

## 「室蘭市高砂町 1 丁目水質基準値超過に係る健康影響評価検討」 報告書（第 4 報）

### 1. 目的（公開）

令和 4 年 6 月 16 日、室蘭市高砂町 1 丁目 25 番街区の住民から水道水の異臭に関する問い合わせがあり、周辺数箇所で試掘調査を行ったところ、1 箇所で水道管周りの土壌に油成分が確認された。このため、配水ルートを切り替えて対応し、臭いは解消したが、油成分を含む土壌中を通過する水道管から採水した水道水より、国が定めた水質基準値（0.01 mg/L）を超えるベンゼン 0.02 mg/L と油の臭気が確認された。また、配水ルート切り替え後、未使用となっているガソリンスタンド前面の水道管のたまり水から、水質基準値を超えるベンゼン（最大濃度 7.6 mg/L）を検出した。

隣接するガソリンスタンドから消防本部に対し、地下埋設管からの漏洩の報告があり、ガソリンスタンド運営会社が、敷地内において実施した土壌・地下水調査の結果、基準値を超えるベンゼン（最大濃度土壌溶出量 0.64 mg/L, 地下水 5.1 mg/L）が検出されたことと、ガソリンスタンドから土壌に漏洩したガソリンに含まれるベンゼンが、ポリエチレン製の配水管に混入したと判断したことを公表した。

ベンゼンによる健康影響が懸念されることから、室蘭市は令和 4 年 9 月と 10 月に、対象街区の住民及び就業者について、質問票による健康状態・生活状況調査、一般血液・尿検査、ベンゼン等ガソリン成分の尿中濃度測定による健康影響調査（第 1 回目調査と称す）を実施した。そして、令和 5 年 1 月にベンゼンとトルエンの尿中代謝物の濃度測定と、当該地区からの転出者への質問紙による調査（第 2 回目調査と称す）を行った。令和 5 年 4 月に血液検査、ベンゼンとトルエンの尿中代謝物の濃度測定と、更に尿中代謝物の t, t-ムコン酸の濃度測定を（第 3 回目調査と称す）行った。令和 5 年 8 月に第 3 回調査と同様に尿検査を（第 4 回目調査と称す）を行ったので報告する。

### 2. 方法（公開）

#### A. ベンゼン、トルエン及び t, t-ムコン酸の尿中代謝物の第 4 回目調査の方法

##### A-1) 第 4 回目調査の対象者

第 4 回目の調査対象者を、水道水の異臭に関する問い合わせのあった令和 4 年 6 月 16 日時点の対象街区の高砂町 1 丁目 25 街区における者と前面道路の地下水が基準値を超えた 25 街区に隣接する 12 街区の一部の居住者 33 人と就業者 19 人の計 52 人とした。令和 5 年 8 月 7 日に 29 人、8 月 8 日に 6 人、8 月 9 日に 3 人、合計 38 人（居住者 27 人、就業者 11 人）が調査に参加した。そのうち、男性は 15 人、女性は 23 人で、年齢の平均値（標準偏差）は 55.2 歳（18.8 歳）であった。残りの 14 人は調査に参加しなかった。ボランティアとして協力に同意した室蘭市職員 11 人は男性が 8 人、女性が 2 人、年齢の平均値（標準偏差）は 47.3 歳（11.7 歳）で、同様の調査を行った。対象街区の調査対象者と市職員の性別と年齢分布に、統計学的有意差は認められなかった（カイ二乗検定および Mann-Whitney U 検定）。

##### A-2) 調査項目

ベンゼンの尿中代謝物として、フェノールをガスクロマトグラフで測定した（株BML）。

トルエンの尿中代謝物として、馬尿酸を高速液体クロマトグラフで測定した（株SRL）。

また、第 3 回調査からベンゼンの尿中代謝物として、米国産業衛生専門家会議（American

Conference of Governmental Industrial Hygienists, ACGIH) によるベンゼン曝露の生物学的曝露指標 (Biological Exposure Indices : BEI) として用いられる尿中 t, t-ムコン酸<sup>1)</sup>を液体クロマトグラフで測定した (中央労働災害防止協会労働衛生調査分析センター)。また、尿中クレアチニンを測定し、t, t-ムコン酸のクレアチニン補正も行った。

