

インドにおける、砒素地下水汚染と毛髪による環境モニタリング

能田 淳¹、袴田麗香¹、鈴木一由¹、三浦照男²、世良耕一郎³

¹酪農学園大学

069-8501 北海道江別市文教台緑町 582

²サムヒギンボトム農工科大学

Allahabad, 211007 U.P., India

³岩手医科大学サイクロトロンセンター

020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

ヒ素による汚染地域は世界各地に存在しているが、その中でもインド・西ベンガル、バングラデシュではヒ素による地下水汚染の影響を受けている人工が多い地域である^{1,2)}。飲料水、食物などからの慢性的な暴露は、皮膚、循環器、発がんなど様々な健康被害を及ぼすことが報告されており、深刻な環境汚染問題の一つである¹⁾。慢性毒性を及ぼす可能性の高いヒ素汚染は、ヒ素自体が無味、無臭、無色であることから、気がつかないまま摂取しているため、対策には汚染状況の調査と併せて、汚染地域住民への情報提供と住民の理解が必要とされる複雑な問題である。そもそも、ヒ素問題が拡大した理由の一つには、水系感染症対策として、開放式の井戸からパイプを地中深くに打ち込む手押しポンプ式深井戸への移行が1980年代に進み多くの井戸はこのポンプ式深井戸が活用されていることと関係している¹⁾。水系感染症の健康被害を減らすために導入したポンプ式深井戸は大きく貢献し、下痢症などで死亡する乳幼児が激減したことは素晴らしい功績であるが、ヒ素を多く含む地質層を有する地域ではこれがヒ素汚染の原因となってしまった。地中の深い場所から採水を行うため、地中の鉱物、堆積物によってはヒ素が地下水に溶解してしまうことに由来する。ヒ素の特徴として、還元状態に置かれると鉄などと結合していても水に溶解し易くなり、酸素が乏しい地下数10メートルの地層内では、容易にヒ素の溶解が進んでしまう。

これまでにバングラデシュや、インド・西ベンガルでの調査が中心的に報告されているが^{2,3,4,5)}、まだまだ調査が行われていない地域が存在する。本研究グループの調査対象地であるインド北部のウッタープラデッシュ州、アラハバード地区の農村部では、これまでの試験的な調査から井戸水中にヒ素がWHOの基準値である10ppbを越える濃度で検出されており、これらのヒ素が地域の住民の体内に取り込まれていることが危惧されている。そこで、本調査ではこれまでに測定があまり行われていないアラハバード地区の小規模農村地域にて、井戸水のヒ素濃度が高い地域の住民においては人へのヒ素高濃度蓄積が起こっているとの仮説を検証するために地下水のヒ素汚染状況と併せて、地域住民の毛髪試料採取の協力を得て測定を行った。これらの検証結果が、地域住民や自治体に現状を把握してもらうことにつながり、今後の対策を検討する際の一助となるような情報の収集を目的とする。

2 材料と方法

採材された場所は、インド、ウッタープラデッシュ州、アラハバードの小規模な農村、Kanua, Chota Kanjasa, Bada Kanjasa である。これらの村に設置されたポンプ式井戸水を採取直後にヒ素濃度の測定を比色式の測定キット Merckoquant® (Merck, Germany) で行い、ヒ素測定の結果を待つ間に pH、酸化還元電位 (ORP) を電位差測定器 (Horiba, Japan) にて測定した。pH、ORP の測定は、現地でのヒ素酸価数の把握を目的としている。毛髪サンプルは、粒子励起 X 線分析法 (PIXE) にて微量元素 32 項目についての多元素分析を、また硝酸にて熱分解後に原子吸光光度計にて定量測定を行った。測定された結果に地域性が存在するかについて t 検定にて統計学的な解析を行い、有意差は $P < 0.05$ とした。

