

令和元年5月30日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H05810

研究課題名(和文) アジア大河デルタの地層中における高濃度窒素の形成・流動と地下水ヒ素汚染の解析

研究課題名(英文) An analysis of the groundwater arsenic contamination in relation with the formation and flow of high concentration nitrogen in stratum in Asian large river deltas

研究代表者

黒澤 靖 (KUROSAWA, Kiyoshi)

九州大学・熱帯農学研究センター・特任教授

研究者番号：70128114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,100,000円

研究成果の概要(和文)：ガンジスデルタ(バングラデシュ)と紅河デルタ・メコンデルタ(ベトナム)の地下水ヒ素汚染地で、堆積物層からPEAT(泥炭土)を採取した。そして、PEATの分布深さと形成年代、PEAT中のヒ素、窒素、炭素の濃度、及びヒ素の存在形態、窒素の供給源等を明らかにした。さらに、PEATに存在する微生物の種類や性質を解析した。このほかPEAT採取地点近くの地下水について、ヒ素、窒素濃度、酸化還元電位等を測定した。これらを総合して、PEATの諸性質が、PEATから地下水へのヒ素溶出に及ぼす影響を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地下水ヒ素汚染のメカニズムを知る上で、PEATから地下水へのヒ素溶出現象は非常に重要であるが、これについては今まであまり分かっていなかった。本研究では、PEAT中のヒ素、窒素、炭素の諸性質、PEATに存在する微生物の種類等を総合的に解析し、これら要素がPEATから地下水へのヒ素溶出に及ぼす影響を明らかにした。本研究成果は、ヒ素汚染が激しく人口も多いガンジス、メコン、紅河の各デルタを対象に得られたもので、その学術的意義は大きい。本研究成果は、今後これらデルタで、地下水ヒ素汚染対策を立てるのに役立つと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Peat was collected from the sediment layer in the groundwater arsenic contaminated area in the Ganges Delta (Bangladesh) and the Mekong and the Red River deltas (Vietnam). And then, the distribution depth and the formation age of the peat, the concentrations of arsenic, nitrogen and carbon, the existence form of arsenic, the source of nitrogen, etc. in the peat were clarified. In addition, the types and characteristics of microorganisms present in the peat were analyzed. Furthermore, arsenic and nitrogen concentrations, redox potential, etc. were measured for the groundwater near the peat collection site. Based on these, the influence of the properties of peat on the arsenic release from peat to groundwater was identified.

研究分野：地水環境保全学

キーワード：PEAT デルタ ヒ素 窒素 炭素 微生物 地下水 溶出

1. 研究開始当初の背景

(1) アジアの大河デルタ地域における地下水ヒ素汚染は、ここ数十年間に急速に拡大した。アジアの各ヒ素汚染地では、地下水のアンモニウム態窒素の濃度が例外なく高かった。地下水のアンモニウム態窒素の供給源は、分析によれば化学肥料のほか土壌有機物の可能性もあったが、特定は困難であった。

(2) そこで、堆積物を対象とすることとして、地下水ヒ素汚染に関連すると思われるピートを採取し、ピートのヒ素・窒素濃度、形成年代、炭素 - 窒素比、窒素安定同位体比等を分析する必要があると思われた。また、ピートに存在する微生物の種類や特徴を明らかにし、さらにピート中のヒ素の性質やヒ素の地下水溶出に関連する要素を明らかにし、以上を総合して地下水ヒ素汚染機構を解明する必要があると思われた。

2. 研究の目的

(1) 各地の地下水ヒ素汚染地で、ピートをサンプリングし、そのヒ素濃度、窒素・炭素濃度、窒素安定同位体比、炭素 14 年代等を測定した。そして、ピートの形成年代や窒素の供給源を推定し、これらとピート中のヒ素の性質との関連性を解析した。

(2) サンプリングしたピートから、微生物由来の DNA を抽出し、遺伝子解析によって、微生物の種類を特定し、さらに微生物によるヒ素、窒素利用の性質について考察した。これよりピートから地下水へのヒ素溶出に関して、微生物活動の影響を具体的に明らかにした。

(3) 以上をもとに、ピートが地下水ヒ素汚染に及ぼす影響について総合的に考察した。

3. 研究の方法

(1) 対象地は、ガンジスデルタ（バングラデシュ）、紅河デルタ・メコンデルタ（ベトナム）とした。現地で、ピート堆積物をボーリングにより採取し、これを、農林水産省植物防疫所の許可を得て日本に持ち帰った。

