された GSF 施設の設置前後の水と食料からの 1 日ヒ素摂取量の調査を飲水量と陰膳サンプルの分析によって実施し、水と食料からのヒ素摂取量を推定した。GSF 導入により、ご飯由来のヒ素摂取量が減少した。また、炊飯用水中のヒ素濃度が炊飯後のコメ中ヒ素濃度を検討し、炊飯用水中のヒ素濃度と炊飯後のコメ中ヒ素濃度増加量の間には強い正の相関を明らかにした。

この研究を通して、地下水のヒ素汚染地域で生活する住民に安全な水を供給方策として、ヒ素汚染の地下水を GSF 施設で処理した安全な水を飲料水及び調理用水として提供することにより、ヒ素被害の発生の防止並びにヒ素被害者のヒ素症状の緩解に役立つことが明らかになった。GSF 施設の維持管理には住民自らが行う方法を理解し、実施する必要が示された。

分担研究者

徳永裕司 国立医薬品食品衛生研究所 部長

横田 漠 宮崎大学工学部 教授

山内 博 北里大学医療衛生学部 教授

大野浩一 北海道大学大学院工学研究科 助手

国包章一 国立保健医療科学院 部長

## A. 研究目的

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約 4700 万人、中国で約 300 万人と言われている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は 20 数年を経過中であり、本格的な発癌の顕在化までに、ヒ素による発癌の発生機序、リスク評価、予防対策などの活動が特に重要である。対象地にバングラデシュ及び中国を選び、バングラデシュについては、GSF 施設によるヒ素処理前後でのヒ素暴露量の推定、GSF 施設によるヒ素処理装置の維持管理、その処理水を 6 ヶ月間使用することにより、飲料水及び調理済み食料から経口的に摂取される全ヒ素量の変化並びにヒ素被害患者の皮膚の変化、尿あるいは毛髪中のヒ素化合物の変化を検討した。また、GSF を用いたときに発生するヒ素含有汚泥による 2 次的な環境汚染の問題も検討した。中国については、ヒ素フリーの地下水をヒ素汚染被害者に摂取させ、ヒ素による皮膚被害の緩解あるいは尿中 8-hydroxy-2'-deoxy-guanosine (8-OH dG) の変化を 7 年間に渡り実施しており、それを継続的に検討した。

## B. 研究方法

B-1. 住民への水の供給と尿中及び毛髪中のヒ素代謝物関係 (徳永主任研究者)

B-1-1. 安全な水の供給

B-1-1-1. 深層管井戸の試掘

平成 17 年 7 月～9 月、チュナカリ村で Rahman 教授の指導の下、深層管井戸の試掘調査が実施された。760 feet までの場所を変えた 2 回の深層管

井戸の試掘の結果、760 feet 付近での砂利や岩石の存在のため、更に掘り進むことが不可能になり、深層地下水の利用を断念した。各深度から得られた土壌中の鉄、マンガン及びヒ素量を求め、ヒ素の存在量を検討した。

B-1-1-2. 管井戸と GSF 施設との組み合わせ

チュナカリ村の第一帯水帯の砂層と粘土層の部分 (深度約 250 feet) に管井戸を設置し、手押しポンプでくみ上げた地下水を GSF 施設で処理した後、その処理水を供給することを計画した。調査した平成 18 年 2 月～平成 19 年 2 月の間、供給原水中のヒ素の 193 ppb～291 ppb が処理水中では 21 ppb～59 ppb となり、安全な水をヒ素被害家族に供給することができた。

B-1-1-3. ヒ素汚染家族から毛髪及び尿の採取

平成 17 年 6 月、ヒ素被害家族 18 家族から尿及び毛髪が採取された。平成 18 年 2 月、8 月、16 家族から毛髪及び尿が採取された。2 家族がチュナカリ村から転居したため、ヒ素被害の対象から外された。毛髪は側頭部から約 0.1～0.5 g 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。尿は 10 mL のポリエチレン製共栓付き容器に採取された。採取された尿は現地で冷凍庫に保管し、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 -80°C の deep freezer に保管した。

B-1-1-4. 毛髪中のヒ素の分析

毛髪は根元から約 3 cm までの長さものをミリ Q 水で洗浄後、アセトンで脱脂した後、乾燥した。その約 10～30 mg をテフロン製容器に入れ、硝酸/過酸化水素水混液(3:1)5 mL を加え、密栓して一晩放置した。microwave oven の 3 段階の加熱条件で疎解を行った。疎解後、ミリ Q 水を加えて 25 mL とし、試料溶液とした。HPLC-ICP/MS 装置でヒ素の測定を行った。

B-1-1-5. 尿中のヒ素代謝物の測定

尿検体200  $\mu$  LにHPLCの移動相200  $\mu$  Lを加え、その20  $\mu$  LをHPCL-ICP/MS装置に注入し、測定を行った。予め30 ppb及び150 ppbのAs(III)、As(V)、MMA及びDMAを含むHPLCの移動相溶液20  $\mu$  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。

## B-2. 尿中ヒ素とDNA損傷関係(山内分担研究者)

### B-2-1. 調査場所と対象者

調査場所は内蒙古自治区包頭市土默特右旗であり、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。慢性ヒ素中毒の改善計画には、ヒ素濃度0.037ppm(中国の飲料水基準以内:0.05ppm)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。

