報告：

中国農村におけるフッ素汚染とフッ素症に関する調査研究

——汚染源を中心に——

浅沼信治*, 臼田 誠*, 安藤 満^{2*}, 松島松翠^{3*},
渡辺俊一^{3*}, 近藤 武^{4*}, 田村憲治^{5*}, 櫻井四郎^{6*},
陳 雪青^{7*}

石炭燃焼に由来するフッ素症を調査するため、日中共同研究を行った。研究は1994年から5年計画で、日本農村医学会のメンバーと中国卫生部予防医学科学院との間で、屋内フッ素汚染の調査と健康影響に関する共同研究として実施した。大規模な中国現地調査期間は1995年から1997年の3年間である。

調査地域は、汚染のない対照地域1か所と汚染地域2か所の3地域である。いずれも飲料水にはフッ素汚染のない地域である。調査は、フッ素暴露集団における健康状態を把握し、フッ素症発生と健康状態を検討することを目的に、屋内外大気汚染濃度の測定と、小学生高学年50人、中学生50人、その親100人、患者50人をそれぞれの地域で選び、尿中フッ素濃度の測定、尿中成分分析、歯牙フッ素症と骨フッ素症の確定診断を実施した。

その結果、水のフッ素汚染がない地域で、石炭燃焼に由来するフッ素症発症の確認がされた。しかも、その発症は、石炭燃焼によって汚染された屋内大気中フッ素を直接吸入することによるものではなく、屋内大気で汚染された穀物の摂取によるものであった。フッ素は石炭だけでなく、火力調整用に混ぜられる土壌にも多く含まれ、汚染に大きく寄与していた。汚染の代表的な作物は唐辛子、トウモロコシ、ジャガイモであった。また、汚染地区住民の尿中にフッ素が大量に検出された。

①フッ素 ②中国農村 ③石炭燃焼 ④屋内大気汚染 ⑤フッ素症

1. 緒 言

世界人口の22%、12億4,000万人を抱える中国では、豊富な石炭に依存して急激な経済発展

を成し遂げつつある。中国の石炭依存率は、総エネルギー消費量の79%と著しく高い。コークス用や工業での使用(51.7%)および発電用(28.6%)に加え、地域暖房、屋内暖房、調理用熱源としての民生用(17.7%)に大量の石炭が使用されている。そのため、都市に限らず農村も大気汚染と屋内汚染が進行し、住民の大気汚染物質への暴露が著しい。

中国の石炭は産地によりその品質に大きな違いがある。日本をはじめとした外国への輸出用石炭や、北京等の大都市において使用される石炭は、硫黄含量が低く近代的選炭技術で生産さ

* 〒384-0301 長野県南佐久郡臼田町臼田2241

日本農村医学研究所

^{2*} 国立環境研究所

^{3*} 佐久総合病院

^{4*} 松本歯科大学

^{5*} 国立水俣病総合研究センター

^{6*} 大妻女子大学

^{7*} 国立環境研究所・早稲田大学

(受付：1999年4月28日)

れた良質の石炭である。その一方、硫黄含量の高い質の悪い石炭を使用する地域もある。四川省や貴州省などのように硫黄含量が3%に達する石炭を使用している地域では、燃焼によって高濃度の亜硫酸ガスや浮遊粉じんが発生し、大気汚染が一段と深刻化している。

そして今、中国の32の省、自治区、直轄市のうち、上海市を除く31の省、自治区、直轄市が、飲料水のフッ素汚染と石炭燃焼によるフッ素汚染に曝されている。図1に示すように、汚染地域は広く分布し、淡い網目が水に由来する汚染地域であり、濃い網目でマークした地域が石炭燃焼による汚染地域である。全体では、1億400万人がフッ素汚染に暴露され、フッ素症の患者の総数は、4,300万人に上るといふ。

石炭燃焼に由来するフッ素暴露は、14の省の農村地域で発生し、多数の住民が歯の劣化を伴う歯牙フッ素症と骨硬化をもたらす骨フッ素症に罹っている。石炭燃焼由来のフッ素症の患者の発生は、1,816万人が歯牙フッ素症に、歯牙フッ素症のうちの146万人が骨フッ素症に罹っていると報告されている。

このような石炭燃焼に由来するフッ素症を防止するため、国立環境研究所と日本農村医学会のメンバーおよび中国衛生部予防医学科学院により、日中共同研究が行われた。実質的な調査期間は1995年から1997年の3年間である。ここでは、フッ素汚染源を中心に報告する。

(□ 水系フッ素汚染 ■ 石炭由来フッ素汚染)