(2) ピートについて、化学的性質（ヒ素、窒素、炭素、鉄の各濃度等）、窒素及び炭素安定同位体比、放射性炭素年代を測定した。ピートの主な化学的性質については、分析対象元素の溶媒抽出を行い、実験室の分析機器で測定した。窒素・炭素安定同位体比、放射性炭素年代の分析は、専門機関に依頼した。

(3) ピートに存在する微生物については、微生物由来の DNA を抽出し、遺伝子解析によってヒ素の溶出に関連する微生物群の特定を行った。また、抽出 DNA の塩基配列解析より、ヒ素溶出関連細菌群を特定した。

(4) データ解析には、分散分析、相関分析などの統計学的方法を用いた。

4. 研究成果

(1) ピートの分布深さと形成年代

バングラデシュのガンジスデルタ（3 か所）、ベトナムの紅河デルタ（2 か所）とメコンデルタ（2 か所）で、堆積物のボーリングを行い、ピート（またはピート質粘土）を採取した。ピートの分布深さは地表面下 6 - 10 m であったが、一部では、23 - 25 m であった。ピートの放射性炭素年代測定によれば、ピートの形成年代は、ガンジスデルタでは今から 1800 年前 ~ 4000 年前、紅河デルタ、メコンデルタでは、今から 6000 年前 ~ 8400 年前であった。

デルタ間でピートの形成年代を比較すると、ガンジスデルタの方が、紅河デルタ、メコンデルタよりも形成年代がかなり若かった。紅河デルタとメコンデルタの間では、形成年代に大きな差はなかったが、両デルタとも、浅い層（深さ 6 ~ 10 m）は、深い層（深さ 23 ~ 25 m）よりも 2000 ~ 2400 年ほど、形成年代が若かった。

(2) ピートのヒ素、窒素、炭素の濃度、これら要素間の関連性

ピートのヒ素濃度 (mg/kg) は、ガンジスデルタ 23 ~ 73、紅河デルタ 7 ~ 127、メコンデルタ 23 ~ 54 で、各デルタとも、50 以上の高い値が認められた。ピートの窒素濃度 (%) は、ガンジスデルタ 0.37 ~ 0.75、紅河デルタ 0.58 ~ 0.72、メコンデルタ 0.15 ~ 0.89 で、すべて 1.0 以下であり、また炭素濃度 (%) は、ガンジスデルタ 5 ~ 11、紅河デルタ・メコンデルタ 13 ~ 23 で、ガンジスデルタの方が、紅河デルタ・メコンデルタより低い値であった。また、ピートの高いヒ素濃度は、炭素窒素比が 14 ~ 25 のときに認められた。また、ガンジスデルタでは、ピートについてヒ素濃度は、アンモニウム態窒素濃度と正の相関があった。

(3) ピートを形成する植物、ピート内のヒ素の存在形態、ピート中の窒素の供給源

ピートの窒素安定同位体比 (‰) は、ガンジスデルタ 0.37 ~ 0.86、紅河デルタ 2.8 ~ 3.0、メコンデルタ 1.5 ~ 2.5 で、この窒素供給源を示す値は、化学肥料と土壌有機物の中間的な物質の

値であった。ピートの炭素安定同位体比(‰)は、ガンジスデルタ-20~-26、紅河デルタ-30、メコンデルタ-27~-30で、デルタごとに値に違いがあったが、いずれのデルタでもピートを形成した植物は、C3植物であった。

ガンジスデルタのピートについて、ヒ素のフラクション解析によれば、ピート中のヒ素成分は、ヒ素が残留物、鉄・マンガン等の酸化物に結合したものと有機物に結合したものが多くを占めた。

(4) ピート内に存在する微生物と微生物によるヒ素、窒素の利用

ガンジスデルタで採取したピートについて、それに存在する還元菌の種類を特定する作業を、PCR-DGGE 電気泳動および DNA 配列解析により行った。その結果、ピート中には複数種の還元菌が存在し、このうちのいくつかの菌はコロニーを形成していた。この形成がピートから地下水へヒ素の還元溶出に関連を持つと考えられた。

また、このピートから微生物由来の DNA を抽出し、遺伝子解析によってヒ素の溶出に関連する微生物群の特定を試みた。その結果、ヒ素濃度の高いピートから細菌由来の DNA が高頻度で抽出された。抽出した DNA の塩基配列解析の結果より、硝酸菌および亜硝酸菌と酷似した窒素利用細菌とヒ素溶出に関連する複数の鉄及びヒ素酸化細菌類が検出された。

