

飲料水汚染地域の一 日無機ヒ素摂取量の推定について

用量反応評価対象となった疫学調査報告では、飲料水中の無機ヒ素濃度を曝露指標としているものの、食事由来を含めた無機ヒ素の総曝露量は明確になされていなかったことから、無機ヒ素の飲料水中濃度から食事由来の曝露量を加味した一日総摂取量への換算を行う必要があった。用量反応評価対象とした報告の調査対象であるインド西ベンガル、バングラデシュ、中国内モンゴル自治区、台湾及びチリにおける食事由来の無機ヒ素の摂取量、飲料水摂取量等の情報を整理した。

1. 食事由来の無機ヒ素摂取量及び飲料水摂取量の報告

(1) インド西ベンガル

インド西ベンガルについては、食事由来のヒ素の摂取量に関する複数の報告があった。Roychowdhury ら (2002) は、西ベンガルの 2 地域における各家庭から採取した穀類、パン製品、野菜、香辛料等の一日当たりの摂取量に基づき、調理済み食品からの成人の総ヒ素摂取量を 171 及び 189 $\mu\text{g}/\text{日}$ と報告している。また、この地域全体の飲料水中平均ヒ素濃度は 133 $\mu\text{g}/\text{L}$ 、飲料水摂取量は男性 4 L、女性 3 L と報告している (Roychowdhury et al. 2002)。

Signes ら (2008) は、調理水に 50、250、500 $\mu\text{g}/\text{L}$ を使用した場合の米飯中無機ヒ素濃度から、各調理水濃度における米飯由来の無機ヒ素摂取量をそれぞれ 104、399、750 $\mu\text{g}/\text{日}$ と推定している。Signes らはこの推定の際に、飲料水摂取量を 2.5 L/日と仮定している (Signes et al. 2008)。

Signes-Pastor ら (2008) は、西ベンガルにおいて採取した米、野菜及び飲料水における As(III) 及び As(V) の分析結果から、食事由来及び飲料水由来の無機ヒ素平均摂取量をそれぞれ 63 $\mu\text{g}/\text{日}$ 及び 88 $\mu\text{g}/\text{日}$ と報告している。

Pal ら (2009) は、ヒ素汚染地域において栽培時期の異なる 2 種の米を無機ヒ素濃度 < 3 $\mu\text{g}/\text{L}$ の調理水で炊いた米に含まれるヒ素濃度から、炊飯後の米由来の無機ヒ素平均摂取量を 34 及び 97 $\mu\text{g}/\text{日}$ と算出している (Pal et al. 2009)。

(2) バングラデシュ

バングラデシュについては、総ヒ素の摂取量に関する複数の報告があった。Watanabe ら (2004) は、食事摂取頻度調査票 (FFQ) 及び食品中に含まれる総ヒ素濃度から食事 (米、パン、いも) 由来の総ヒ素摂取量を男性で 214 $\mu\text{g}/\text{日}$ 、女性で 120 $\mu\text{g}/\text{日}$ と推定している。この値は調理水を含まず、調理水 (米、パン、カレー) を別途、男性で 1.6 L/日、女性で 0.95 L/日と推定している。また、飲料水摂取量を実測値に基づき男女とも 3 L/日と報告している (Watanabe et al. 2004)。

Smith ら (2006) は、総ヒ素濃度 200、300、400、500 $\mu\text{g}/\text{L}$ の水を炊飯に使用した際の米飯由来の無機ヒ素平均摂取量をそれぞれ 19、153、232、53 $\mu\text{g}/\text{日}$ と報告している。また、飲料水摂取量を 2~4 L/日と報告している (Smith et

al. 2006)。

Kile ら (2007) は、女性 47 名を対象とした 6 日間の陰膳調査から、食事及び飲料水由来の総ヒ素摂取量の中央値をそれぞれ 48、4 $\mu\text{g}/\text{日}$ としている。また、このときの飲料水中ヒ素濃度の中央値を 1.6 $\mu\text{g}/\text{L}$ (範囲<1~450 $\mu\text{g}/\text{L}$)、飲料水摂取量の平均値を 2.7 L/日としている (Kile et al. 2007)。

