

小規模金採掘による水銀汚染評価とその包括的リスク評価手法の構築

- ・(重点課題15) 化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究
- ・(重点課題16) 水俣条約の有効性評価のための水銀の長距離動態・暴露メカニズムの解明

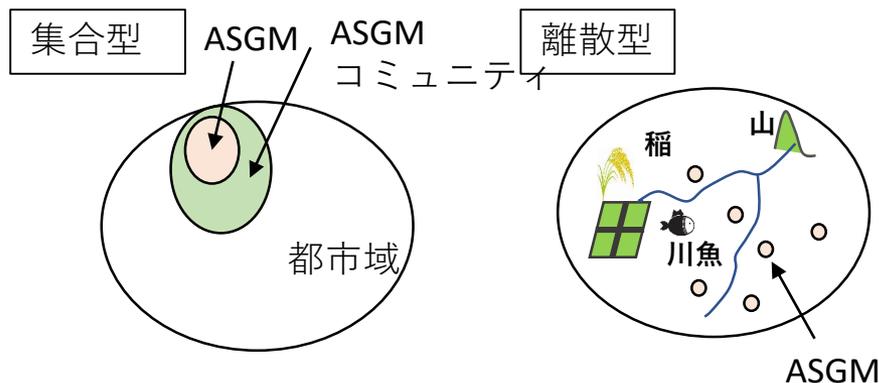
① 環境媒体中水銀濃度の観測・分析法の開発



地図および濃度の水平分布 (図)

- ・ 市域での平面分布の把握

② ASGM由来水銀リスク評価のための枠組みの構築および暴露量の推定

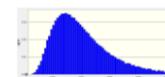


平均一日暴露濃度を①と②から確率論的解析手法を用いて推定

$$HQ = \frac{EC}{RfC}$$

$$EC_j = \sum_{i=1}^n (C_i \times ET_i \times EF_i) \times ED_i / AT_j$$

確率論的リスク解析

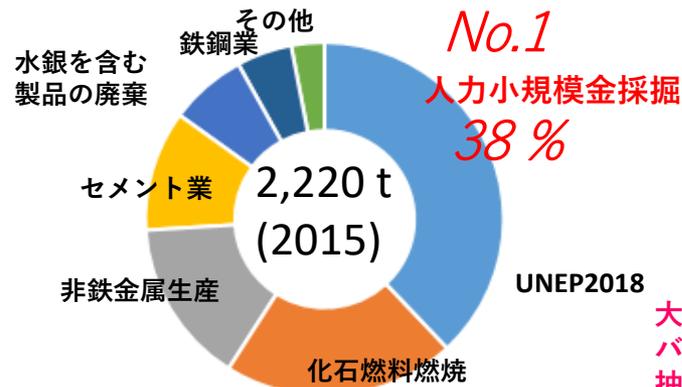


研究代表者 (サブテーマ①) 富山県立大学 中澤 暦

1. はじめに (研究背景等)

2017年8月16日 「水銀に関する水俣条約」が発効された。
2020年: リストに掲載された水銀添加製品は、製造, 輸出入が禁止
2023年、1回目の条約の有効性評価が実施予定

人為活動起源セクター別水銀の
大気への排出割合



人力小規模金採掘

(Artisanal Small-scale Gold Mining: ASGM)

従事者: 約1500万人、コミュニティ地域に 3,000~5,000 万人、80か国以上 (Spiegel et al)

貧窮家庭に配慮: 条約では「締約国はASGMによる水銀の使用や排出を削減し、可能なら廃絶するための措置をとる」ととどまる。

大気中水銀Hg(0)濃度

バックグラウンド: 1.0~1.5ng/m³

抽出・精錬: 瞬間値として数十万~数百万ng/m³

米国労働安全衛生局 (OSHA)

個人暴露限界 (PEL) 100,000 ng/m³

を超える値が多く観測されている!

吸入由来のリスクが懸念

今日の
世界最大の
環境労働災害の一つ
とされている。[Hg(0)汚染]

コミュニティが汚染

貧困と結びつき、家族総出で抽出・精錬。家計の助けにと子供までが従事

・・・大人のみならず子供が水銀中毒とみられる症状を呈し亡くなることも報告されている。

水銀暴露によるヒト健康影響の評価で重要とされる経路

経口暴露: 水銀を含む食品を摂取する

吸入暴露: 水銀蒸気の吸入

急性毒性: 肺炎

慢性毒性: 手指のふるえ、記憶障害

(Asano et al., 2000, US EPA IRIS など)

1. はじめに (研究背景等)