(5) ピートの存在が地下水ヒ素汚染に及ぼす影響

ガンジスデルタのポーリング地点の地下水水質を測定した結果、ヒ素濃度は 0.2~0.4mg/L、アンモニウム態窒素濃度は 1.7~1.8mg/L と高い値で、地下水中のヒ素、アンモニウム態窒素は主にピートのヒ素、アンモニウム態窒素に由来する可能性があった。地下水の酸化還元電位は、地下水が還元状態にあることを示す値であった。よって、地下水と地下水に接するピート層は還元環境下であり、この環境下で活動する微生物(窒素利用菌、ヒ素酸化菌等)の影響を受けながら、ピートから地下水へのヒ素溶出が起きていると判断された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計19件)

Nguyen Van Thinh, Akinori Ozaki, Yasuhito Osanai, Kiyoshi Kurosawa 2019 Trace Toxic Elements in Agricultural Soil and Sediment in the Biggest Estuarine Area, Northern Vietnam. *Journal of Paddy and Water Environment*, 17:63-68, DOI: 10.1007/s10333-019-00697-3, 査読有.

Minhaz Ahmed, Masaru Matsumoto, Akinori Ozaki, Nguyen Van Thinh and Kiyoshi Kurosawa 2019 Heavy Metal Contamination of Irrigation Water, Soil, and Vegetables and the Difference between Dry and Wet Seasons Near a Multi-Industry Zone in Bangladesh. *Water*, 11(3-583):1-12, DOI:10.3390/w11030583, 査読有.

Kikuhara K., Iiyama K., Masumoto M., Furuya N. 2019 First report of occurrence of resistance to DMI fungicides in *Gymnosporangium asiaticum*, the causal agent of Japanese pear rust, in Japan. *Journal of General Plant Pathology*, 85:49-56, DOI:10.1007/s10327-018-0820-5, 査読有.

Minhaz Ahmed, Matsumoto Masaru, Kiyoshi Kurosawa 2018 Heavy Metal Contamination of Irrigation Water, Soil, and Vegetables in a Multi-industry District of Bangladesh. *International Journal of Environmental Research*, 12(4):531-542, DOI: 10.1007/s41742-018-0113-z, 査読有.

Nguyen Van Thinh, Yasuhito Osanai, Tatsuro Adachi, Phong K. Thai, Nobuhiko Nakano, Akinori Ozaki, Yoshihiro Kuwahara, Ryosuke Kato, Masato Makio, Kiyoshi Kurosawa 2018 Chemical Speciation and Bioavailability Concentration of Arsenic and Heavy Metals in Sediment and Soil Cores in Estuarine Ecosystem, Vietnam. *Microchemical Journal*, 139:268-277, DOI:10.1016/j.microc.2018.03.005, 査読有.

Makoto Eharaa, Kimihiko Hyakumurab, Ren'ya Sato, Kiyoshi Kurosawa, Kunio Araya, Heng Sokh, Ryo Kohsaka 2018 Addressing Maladaptive Coping Strategies of Local Communities to Changes in Ecosystem Service Provisions Using the DPSIR Framework. *Ecological Economics*, 149:226-238, DOI:10.1016/j.ecolecon.2018.03.008, 査読有.

Nguyen Van Thinh, Masaru Matsumoto, Shamim Uddin, Yiping Xie, Kiyoshi Kurosawa 2018 Arsenic, Toxic Heavy Metals, and C-N-P in Peaty Sediments in Samta Village, Southwestern Bangladesh. *J.Fac.Agr., Kyushu University*, 63(2):207-210, 査読無.

菊原賢次, 橋本文武, 松元賢, 飯山和弘, 古屋成人 2018 ナシ赤星病の多発生と DMI 剤の効果減退との関連 福岡県八女地域での後ろ向きコホート研究. *日本植物病理学会報*, 84:98-104, DOI:10.3186/jjphytopath.84.98, 査読有.

菊原賢次, 足立龍弥, 齊藤紀子, 飯山和弘, 松元賢, 古屋成人 2018 福岡県における DMI 剤低感受性ナシ黒星病菌の発生状況. *九州病害虫研究会報*, 64:1-6, 査読有.

Nguyen Van Thinh, Yasuhito Osanai, Phong K Thai, Tatsuro Adachi, Nobuhiko Nakano, Akinori Ozaki, Yoshihiro Kuwahara, Ryosuke Kato, Masato Makio, Kiyoshi Kurosawa 2018 Chemical Speciation and Bioavailability Concentration of Arsenic and Heavy Metals

in Sediment and Soil Cores in Estuarine Ecosystem, Vietnam. *Microchemical Journal*, 139:268-277, DOI:10.1016/j.microc.2018.03.005, 査読有.

M. Ahmed, K. Kurosawa 2017 Arsenic Contamination of Water-Soil-Crop System in an Industrial Area of Bangladesh. *International Journal of Environment*, 6(1):76-86, DOI:10.3126/ije.v6i1.16869, 査読有.