### 3. 結果 (公開)

#### A-1) ベンゼン、トルエンの尿中代謝物の調査結果

表 A-1-1 のとおり、全対象者の尿中フェノール値の中央値、平均値、標準偏差はそれぞれ、第 1 回目調査 33 人では 5.4mg/L、12.6 mg/L、16.7 mg/L で、第 2 回目調査 42 人では 5.6 mg/L、14.3 mg/L、20.9 mg/L、第 3 回目調査 42 人では 7.1 mg/L、13.4 mg/L、15.4 mg/L、第 4 回目調査 37 人では 6.7mg/L、14.3 mg/L、18.9 mg/L であった。尿中フェノール値が、ベンゼンへの曝露が疑われる 25.0 mg/L<sup>2)</sup> よりも高い値を示した人数は、第 1 回目は 4 人、第 2 回目は 6 人、第 3 回目調査は 9 人、4 回目調査は 9 人であり、第 1 回から第 4 回の全てにおいて 25.0 mg/L より高かった者は 1 名であった。尿中フェノール値の調査毎の分布に統計学的有意差は認められず (対応のある Wilcoxon 検定でいずれも p>0.05)、また居住者、就業者、および市職員間、あるいは対象街区と市職員の濃度分布にも統計学的有意差は認められなかった (Kruskal-Wallis 検定 p>0.05)。

表 A-1-2 のとおり、全対象者の尿中馬尿酸値の中央値、平均値、標準偏差はそれぞれ、第 1 回目 33 人では 0.130 g/L、0.175 g/L、0.196 g/L で、第 2 回目調査 42 人では 0.140 g/L、0.215 g/L、0.319 g/L、第 3 回目調査 42 人では 0.110 g/L、0.148 g/L、0.155 g/L、第 4 回目調査 38 人では 0.105 g/L、0.146 g/L、0.146 g/L であった。尿中馬尿酸値の調査毎の分布に統計学的有意差は認められず、また居住者と就業者、および市職員間、あるいは対象街区と市職員の濃度分布にも統計学的有意差は認められなかった (Kruskal-Wallis 検定 p>0.05)。尿中馬尿酸値が、トルエンへの曝露が疑われる 0.320g/L<sup>3)</sup> よりも高い値であった人数は、第 1 回目調査は 2 人、第 2 回目調査は 7 人、第 3 回目調査では 4 人、第 4 回目調査では 4 人であった。なお、第 1 回から第 4 回の全てに 0.320g/L より高かった者はいなかった。

表 A-1-3 のとおり、尿中 t, t-ムコン酸値は、全対象者 37 人のうち、定量下限値 100 μg/L 未満は 34 人、100 μg/L~500 μg/L 未満は 2 人、500 μg/L 以上は 1 人であった。第 4 回目調査では、ACGIH が定める生物学的曝露指標である尿中 t, t-ムコン酸クレアチニン補正值 500 μg/g・cre<sup>1)</sup> より高かった者はいなかった。

表 A-1-1. 全体、居住者、就業者の第 1 回目 (①)、第 2 回目 (②)、第 3 回目 (③) 並びに第 4 回目 (④) と室蘭市職員の尿中フェノール値の中央値、平均値、標準偏差