3 結果と考察

三つの村落と測定を行った井戸水中のヒ素濃度の平均値、標準誤差、サンプル数 (n) を図 1 に示した。この結果から、Bada Kanjasa にて Kanua と Chota Kanjasa より有意に高い平均値 72 ppb が検出された。これら 3 農村はヤムナ川に沿って約 1.5 km 間隔で存在している。上流から Kanua、Chota Kanjasa、Bada Kanjasa と続いている。人工衛星からの写真ではヤムナ川の形状、幅などに大きな差はみられないが、Bada Kanjasa の近くにおいては中州が存在しており、堆積物が何らかの理由で多く存在していることが推測できる。村落はどれも川

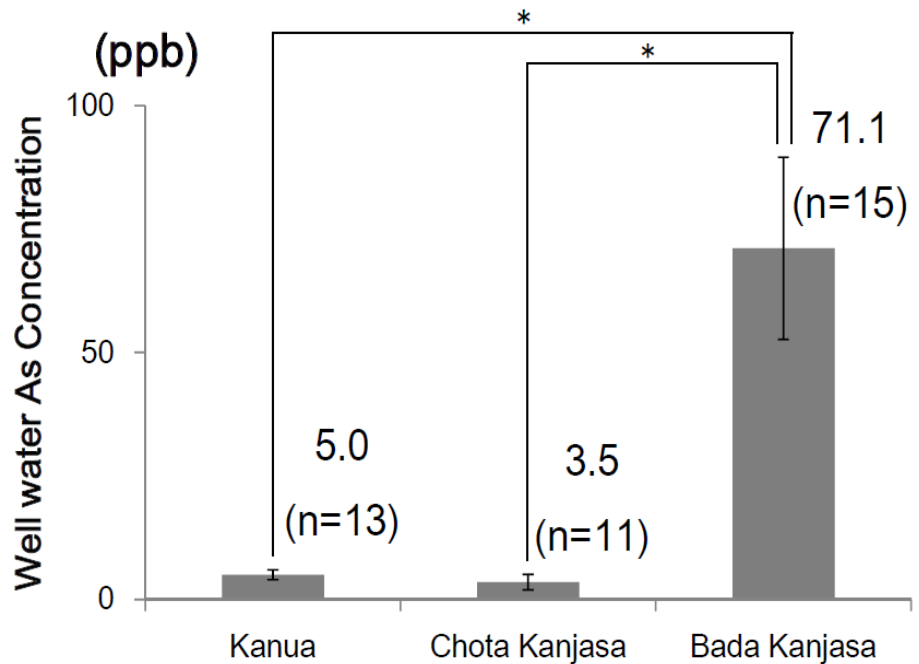


図 1. アラハバード近隣村落における井戸水中に含まれる総ヒ素濃度の平均値 (サンプル数) と標準誤差 (SEM) をボックスプロットにて表記した。
*: $P < 0.05$

沿いに位置し、距離もそれほど離れていないにもかかわらずヒ素濃度に有意差があることから、地質的なばらつきが要因として考えられる。上記、Bada Kanjasa 付近のヤムナ川における中州の存在から、何らかの地形的な要因で、上流の山岳地帯などから河川の流れて運ばれてきた鉱物資源に富んだ土石流が多く堆積し、それらがこの地域独特の地層を形成した可能性が考えられる。地形的な違いなどがどの様に地下水におけるヒ素濃度に影響を及ぼしているのか、堆積物の組成の違いなどと併せて、多面的な検証でヒ素高濃度地帯の推測が可能となることに期待したい。

本報告では個々の井戸の値は表記していないが、同一村の中においてもヒ素濃度に不規則性が認められており、村ごとの平均値で比較を行うと、高い濃度のヒ素を含む井戸を見過ごしてしまう可能性がある。また、村における井戸間の距離や、人工密度、一井戸あたりの利用者数などもより詳細な健康被害調査を行う際には重要な要素であることを考慮する必要がある。また、季節によって、川の水位、地下水位も変化することが考えられ、それぞれの井戸がこれらの変化から受ける影響を把握することも重要である。水門地質学的手法での地下水におけるヒ素の濃度変化の把握はこれまでも報告があり⁷⁾、今後はこういったアプローチに活用できるデータの測定、蓄積を同時に行っていくことなどが大切であると考えられる。

