

# (125) 自然的原因による砒素の健康リスク評価

保高 徹生<sup>1,2</sup>・松田 裕之<sup>1</sup>・中島 誠<sup>2</sup>・武 暁峰<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup>横浜国立大学大学院環境情報学府・<sup>2</sup>国際航業(株)・<sup>3</sup>清華大学水利水電工程系

## 1. はじめに

近年、土壌・地下水汚染の調査事例数が飛躍的に増える中で、自然的原因により鉛、砒素、ふっ素等の重金属類が土壌溶出量基準、土壌含有量基準を超過する事例が確認されている。

元来これらの元素は自然界に存在して広く分布しており、人為的原因の有無にかかわらず、自然的原因により土壌や堆積物中において高濃度で存在することがある。例えば、鉱床地帯の周辺には砒素や鉛の土壌含有量(以下、含有量、本文中では全含有量を示す)が著しく高く分布する場合があることが知られており<sup>1)2)</sup>、関東地方や関西地方の平野部に分布する第四紀海成堆積物から土壌溶出量基準を超過する砒素や鉛が溶出する事例がしばしば報告されている。<sup>2)</sup>

また、バングラデシュ、インドや中国においては、自然的原因による砒素の地下水汚染が発生し、その飲用によって健康被害が生じていることが報告されている。<sup>3)</sup>我が国においても、福岡県筑紫平野や大阪平野、千葉県の中野平野等で、自然的原因による砒素の地下水汚染が確認されている。<sup>2)</sup>

これらの重金属等のバックグラウンドの濃度についての情報がわが国では不足していることから、土壌溶出量基準や土壌含有量基準を超過する原因が自然的原因かどうかの判定は難しく、また自然的原因により存在する重金属等が人の健康に与える影響についても検討されてこなかった。

本研究では、砒素を対象に、

関東地方における自然的原因による砒素のバックグラウンド濃度の分布を調べて内陸部と湾岸部に分けて評価し、土壌溶出量基準を超過する事例が多い湾岸部と溶出の少ない内陸部における砒素による人の健康リスクを評価し自然的原因による砒素の土壌溶出の健康リスクへの寄与度を比較検討する。

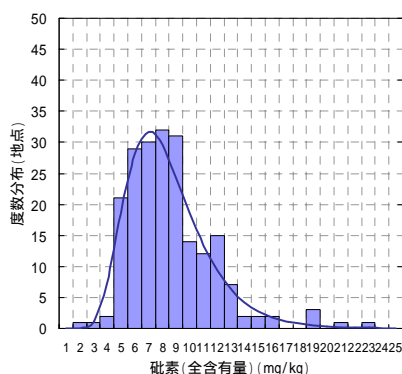


図1 砒素(含有量)の分布(湾岸部)

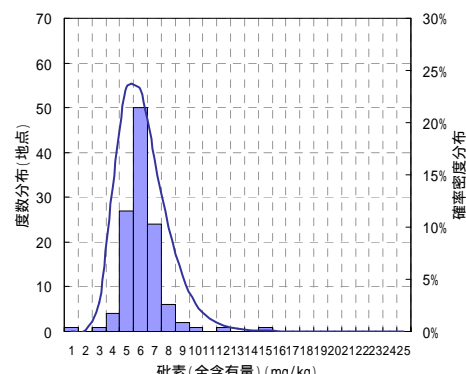


図2 砒素(含有量)の分布(内陸部)

## 2. 関東地方の砒素の濃度分布

### 1) 調査方法

関東平野内の市街地7サイト(湾岸部4サイト、内陸部3サイト)において、表層の土壌を採取し砒素の含有量および土壌溶出量(以下、溶出量)の公定法分析を実施した。含有量は昭和63年環境省告示第46

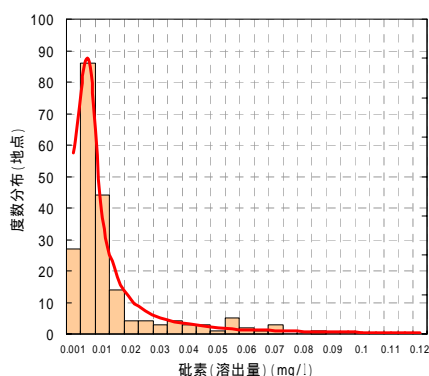


図3 砒素(溶出量)の分布(湾岸部)