M Jahiruddin, Y Xie, A Ozaki, MR Islam, TV Nguyen and K Kurosawa 2017 Arsenic, cadmium, lead and chromium concentrations in irrigated and rain-fed rice and their dietary intake implications. *Australian Journal of Crop Science*, 11(07):806-812, DOI:10.21475/ajcs.17.11.07.pne408, 査読有.

Thinh Nguyen Van, Yasuhito Osanai, Hai Do Nguyen and Kiyoshi Kurosawa 2017 Arsenic Speciation and Extraction and the Significance of Biodegradable Acid on Arsenic Removal—An Approach for Remediation of Arsenic-Contaminated Soil. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 14(9-990):1-6, DOI:10.3390/ijerph14090990, 査読有.

Thinh Nguyen Van, Akinori Ozaki, Yiping Xie, Anh Nguyen Duc and Kiyoshi Kurosawa 2017 Contamination of Agricultural Soils by Toxic Trace Metals in an Industrial District in Vietnam. *Journal of Geography, Environment and Earth Science International*, 10(3):1-9, DOI:10.9734/JGEEI/2017/33235, 査読有.

Abdelrahman, M., N. Suzumura, M. Mitoma, S. Matsuo, T. Ikeuchi, M. Mori, K. Murakami, Y. Ozaki, M. Matsumoto, A. Uragami, A. Kanno 2017 Comparative de novo transcriptome profiles in *Asparagus officinalis* and *A. kiusianus* during the early stage of *Phomopsis asparagi* infection. *Scientific Reports*, 7:1-14, DOI:10.1038/s41598-017-02566-7, 査読有.

Kyaw, H. W. W., K. Tsuchiya, M. Matsumoto, K. Iiyama, S. S. Aye, M. Zaw, D. Kurose, M. Horita, N. Furuya 2017 Genetic diversity of *Ralstonia solanacearum* strains causing bacterial wilt of solanaceous crops in Myanmar. *Journal of General Plant Pathology*, 83:216-225, DOI:10.1007/s10327-017-0720-0, 査読有.

Zaw, M., T. A. A. Naing, M. Matsumoto 2017 First report of stem blight of asparagus caused by *Phomopsis asparagi* in Myanmar. *New Disease Reports*, 37:17, DOI:10.5197/j.2044-0588.2017.035.017, 査読有.

Thinh Nguyen Van, Akinori Ozaki, Hoang Nguyen Tho, Anh Nguyen Duc, Yen Tran Thi, Kiyoshi Kurosawa 2016 Arsenic and Heavy Metal Contamination in Soils under Different Land Uses in an Estuary in Northern Vietnam. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 13(11-1091):1-13, DOI:10.3390/ijerph13111091, 査読有.

M. Zaw, S.S. Aye and M. Matsumoto 2016 Genetic characteristics of *Pyricularia grisea* and their pathotypes in Myanmar. *Bull. Inst. Trop. Agr., Kyushu Univ.*, 39:103-111, DOI:10.11189/bit.39.103, 査読無.

[学会発表](計28件)

Thao Le Dinh, 大迫佳奈, Zaw Myo, 飯山和弘, 古屋成人, 松元 賢 2019 アスパラガス属植物から分離した *Phomopsis asparagi* の遺伝的多様性に関する研究. 平成31年度日本植物病理学会大会.

小埜晶, 大迫佳奈, 飯山和弘, 古屋成人, 松元賢 2019 ハマタマボウキから分離された植物病原菌類の特異的PCR法による簡易診断. 平成31年度日本植物病理学会大会.

Myo, Z., Seint San, A., Matsumoto, M. 2019 Current occurrence of Diaporthe diseases on soybean stem in Myanmar. 平成31年度日本植物病理学会大会.

Akinori Ozaki, Panitan Kaewjantawee, Monton Anongponyoskul, Nguyen Van Thinh, Takashi Okayasu, Masaru Matsumoto 2018 熱帯塩水養殖池に発生する下層高水温現象による水域内蓄熱に関する検討. 農業農村工学会応用水理研究部会.

Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa 2018 The Role of Peat Sediment on the Groundwater Arsenic Contamination in Bangladesh. 第23回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Minhaz Ahmed, Masaru Matsumoto, Akinori Ozaki, Nguyen Van Thinh, Kiyoshi Kurosawa 2018 Heavy metal contamination of irrigation water, soils and vegetables and their seasonal variations in an industrial area of Bangladesh. 第23回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Thinh Nguyen Van, Akinori Ozaki, Yasuhito Osanai, Kiyoshi Kurosawa 2018 Trace Toxic Elements in Agricultural Soil and Sediment in the Biggest Estuarine Area, Northern Vietnam. PAWEES-INWEPF.