		第 1 回目調査の尿中フェノール値	第 2 回目調査の尿中フェノール値	第 3 回目調査の尿中フェノール値	第 4 回目調査の尿中フェノール値	室蘭市職員の尿中フェノール値
全体 (①33 人、②42 人、 ③42 人、④37 人)	中央値	5.4mg/L	5.6mg/L	7.1mg/L	6.7mg/L	4.2mg/L
	平均値	12.6mg/L	14.3mg/L	13.4mg/L	14.3mg/L	12.4mg/L
	標準偏差	16.7mg/L	20.9mg/L	15.4mg/L	18.9mg/L	19.8mg/L
居住者 (①23 人、②27 人、 ③25 人、④26 人)	中央値	5.2mg/L	5.9mg/L	5.1mg/L	8.0mg/L	
	平均値	14.0mg/L	14.9mg/L	12.5mg/L	15.6mg/L	
	標準偏差	18.4mg/L	21.5mg/L	16.2mg/L	20.1mg/L	
就業者 (①10 人、②15 人、 ③17 人、④11 人)	中央値	5.6mg/L	3.7mg/L	7.9mg/L	3.8mg/L	
	平均値	9.3mg/L	13.2mg/L	13.9mg/L	11.1mg/L	
	標準偏差	12.3mg/L	20.5mg/L	14.4mg/L	16.0mg/L	

(尿が少なく検査が 1 人できなかった)

表 A-1-2. 全体、居住者、就業者の第 1 回目 (①)、第 2 回目 (②) 第 3 回目 (③) 並びに第 4 回目 (④) の尿中馬尿酸値の中央値、平均値、標準偏差

		第 1 回目調査の尿中馬尿酸値	第 2 回目調査の尿中馬尿酸値	第 3 回目調査の尿中馬尿酸値	第 4 回目調査の尿中馬尿酸値	室蘭市職員の尿中馬尿酸値
全体 (①33 人、②42 人、 ③42 人、④38 人)	中央値	0.130g/L	0.140g/L	0.110g/L	0.105g/L	0.140g/L
	平均値	0.175g/L	0.215g/L	0.148g/L	0.146g/L	0.202g/L
	標準偏差	0.196g/L	0.319g/L	0.155g/L	0.146g/L	0.192g/L
居住者 (①23 人、②27 人、 ③25 人、④27 人)	中央値	0.100g/L	0.130g/L	0.080g/L	0.120g/L	
	平均値	0.189g/L	0.161g/L	0.090g/L	0.151g/L	
	標準偏差	0.231g/L	0.138g/L	0.076g/L	0.142g/L	
就業者 (①10 人、②15 人、 ③17 人、④11 人)	中央値	0.155g/L	0.170g/L	0.095g/L	0.060g/L	
	平均値	0.144g/L	0.313g/L	0.183g/L	0.134g/L	
	標準偏差	0.070g/L	0.497g/L	0.209g/L	0.161g/L	

表 A-1-3. 全体、居住者、就業者の第 3 回目 (③)、第 4 回目 (④) の尿中 t, t-ムコン酸数値ごとの人数

	t, t-ムコン酸測定値	尿中 t, t-ムコン酸の人数			t, t-ムコン酸クレアチニン補正值	尿中 t, t-ムコン酸クレアチニン補正值の人数		
		③	④	室蘭市職員		③	④	室蘭市職員
全体 (③42 人、④37 人)	100 μg/L 未満	36 人	34 人	10 人	100 μg/g・cre 未満	39 人	35 人	11 人
	100~500 μg/L	5 人	2 人	1 人	100~500 μg/g・cre	2 人	2 人	0 人
	500 μg/L 以上	1 人	1 人	0 人	500 μg/g・cre 以上	1 人	0 人	0 人
居住者 (③25 人、④26 人)	100 μg/L 未満	23 人	23 人		100 μg/g・cre 未満	14 人	24 人	
	100~500 μg/L	2 人	2 人		100~500 μg/g・cre	1 人	2 人	
	500 μg/L 以上	0 人	1 人		500 μg/g・cre 以上	0 人	0 人	
就業者 (③17 人、④11 人)	100 μg/L 未満	13 人	11 人		100 μg/g・cre 未満	15 人	11 人	
	100~500 μg/L	3 人	0 人		100~500 μg/g・cre	1 人	0 人	
	500 μg/L 以上	1 人	0 人		500 μg/g・cre 以上	1 人	0 人	

※定量下限値 100 μg/L (尿が少なく検査が 1 人できなかった)