### B-2-2. 井戸水ヒ素と尿中ヒ素の化学形態分析

井戸水中ヒ素の測定において、検水は無処理で測定に供した。尿中ヒ素の化学形態別の測定には試料を1 mL使用した。試料は10-mLの耐熱製ポリプロピレン試験管に取り、これに4N-NaOH溶液を2 mL加え、加熱器にて100°Cで3時間加熱して測定試料とした。無機ヒ素(iAs)、MMA、DMA、トリメチル化ヒ素(TMA)は超低温捕集-還元気化-原子吸光光度計で測定した。

### B-2-3. 尿中8-OH d G濃度

尿中8-OH d G濃度の測定では、試料を1500rpm 10分間遠心分離し、上清を測定に使用した。尿中8-OH d Gは日本老化制御研究所製のELISA kitで測定した。尿中8-OH d Gの測定値は尿中creatinine濃度で補正した。

## B-3. 陰膳調査関係(大野分担研究者)

### B-3-1. 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

#### (1) 調査内容について

調査は、チュナカリ村で平成17年6月(GSF水供

給前)と平成18年年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18家庭である(平成18年調査時は16家庭に減少)。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。

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。食料の他には、各家庭が飲用している水を採取した。

#### (2) 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、スープ類は1g-wet、それ以外のサンプルは0.5g-dryに対して、硝酸と過酸化水素を添加後、マイクロウェーブ抽出装置で分解、抽出液を希釈後ICP-MSにて定量を行った。なお、標準試料2種類(コメSRM1568a: NIST, USA及び日常食SRM1548a: NIST, USA)を用いて、分析の精度・確度を確認した。

### B-3-2. 炊飯用水中ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度変化に関する研究

#### (1) 現地調査

平成16年11月にナワブガンジ市において18家庭を調査対象とし、それぞれの家庭から精米・実際に炊いたコメ・炊飯用水を採取した。

#### (2) 炊飯実験

コメ試料として、ナワブガンジ地区近郊のチュナカリ村で市販されている3種類のコメ(SCV, IRRI, FVR)を使用した。炊飯用水は、浄水場の急速砂ろ過後水(塩素添加前、ヒ素濃度0.0003mg/L)を原水として、無機ヒ素を所定の濃度(0~1 mg-As/Lの数段階)になるようにそれぞれ添加して用いた。本炊飯実験ではバングラデシュにおける一般的な炊飯方式、すなわち、大量の水でコメを炊きその後余った水を捨てるという方式を採用した。炊飯前・炊飯後のコメ中ヒ素

濃度は陰膳サンプルの分析に準じた方法で行った。

### (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及び中国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等である。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-OHdG の測定を行い、ヒ素除去された水（バングラデシュ）あるいはヒ素汚染されていない井戸水を水道にて供給後、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。

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及び中国であることから、国際共同研究者が所属するバングラデシュ及び中国医科大学の倫理委員会の承諾を得て行った。書式は現地語であるが、我が国の形式は十分に反映されており、さらに、対象者全員から承諾書は得る。国内実験室研究については、各参加機関の倫理委員会の承諾を得た。

## C. 結果及び考察

### C-1. GSF 施設の関連(横田分担研究者)

#### C-1-1. GSF の設計基準

ヒ素除去のメカニズムは、地下水中に高濃度に含有されている鉄分を本装置内で酸化し、そのヒ素との共沈物を砂利槽内の砂利間隙中でトラップし、最後に砂槽で緩速ろ過するものである。

そのためバッキ、ヒ素と鉄の接触時間およびリンなどヒ素と競合するイオン濃度などがヒ素除去上のキーポイントとなる。流速は模型実験などにより 75~100cm/h (見かけの速度) という基準を得ている。バッキは、①ポンプからインレットタンクに地下水を汲み入れる場合の落下エネル

ギーを利用する方法 (GSF1 号基)、②汲み上げた地下水を本ヒ素除去装置の槽壁頭上に設置したチャンネル上を流して酸化させる方法 (GSF2, 4 号基)、③多くの細孔を持つプレートをインレットタンクの頭部に設置し、汲み上げた地下水を水滴状に落下させて酸化させる方法 (GSF1, 2 号基) がとられている。4 基の性能や井戸水の水質を同時期に一斉に調べた。その結果、原水中のリン濃度が高い GSF1 号基の処理効率が相対的に低い、ということが分かった。リン濃度の高い原水では鉄/ヒ素値を 20 (通常は 10) となるように鉄屑の付加という基準を得ている。

#### C-1-2. GSF のメンテナンス基準

目詰まりや砂槽中のヒ素再溶出などに関するメンテナンス基準については、以下のものが確立されている。

①ヒ素除去性能のチェック (住民によるフィールドキットを用いた測定: 1 回/10日、AANヒ素センターのAASによる測定: 1 回/月)、②ヒ素汚泥による目詰まり防止 (砂利タンクの底部の数分間排水: 1 回/10日、砂利槽内の砂利洗浄: 1 回/3月、砂槽内の砂洗浄: 1 回/3月、以上住民による作業)。

#### C-1-3. ヒ素汚泥の固化処分基準

ヒ素汚泥槽内の沈殿汚泥処分に関しては、セメント固化処分の研究を行ってきた。本研究におけるセメントの添加割合は、汚泥重量の20%、10%、2%、0%である。

20%添加の場合、溶出試験によるヒ素濃度は 0.02~0.04mg/L であり、現地の基準をクリアしている。その際、汚泥中のヒ素はわずか、その0.01~0.53%しか溶出しなく、99%以上のヒ素が汚泥中に閉じ込められることが認められている。ただ、pH が12.1~12.3と高アルカリであり、放流時には中和処理が必要となる。