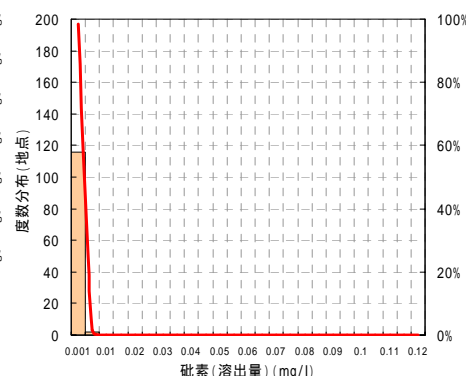


図4 砒素(溶出量)の分布(内陸部)

号で規定された方法で、溶出量は平成15年環境省告示第19号で規定された方法で分析した。試料採取處

The human health risk assessment to contaminated soil of natural origin arsenic

Tetsuo Yasutaka<sup>1,2</sup>, Hiroyuki Matsuda<sup>1</sup>, Makoto Nakashima<sup>2</sup>, Xiaofeng Wu<sup>2,3</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama Univ, <sup>2</sup>Kokusai Kogyo, <sup>3</sup>Department of Hydraulic Engineering, Tsinghua Univ)

連絡先: 〒102-0085 東京都千代田区六番町2 国際航業(株) 保高 徹生

TEL 03-3288-9473 FAX 03-3288-9380 E-mail tetsuo\_yasutaka@kcc.co.jp

度は概ね 1000m<sup>2</sup> 毎に 5 地点として土壌を採取し、混合して 1 検体とした。ここで湾岸部とは埋立地および海岸線から 5km 以内のエリアを指す。当該地点での砒素については、

砒素およびその化合物の使用履歴がないこと、砒素の含有量の分布

に平面的な局在性がないこと、砒素（含有量）の範囲が、土壤環境センター(2003)の判断基準内<sup>15)</sup>であったこと、湾岸部では表層付近から汚染物質が深層に落下した傾向がないこと（内陸部では基準超過がなかったため、深度方向の調査を実施せず）の 4 つから、自然的原因の可能性が高いと判断した。

## 2) 測定結果

砒素の含有量の分析結果を図 1,2 および表 1 に示す。本調査の結果、砒素の含有量は 1~22mg/kg の値であり、土壤含有量基準（150mg/kg 以下）を超過する濃度は検出されていない。また幾何平均値は内陸部、湾岸部でそれぞれ 5.4mg/kg、7.4mg/kg であり、両者に大きな差は確認されなかった。

砒素の溶出量の分析結果を図 3,4 および表 2 に示す。本調査の結果、内陸部の溶出量はほとんどが定量下限値（0.001mg/l）以下で、最高濃度で 0.002mg/l であった。これに対して、湾岸部の溶出量は幾何平均値で 0.004mg/l、最高濃度は 0.084mg/l であり、22%の割合で土壤溶出量基準（0.01mg/l）を超過していた。

## 3. リスク評価の手法

土壤中の化学物質による人の健康リスク評価は、土壤中の化学物質濃度および人に対する暴露経路から、暴露量を計算し、化学物質の毒性との発病との関係から健康リスクの有無もしくは大小を評価するという手順をとる。本研究における人の健康リスク評価の概念図を図 5 に示す。

### 3.1. 毒性評価

砒素の毒性は、非発がん性と発がん性の疾病に大別される。非発がん性の慢性毒性については、皮膚の色素沈着や角質増加、動脈硬化による「烏脚病」などが確認されている。また、発がん性については経口経路の摂取で皮膚がんの増加が、経気道経路（気管を通じて肺で吸収される経路）の摂取で肺がんの増加が確認されている。

慢性毒性の TDI については、WHO<sup>5)</sup>が PTWI（週間耐用量）15 μg/kg/week（TDI 換算：2 μg/kg/day）を設定している。一方、USEPA<sup>6)</sup>は RfD（TDI と同義）として 0.3 μg/kg/day を設定している。