しかし

水銀蒸気に匂いも色もなく大気中に多量に放出されても気が付かない。そもそも水銀の危険性について人々が十分知らない場合も

→汚染の実態の把握が困難であり、水銀吸入由来のヒト健康リスクが懸念されている

大気中水銀の観測

アクティブサンプリング法

- ・**コスト**が割高
- ・**商用電源**が必要

→代表地点の観測はできても
平面分布観測は難

大気中水銀観測の難しさから知見の集積が立ち遅れ⇒ASGM地域における大気中水銀の拡散状況の把握、吸入由来暴露によるリスクの議論は進まず。

パッシブサンプリング法

- ・簡易
 - ・商用電源不要
- 平面分布の観測を可能に

・・・現場での観測結果をリスク評価の枠組みに取り入れ、簡易で包括的にASGM活動に由来する吸入由来ヒト健康リスク評価方法を確立する。

2. 研究開発目的

①大気中水銀の簡易観測手法およびヒトへの直接暴露量評価の開発を中心に据える。

②その上で吸入由来暴露によるヒト健康リスク評価を統計的な解析手法を用いて包括的に行う方法を確立する。

3. 研究目標

- ①途上国において簡易に、**調査サイトに左右されない大気中水銀の観測手法を確立**する。
- ②ASGM由来による水銀リスク評価の枠組みを構築し、その暴露量を推定する。枠組みは、暴露量と有害性を用いて行うリスク評価方法（Hazard Quotient（ハザード比））を用いるが、特に**吸入由来暴露（大気）の精度の高い暴露量推定を行い、リスクスクリーニング評価手法を確立**する。

4. 研究開発内容

アウトプット

①大気中水銀の簡易観測手法の確立

本研究ではASGMサイト(高濃度域)やその周辺地区(バックグラウンド濃度 $\sim 1,000$ ng/m³)で見られる広範囲な濃度帯をカバーし、特別な技術なしで野外観測可能な手法を構築する。

②水銀の吸入由来暴露量の推定法の確立

リスク評価には暴露量(摂取量)と毒性の比から推定する方法(Hazard Quotient, ハザード比)を用いる。毒性については現在までの科学的知見(USEPA、IRIS等)を利用する。ここでは、対象とする住民集団の暴露量を如何に推定するかに焦点を当てて研究を進める。発生源からの大気中水銀濃度の広域的な水平分布に関する知見の収集を行う。また、質問紙とインタビュー調査により行動パターンなど生活実態を把握する。

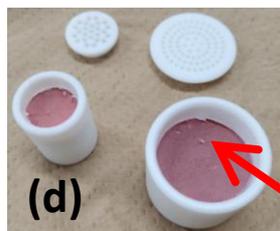
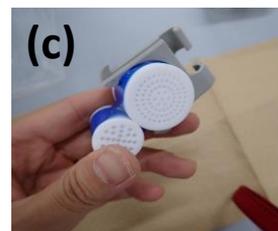
アウトカム

③水銀の吸入由来暴露のリスクスクリーニング評価手法の確立

観測した環境大気中濃度とヒト暴露量のデータ、質問紙とインタビュー調査から得た結果と確率論的な解析手法を用いてヒト健康リスク評価を行う。最終的には世界のASGMの調査サイトに適用できるような、包括的にASGM由来のリスクをスクリーニング評価するフレームワークを構築する。

①大気中水銀の簡易観測手法の確立

(1) パッシブサンプラーの開発と沈着速度 (SR) の推定



(a) パッシブサンプラーキット、(b) 雨除けシェルターに取り付け、
(c) 手に持ったところ、(d) パッシブろ紙

$$SR = m / (Ct)$$

C: 観測期間にアクティブサンプラーで測定した水銀濃度 (ng/m³)

t: 暴露日数 (days)

SR: sampling rate (m³/day)

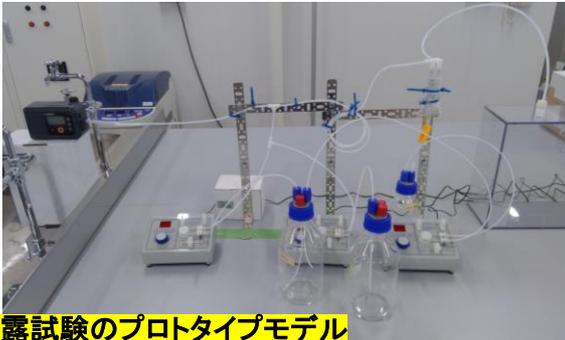
m: パッシブサンプラーで得られた水銀吸着量 (ng)

(パッシブサンプラーのみで大気水銀濃度への換算が可能になる)