他のセメント添加量の場合には次のような結果となっている。すなわち、前述の溶出濃度、溶出量およびpH値はそれぞれ、0.03~0.09mg/L、

1. 20~4.09%、pH=10.9~11.9（以上セメント量10%の場合）、0.05~0.11mg/L、1.64~5.83%、pH=10.5~10.9（セメント量2%の場合）、0.05~0.65mg/L、3.0~12.8%（セメント量0%）となっている。これらの結果より、セメントを添加しない場合でも、汚泥中のヒ素はその90%が汚泥中に閉じ込められるが、溶出濃度が0.05~0.65mg/Lと試料によって環境基準値を超える場合がある。セメント添加量が2%の場合では0.05~0.11mg/Lとわが国の第2溶出基準をクリアする。pH=10.5~10.9とアルカリ性でもあるので、遮水して貯蔵すれば問題ないと考えられる。なお、ヒ素汚泥の成分分析を行った結果、ヒ素が2~4%と高濃度に含まれ、その他はFe(3~9%)、Mg(11~19%)、Al(4~7%)、K(1~2%)、S(0~1%)、Na(0%)、Ca(26~45%)、Si(10~25%)であった。地盤中のヒ素含有濃度は10mg/kg程度であるので、ヒ素汚泥中では数1000倍に濃縮されていることとなる。汚泥からのヒ素回収は再資源化の面で今後重要な研究課題となるであろう。

#### C-1-4. ヒ素汚泥の自然浄化について

ヒ素除去装置から排出される汚泥は、ヒ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。汚泥槽内および人工池内でのヒ素濃度や細菌活動などについては次のような結果が得られている。上澄み液のヒ素濃度は0.123mg/L（1年目）および0.178mg/L（2年目）であり、人工池の表面水のヒ素濃度は0.054mg/L（1年目）および0.057mg/L（2年目）と両年で変わらなかった。しかし、汚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ヒ素濃度はそれぞれ、1.347mg/L（1年目）、0.320mg/L（2年目）および0.086mg/L（1年目）、0.043mg/L（2年目）であった。1年目と2年目でタンク汚泥中のヒ素濃度がかなり異なっていた。汚泥タンク中は1年目では還元状態にあったが、2年目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、両年とも有機ヒ素（MMA,DMA）を確認することができた。

また、両年ともヒ素汚泥槽及び人工池において、ヒ素濃度にかかわらず $10^5$ cells/ml以上の生菌数を示し、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、ヒ素の影響は見られなかった。さらに、1000mg/Lのヒ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、ヒ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-2. 住民への水の供給と尿中及び毛髪中のヒ素代謝物関係（徳永主任研究者）

##### C-2-1. 地下水のヒ素汚染地域の土壌中の鉄、マンガン及びヒ素濃度

土壌中の鉄濃度は3.74~46.14 g/kg、マンガン濃度は96~871 mg/kg、ヒ素濃度は0.92~21.8 mg/kgであり、それらの平均値は、それぞれ、17.72g/kg、409 mg/kg及び4.93 mg/kgであった。ヒ素あるいは鉄濃度とも表層部分が多く、250 feetの砂層の部分まで低下し、420 feetの粘土層で増加し、420~480 feetの砂層で低下し、670~690 feetの砂層と粘土層の境界部分で上昇し、一番の高濃度を示した。土壌中のヒ素濃度と鉄濃度関係を示した。土壌中の鉄濃度とマンガン濃度及び鉄濃度とヒ素濃度の間に統計的に有意な相関関係( $P<0.05$ )があった。土壌中のiron pyriteが地下水に溶解する際にその中に含まれているマンガンとヒ素が同時に溶出してくる機構が考えられた。

##### C-2-2. 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

供給原水中の鉄濃度は、調査した平成18年2月~平成19年2月の間の鉄、マンガン及びヒ素の変化をTable 1に示した。鉄濃度は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。この処理水を 16 のヒ素被害家族に供給した。

### C-2-3. チュナカリ村のヒ素被害患者のヒ素症状

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 月及び平成 19 年 3 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及び痛みが軽減していることが観察された。その結果を Table 2 に示した。

### C-2-4. ヒ素被害家族から得られた毛髪中のヒ素濃度

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  $\mu$ 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  $\mu$ 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  $\mu$ 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

かったが、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。

### C-2-5. ヒ素被害家族から得られた尿中のヒ素代謝物

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) の平均値は 56.2, 412.7, 73.5 及び 28.9 ng/mg creatine であった。平成 18 年 2 月での尿中ヒ素代謝物の測定データの As(III)、DMA、MMA 及び As(V) の平均値は 11.8, 123.3, 20.1 及び 5.6 ng/mg creatine であった。安全な水を供給する前の平成 17 年 6 月と平成 18 年 2 月のヒ素代謝物の平均値を比較した時、平成 18 年 2 月のデータは平成 17 年 6 月のデータと比べて、それぞれ 0.21 倍、0.36 倍、0.27 倍及び 0.19 倍を示し、平成 18 年 2 月のデータは明らかに低い値を示した。このデータからも毛髪で見られたのと同じような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。平成 18 年 8 月の安全な水を供給し始めて 6 ヶ月後の尿中の As(III)、DMA、MMA 及び As(V) の平均値は 80.2, 1112.4, 120.0 及び 72.5 ng/mg creatine であった。高温多湿な時期の平成 17 年 6 月の尿中のヒ素代謝物、As(III)、DMA、MMA 及び As(V) の平均値を比較した時、平成 18 年 8 月のデータは平成 17 年 6 月のデータに比べて、それぞれ、1.4 倍、2.7 倍、1.6 倍及び 2.5 倍であった。この時期の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。

ヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量とヒ素患者の尿中のヒ素代謝物量を比較したところ、平成 17 年 6 月、平成 18 年 2 月及び平

成 18 年 8 月のどのデータとも両者の間には統計的な違いが観察されなかった。この結果はヒ素患者とそれ以外の家族が摂取しているヒ素量には違いがないことを示すデータであった。毛髪中のヒ素量の比較においても同様な結果が得られた。

#### C-2-6. ヒ素代謝物から見たヒ素被害家族のヒ素メチル化能

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 あるいは MMA/DMA の比率を求めた。両者の比が正常範囲を超えるヒトは 5 名いたが、各人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 % であり、と非常に多くのヒ素代謝物が MMA として尿中に放出されていた。(全ヒ素量 161.7 ng/mg creatinine) 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 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 775.3 ng/mg creatinine) と正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、大部分が無機ヒ素の形(全ヒ素量は 205.8 ng/mg creatinine) で放出されていた。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) し検出されていなかった。

#### C-3. 尿中ヒ素と DNA 損傷関係(山内分担研究者)

##### C-3-1. 井戸水中ヒ素濃度

対照群とヒ素暴露者群が使用していた井戸水からは無機ヒ素のみが検出された。対照群とヒ素暴露者群の井戸水中無機ヒ素濃度はそれぞれ

0.04 mg/L、0.16 mg/L であった。

##### C-3-2. 慢性ヒ素中毒の改善効果

研究成果として、患者に対して一日の砒素曝露量を 1 年間 100µg/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。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、砒素曝露を停止し 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。

##### C-3-3. 飲料水の改善の問題点

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。

#### C-4. 陰膳調査関係(大野分担研究者)

##### C-4-1. 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

平成 17 年(GSF 水供給前)と平成 18 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、平均値±標準偏差(最小値-最大値)の形で示すと、平成 17 年は 0.15±0.11 (0.043-0.49) mg-As/ day、平成 18 年は 0.13±0.04 (0.061-0.22) mg-As/day となった。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。

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）の形で示すと平成 17 年は  $0.90\pm 0.079$  ( $0.014 - 0.31$ ) mg-As/day だったものが平成 18 年には  $0.053\pm 0.030$  ( $0.0077 - 0.11$ ) mg-As/day まで減少している。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、平成 17 年には  $0.023\pm 0.027$  ( $0.0016 - 0.099$ ) だったものが平成 18 年には  $0.053\pm 0.030$  ( $0.0077 - 0.11$ )へと増加してしまっている。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 ( $0.05\text{mg/L}$ )よりは低い水(平成 18 年 8 月調査時の GSF 処理水ヒ素濃度は  $0.018\text{mg/L}$ )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( $0.001\sim 0.010\text{mg/L}$  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」の水を飲んでいただけだと推定しているが、実際に飲んでいただけ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。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。

#### C-4-2. 炊飯用水中ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度変化に関する研究

平成 16 年にナワブガンジ市内 18 家庭から採取した精米中のヒ素濃度は平均  $0.22 \text{ mg/ kg-dry}$ 、標準偏差は  $0.11 \text{ mg/ kg-dry}$  であった。それに対し、炊飯実験で用いた 3 種の精米中ヒ素濃度は SCV: 0.21, IRRI: 0.36, FVR:  $0.033 \text{ [mg/ kg-dry]}$ であった。

炊飯用水中ヒ素濃度と炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差について調べた結果、現地調査および炊飯実験のいずれにおいても、炊飯用水中のヒ素濃度が高くなるに従って炊飯前後のコメ中ヒ素濃度差が大きくなった。このとき、精米のヒ素濃度によらず同様の傾向が見られた。すなわち、炊飯用水中のヒ素が炊飯後のコメ中ヒ素濃度に影響を与えることが示された。

また回帰分析の結果、炊飯後のコメ中ヒ素濃度増加量については、(1) 炊飯用水ヒ素濃度、(2) 精米ヒ素濃度 (3) 炊飯後の含水率増加という3つの要素で説明できると考えられた。

#### D. 結論

##### D-1. GSF 施設に関連(横田分担研究者)

C-1で述べた種々の設計基準は以下のような考察で妥当であると考えられる。

1. GSFはこの4年間、メンテナンスの実施のもとで効果的なヒ素除去を行っている。GSF内で鉄と共沈したヒ素（ヒ素汚泥）には数%のヒ素が濃縮

されていることでも証明される。これはB. で述べた設計基準で稼動している実態を表しているので、逆に言えば基準の確かさを示すものといえる。

2. ヒ素汚泥の固化処分方法としては、セメント2%添加すれば、汚泥中のヒ素は95%以上が汚泥中に閉じ込められ、溶出試験によるヒ素濃度は0.05~0.11mg/Lとわが国の第2溶出基準をクリアしている。バングラデシュに廃棄物処分システムが出来るまではドラム缶で貯蔵するだけでよいと考えられる。

3. ヒ素汚泥槽の上澄み液のヒ素濃度は、0.123~0.178mg/L (1~2年目) 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 (1~2年目) 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:1年目)、または酸化下 (ORP=+200mv:2年目) でのヒ素耐性能のある微生物の活動が確認された。

4. 汚泥槽の上澄み液が流入している人工池では表面水のヒ素濃度が0.054mg/L (1年目)、0.057mg/L (2年目)、底部泥からのヒ素溶出試験濃度が0.086mg/L (1年目)、0.043mg/L (2年目) と高濃度であるが、ここでも、ヒ素耐性能のある微生物の活動が確認された。