また、発がん性については、USEPA<sup>6)</sup>は砒素を発癌イニシエーターとして分類しており、皮膚がんをエンドポイントとした経口経路のスロープファクター（以下、SF<sub>0</sub>）として 1.5(mg/kg/day)<sup>-1</sup>、肺がんをエンドポイントとした経気道経路のユニットリスクとして 4.3 × 10<sup>-3</sup>(μg/m<sup>3</sup>)<sup>-1</sup>を設定している。本研究においては、経口経路の SF<sub>0</sub> を 1.5(mg/kg/day)<sup>-1</sup>、経気道経路のスロープファクター（SF<sub>1</sub>）を、USEPA のユニットリスクを、日本人のパラメーターに設定しなおした 1.5 × 10<sup>-2</sup>(μg/kg/day)<sup>-1</sup> とみなす。

### 3.2. 土壌・地下水からの暴露評価

#### 1) 暴露経路

図 6 に、土壌から人への重金属の一般的な暴露経路を示す。我が国では通常、土壌中の重金属の含有量および溶出量を測定する。溶出量とは、土壌から地下水へと溶出する理論的最大濃度である。

土壌経路の暴露経路は土粒子に付着した化学物質の経口摂取（R-S1）、皮膚摂取（R-S2）、吸引摂取（R-S3）、揮発した化学物質の室内ガス吸引（R-S4）および屋外ガス吸引（R-S5）の 5 つの経路が存在する。ここで、一般に重金属は水銀を除き揮発性が低いことから（R-S4）、（R-S5）の経路は無視した。これらの土壌経路の暴露評価は含有量から算定する。

地下水経路の暴露経路は、図 6 に示した大きく 8 つの経路が存在するが、本研究では地下水の飲用（R-W1）についてのみ考慮することとした。各暴露経路の暴露量算定は USEPA<sup>7,8)</sup>を一部変更した式(1)~(6)を用いた。また、この地下水経路の暴露評価における地下水濃度は、溶出量と同等の濃度の地下水汚染が存在すると仮定して式(7)により算定した。

表 1 砒素（含有量）の統計量

サイトNo.	試料数	幾何平均 (mg/kg)	幾何標準偏差	最小値 (mg/kg)	最大値 (mg/kg)	基準超過数 (割合)	95%信頼区間 (mg/kg)
湾岸部	206	7.4	1.4	2	22	0	15
内陸部	118	5.4	1.4	1	14	0	10

表 2 砒素（溶出量）の統計量

	試料数	幾何平均値	幾何標準偏差	最大値 (mg/l)	最小値 (mg/l)	基準超過数 (割合)	95%信頼区間 (mg/l)
湾岸部	206	0.004	5.6	0.084	<0.001	45 (22%)	0.102
内陸部	118	0.0001	1.5	0.002	<0.001	0	0.0002