血液検査の値については、生活習慣改善や経過観察となる所見が見られたが、基礎疾患や過去の値が不明のため、健康影響として評価することはできない。

#### 4. 慢性骨髄性白血病の診断書に基づく関連性の検討 (非公開)

慢性骨髄性白血病については新たなデータなどの進展はなく、次回以降に検討を行う。

#### 5. 考察 (公開)

尿中フェノール値、尿中馬尿酸値ともに、過去 4 回の調査で分布に統計学的有意差はみとめられなかった。また、第 4 回目の調査で、対象街区と市職員との分布に統計学的有意差が認められなかった。即ち、対象街区の濃度分布が一般集団よりも高いとは言えない。

1978 年にフランスのパリで開催された国際ワークショップで、尿中フェノール値が 25 mg/L 以上の場合にはベンゼンへの曝露が疑われると報じられている<sup>2)</sup>。このためベンゼンへの曝露が疑われる数値として 25 mg/L を用いたところ、この値よりも高値であった人数は、第 4 回目調査では 9 人であった。なお、過去 4 回の測定値には相関、級内相関もある

ことから、対象者によってはベンゼンまたはフェノール等への曝露の可能性はある。なお、尿中フェノールはフェノール曝露の指標であるほか、喫煙や燻製食品、サリチル酸フェニール等の医薬品摂取や殺菌用のフェノール含有塗布薬による経皮吸収が報告されている<sup>4)</sup>。

2003年に発表されたトルエンに曝露された福島県内の20人労働者の尿中馬尿酸値の平均値(標準偏差)は仕事開始前で0.23 g/L (0.31 g/L)、仕事で0.32 g/L (0.28 g/L)、仕事直後で0.47 g/L (0.38 g/L)であったと報じられている<sup>3)</sup>。一方、トルエンに曝露されていない9人の労働者の尿中馬尿酸値の平均値(標準偏差)は、それぞれ0.12 g/L (0.11 g/L)、0.10 g/L (0.007 g/L)、0.07g/L (0.06 g/L)であったと報告されている<sup>3)</sup>。そこで、トルエンへの曝露が疑われる数値として0.320 g/Lを用いたところ、この値よりも高い値であった人数は、第4回目調査では4人であった。なお、第1回から第4回の全てに0.320g/Lより高かった者はいなかった。一方、「有害物質に曝露した作業者の血液、尿、呼吸などを採取して、その中の有害物質やその代謝物の濃度、あるいは早期影響を示す指標を測定することによって、ヒトの曝露の程度を推測すること」を生物学的モニタリングと定義される<sup>4)</sup>。有機溶剤中毒予防規則では、馬尿酸の測定結果を分布1(1 g/L以下)、2(1 g/L超 2 g/L以下)、3(2.5 g/L超)に分けている<sup>4)</sup>。この分布はあくまでもそれぞれの労働者が日常業務でどの程度の値を示すかを知るのが目的で、分布2と3の境界値が許容濃度レベルの曝露を8時間受けたときの作業終了時の尿の濃度に相当する値を目安に設定されている<sup>4)</sup>。正常、異常の鑑別を目的としたものではないが、この3つの分布に当てはめると、分布2以上に該当した値は第4回の調査の中では認められなかった。なお、尿中馬尿酸に影響する要因としては、食品添加香料、梅加工食品、清涼飲料水、総合感冒薬、あんず、福神漬、きな粉、経皮、発酵乳、乳製品、牛乳、スキนมilk、クランベリー、キウイフルーツ、プルーン(すもも)、コーヒーなどの摂取の影響が考えられる。

過去第1回目から4回目までの調査で、各回のフェノール値と馬尿酸値に相関は認められなかった。したがって、共通の曝露源としてのガソリン汚染によるものとは考えにくい。

第3回より新たにベンゼンの尿中代謝物としてt,t-ムコン酸の調査を行った。ACGIHが生物学的曝露指標として示す500 μg/g・creを用いたところ、この値より高い値であった者は第4回調査では認められなかった。なお、尿中クレアチニン値が低い場合は尿中代謝物濃度の評価への使用は避けた方が良い。