5. このヒ素耐性能のある微生物の存在は、1000mg/Lのヒ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、有機ヒ素 (MMA, DMA) の存在確認は、ヒ素の微生物による代謝活動をも示唆するものであった。

6. 今後この種の研究が続行されてゆけば、将来はヒ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。

7. GSFは特別なヒ素吸着剤など使わないので、低廉でメンテナンスも簡単である。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ヒ素汚染村の存在が明らかとなってきた。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。

8. 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。そうなれば、GSFは例えば、ネパール・テライ平原やインドガンジス川中流域のヒ素汚染地などでも使われることとなる。その折もGSF建設にかかわってゆきたいものと思っている。

## D-2. 住民への水の供給と尿中及び毛髪中のヒ素代謝物関係 (徳永主任研究者)

1. 土壌中の鉄濃度は 3.74~46.14 g/kg、マンガン濃度は 96~871 mg/kg、ヒ素濃度は 0.92~21.8 mg/kg であり、それらの平均値は、それぞれ、17.72g/kg、409 mg/kg 及び 4.93 mg/kg であった。土壌中の鉄濃度とマンガン濃度及び鉄濃度とヒ素濃度の間に統計的に有意な相関関係 ( $P < 0.05$ ) があつた。

2. ヒ素汚染地下水を GSF 施設で処理することにより、供給原水中のヒ素の 193 ppb~291 ppb を 21 ppb~59 ppb とすることが出来た。

3. 調査対象家族数 16 家族に 1 年間、安全な水を供給することにより、皮膚科医の診断で、かなりのヒ素被害患者の重傷度及び痛みが軽減していることが観察された。

4. 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。

5. 高温多湿な時期の平成 17 年 6 月の尿中のヒ素代謝物、As(III)、DMA、MMA 及び As(V) の平均値を比較した時、平成 18 年 8 月のデータは平成 17 年 6 月のデータに比べて、それぞれ、1.4 倍、2.7 倍、1.6 倍及び 2.5 倍であった。この時期の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。

6. ヒ素症状が見られない家族の尿中のヒ素代謝物量とヒ素患者の尿中のヒ素代謝物量を比較したところ、平成 17 年 6 月、平成 18 年 2 月及び平成 18 年 8 月のどのデータとも両者の間には統計的な違いが観察されなかった。

### D-3. 尿中ヒ素と DNA 損傷関係(山内分担研究者)

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、ヒ素の無毒化の処理システムの開発や技術指導は、今後のアジアや中南米諸国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。

### D-4. 陰膳調査関係(大野分担研究者)

平成 17 年(GSF 水供給前)と平成 18 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。

1. 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 水を供給することによって水を運搬する労力が軽減され、また、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が安全な水を供給することの効果として考えられた。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おうという欠点も見られた。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。

2. 炊飯用水中のヒ素が炊飯後のコメ中ヒ素濃度に与える影響について、現地調査およびバングラデシュ式炊飯実験の結果、炊飯用水中のヒ素濃度と炊飯後のコメ中ヒ素濃度増加量の間に正の相関が見られた。また、炊飯後のコメ中ヒ素濃度変化については、炊飯用水ヒ素濃度・精米ヒ素濃度・炊飯後の含水率増加分という3つの要素で説明できることが示された。

バングラデシュ・チュナカリ村に設置された GSF 施設は当研究の期間中は AAN バングラデシュの協力を得ながら実施された。1 年間の実施期間中に現地住民への GSF 施設の維持管理の技術が AAN バングラデシュの技術者を通じて行われた。本研究期間の終了後は、Rahman 教授及び住民共同体の議長との話し合いの結果、住民共同体が GSF 施設の維持管理費に寄付を募りながら実施することが明らかにされている。ヒ素被害家族 16 家族が調査の対象で確実にその家族が安全な水を使用すること確保するため、毎日 16 家族に一定量の水を人力で配水していたのであるが、安全な水であるとの評価が住民の間に広がり、平成19年3月の調査では、おおよそ 165 家族が GSF 施設で処理後の水を飲料水及び調理用水に使用しているとのことであった。

### E. 研究発表

#### 1. 論文発表

##### 1-1. 横田分担研究者関連

1) H. 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 1st 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 1st 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 1st 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 1st Intern. Symp. on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and its Countermeasures, pp.166-169, Nov., 2006.

5) Miah M., Hussainuzzaman, H. 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.

6) Miah M., Hussainuzzaman, H. Yokota: Performance of Arsenic Removal Unit Installed in Bangladesh and Cement Solidification of Arsenic Sludge from the Unit, Proc. of 16th Intern Conf. on Soil Mechanics & Geotechnical Engineering, pp.2379-2382, Spt.,2005.

7) M. M. Hussainuzzaman, Y. Setoyama, D. Kataoka and H. Yokota: Arsenic removal and sludge treatment for Gravel Sand Filter, 1st IWA-ASPIRE, Conference & Exhibition, Environmental Engineering Society of Singapore, F¥IWA-ASPIRE¥index.htm, July,2005.

8) H. Yokota: Arsenic pollutions of groundwater in the world and arsenic removal unit installed in Bangladesh, Keynote Lecture, Vietnam-Japan Joint Seminar on Geotechnics and Geoenvironment Engineering, Hanoi, November,pp.226-242,Oct.,2004.

9) Miah M. Hussainuzzaman, Y. Setoyama, D. Kataoka, H. Yokota: Arsenic Removal Performance Analysis of the Gravel Sand Filter, Vietnam-Japan Joint Seminar on Geotechnics and Geoengineering, Oct.,2004.