Φ15mm、Φ25mmの石英繊維ろ紙に30nm金被膜を蒸着

風の影響がないように拡散プレートを装着
1つのサンプラーに両側各1枚(合計2枚)のろ紙を格納可能

曝露試験を実施し、SR値を求めた



暴露試験のプロトタイプモデル

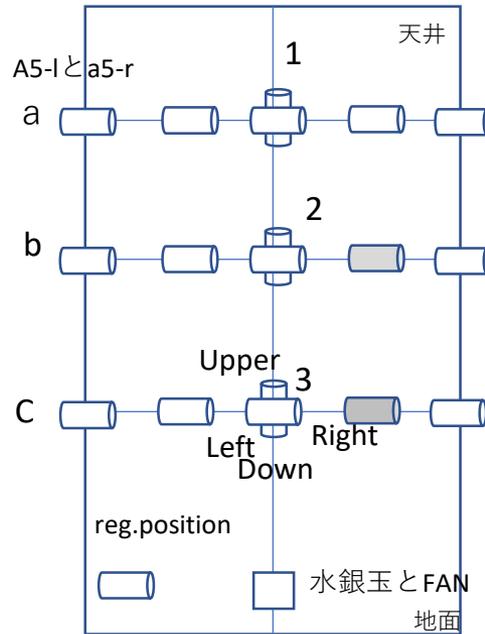
⇒実験室の水銀汚染(分析ができなくなる)を懸念し断念。 **チャンバーを用いた方法に変更**

暴露試験の様子

パッシブ暴露試験は本来インドネシアASGMサイトでの実施予定だったが、コロナにより室内実験に切り替え。

チャンバーの全体像とチャンバー入口ドア側からの撮影した床面付近の様子

入口ドア側からの設置状況



パッシブろ紙を格納



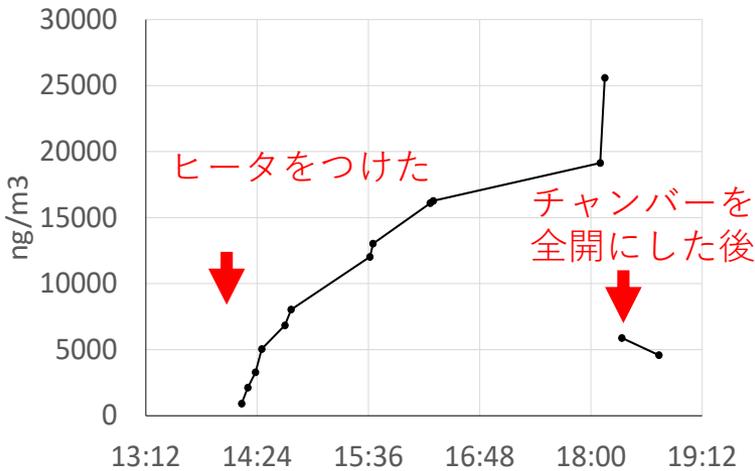
環境大気用

個人暴露用



- ・取り壊し前の実験棟内の恒温室内で実施
- ・商用電源が使用不可の場所であったため、カーバッテリー等から電源を得る。
- ・ASGM地域での濃度を再現するため、**水銀玉**、**デスクトップ用小型ファン**や自作**ヒーター**等を用いて試験

濃度のモニタリング例



パッシブサンプラへの吸着量 (ng)



曝露試験結果 (グラフ)

- ・インドネシア精錬場の濃度レベルを再現
- ・破過や分析の失敗もあるが、任意の濃度にて曝露試験を実施 (約40回 (失敗含む))
- ・高濃度の合計18回の曝露試験についてデータを採用
- ・曝露時間 6時間～24時間

高濃度 (概ね 1000 ng/m³) 以上で安定
低濃度で吸着量に大きくバラツキ

低濃度については、曝露時間が最大でも24時間であったことが要因？
⇒ 野外実装試験にて検討した。

1000 ng/m³ の結果を用いて求めた

SR値 φ15 mm: [REDACTED]

φ25 mm: [REDACTED]

①大気中水銀の簡易観測手法の確立

(2) パッシブサンプラーとモバイル型水銀計を用いた野外実装

野外観測におけるパッシブサンプリング法とアクティブサンプリング法の比較

野外観測におけるパッシブサンプリング法とアクティブサンプリング法の比較
(表)

SR値を用いて大気
中水銀濃度を求めた

アクティブサンプラーで
得た濃度との比較から

高濃度域 (ASGM地域)
では、1日程度の暴露
でアクティブサンプ
ラーと遜色ない測定
結果。

低濃度域では、7日程
度の暴露が必要。

追加で検討 →

低濃度域では、7日以上の暴露が必要。

前述の曝露試験：最大24 hr

室内 (低濃度) で暴露時間を変えて吸着量の検討を行った。

低濃度・暴露日数別試験結果 (グラフ)