以上、フェノール、馬尿酸、t,t-ムコン酸の尿中代謝物濃度を総合的に考えると、共通の曝露源となるガソリンに継続的に曝露している可能性は低いと考えられる。さらに、第4回目調査においてフェノールとt,t-ムコン酸共に基準を超える値を示したものはおらず、フェノール値の要因としてはベンゼン以外の、例えばフェノール等への曝露の可能性はある。なお、日本産業衛生学会では気中フェノールの許容濃度5 ppm (19 mg/m<sup>3</sup>)に対応する生物学的許容値として尿中総フェノール濃度250 mg/g・creを設定している<sup>6)</sup>。したがって、今回の調査で3回とも25 mg/Lを超えた者において、その由来が気中フェノール曝露によるものと考えた場合、生物学的曝露指標250 mg/g・cre<sup>7)</sup>よりも低く、フェノール曝露による健康への影響はほとんどないと考えられる。

以上、これまでの結果を以下のとおりまとめる。

- ① ACGIHがベンゼン曝露の指標に用いているt,t-ムコン酸濃度は、4回目の測定(t,t-ムコン酸としては2回目)でACGIHが定める許容濃度を超えた者はおらず、ベンゼンへの曝露があったとしても健康影響が懸念される濃度以下であると考えられる。

- ② 尿中フェノールおよび馬尿酸ともに居住者、就労者、市職員に濃度分布の差はない。また、当該区参加者と市職員の濃度分布にも差はない。すなわち、市職員を室蘭市の一般集団の代表とした場合、当該区居住者および就業者の尿中代謝物濃度は一般集団の分布の範囲内と考えられる。
- ③ 4回の測定において尿中フェノールおよび馬尿酸ともに分布に差がなかった。すなわち集団として曝露レベルには変動はない。
- ④ 尿中フェノールや馬尿酸の曝露源となる物質には様々な化学物質があり、生活の中の曝露から、いずれもある程度は検出されるといえる。これまでの4回の測定で、尿中フェノールや馬尿酸ともに測定毎にある程度の相関があり、即ち濃度が比較的高めの人が高め、低めの人で推移している。従って、個人としては何らかの、例えば生活環境や生活習慣による一定の曝露があると考えられる。
- ⑤ しかし、各測定において個人の尿中フェノール値と馬尿酸に相関は認められず、すなわち、共通の曝露源としてのガソリン汚染はないと考えられる。

一方、本調査の限界として以下の点があげられる。

- ① 統計学的有意差が得られなかった理由としてサンプルサイズが小さかった可能性がある。
- ② 尿中フェノール代謝物が比較的高い対象者がおり、何らかの曝露が疑われるが、その曝露源は明らかにできない。
- ③ いずれも過去の水道水へのガソリン汚染による曝露を反映していない。

ベンゼンやトルエン曝露源は、ベンゼンやトルエンに汚染された水道水の飲用による経口曝露、ガソリンに汚染された土壌などからの気化したベンゼンやトルエンの吸入による経気曝露などの可能性が考えられる。しかし、配水ルート切替後の水道水中のベンゼン濃度の測定結果や、ガソリンスタンド周辺6地点での気中ベンゼン濃度の測定結果はいずれも基準値以下であった。したがって、当該地区において現在はガソリンによる水道水汚染、および大気汚染による健康影響の可能性は低いと考えられる。また、土壌中の高濃度ガスが下水道管を通して室内へ拡散していないかの目的とした室内調査では、7箇所中2箇所環境基準値 ( $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) の2~3倍の値を観測した。なお、環境基準値は生涯リスクレベル  $10^{-5}$  (10万分の1) を目標として設定されている。