表 1. 調査を行った3つの農村とヤムナ川*の ORP と pH の平均値 (±σ)

Location	Kanua	Chota Kanjasa	Bada Kanjasa	Yamuna River
ORP	- 105 (± 11)	- 80 (± 46)	- 106 (± 36)	57
pH	7.2 (± 0.1)	7.0 (± 0.2)	7.3 (± 0.1)	8.1

*ヤムナ川は1測定のため平均値 (±σ) は除く

本調査より測定された pH と ORP の測定からの平均値と標準偏差値を上記の表 1 にまとめた。これらの結果から、この地帯の井戸水はヤムナ川の水と比較して、強い還元状態にありヒ素の形態としては、亜ヒ酸（三酸化の無機ヒ素）が多く存在していることが理論上推測される⁸⁾。亜ヒ酸は、ヒ酸（五酸化の無機ヒ素）に比べ毒性が高く、高濃度のヒ素が検出された、Bada Kanjasa 村においては WHO の定める基準値の 7 倍以上が検出されており、濃度の高さと併せて、毒性の高い亜ヒ素を含む井戸水を生活に利用していることは、健康被害が起こる危険性が高いことが考えられる。調査対象の 3 村では、井戸からの水を頼りに生活しており、飲料水のみならず、調理、身体を洗うなどの衛生管理、洗濯、その他の生活用水のほぼ全てに活用していることから、様々な経路で、井戸水からのヒ素暴露を受けていることが考えられる。

毛髪サンプルは、アンケート調査の一環として行われ、アンケートの内容には、村の住民に対して、性別、年齢、通常利用している井戸の位置、利用期間、健康問題の有無などについての聴き取り調査を行った。これらについての詳細は本報告では割愛させていただくが、調査に参加して下さった住民には Kanua を除いて女性が多く 10~40 代が全体の 8 割以上を占めている。

原子吸光光度計にて測定した人の毛髪中に含まれるヒ素濃度の違いを村ごとの平均値として図 2 に示した。サンプル数 9~13 を村ごとの平均値と共に明記した。統計解析の結果、Kanua、Chota Kanjasa に比べ Bada Kanjasa にて有意に高い値が認められた。この結果から、井戸水を生活用水として利用していることで、人の毛髪へのヒ素蓄積が確認された。これらのことから、村ごとの井戸水中のヒ素濃度と毛髪中のヒ素濃度には相関があることが確認できた。これらのことから、今後はどのような暴露経路でヒ素が人の体内に取り込まれているのか、健康被害がどれくらいあるのかなどについての調査を進めていく必要がある。

本調査にて村の住民に直接話しを伺っている中ではそれほど大きな健康問題を抱えている印象は受けなかった。しかし、アンケートに回答してくれた住民の 3~4 割が近隣の医療機関を利用していると回答したことから、一時的な調査訪問では見えない健康上の問題が潜んでいるのかもしれない。ヒ素の急性毒性は短時間で死に至り毒性作用の有無が明確だが、今回の調査対象の暴露形態から推測される慢性毒性では、明確に毒性作用（被害）の