10) Miah M. Hussainuzzaman, Y. Setoyama, D. Kataoka, H. Yokota: Performance and Maintenance of Arsenic Removal Unit Installed at Bangladesh, International Symposium on Lowland Technology, 2004 (ISLT 2004), Bangkok, Thailand, September, 2004.

#### 1-2. 徳永主任研究者関連

1) H. Tokunaga, T. Roychowdhury, T. Uchino, M. Ando: Urinary arsenic species in an arsenic-affected area of West Bengal, India(part III), Appl. Organometal. Chem., 2005, 19, 246-253.

2) T. Roychowdhury, H. Tokunaga, T. Uchino, M. Ando: Effect of arsenic-contaminated irrigation water on agricultural land soil and plants in West Bengal, India, Chemosphere,

2005, 58, 799-810.

3) T. Tsuchiya, T. Tanaka-Kagawa, H. Jinno, H. Tokunaga, K. Sakimoto, M. Ando, M. 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).

4) R. Marcos, V. Martinez, A. Hernandez, A. Creus, H. Hokunaga, D. Quinteros: Metabolic Profile in Workers Occupationally Exposed to Arsenic: Role of GST Polymorphisms, JOEM, 48, 334-341(2006).

5) 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).

6) H. Tokunaga, T. Uchino, Y. Ikarashi, M.H. 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).

#### 1-3. 山内分担研究者関連

1) Loffredo CA., Aposhian HV., et al., Variability in human metabolism of arsenic. Environ Res. 92, 85-91, 2003.

2) Yoshida T., Yamauchi H., et al., Chronic health effects in people exposed to arsenic via the drinking water: dose-response relationships in review. Toxicol Appl Pharmacol. 198, 243-252, 2004.

3) Yamauchi H., Aminaka Y., et al., Evaluation of DNA damage in patients with arsenic poisoning: urinary 8-hydroxydeoxyguanine. Toxicol Appl Pharmacol. 198, 291-296, 2004.

#### 1-4. 大野分担研究者関連

1) 大野浩一、古川明彦、林健司、亀井翼、眞柄泰基(2004) バングラデシュにおける地下水ヒ素

濃度と他の金属・イオン類濃度との関連、環境工  
学研究論文集, 41, 591-600

2) K. Ohno, A. Furukawa, K. Hayashi, T. Kamei and Y. Magara (2005) Arsenic contamination of groundwater in Nawabganj, Bangladesh, focusing on the relationship with other metals and ions, *Water Science & Technology*, 52 (8), 87-94

## 2. 学会発表

### 2-1. 横田分担研究者関連

1) 伊藤 健一, 東谷 健一郎, 宮原 英隆, 成澤 桂, 池田 穂高, 倉 洋明, 福土 圭介, 川西 琢也, 佐藤 努, 米田 哲朗, 横田 漢: 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.

2) 福田 博之, 埜 嘉一, 片岡 大輔, M. M. Hussainuzzaman, 田辺公子, 横田 漢: バングラデシュで設置稼働中のヒ素除去装置GSF の性能について, H. 17土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 563-564, H. 18. 3.

3) 松本直之, 若林貢, M. M. Hussainuzzaman, 田辺公子, 横田 漢: ネパールにおける地下水ヒ素汚染の特徴〜トクノワール村の調査結果〜, H. 17土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 565-566, H. 18. 3.

4) 前田倫志, 吉川正道, M. M. Hussainuzzaman, 田辺公子, 上野俊夫, 古川改造, 横田 漢: 火山灰質セラミックスのヒ素除去装置への適用に関する基礎実験, H. 17土木学会西部支部研究発表会講演概要集, pp. 567-568, H. 18. 3.

5) 若林貢, 宮崎大学ヒ素研究グループ, 九州大学谷研究室, AAN, 「ネパールにおける地下水ヒ素汚染の特徴〜クノワール村とパトカリ村の調査結果〜」, 第10回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 新潟市, pp. 67-69, 2005年11月.

6) 田辺公子, 若林貢, 古結英樹, 帖佐宣昭, 瀬戸山充, 宮武宗利, 横田漢: ネパール・ナワルパラシ郡における地下水ヒ素汚染, 第12回ヒ素シンポジウム, 岩手県立大学, pp. 86-87, 2005年11月.

7) 宮武宗利, 林幸男, 田辺公子, 横田漢: バングラデシュに設置したヒ素除去装置の汚泥処理に関する研究, 第12回ヒ素シンポジウム 岩手県立大学, pp. 50-51, 2005年11月.

8) 大栄薫, 田貝泰之, 大島達也, 馬場由成, 志水雅之, 三宅義和, 堀河俊英, 横田漢: マグネタイト微粒子を用いたヒ素の吸着特性, 第12回ヒ素シンポジウム, 岩手県立大学, pp. 36-37, 2005年11月.

### 2-2. 徳永主任研究者関連

1) 徳永裕司, T. Roychowdhury, 内野 正, 安藤 正典: インド西ベンガル州の地下水ヒ素汚染地域でのヒト尿中ヒ素化合物に関する研究, フォーラム 2004: 衛生薬学・環境トキシコロジー, 2004年10月.

2) 内野 正, T. Roychowdhury, 徳永裕司: バングラデシュにおけるヒ素汚染に関する研究: 稲中へのヒ素蓄積について, フォーラム 2005: 衛生薬学・環境トキシコロジー, 2004年10月.

3) 徳永裕司, T. Roychowdhury, 内野 正, N. Das, D.K. 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2005年10月.