図1. 中国衛生部の報告したフッ素汚染地区

調査対象地域

現地調査は、汚染のない対照地域1か所と汚染地域2か所の3地域で実施した。いずれも飲料水にはフッ素汚染のない地域である。フッ素汚染のない対照地域として江西省南昌市湾里区の一鎮を選定し、フッ素汚染の著しい地域は、四川省培陵地区苗族土家族自治县の一郷と、貴州省黔南自治州龍里県の一郷とした。

江西省の対照地域は、平坦な耕地と水田と畑が広く点在する純農村地域である(写真1)。この地域では農作物として、水稻、野菜を中心に、鶏、豚、牛を飼育し、市場に供給している。農家の多くは自給自足の食生活を送っているが、一部には換金作物を栽培している農家もある。石炭は省内の炭坑から輸送しているが、その石炭中のフッ素濃度は低く、石炭燃焼の際発生する屋内汚染も少なく、歯牙フッ素症および骨フッ素症は観察されない。

四川省南部のフッ素汚染地域は、長江の支流・烏江の中流から入った中国内陸の標高1,500mの純農村である(写真2)。山間部には石塊を取り除き開墾したと見られる狭く細長い棚状の畑が点在し、農作物としてトウモロコシ、唐辛子、野菜を自給用に、また果物や鶏、アヒル、豚、牛等の家畜を飼育し、主に市場に供給している。中国全体から見ても貧しい農村地帯である。

貴州省のフッ素汚染地域は、四川省の調査地域と同様、山間部に棚田状の水田と畑が広く点

写真1

写真 2

写真 4

写真 3

在している。写真3に見られるように、山には水を蓄える森林もなく、水田をつなぐ川もない。降雨量の多いこの地域では、降った雨頼みの農耕が行われている。農作物として、主に水稲、トウモロコシ、野菜を自給用に、また果物や鶏、アヒル、豚、牛などの家畜を飼育し、市場に供給しているが、著しく貧しい農村地帯である。

いずれのフッ素汚染地域も、石炭は写真4に見られるような近隣の小規模な炭坑で採炭し、トラックで輸送している。その石炭中のフッ素濃度は著しく高い。屋内において石炭を調理や暖房の熱源として使用しているが、石炭燃焼の際発生するフッ素が貯蔵農作物を汚染し、このため歯牙フッ素症および骨フッ素症が発生するものと予想された地域である。

調査項目および方法

今回の調査では、フッ素暴露集団における健康状態を把握し、フッ素症発生と健康状態を検討するために、屋内外大気汚染濃度の測定と、小学生高学年50人、中学生50人、その親100人、患者50人をそれぞれの地域で選び、尿中フッ素濃度の測定、尿中成分（BUN, CRE, Na, K, Cl, Ca, IP, Mg, UA, AHY, U-GUL, NAG, U-ALB）分析、歯牙フッ素症および骨フッ素症の確定診断を実施した。

1) フッ素屋内汚染測定

大気汚染・屋内汚染の調査は、燃料として石炭を利用している一般農家を選び、家屋内外のフッ素汚染状況の現地調査を行った。石炭燃焼により発生する粒子の測定には、吸入性粒子である $10\mu\text{m}$ 以下の浮遊粒子状物質（SPM）を粒径別に分別捕集できる機能を備えたポータブルサンプラーを使用した。このサンプラーを中国現地に運び、屋内外汚染のSPM濃度とフッ素濃度の変動を同時に測定する目的で使用した。

屋内発生源による浮遊粒子状フッ素の発生とその濃度変動は、発生源である石炭の質、フッ素含有量、燃焼の量的割合のほか、屋内換気状況、家屋内構造による拡散状況の違いに影響され、その季節的および時間的変動は複雑な状況であると予想されたため、昼と夜に分けて行った。

2) 食品・石炭・土壌・飲料水のフッ素汚染測定

食品については日常的に摂取するもののフッ素の汚染状況と摂取量等について調査した。また、今回の調査地域は、主に石炭燃焼による屋内フッ素汚染の影響に絞っているため、飲料水を介したフッ素汚染が比較的少ない地域を選定してあるが、飲料水についても調査した。合わせて現地で採取した石炭と土壌について、含まれるフッ素量を分析した。

3) 尿生化学測定

尿は対象地域のそれぞれの小学生高学年、中学生、その親、フッ素症の可能性のある患者から採取し、尿中フッ素濃度の測定、尿中成分濃度（BUN, CRE, Na, K, Cl, Ca, IP, Mg, UA, AHY, U-GUL, NAG, U-ALB）の分析を実施した。