幾何平均値、幾何標準偏差は定量下限値 (<0.001) 以下の値を 0.0001 として計算した

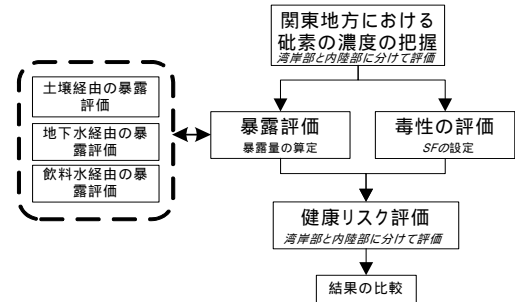


図 5 本研究における人の健康リスク評価の概念図

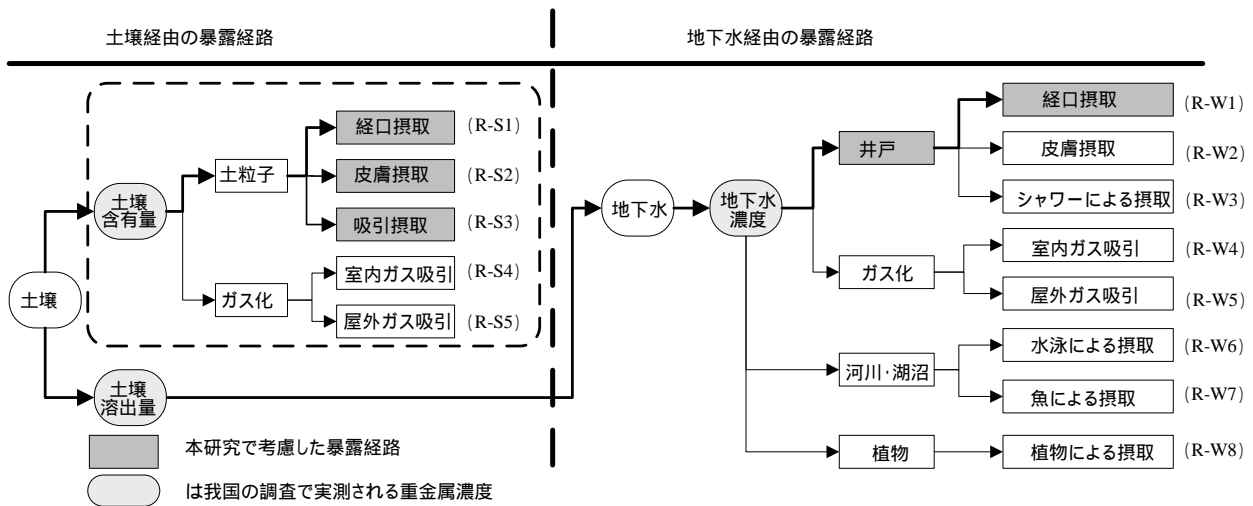


図6 土壌中の重金属の人への一般的な暴露経路

## 2) 暴露量評価

暴露量評価に用いた暴露パラメーターを表3に示す。土地利用は、土壌経由の暴露量が最も多く算定される住宅地として算定した。

表3 暴露パラメーター

全体	摂取頻度	(day/year)	$Ef$	365
	摂取期間	(year)	$Ed_A$	74
体重		$Ed_C$	6	
		$Bw_A$	56 <sup>9)</sup>	
		$Bw_C$	14 <sup>9)</sup>	
	影響期間	(year)	$At$	80
土壌直接摂取	土粒子摂取量	(mg/day)	$Is_A$	100 <sup>10)</sup>
			$Is_C$	200 <sup>10)</sup>
土粒子皮膚摂取	皮膚吸収因子	-	$Df$	0.03 <sup>11)</sup>
		(mg/cm <sup>2</sup> )	$Af_A$	0.07 <sup>11)</sup>
			$Af_C$	0.2 <sup>11)</sup>
		土付着皮膚面積	(cm <sup>2</sup> )	$Sa_A$
	$Sa_C$		2800 <sup>14)</sup>	
土壌経気道摂取	日呼吸量	(m <sup>3</sup> /day)	$Ih_A$	15.2 <sup>9)</sup>
			$Ih_C$	8.3 <sup>9)</sup>
	土粒子からの吸入濃度	(mg/m <sup>3</sup> )	$Cp$	$C_{soil}/Pe$ <sup>12)</sup>
		(m <sup>3</sup> /kg)	$Pe$	1.32E+09 <sup>13)</sup>
水の摂取	水摂取量	(l/day)	$Is_A$	2 <sup>9)</sup>
			$Is_C$	1 <sup>9)</sup>

Aは大人を、Cは子供を示す。

$$RS1 = \frac{C_{soil} \cdot 10^{-6}}{At} \left( \frac{Ed_C \cdot Ef_C \cdot Is_C}{Bw_C} + \frac{Ed_A \cdot Ef_A \cdot Is_A}{Bw_A} \right) \quad \dots\dots式(1)$$

$$RS2 = \frac{C_{soil} \cdot Df \cdot 10^{-6}}{At} \left( \frac{Ed_C \cdot Ef_C \cdot Af_C \cdot Sa_C}{Bw_C} + \frac{Ed_A \cdot Ef_A \cdot Af_A \cdot Sa_A}{Bw_A} \right) \quad \dots\dots式(2)$$

$$RS3 = \frac{Cp}{At} \left( \frac{Ed_C \cdot Ef_C \cdot Ih_C}{Bw_C} + \frac{Ed_A \cdot Ef_A \cdot Ih_A}{Bw_A} \right) \quad \dots\dots式(3)$$