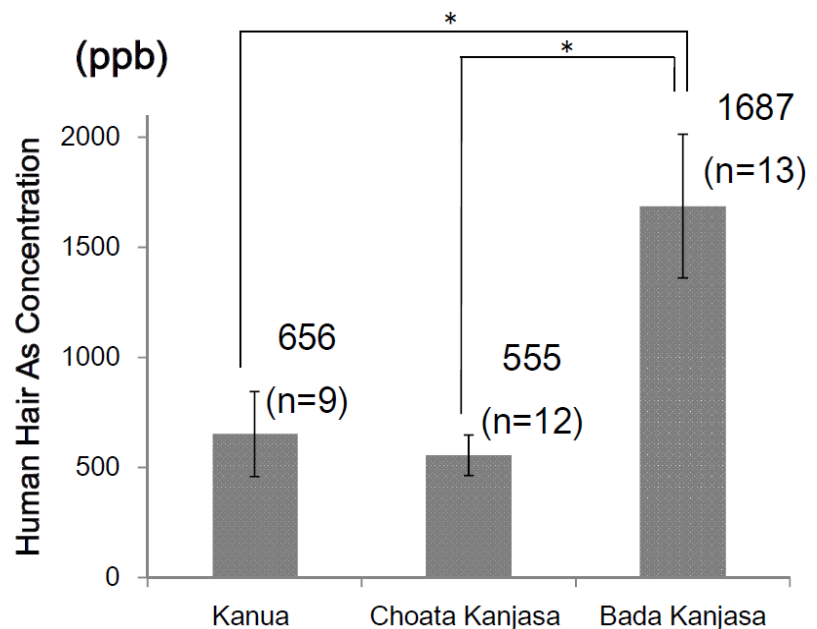


図 2. アラハバード近隣村落住民における毛髪中に含まれる総ヒ素濃度の平均値 (サンプル数) と標準誤差 (SEM) をボックスプロットにて表記した。*: $P < 0.05$

有無を知ることは難しい。ヒ素の慢性毒性症状は様々であるため、ヒ素が直接の原因物質として特定することをさらに難しくしている。また、アンケート及び採材に協力してくれたのはあくまでも自主的に村の広場に集まってくれた方々であることから、既にある程度の健康障害を持ち、広場まで出てこなかった方々は調査の対象外であり、採材手法におけるバイアスが発生している可能性がある。これらを考慮して、今後はランダムな訪問調査などを行い、住民の健康状態をより正確に把握することが必要である。

本調査は、あくまでもヒ素の影響を中心に検証を進めてきたが、PIXEによる多元素測定の結果からヒ素以外に、臭素、ガリウム、ジルコニウム、鉛の値が Chota Kanjasa にて高い傾向であることが判明した。その中でも、鉛は特に高く、図3に示した PIXE にあるように Chota Kanjasa にて Bada Kanjasa より有意に高い値が検出された。特筆する点は、この毛髪中の鉛の値の高さである。比較対象として、有鉛ガソリンや大気汚染がひどい状況であった昭和51年から60年までの日本における測定では毛髪中に1.1–22.9 ppmの鉛成分が検出されている⁹⁾。この報告にある

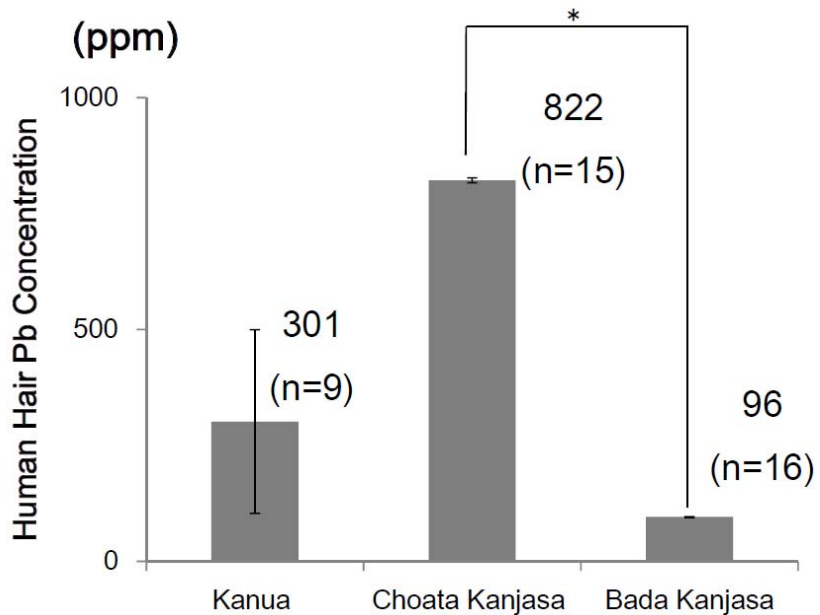


図3. アラハバード近隣村落住民における毛髪中に含まれる総鉛濃度の平均値(サンプル数)と標準誤差(SEM)をボックスプロットにて表記した。*: $P < 0.05$