結 果

汚染—非汚染地域におけるフッ素暴露の違いを明確にするため、暴露指標となる屋内大気汚染、フッ素汚染、食品汚染、および住民の暴露量評価を行った。

屋内大気汚染は、汚染地域および非汚染地域とも、調理用や暖房用熱源として使用される石炭の燃焼によって高濃度の汚染が観測された。

図2に汚染地域の四川省および非汚染地域の江西省について、石炭と火力調整用の土壌のフッ素汚染状況を示す。四川省の汚染地域は、

図2. 汚染・非汚染地区別石炭、土壌フッ素含有量

石炭と土壌のフッ素汚染が高い。一方、貴州省の汚染地域は火力調整に使用する土壌中のフッ素濃度が著しく高く、土壌が主な汚染源であることがわかる。非汚染地域の石炭と土壌のフッ素含有量は低かった。

図3に穀物、大気、飲料水の汚染状況を示す。フッ素汚染の著しく高いのは食物であり、主なものはトウモロコシとジャガイモおよび香辛料の唐辛子である。唐辛子は貴州省で著しく高い。主要穀物としてトウモロコシとジャガイモを摂取する四川省の汚染地域では、穀物のフッ素汚染に由来するフッ素摂取量が極端に高い。一方、稲作の多い貴州省の汚染地域では、主要穀物として米を消費するが、脱穀により白米の汚染は比較的低くなるため、フッ素摂取量も中等度である。いずれの汚染地域でも野菜の汚染レベルは低い。また、汚染地域でも飲料水中のフッ素濃度は低く、汚染源は石炭燃焼に由来することがわかる。全体のフッ素摂取量は四川省が最も高く次いで貴州省であり、対照地区の江西省は低い。

図4に示すように、個人当たりのフッ素暴露

図3. 汚染・非汚染地区別フッ素摂取量

図4. 汚染地区および非汚染地区住民の全フッ素摂取量

図 5. 地区別尿中カルシウム濃度

図 6. 地区別尿中無リン濃度

図 7. 地区別尿中フッ素濃度

総量は、家族により顕著な差がある。同じフッ素汚染地域の中でも、とくに著しいフッ素暴露下に生活する家族が存在する一方、フッ素摂取量を低減化させている家族が存在する。

図 5, 6 に尿中カルシウムとリンについて示す。尿は蓄尿ではなく、1 回の採尿であるためクレアチニン補正をしてある。カルシウムは地

域差は認められないが、リンは、どの年齢をとっても対照地区で高く、汚染地域は減少している。

図 7 に尿中フッ素含有量を示す。地域間に顕著な差が存在し、汚染地域に居住する住民の尿中フッ素排泄量は著しく高い。非汚染地域住民の尿中排泄濃度は、日本の農村地区住民（長野県佐久地域）のフッ素排泄濃度とほぼ同じ低レベルである。

考 察

中毒の発生地は寒冷多雨の高地が多い。その原因は主に、収穫した農作物を家屋内で乾燥し、貯蔵する方法に問題がある。

中国の貧しい農村地域ではさまざまな石炭燃焼器具が使用されている。屋内の地面に直接掘ったコンロや石造りのストーブのような旧式な燃焼器具も使用されている。これに加えて、中国の農村地域の一部では、屋内暖房や調理用熱源として、質の悪い高濃度のフッ素を含有する石炭を家屋内で使用しているため、燃焼によって高濃度の粒子状およびガス状フッ素が発生している。フッ素は、経気道的吸入と、屋内大気中フッ素の吸着による食品汚染から経口的に摂取されている。写真 5, 6 に示すように、農村地域では、収穫後の農作物を、石炭コンロの近くや家屋の屋根裏の貯蔵庫で乾燥する家庭が多い。この貯蔵中の食品が燃焼によって発生するフッ素の拡散と吸着により著しく汚染される。

また、写真 7 に示すように、粉末状の石炭は土と混ぜて楕円形のこぶし二つぐらいのだんご状にし、コンロの上に乗せて無駄なく有効に活用されている。結果的に燃焼力が弱くなるため、火力調整にも役立っている。しかし、この混ぜる土の中に、高濃度のフッ素が含まれているため屋内フッ素汚染を拡大することになる。

地域によっては屋内汚染を緩和するため煙突を備え付けるよう指導がされている。農村地域で用いられている石炭の質は悪い上に、換気状況が個々の農家によって異なるため、屋内フッ素濃度は著しく変動する。写真 8 は対照地区で