Rahman ら (2008) は、バングラデシュにおける平均的な米の消費量 400 ~650 g/日、米中の総ヒ素濃度 0.5 mg/kg から米由来の総ヒ素の摂取量を 200 ~350 $\mu\text{g}/\text{日}$ と報告している (Rahman et al. 2008)。

JECFA は、これらを含めた総ヒ素の摂取量データに基づき、総ヒ素の 70% が無機ヒ素であると仮定して、用量反応評価に用いる食事由来の無機ヒ素摂取量の範囲を 50~400 $\mu\text{g}/\text{日}$ とし、食事由来の無機ヒ素の平均的な曝露量を 75 $\mu\text{g}/\text{日}$ として、バングラデシュを対象とした調査における用量反応評価に用いている。また、飲料水摂取量については、これらの飲料水摂取量データに基づきバングラデシュにおける調理水を含んだ飲料水摂取量を 4 L/日として、用量反応評価に用いている (JECFA 2011)。

(3) 台湾

台湾については、Schoof ら (1998) は、米及びヤマイモの消費量 (米 225 g/日、ヤマイモ 500 g/日) と無機ヒ素濃度から成人の無機ヒ素量を平均 50 $\mu\text{g}/\text{日}$ (範囲 15~200 $\mu\text{g}/\text{日}$) としている。ただし、これには調理に使用した水からの無機ヒ素摂取量は含まれていない。

また、JECFA (2011) は、入手可能なデータから用量反応評価に用いる食事由来の無機ヒ素の摂取量の範囲を 50~200 $\mu\text{g}/\text{日}$ とし、平均的な曝露量を 75 $\mu\text{g}/\text{日}$ として、台湾を対象とした調査における用量反応評価に用いている。また、台湾の飲料水摂取量については、ヤマイモの調理における寄与を考慮して調理水を含んだ飲料水摂取量を 3 L/日とし、用量反応評価に用いている。(JECFA 2011)。

(4) 中国内モンゴル自治区

中国内モンゴル自治区における食事由来の無機ヒ素摂取量及び飲料水摂取量に係るデータを入手できなかった。

(5) アジア

食事由来の無機ヒ素の摂取量については、EPA (2007) は、アジア各地域におけるヒ素曝露量データに基づき、アジア地域の調査対象集団の感度分析においては、無機ヒ素の食事からの摂取量を最低 50~最高 200 $\mu\text{g}/\text{日}$ の値を使用するよう推奨している。また、EFSA (2009) は、上記の摂取量の情報に基づき、用量反応評価において、この 50~200 $\mu\text{g}/\text{日}$ をアジア地域の調査における食品中無機ヒ素摂取量として使用している。

飲料水摂取量については、EFSA (2009) は、アジア各地域における飲料水

摂取量の情報に基づき、アジア農村地域における調理水を含んだ飲料水摂取量を 3~5 L/日として用量反応評価に用いている。

(6) チリ

チリについては、Diaz ら (2004) が、飲料水濃度の異なる 2 期間における生野菜、調理済み野菜、パン及び飲料水中の無機ヒ素の分析結果から一日当たりの無機ヒ素摂取量を推定している。無機ヒ素の一日当たり摂取量は、飲料水濃度が 572 µg/L の試料採取期間においては食事のみから平均 55 µg/日、飲料水を含めると平均 1,389 µg/日、飲料水濃度が 41 µg/L の試料採取期間においては食事のみから平均 31 µg/日、飲料水を含めると平均 125 µg/日としている (Diaz et al. 2004)。JECFA (2011) は、本報告に基づく成人の無機ヒ素平均摂取量を平均的な食事摂取者で食事のみから 0.52~0.92 µg/kg 体重/日、飲料水を含めると 2.08~21.48 µg/kg 体重/日としている (JECFA 2011)。

飲料水摂取量については、EFSA (2009) は NRC (1999、2001) による米国における飲料水摂取量 1~2 L/日であること、米国及びカナダにおける水の総摂取量の約 10%が調理水であることに基づき、南北アメリカ集団における調理水を含んだ飲料水摂取量を 1~2 L/日と仮定している。