最も高い値、22.9 ppmと比較すると、Chota Kanjasaでの平均値である822 ppmは約36倍となり値の高さが理解できる。鉛の暴露は様々な経路が考えられ、水道管、塗料、有鉛ガソリンなどが、水、大気、土壌などの汚染経路を介して人への直接暴露、飲料水、食物などからの間接暴露の可能性が考えられる¹⁰⁾。あくまでも一仮説としてだが、近隣に大規模な火力発電所が存在し、この施設からの大気汚染が鉛汚染源であるというものである。石炭などの化石燃料には鉛などの重金属が含まれている場合があり、排気の際に適切な清浄装置を利用しないと、煤塵などが大気に排出され、それらと共に鉛などが飛散し汚染源となる可能性がある。しかし、近隣に位置する、Bada Kanjasaにおいては、有意に低い値が出ているので、大気モニタリングなどを同時に行い、煤塵の流れの違いが存在するのかなどの確認を行う必要がある。また Kanua では測定値に大きなばらつきがあることから、大気環境からの暴露以外に、何か別の要素である可能性がある。その他の仮説としては土壌由来の暴露による影響が考えられ、地域ごとの土壌鉱物種の差が存在すれば地域差の説明ができる。鉛濃度の高い土壌地域で生活する人々であれば、鉛の暴露を様々な経路で受ける可能性が十分考えられる。今回調査を行った農村地域の住居は土壁を使用している家屋が多く、近隣の土壌(泥)を漆喰として活用しており、これらが乾燥すれば微細な土壌粒子成分が室内大気中に飛散し、呼吸器などを介して、人の体内に取り込まれてしまう可能性が十分考えられる。今後、土壌や漆喰の成分分析などの調査、比較が必要であると考えらる。

今回の、調査はヒ素に重点を置いていたことで、鉛が非常に高い濃度で検出されたことは全くの想定外であった。さらなる調査、測定が必要であることから、あくまでも予備的な情報として受け止めていただきたい。本調査では鉛中毒症状を持つ住民が存在についての確認はできていない。だが、もしこれだけ高濃度の

鉛に暴露されていることが事実だとすると、現地の住民は健康被害にさらされている可能性が十分考えられ、環境試料からの鉛の測定など、暴露源の特定と併せて、早急な事実関係の解明の後に情報提供を行う必要がある。

最後に、今回の調査では多元素解析の能力があつてこそ鉛汚染を示唆するデータ収集が可能となっており、PIXE解析の網羅的な元素測定能力の有効性を改めて再認識することができた次第である。

謝辞：本調査において、現地で多大なご協力をいただいた、インド・アラハバード・サムヒギンボトム農工科大学講師 川口景子氏、ASHA health volunteer program スタッフの皆様、村民の方々に深く感謝いたします。また、酪農学園大学においてご指導をいただいた水野直治教授にも深謝いたします。