:土壌経由の経口摂取による一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)  
 :土壌経由の皮膚摂取による一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)  
 :土壌経由の吸引摂取による一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)  
 :土壌含有量(mg/kg)

$$RW1 = \frac{C_{water} \cdot 10^{-6}}{At} \left( \frac{Ed_C \cdot Ef_C \cdot Ir_C}{Bw_C} + \frac{Ed_A \cdot Ef_A \cdot Ir_A}{Bw_A} \right) \quad \dots\dots式(4)$$

$$C_{water} = C_{soil-s} \quad \dots\dots式(5)$$

:地下水経由の経口摂取の一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)  
 :土壌溶出量(mg/l)  
 :地下水中の濃度(mg/l)

$$R_{ingestion} = RS1 + RS2 + RW1 \quad \dots\dots式(6)$$

$$R_{inhalation} = RS3 \quad \dots\dots式(7)$$

:経口経由の摂取による一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)  
 :経気道経由の摂取による一日あたり、体重あたりの暴露量(mg/kg/day)

## 3.3. 健康リスク評価

### 1) 評価方法

本研究では砒素の毒性については、経口経由の摂取を皮膚がんのリスクで、経気道経由の摂取を肺がんのリスクで、閾値なしのモデルにより評価した。また、慢性毒性については考慮しなかった。

閾値なしのモデルでは、式(8)で経口経由の生涯発ガン率を、式(9)で経気道経由の生涯発ガンリスクを算出する。

$$\text{経口経由の発ガンリスク} = SF \times (R_{ingestion})$$

$$\text{経気道経由の発ガンリスク} = SF \times (R_{inhalation})$$

### 2) 比較データ

自然的原因により存在する砒素の生涯の発ガンリスク評価を表4に示す条件で実施した。土壌からの摂取は表1に示した含有量から、地下水摂取は表2に示した溶出量から、式(1)~(9)を用いてリスク評価した。また、対象地に井戸が存在しない場合を考慮し、地下水を飲用しない場合は水道水を飲用していると

表4 リスク評価を実施した条件

No.	データ	土壌含有量 (mg/kg) (表1)	地下水濃度 (土壌溶出量) (mg/l) (表2)	飲用水濃度 (mg/l)
	湾岸・平	7.4	0.004	-
	湾岸・平	7.4	-	0.00051
	内陸・平	5.4	0.0001	-
	内陸・平	5.4	-	0.00051
	湾岸・95%	22	0.102	-
	湾岸・95%	22	-	0.00051
	内陸・95%	14	0.0002	-
	内陸・95%	14	-	0.00051

平:幾何平均値 95%:95%上限値

標準超過濃度

仮定した。飲用水経由の発ガンリスクは東京都の浄水場（所）出口における（4月～12月）の算術平均値（0.00051mg/l）を用いて算定した。

（表4）については、関東地方の平均的な値として土壤データの幾何平均値を、（表4）については高リスク側の値として土壤データの95%信頼区間値の上限を用いた。なお本評価内で、基準超過している濃度が確認されたのは、土壤溶出量基準を10倍超過した濃度が検出されている。

#### 4. 結果

の結果を図7-1に、の結果を図7-2に示す。トータルの発ガンリスクでは、湾岸-地下水飲用の場合（図7-、）のリスクが最も高く、それぞれ  $2.6 \times 10^{-4}$ （平均値）  $5.9 \times 10^{-3}$ （95%上限値）となり、それ以外のケースでは  $3.0 \sim 9.8 \times 10^{-5}$  の範囲であった。

また各経路別で見ると、湾岸部での地下水飲用のリスクが最も高くなっており、土壤経由、飲料水経由の発ガンリスクは度の経路も同程度であった。また、経気道経由のリスクは  $1 \times 10^{-11}$  のオーダーであり、他の経路と比較して小さいことが確認された。

#### 5. 考察

##### 砒素の濃度について

1) 関東地方における自然的原因の砒素の含有量は湾岸部、内陸部と大きな差はなく（表1）、幾何平均値が  $5.4 \sim 7.4 \text{ mg/kg}$ 、幾何標準偏差が1.4、最高濃度が  $22 \text{ mg/kg}$  と、自然的原因の上限値<sup>15)</sup>である  $39 \text{ mg/kg}$  を大きく下回ることが確認された。関東地方において土壤溶出量基準を超過した場合に、自然的原因かどうかを判断する場合には、含有量が上記の範囲に存在し  $39 \text{ mg/kg}$  を大きく下回る事に注意が必要である。