## 6. 結論 (公開)

ベンゼンおよびトルエンの代謝は数時間から数日と早い。4回にわたって調査した尿中フェノール、馬尿酸、t, t-ムコン酸濃度測定の結果から、すべての測定値ともに高い者はいなかった。従って、水道水へのガソリン汚染事故によるベンゼンとトルエン曝露が継続している可能性は低い。一般集団においても尿中フェノールや馬尿酸は検出されることから、今後も尿中代謝物を測定した場合、変動を持ちつつ一定の値は検出されると考えられる。一方、測定は過去のガソリン汚染当時の濃度を明らかにすることはできない。また、値に影響する曝露源を明らかにすることもできないことを考えると、現在の水道水はベンゼンおよびトルエンともに水質基準に全て適合していることから、ガソリン汚染の指標としての尿中フェノール、馬尿酸、および t, t-ムコン酸の測定を継続する必要性は低いと考えられる。一方、継続的な尿中代謝物のモニターは、今後もし新たな汚染が生じた場合、例えば対象集団全員の曝露レベルが高くなった場合にそれを早期に把握することを目的とした場合は意味があると考えられる。

現在日本の水道水水質基準  $0.01\text{ mg}/\text{L}$  は、人がベンゼンを取り込んだ際の白血病データに基づき発がんリスクを推計し、生涯にわたってその値のベンゼンを取り込み続けた場合に、取り込まなかった場合に比した白血病の生涯リスクレベル  $10^{-5}$  (白血病になるリスク

が10万分の1の割合で増加する) (WHO1996による算出0.01-0.08 mg/L、USEPAによる評価0.01~0.1 mg/L) の下限値以下に設定されている<sup>8)</sup>。従って生涯(70年と仮定)に比べて短い期間、水質基準を超えるベンゼンを取り込んでも、過剰発がんリスクにはほとんど影響しないと考えられる。

しかし、これまで4回にわたって測定した尿中濃度は過去汚染された水道水を飲用していた当時の曝露を反映していない。言い換えると、水道水汚染による、ベンゼンを含むガソリンへの曝露期間や曝露レベルは不明である。現在、水道水のガソリン汚染は継続的していないこと考えると今後の急性健康影響の懸念は低い、慢性影響の可能性を考慮し、過去に国が定めたベンゼンの水質基準値を超えた水道水を利用していた対象者への今後の健康管理(血液検査や健康診断等)は、継続的に行うべきと考える。加えて、これまでに実施した尿中代謝物の濃度結果に関わらず、住民からの健康に関する訴えが生じた場合には対応すべきである。加えて、住民からの心的ストレスなどメンタルヘルスに関する相談への要望があった場合に専門家を紹介するなどによる対応をお願いしたい。さらに、新たな健康被害を予防するため、住民から飲用水の異常の訴えがあった場合には早急に測定に応じる必要がある(住民の方には、異常が感じられる水を保存しておくように求める)。地下水の継続的なモニタリング、汚染された地下水の揚水対策とともに、早急の汚染土壌掘削除去による環境汚染防止対策、および地下埋設配管のガソリン漏洩状況調査等が求められる。

#### 文献

- 1) American Conference of Governmental Industrial Hygienists. Benzene BEI. Cincinnati: ACGIH, 2001
- 2) Truhaut R, et al. International Workshop on Toxicology of Benzene, Paris: 9<sup>th</sup>-11<sup>th</sup> November 1976. Int Arch Occup Environ Health 1978; 41: 65-76.
- 3) Tanaka K, et al. A survey of urinary hippuric acid and subjective symptoms among occupational low toluene exposed workers. Fukushima J Med Sci 2003; 49: 129-139.
- 4) 川本俊弘ら「生物学的モニタリングと産業医」産業医科大学雑誌 第35巻 特集号『産業医と労働安全衛生法四十年』: 97-106 (2013)
- 5) American Conference of Governmental Industrial Hygienists. Benzene TLVs and BEIs. Cincinnati:104 ACGIH, 1998
- 6) 許容濃度の勧告.産衛誌 2022; 64 (5) : 253-285
- 7) フェノール生物学的許容値.産衛誌 50 巻, 2008
- 8) 食品安全委員会化学物質・汚染物質専門調査会「清涼飲料水評価書(案)ベンゼン」2008年9月