低濃度域：暴露時間をのばせば安定的に使用可能

高濃度域

地図および濃度の水平分布 (図)

地図および濃度の水平分布 (図)

パッシブサンプラー (24時間値)



2023年3月
インドネシアスラウェシ州 パル

精錬地区からの濃度の減衰および平面分布を評価できた

広域のリスク評価が可能

モバイル型水銀計 (10分値)

車載モバイル型水銀計と位置情報 (GPS) を組み合わせて大気中水銀濃度を把握。法定速度で航行する自家用車に車載することで観測が可能であった。

低濃度域



観測結果 (図)

観測タワー
鉛直分布

富山県2週間
2回実施した

観測結果 (図)

南極 昭和基地 1か月

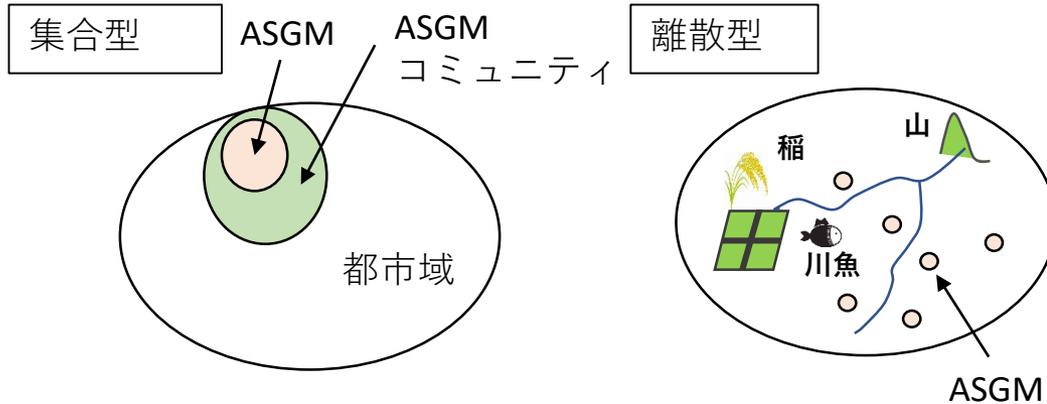
観測結果 (図)

環境濃度での
野外実装が可能となった

単位 ng/m³

(1か月暴露はさらに検討が必要)

② 水銀の吸入由来暴露量の推定法の確立



ASGM活動の規模が異なる地域を選定

現地研究者による聞き取り調査により行動パターン把握

パッシブサンプラー、モバイル型水銀計を組み合わせることで濃度の範囲を推定
 検討のうえ、濃度に分布形を当てはめる。→確率論的リスク解析。



濃度の推定例

活動空間	①集合型	②離散型
1 精錬所内	1,000~39,000	1,000~5,000
2 ゴールドショップ	—*	1,765
3 コミュニティ	12,782±71,571	1.40~199
4 市街地	141±141	—**

単位 ng/m³ * データの収集が不可能、**活動空間が存在しない

$$HQ = \frac{EC}{RfC}$$

USEPA IRIS 等の
文献値を援用



分布形を当てはめ、
モンテカルロシミュ
レーションを用いた
確率論的リスク解析

- ①で開発した観測手法、
②の暴露量推定法より。

$$EC = \sum_{i=1}^n (C_i \times ET_i \times EF_i) \times ED / AT$$

HQ: 化学物質の吸入暴露に由来するハザード比、
EC: 平均一日暴露濃度 (ng/m³)、**RfC**: 参照濃度 (Reference Concentration), (ng/m³)
EC: 平均一日暴露濃度 (ng/m³)、**C**: 暴露濃度 (ng/m³)、**ET**: 暴露の継続時間 (hours/day)、**EF**: 暴露の生じる対象事象の頻度 (day/year)、**ED**: 暴露時間 (year)、**AT**: 平均時間 (ED × 365 days/year × 24 hours/day)、**i**: 暴露される各滞在環境

吸入由来リスク推定結果例

対象者	集合型	離散型
精錬所での従事者	- (懸念ありと推定できる)	懸念あり
ゴールドショップ店員	- (懸念ありと推定できる)	懸念あり
コミュニティ住民	懸念あり	懸念なし
市街地市民	懸念あり	-