写真 5

写真 7

写真 6

写真 8

見られた改善された「改善カマド」の一種である。地元の医療機関の調査結果に基づく進言から、政府の援助を受けながら改良されたものである。

尿中フッ素濃度は有力な暴露指標であるが、石炭燃焼により食品汚染を経由し人体暴露を起こしたフッ素は、硬組織に沈着し組織形成に影響する一方、尿中に排泄される。今回は蓄尿によるデータではないので、1日の合計フッ素排泄量は測定できなかったが、フッ素汚染地域ではフッ素症発症の危険領域をはるかに超える量のフッ素摂取が行われていることが分かる。

また、尿中リンは食べ物の影響を強く受けやすいが、対照地区が高く汚染地域に低いことから、他の項目もあわせて今後検討していく必要がある。

結 論

今回の調査から、水のフッ素汚染がなく、石炭燃焼に由来するフッ素汚染地域でフッ素症発症の確認がされた。その発症は、石炭燃焼によってフッ素で汚染された屋内大気を直接吸入することによるものよりも、屋内大気で汚染された穀物の摂取によるものであった。フッ素は石炭だけでなく、火力調整用に混ぜられる土壌にも多く含まれ、汚染に大きく寄与していた。汚染の代表的な作物は唐辛子、トウモロコシ、ジャガイモであった。貧しく湿気の多い農村地帯で、収穫後の農作物をどのように貯蔵・保存することが経済的にも安く、汚染を防げるかが

大きな課題である。屋内の大気汚染を防ぐには、煙突の普及が重要であるが、その熱源をうまく活用して穀物乾燥と保存に役立てる工夫も必要である。

現在多くの開発途上国では、化石燃料の大量使用と深刻な大気汚染と屋内汚染が起こっている。中国での環境汚染物質の発生源は、主に工業用や地域暖房、家庭内の調理用のエネルギー源としての豊富な石炭の使用に原因している。中国は今後とも豊富な石炭に依存し工業化を進めていかざるを得ないため、深刻な環境汚染が懸念される。高度経済成長の進行に伴い、石炭燃焼に伴う大気汚染は、今後とも継続していくと考えられる。中国や途上国の経済の持続的発展を支援していくためには、化石燃料をはじめとしたエネルギー源の燃焼に由来する大気汚染を防止し、その健康影響の発生を予防していく

必要がある。

日本をはじめ多くの先進国は、高度経済成長時にさまざまな環境汚染を経験しており、公害による著しい健康被害の面でも先進的である。このため先進各国は、環境汚染の防止のために多くの対策を実施してきている。途上国も現在直面する多彩な環境汚染による健康被害を防止するため、さまざまな対策を採用しているが、地球規模での持続的成長を継続していくためには、今後も先進国と途上国双方が共同して調査研究を行い、対応策を実施していく必要がある。

謝 辞

本調査は、中国予防医学科学院環境衛生・衛生工程研究所 吉榮娣、梁超珂、曹守仁の各先生および調査地区の多くの方々の協力下を実施された。深く感謝の意を表したい。

Research on Fluoride Pollution and Fluorosis in Rural Areas of China

Shinji ASANUMA^{*}, Makoto USUDA^{*}, Mitsuru ANDO^{2*},
Shosui MATSUSHIMA^{3*}, Toshikazu WATANABE^{3*}, Takeshi KONDO^{4*},
Kenji TAMURA^{5*}, Shiro SAKURAI^{6*}, Xueqing CHEN^{7*}

A China–Japan joint project was carried out to study the incidence of fluorosis caused by coal burning in China from 1995 to 1997.

The health survey covered a control area and two fluorosis areas. In those research areas, drinking water was not polluted with fluorides. The survey was designed to analyze the health status of people exposed to fluorides and evaluate the relationships between the dose and incidence of fluorosis. The concentration of airborne pollutants in both indoor and outdoor air was measured. The concentration of fluoride in the urine was analyzed and definite diagnoses for dental fluorosis and skeletal fluorosis were determined.

As a result, the incidence of coal burning fluorosis was confirmed in studied areas. Moreover, the fluorosis was caused not only by the direct inhalation of the airborne fluorides in indoor air but also by the intake of cereals polluted with fluorides. Fluoride was contained in both coal and soil. Therefore the mixture of coal and soil used for the adjustment of fire energy contributed to the air pollution to a great extent. The typical polluted crops were red pepper, corn and potato. An extremely high concentration of fluoride in the urine of residents in the polluted areas was detected.

^{*} *Japan Institute of Rural Medicine*

^{2*} *National Institute for Environmental Studies*

^{3*} *Saku Central Hospital*

^{4*} *Matsumoto Dental University*

^{5*} *National Institute for Minamata Disease*

^{6*} *Otsu Women's University*

^{7*} *National Institute for Environmental Studies, Waseda University*