2) 溶出量については、内陸部ではほとんどが定量下限値以下であり、土壤溶出量基準（ $0.01 \text{ mg/l}$ ）を超過する地点は確認されなかった。一方、湾岸部では約22%の地点で基準超過が確認され、関東地方の湾岸部では溶出量が基準を超過しやすいことが確認された。

##### 砒素のリスク評価結果について

3) 自然的原因による土壤からの摂取、内陸部での地下水の飲用、水道水の飲用による砒素の発ガンリスクはそれぞれ  $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-4}$  の範囲に存在していることが確認された。また、土壤溶出量基準を超過する濃度が確認された湾岸部での地下水の飲用（95%上限値、以下とする）による発ガンリスクは  $5.9 \times 10^{-3}$  であり、他の結果と比較して高い発ガンリスクであることが確認された。また、経気道経由のリスクは  $1 \times 10^{-11}$  と非常に低いことが確認された。

4) 日本人の日常生活からの砒素の摂取量は例えば  $0.85 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ <sup>14)</sup>と推定され、その発ガンリスクは  $1.3 \times 10^{-3}$  と算定される。また、水道水質基準（ $0.01 \text{ mg/l}$ ）の砒素を飲用した場合の発ガンリスクは  $6.0 \times 10^{-4}$  と算定される。これらを本結果と比較すると、土壤溶出量基準を超過することが確認されたの場合にこれらのリスクを上回ることが確認された。

5) 関東地方の湾岸部において、水道の普及率からみると飲用井戸が存在する可能性は低いと想定され、その場合の日本の自然的原因による土壤中の砒素が原因となる発ガンリスクは、日本人の日常生活からの砒素の摂取量のリスクよりも低いと考えられる。

##### 参考文献

- 産業技術総合研究所地質調査総合センター、日本の地球化学、P.36,2004
- 砒素をめぐる環境問題、日本地質学会環境地質研究委員会 編、1998
- 環境汚染による砒素暴露の人体影響、Biomed Res Trace Elements 11(1): p.p.54-63,2000
- 土壤環境センター、含有量参考値再評価業務、2000
- World Health Organization、Safety evaluation of certain food additives and contaminants (WHO Food Additives Series, 18), 1981, <http://www.inchem.org/documents/jecfa/jecmono/v44jec12.htm>
- U.S. Environmental Protection Agency, Integrated Risk Information System, Arsenic, inorganic; CASRN 7440-38-2, 1998
- U.S. Environmental Protection Agency, Risk Assessment Guidance for Superfund Volume 1, EPA/540/1-89/002, 1989
- U.S. Environmental Protection Agency, User's Guide/Technical Background Document for Region 9 PRG Table, pp22-23, 2004
- 藤長愛一郎、松久裕之、笹本謙、吉田幸司、リスクアセスメントに基づいた土壤・地下水複合汚染現場ごとの浄化目標値に関する検討、土木学会論文集、No.277, pp.39-43,2003
- U.S. Environmental Protection Agency, Exposure Factor Handbook, EPA/600/P-95/002Fa,1997
- U.S. Environmental Protection Agency, Risk Assessment Guidance for Superfund Volume 1, Part E, EPA/540/R/99/005, 2004
- Oregon DEQ, Guidance For Conduct of Deterministic Human Health Risk Assessments, Appendix A, pp.A-15-16,2000
- U.S. Environmental Protection Agency, Soil Screening Guidance: User's Guide, Publication 9355.4-23, pp.21-24,1996
- 環境省、土壤の直接摂取によるリスク評価等について、2001
- 土壤環境センター、土壤汚染対策法に基づく調査及び措置の技術的手法の解説 - Appendix-3 自然的原因であるかどうかの判定方法について、2003

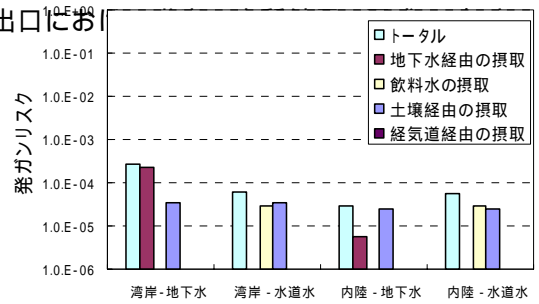


図7-1 平均値でのリスク評価結果