5. 研究成果

5-1成果の概要

③水銀の吸入由来暴露のリスクスクリーニング評価手法の確立

アウトプット

(1) 大気中水銀濃度

パッシブサンプラーを密閉してEMS等で調査地へ送付



- ・水銀パッシブろ紙の送付のみ
- ・ろ紙は実験し、**再利用も可能** (詳細編図1-6) であることを確認。
- ・1つあたり5000円から7000円で作成可能 (市販品の40%程度の価格で**廉価**) (詳細編表1-3)

(2) サンプラーの設置と リスク評価対象者の 行動パターンの把握

現地協力者に依頼



- ・簡単なレクチャーで一般の人でも設置可能

機器分析

観測後研究室に送り返してもらい、**前処理無しで分析可能**、SR値から**大気中水銀濃度**に換算・データセットが得られる。

(3) 吸入由来のリスク評価

HQ比、確率論的な評価手法を用いて解析

アウトカム

現場での観測からリスク評価までを**パッケージ化**、大気中水銀吸入由来に係る包括的なリスクスクリーニング評価手法を確立した。

パッシブサンプラーによるASGM地域での大気中水銀の観測法の確立

大気中水銀が低濃度域では1～2週間の暴露期間、高濃度域では、**1日程度の暴露期間で精度よく観測可能**で**市販品と比べて廉価**である。加えて、持ち運びも手軽であり、大気中水銀濃度の**水平分布の把握が可能**である。国際郵便による送付により簡易かつ包括的に水銀濃度を把握可能。

水銀の吸入暴露由来のヒト健康リスク評価の枠組みを構築

パッシブサンプラーによって得られた大気中水銀濃度を用いたリスク評価の枠組みを構築

- ・ 化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進 (重点課題⑮)
- ・ 水俣条約の有効性評価のための水銀の長距離動態・ばく露メカニズムの解明 (重点課題⑯)

に貢献可能である。

全体目標及びサブテーマの研究目標の達成状況の自己評価

→目標を大きく上回る成果をあげた

高濃度の大気中水銀濃度が観測されるASGM地域においてパッシブサンプラーを用いて大気中水銀を精度よく観測することが可能となった。

加えて、バックグラウンドレベルの大気中水銀濃度の地域であっても、暴露期間を工夫することで観測できる可能性を示した。⇒遠隔地（山岳、島嶼）の電源が確保できない調査地でも簡易に観測し、水銀の長距離動態を明らかにする研究（水俣条約の有効性評価）に資するサンプラーを作成できた。

6. 研究成果

研究成果の発表状況

<査読付き論文>

- 1) K. Nakazawa, O. Nagafuchi, T. Kawakami, T. Inoue, R. Elvince, K. Kanefuji, I. Nur, M. Napitupulu, M. Basir-Cyio, H. Kinoshita, K. Shinozuka (2021), Human health risk assessment of atmospheric mercury inhalation around three artisanal small-scale gold mining areas in Indonesia, DOI: 10.1039/d0ea00019a, Environmental Science: Atmospheres.

<口頭発表(学会等)>

- 1) Koyomi Nakazawa, Osamu Nagafuchi., Human health risk assessment of mercury vapor around ASGM area – perspective from field measurement, Partner Events of Eco Balance, Mercury Legacy in Artisanal and small-scale gold mining, 2022
- 2) Kazuki Oura, Koyomi Nakazawa, Osamu Nagafuchi, Shigejiro Yoshida, Kenshi Tetsuka, Seiichi Kanetani., Mercury concentrations in tree rings observed at Yakushima island., Japan Geoscience Union, 2023.
- 3) Koyomi Nakazawa, Osamu Nagafuchi, Satoshi Imura, Tomoaki Watanabe, Akihiro Mitsui., Fluctuation of atmospheric mercury concentration observed at Syowa station, Antarctica during January 2022, Japan Geoscience Union, 2023.
- 4) Osamu Nagafuchi, Koyomi Nakazawa, Kazuki Oura, Ken'ichi Shinozuka, Tetsuo Sueyoshi, Masanobu Yamamoto, Tomoaki Watanabe, Akihiro Mitsui, Time-series variations for Gaseous Elemental Mercury (GEM) from northern Pacific to the Arctic Ocean in the Summer to early Autumn of 2022, Japan Geoscience Union, 2023.

<「国民との科学・技術対話」の実施>

イタイイタイ病資料館 春の特別講演会「人の生活と環境問題-フィールドワークからみえてくること-」(主催:富山県立イタイイタイ病資料館、2023年4月29日、富山県立イタイイタイ病資料館) **他4件**

<マスコミ等への公表・報道等>

富山新聞(2022年8月24日、22頁、「水銀調査で世界を巡る」)