大迫佳奈, Myo Zaw, 飯山和弘, 古屋成人, 松元賢 2018 アスパラガス属野生種のハマタマボウキの斑点性病斑から分離された *Altaria* 属菌について. 平成30年度日本植物病理学会九州部会.

尾崎 彰則, パニタン カイウジャンタウィ, モントン アノンポニヤスクル, ゲエン ヴァン ティン, 松元 賢, 岡安 崇史 2018 熱帯地域の水産養殖地で観測される下層高水温現象

に関する現地観測. 農業農村工学会平成 30 年度全国大会.

Akinori Ozaki, Panitan Kaewjantawee, Monton Anongponyoskul, Nguyen Van Thinh, Takashi Okayasu, Masaru Matsumoto 2018 Study on the Clarification of Weather Characteristics the Inducing Inversion of the Thermal Stratification in Aquaculture Ponds in Thailand. Association for the Sciences of Limnology and Oceanography Summer meeting.

Thinh Nguyen Van, Yasuhito Osanai, Nobuhiko Nakano, Tatsuro Adachi, Yoshihiro Kuwahara, Ryosuke Kato, Masato Makio, Tsogtbaatar Bolormarr, Hai Do Nguyen, Kiyoshi Kurosawa 2017 Mineralogy and arsenic fraction of estuarine soils in Vietnam - The bases for arsenic- contaminated soil remediation. International Joint Symposium Between Korea and Japan -Agriculture, Food, Environmental and Life Science in Asia.

Thinh Nguyen-Van, Shamin Uddin, Kiyoshi Kurosawa 2017 Arsenic, Toxic heavy Metals and C-N-P in Peaty Sediments in Samta Village, Southwestern Bangladesh. 第 22 回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Ahmed Minhaz, Masaru Matsumoto, Kiyoshi Kurosawa 2017 Assessment of heavy metal pollution in irrigation water, soils and vegetables in central zone of Bangladesh. 第 22 回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa 2017 Relationship of arsenic concentration between groundwater and soil, and their threat in food-chain. 第 22 回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Thao L.D., 池内隆夫, 森充隆, 村上恭子, 菅野明, 浦上敦子, 尾崎行生, 松元賢 2017 New disease report on a wild species of Asparagus plant caused by Diaporthe spp. in Japan. 平成 29 年度日本植物病理学会大会.

Minhaz Ahmed, Kiyoshi Kurosawa 2016 Arsenic contamination of water-soil-crop system in the vicinity of an industrial area of Bangladesh. 第 21 回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Thinh Nguyen Van, Akinori Ozaki, Hoang Nguyen Tho, Anh Nguyen Duc, Yen Tran Thi, Kiyoshi Kurosawa 2016 Arsenic Contamination in Sediments under Different Land Uses in an Estuary Ecosystem, Northern Vietnam. 第 21 回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム.

Thinh Nguyen Van, Kiyoshi Kurosawa 2016 Concentration, Source, and Spatial Distribution of Heavy metals in Soils in Mangrove Forest and Aquaculture Area in Ba-Lat Estuary, Vietnam. International Joint Symposium Between Korea and Japan - Agriculture, Food, Environmental and Life Science in Asia.

Chisa Nakatate, Miyuki Iwato, Emika Kakizoe, Sayo Yamamoto, Akira Kanno, Masaru Matsumoto, Takao Ikeuchi, Mitsutaka Mori, Kyoko Murakami, Atusko Uragami, Takahiro Matsuishi, Keita Tomiyoshi and Yukio Ozaki 2016 Selection of co-dominant SSR markers applicable in interspecific crossing between Asparagus officinalis and A. kiusianus. International Joint Symposium Between Korea and Japan -Agriculture, Food, Environmental and Life Science in Asia.

彭素, M. ZAW, 松元賢 2016 製紙スラッジから分離されたセルロース分解系菌株の性状解析とその特性について. 日本熱帯農業学会第 120 回講演会.

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 松元 賢

ローマ字氏名: (MATSUMOTO, masaru)

所属研究機関名: 九州大学

部局名: 熱帯農学研究センター

職名: 准教授

研究者番号 (8 桁): 60304771

(2) 連携研究者

連携研究者氏名: 尾崎 彰則

ローマ字氏名: (OZAKI, akinori)

所属研究機関名: 九州大学

部局名: 熱帯農学研究センター

職名: 助教

研究者番号 (8 桁): 40535944

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。