参考文献

- 1) Arsenic, Fact sheet No. 372, World Health Organization, www.who.int/mediacentre/factsheets/fs372/en/, accessed 2014. 08. 20.
- 2) Mukherjee, A., Sengupta, M.K., Hossain, M.A., Ahamed, S., Das, B., Nayak, B., Lodh, D., Rahman, M.M., Chakraborti, D., Arsenic contamination in groundwater: a global perspective with emphasis on the Asian scenario, *J Health Popul Nutr.*, 24(2):142-63, 2006.
- 3) PIXEによるバングラディッシュ地下水砒素汚染の研究Ⅰ、M.A.Habib、三尾野重義、二ツ川章二、世良耕一郎、NMCC 共同利用研究成果報文集 第八巻, 166-172, 2001.
- 4) Habib, M., A., Miono, S., Sera, K. and Futatsugawa, S., PIXE Analysis of Hair in Arsenic Pollution, Bangladesh., *Int'l Journal of PIXE*, Vol.12-1,2, 19-34, 2002.
- 5) PIXEによるバングラディッシュ地下水砒素汚染の研究Ⅱ、三尾野重義、M.A.Habib、世良耕一郎、二ツ川章二、NMCC 共同利用研究成果報文集 第十巻, 96-102, 2003.
- 6) Sera, K., Islam, S. Md., Takatsuji, T., Nakamura, T., Goto, S., Takahashi, C., and Saitoh, Y., Investigative Studies on Water Contamination in Bangladesh. – Preliminary Treatment of Water Samples at the Sampling Site.-., *Int'l Journal of PIXE*, Vol.20-3, (4), 119-126, 2010.
- 7) Winkel, L. H. E., Trang, P. T. K., Lan, V. M., Stengel, C., Amini, M., Ha, N. T., Viet, P. H., and Berg, B., Arsenic pollution of groundwater in Vietnam exacerbated by deep aquifer exploitation for more than a century, *Proc Natl Acad Sci*, 108(4): 1246–1251, 2011.
- 8) Ferguson, J.F. & Gavis, J., A review of the arsenic cycle in natural waters, *Water Res*, 6: 1259–1274, 1972.
- 9) 松田圭二、田村瑞穂、毛髪中に含まれる微量金属について、日本環境衛生センター所報告、Nos.12, 13, 101-110, 1986.
- 10) Casarett and Doull's Toxicology the basic science of poisoning 7th ed.; Klaassen, C.D., Ed.; Mc Graw Hill, 2008.

Arsenic contamination: Environmental assessment through human hair in rural villager of India

J. Noda¹, R. Hakamada¹, K. Suzuki¹, T. Miura² and K. Sera³

¹School of Veterinary Medicine, Rakuno Gakuen University
Bunkyodai, Midorimachi 582, Ebetsu, Hokkaido, 069-8501 Japan

²Makino School of Continuing and Non-Formal Education
Sam Higgingbottom Institute of Agriculture, Technology & Sciences
Allahabad 211007 U.P. India

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

It is a common practice to use well water as potable water especially in a rural area of India where concepts of basic infrastructure is different than other parts of the world. This investigation focuses on the northern part of India, where arsenic contamination levels are still not determined well enough to assess adverse health effects. We have selected three rural villages of near Allahabad, Uttar Pradesh, India: Kanua, Chota Kanjasa, and Bada Kanjasa as investigation sites. Ground water samples were analyzed with colorimetric arsenic analysis kit and ORP and pH for the arsenic concentration and estimation of oxidation status. Human hair samples from local residences were obtained and analyzed by PIXE to measure wide range of elements; and only arsenic was further analyzed with an atomic absorption spectrometer. A combination of these measurements is selected to mainly establish a link between the arsenic contaminated ground water and possible accumulation in exposed human body to assess the health risk of the villagers in India. The results indicated that Bada Kanjasa had significantly higher concentrations of arsenic level in ground water and human hair than Kanua and Chota Kanjasa villages ($P < 0.05$). It clearly indicated that higher arsenic concentration in ground water directly reflects the accumulation of arsenic in Bada Kanjasa villagers. Although the actual health effects and more detailed exposure mechanisms are still need to be investigated to provide risk assessment of arsenic poisoning. In addition, PIXE analysis revealed unusually high concentration of lead concentration in human hair samples from Chota Kanjasa village. The level is about 36 times higher than the most polluted period in recent Japanese history: 1951-1960 when air pollution associated with usage of leaded gasoline in automobile combustion exhaust caused much of health issues in Japanese citizens. Furthermore, investigation associated with lead pollution in these villages to understand the exposure routes are proposed.