3) 徳永裕司, T. Roychowdhury, 内野 正, N. Das, D.K. 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, 2005年11月.

5) 内野 正, T. Roychowdhury, N. Das, D.K. 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, 2005年11月.

6) 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

7) 徳永裕司, 内野 正, 五十嵐良明: 「バングラデシュ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, 2006年11月.

8) 内野 正, 五十嵐良明, 徳永裕司: 「バングラデシュ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、2006年11月。  
9) 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.

10) 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.

### 2-3. 大野分担研究者関連

1) 中添真弥、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基 (2004) 鉄系凝集剤 PSI によるヒ素除去に関する研究、第 55 回全国水道研究発表会講演集、pp.140-141

2) 江端克明、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基 (2004) PSI を用いた凝集処理における攪拌条件とフロック粒径との関係、第 55 回全国水道研究発表会講演集、pp.142-143

3) K. Ohno, A. Furukawa, K. Hayashi, T. Kamei and Y. Magara (2004) Arsenic Contamination of Groundwater in Nawabganj, Bangladesh, Focusing on the Relationship with Other Metals and Ions, The Proceedings of 4th IWA World Water Congress, in CD-ROM (paper ID: 134280), Marrakech, Morocco

4) 大野浩一 (2004) ヒ素とアンチモンの NF 膜による処理、ニューメンブレンテクノロジーシンポジウム 2004、pp. 2-1-1~2-1-11

5) 草野真一、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基 (2004) 鉄系凝集剤 PSI を用いた有害金属類の凝集効果と E260 による迅速な処理性評価、第 12 回衛生工学シンポジウム論文集、pp. 117-120

6) 梁瀬達也、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基 (2004) バングラデシュ井戸水ヒ素汚染地域における食物中ヒ素の分析、第 41 回環境工学研究フォーラム講演集、140-142

7) T. Yanase, K. Ohno, T. Kamei and Y. Magara

(2005) Analysis of arsenic concentration in foods and the total daily intake of arsenic in Nawabganj, Bangladesh, *Proceedings of 1st IWA-ASPIRE Conference and Exhibition* [CD-ROM], Singapore, Jun. 2005

8) 中添真弥、草野真一、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2005) 鉄系凝集剤 PSI によるヒ素及び E260 除去における 2 成分系吸着等温線の適用性に関する研究、第 56 回全国水道研究発表会講演集、米子市、142-143、2005.5

9) 草野真一、大野浩一、亀井翼、眞柄泰基(2005) 鉄系凝集剤 PSI による金属類の凝集除去効果と E260 による迅速な処理性評価、第 56 回全国水道研究発表会講演集、米子市、142-143、2005.5

10) 松尾祐樹、梁瀬達也、大野浩一、眞柄泰基 (2005) バングラデシュ井戸水ヒ素汚染地域における炊飯前後のコメ中ヒ素濃度変化について、第 12 回ヒ素シンポジウム講演要旨集、岩手県立大学、80-81、2005.11.5-6

11) 松尾祐樹、梁瀬達也、大野浩一、松井佳彦、眞柄泰基(2006) Bangladesh 井戸水ヒ素汚染地域住民に対する陰膳調査による水と食物からのヒ素摂取量の推定、第 40 回日本水環境学会年会講演集、於：東北学院大学、p.258、2006.3.15-18

12) 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.

13) 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.

F. 知的財産権の所得状況  
特になし

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										
	duration of symptom	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars										
	hyperkeratosis severity	palm,sole V	sole IV		palm,sole V	palm,sole III	palm,sole II	palm,sole IV	palm,sole IV	palm,sole V	palm,sole V	palm,sole V	palm,sole II	palm,sole III	palm,sole III
	pain	slight	strong		weak	strong	slight	strong	slight	slight	slight	slight	slight	slight	strong
	melanosis severity	chest,back strong	chest,back strong		chest,back strong	-	-	chest,back strong							
	present or absent	present	present	absent	present	absent									
	duration of symptom	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars										
	Feb. 2006	hyperkeratosis severity	palm,sole V	sole IV		palm,sole V	palm,sole III	palm,sole II	palm,sole IV	palm,sole IV	palm,sole V	palm,sole V	palm,sole I	palm,sole II	
pain		strong	-		weak	strong	slight	strong	strong	strong	strong	slight	strong		
melanosis severity		chest,back strong	chest,back strong		chest,back strong	-	-	chest,back strong	chest,back strong	chest,back strong	back strong	chest,back strong	chest,back strong		
present or absent		present	present	present	present	present	absent	absent	present	present	present	present	present	present	
duration of symptom		>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars										
Aug. 2006		hyperkeratosis severity	palm,sole V	sole IV		palm,sole V	palm,sole II			palm,sole II	palm,sole I	palm,sole II	palm,sole I	palm,sole I	
		pain	-	-	strong	-	weak			slight	slight	slight	slight	-	strong
		melanosis severity	chest,back strong	chest,back slight	chest,back strong	chest,back strong	chest,back slight			-	chest,back slight				
		present or absent	present	present	absent	present	absent	present	absent	present	present	present	present	present	present
		duration of symptom	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars					
	March. 2007	hyperkeratosis severity	palm,sole III	sole II		palm,sole IV		palm,sole I		palm,sole I		palm,sole I	palm,sole I	palm,sole I	
		pain	-	slight		weak		slight		-		slight	slight	slight	strong
		melanosis severity	chest,back strong	chest,back slight	chest,back weak	chest,back weak				-		chest,back slight	chest,back slight	chest,back slight	chest,back slight
		present or absent	present	present	absent	present	absent	present	absent	present	present	present	present	present	present
		duration of symptom	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars	>3 yerars	>3 yerars		>3 yerars	-	>3 yerars	>3 yerars	>3 yerars	>3 yerars