2. 無機ヒ素飲料水中濃度から一日総摂取量への換算

入手した食事からのヒ素の一日摂取量に関する知見は、総ヒ素に関する知見を含めても限られている。また、調査対象としている食品群に偏りがあり、同一国・地域における摂取量にも調査ごとに差がみられている。また、調理水が含まれている場合であっても、必ずしも食事由来のヒ素摂取量が多いとは限らないという状況である。したがって、換算に用いる知見の選択に当たっては、可能な限り、飲料水濃度、飲料水摂取量、食事からの総ヒ素又は無機ヒ素摂取量の情報がそろっていることに留意することとし、資料 2-2 の文献の情報に基づき換算を行うこととした。なお、食事由来のヒ素摂取量のデータが入手できなかった中国内モンゴル自治区については、一日総摂取量の換算の対象から除外することとした。

飲料水中の無機ヒ素濃度から一日総摂取量への換算は、次の換算式を用いて、飲料水からの摂取量と食事からの摂取量を足し合わせる方法により行った。換算は、入手した情報を加味し、当該地域での調査結果を基に、できる限り調理済みデータに基づいた地域ごとの無機ヒ素摂取量を推定した値を固定値として用いる方法 (方式 1) 及び調理に用いる水中無機ヒ素濃度の関数として食物からの摂取量を表現する方法 (方式 2) の二通りの方法により行った。方式 2 においては、飲料水ヒ素濃度の関数として食事からの無機ヒ素摂取量の推計値を算出した。

$$\frac{\left(\text{飲料水中無機ヒ素濃度 } (\mu\text{g/L}) \times \text{飲水量 } (\text{L/日}) \right) + \text{食事からの無機ヒ素経口曝露量 } (\mu\text{g/日})}{\text{体重 } (\text{kg})} = \text{一日推定摂取量 } (\mu\text{g/kg 体重/日})$$

総ヒ素摂取量の情報しか得られなかった文献の情報に基づく食事からの無機ヒ素一日摂取量については、コメ中の総ヒ素に占める無機ヒ素割合を 0.7 (Rahman & Hasegawa 2011)、野菜は 1、魚は 0 と仮定して推計した。また、調理に用いた水の寄与を含まない食物からの無機ヒ素摂取量については、Watanabe ら (2004) に基づきアジア地域においては調理水として 1.3 L/日を使用するとして調理済み食物からの摂取量を推定した。飲料水摂取量については、調理水を含まないものを用いた。なお、情報が得られなかった台湾及びチリの飲料水摂取量については、調理水を含んだデータではあるが、それぞれ JECFA (2011) 及び EFSA (2009) に基づき 3 L 及び 1.5 L を用いた。また、体重については、EFSA (2009) 及び JECFA (2011) で換算に用いている値を用いることとし、インド西ベンガル、台湾及びバングラデシュについては 55 kg、チリについては 60 kg とした。試算の結果を資料 2 - 3 に示す。

非発がん影響においては、皮膚病変の LOAEL が 4.3~5.2 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL_{0.5} が 1.8~2.0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL₀₁ が 2.0~2.2 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。神経系の影響 (IQ) の NOAEL は 3.0~4.1 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、LOAEL は 7.7~10.7 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。生殖・発生影響の NOAEL は 8.8~11.0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、LOAEL は 11.9~15.7 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL_{0.5} は 5.5~7.6 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL₀₁ は 9.7~13.7 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。

発がん影響においては、肺癌の NOAEL が 4.1~4.9 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、LOAEL が 8.4~10.6 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。膀胱癌の NOAEL は 5.0~12.1 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、LOAEL は 11.5~16.0 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL_{0.5} は 5.3~7.2 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日、BMDL₀₁ は 9.7~13.5 $\mu\text{g/kg}$ 体重/日であった。

ただし、この NOAEL 及び BMDL の試算は、上述のようにデータの不足や多くの仮定をおいた上で行った総摂取量への換算によるものであることから、かなりの不確実性がある。