厚生労働科学研究費（地域健康危機管理研究事業）

総合研究報告書

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

小濱とも子 国立医薬品食品衛生研究所・環境衛生化学部

近年、地下水のヒ素汚染による大規模な健康障害がインド、バングラデシュ、中国等で報告され、現在の推計では、高濃度ヒ素暴露者が、インド・バングラデシュで約 4700 万人、中国で約 300 万人とされている。慢性ヒ素中毒で最も重大な問題は発癌であり、暴露歴は 20 数年を経過中で、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。

平成 16 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、バングラデシュ国際下痢性疾患研究センター（ICDDR, B）では Dr. Mahfuzar Rahman をパートナーとして、ICDDR, B の Matlab 地区の Matlab 地域センターが 2002 年より実施している Arsenic Matlab 計画の中のヒ素患者数、井戸水中のヒ素量の調査を行った。平成 17 年 2 月 28 日～3 月 3 日、ラシャヒ大学の Md. Hamidur Rahman 教授及び Birkis Bergum 準教授をパートナーとして、チャパイナワブガンジ地区のヒ素汚染を調べるため、Department of Public Health Engineering (DPHE) の地区事務所を訪れ、管井戸のヒ素汚染状況、深井戸の建設計画などの情報を収集した。更に、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チュナカリ村、バハラム村及びラザランプール村を訪れ、ヒ素患者の調査と深井戸建設の可能を調査した。その結果、チュナカリ村を深井戸掘削の候補地とし、安全な水の供給の計画を進めることにした。

平成 17 年度は、平成 17 年 6 月 13 日～14 日、北海道大学大野先生と一緒にチュナカリ村をラシャヒ大学の Md. Hamidur Rahman 教授、Bilkis Bergum 準教授及びラシャヒ医科大学の A. K. B. Zaman 準教授と一緒に訪れ、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の建設に際しての、各地下深度に対応した土壌中のヒ素、鉄及びマンガンの含有量を測定すると同時にヒ素被害家族 18 家族から尿及び毛髪を採取した。平成 18 年 2 月 4 日～5 日、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(GSF)施設の村民への贈与式と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した。

平成 18 年度は、安全な水の供給をヒ素被害家族 16 家族に供給を始めて 6 ヶ月後の平成 18 年 8 月 20 日～21 日にチュナカリ村を訪れて採取したヒ素被害家族から毛髪中のヒ素濃度及び尿中のヒ素代謝物濃度の測定とヒ素被害患者のヒ素被害の症状を観察した。更に、平成 19 年 3 月 2 日、安全な水の供給 1 年後の調査をチュナカリ村で行い、ヒ素症状の外見的变化の観察と毛髪及び尿の採取を行った。

3 カ年間の研究を通じ、ヒ素被害家族を対象に安全な水を供給する前と後でのヒ素患者のヒ素症状の変化と毛髪及び尿中のヒ素代謝物の変化を検討し、ヒ素による暴露評価と健康影響に関する考察を行い、安全な水の供給により、ヒ素被害の軽減が観察された。

## 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、本格的な発癌の頭在化までに、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、ヒ素処理の水を供給する前と後でのヒ素暴露量の推定がなされていない、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及びヒ素処理後のヒ素含有汚泥による二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ことである。

平成16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候補地を選び、現地の協力者としてラシャヒ大学地質・鉱山学部の M. Hamidur Rahman 教授、同大学芸術学部の Bilkis Bergum 教授を選定した。

平成17年度は、平成17年6月13日～14日、北海道大学大野先生のグループと一緒に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 準教授と一緒に訪れ、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、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、深層管井戸の試掘の結果を報告した。また、平成18年2月4日～5日、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(GSF)施設の村民への贈与式と管井戸の水及びヒ素除去処理後の飲料水並びにヒ素被害家族からの尿及び毛髪の採取を行った。

平成18年度は、安全な水の供給をヒ素被害家族16家族に供給を始めて6ヶ月後の平成18年8月20日～21日に北海道大学大野先生のグループ、Rahman 教授、Bergum 教授及び Zaman 助教授と一緒にチュナカリ村を訪れて採取したヒ素被害家族から毛髪及び尿の採取とヒ素被害患者のヒ素被害の症状の調査を行った。平成19年3月2日、Rahman 教授、Bergum 教授及び Zaman 助教授と一緒にチュナカリ村を訪れて採取したヒ素被害家族から毛髪及び尿の採取とヒ素被害患者のヒ素症状の調査を行った。

これらの結果を基にヒ素被害家族に安全な水を供給し始めた後のヒ素症状の外見的な変化と毛髪中のヒ素濃度及び尿中のヒ素代謝物濃度の変化を合わせて検討し、ヒ素による暴露評価と健康影響に関する考察を行ったので報告する。

## B. 研究方法

### B-1. 地下水のヒ素汚染地域の探索

#### (1) バングラデシュ国際下痢性疾患研究センター (ICCD, B) をパートナーとする調査

平成16年12月4日～9日、ICCD, B を訪れ、Dr. Mahfuzar Rahman (Arsenic and Environmental Epidemiologist, Public Health Sciences Division) の案内のもと、ICCD, B の施設の見学とヒ素分析の機器などの調査を行った。ヒ素の測定には還元気化法を用いた AAS の装置 (Nutritional