

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 24 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2014

課題番号：22580378

研究課題名(和文)水環境 微生物反応系を用いたアジア大河デルタ農村の地下水ヒ素汚染機構の解析

研究課題名(英文)Groundwater arsenic contamination analysis for the villages of large river deltas in Asia using the water environment- microbiological reaction system

研究代表者

黒澤 靖 (Kurosawa, Kiyoshi)

九州大学・熱帯農学研究センター・教授

研究者番号：70128114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：アジア大河デルタ農村を対象に、地下水ヒ素汚染について水環境 微生物反応系を用いて解析した。地下水(井戸水)のヒ素濃度は各地とも水質基準を大きく超え、この濃度は地下水の酸化還元電位、アンモニウム態窒素濃度と関連した。地下から採取したPEAT性堆積物のヒ素、窒素、炭素の各濃度は高かった。窒素、炭素の分析から、地下水・PEAT性堆積物中の窒素の供給源は化学肥料または土壌有機物、PEAT性堆積物の起源は水性植物であった。室内実験から、PEAT性堆積物には還元菌が存在し、還元菌の増殖は堆積物から地下水へのヒ素溶出を起らせていることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Groundwater arsenic contamination was analyzed targeting the villages of large river deltas in Asia using the water environment - microbiological reaction system. The arsenic concentration of groundwater (well water), which exceeded by far the water standard in every village, was related to the oxidation-reduction potential and ammonium-nitrogen concentration of the groundwater. The concentrations of arsenic, nitrogen and carbon of peaty sediments, collected from underground, were high. From an analysis on the nitrogen and carbon, the supply source of nitrogen in both groundwater and peaty sediments was chemical fertilizers and/or soil organic matter, and peaty sediments were originated from aquatic plants. From a laboratory experiment, reducing bacteria were observed in peaty sediments, and the multiplication of the reducing bacteria caused the release of arsenic from the sediments to groundwater.

研究分野：地水環境保全学

キーワード：還元菌 窒素 PEAT堆積物 安定同位体比 井戸水 供給源 溶出

1. 研究開始当初の背景

(1)アジアの大河デルタの農村では、地下水(井戸水)のヒ素汚染が深刻な問題となっている。ヒ素は元々、ヒマラヤから運ばれデルタに堆積した堆積物に含まれているが、ヒ素が地下水に溶出するようになったのは、近年の集約的農業の進展、深い井戸の掘削などの人為的要因が考えられた。飲料水を井戸水に頼るアジア大河デルタの住民にはヒ素中毒が発生しており、地下水ヒ素汚染の原因究明は急がなければならないと考えられた。

(2)地下水ヒ素汚染に関する筆者のこれまでの調査から、地下水のヒ素濃度の高い所では、地下水は還元状態であり、そのアンモニウム態窒素濃度も高い傾向を示した。これには、地下における還元菌を含む微生物の活動、窒素肥料施肥等の影響が考えられた。

(2)このような状況に基づいて、筆者はガンジスデルタ、メコンデルタ等アジア大河デルタの農村を対象に、地下水ヒ素汚染に関する可能性のある因子を詳細に調査し、さらに現地の地下の状況を模した水環境微生物反応系でのヒ素溶出実験を行うこととした。

2. 研究の目的

本研究の目的は次の3点であった。

(1)地下水ヒ素汚染地では、地下水中のアンモニウム態窒素濃度は高いが、アンモニウム態窒素はどのような供給源から発生するのか。地下水のその他の水質項目にはどのような特徴があり、その背景は何なのか。

(2)地下の堆積物と近傍の地下水に存在すると考えられる水環境微生物反応系は、地下水ヒ素汚染にどのように関わりを持っているか。

(3)上記で明らかにした性質は、アジア大河デルタに共通に見られるのか、地域間で差があるのかどうか。

3. 研究の方法

(1)対象地 メコンデルタ(カンボジア・ベトナム)、ガンジスデルタ(バングラデシュ)、紅河デルタ(ベトナム)、タライ平原(ネパール)。

(2)地下水の水質調査及び堆積物等の化学的分析 地下水(井戸水):ヒ素濃度、pH、酸化還元電位、アンモニウム態窒素濃度、井戸の深さ、アンモニウム態窒素の窒素安定同位体比、化学肥料:窒素安定同位体比、堆積物:ボーリングにより最大深さ50mまで採取した。これを現地政府及び日本国植物防疫所の許可を得て日本に持ち帰った。分析項目は、堆積物の分類(ピート、粘土、砂等)、ヒ素・窒素・炭素・鉄の各濃度、窒素及び炭素の安定同位体比であった。地下水の水質:現場でフィールドキット、または実験室で水質分析機器を用いて測定した。堆積物の化学性については、必要に応じ測定対象元素の溶媒抽出を行い、実験室の機器で測定した。

窒素・炭素安定同位体比は、他機関への依頼分析とした。

(3)堆積物を用いた室内実験

ピート堆積物からのヒ素溶出:容器に水とピート堆積物を入れ、これに窒素化学肥料を投入し、またはしない場合について、水のヒ素濃度、酸化還元電位を一定時間間隔で測定した。

ピート堆積物中の窒素利用菌の同定、還元菌の確認:窒素利用菌群(アンモニウム酸化菌、脱窒菌など)は堆積物を通常の培養方法で培養し、菌群の存在の有無を調べ、菌種の同定を行った。還元菌については、窒素置換による方法で堆積物を無酸素状態にして培養を行い、還元菌の存在の有無、そのヒ素溶出への影響を確認した。

(4)データ解析:重回帰分析、相関分析などの統計学的方法を用いた。

4. 研究成果

(1)地下水の性質

ガンジスデルタ、タライ平原、メコンデルタ、紅河デルタの地下水の水質は、各地の平均値によれば、ヒ素濃度($\mu\text{g/L}$)は49~1151、酸化還元電位(mV)は91~123、アンモニウム態窒素濃度(mg/L)は2.9~17.4、pHは7.0~7.5であった。

地下水のヒ素濃度($\mu\text{g/L}$)は、タライ平原では500以上、メコンデルタは1000以上の値も見られ、これらはWHOの水質基準 $10\mu\text{g/L}$ を大きく超える値で、これらの地域にはヒ素中毒患者も多く見られた。

pHのヒ素濃度に及ぼす影響は明瞭でなかったが、紅河デルタでは、地下水ヒ素濃度が高い範囲($>100\mu\text{g/L}$)で、pHが高いほどヒ素濃度も高い傾向が認められた。

タライ平原を対象に、井戸水のpH、酸化還元電位、アンモニウム態窒素濃度、井戸の深さを説明変数、井戸水のヒ素濃度を目的変数として、重回帰分析を行った。その結果、井戸水のヒ素濃度はアンモニウム態窒素濃度のみによって説明できた。

ガンジスデルタ、メコンデルタ、タライ平原、紅河デルタ(一部)では、地下水のアンモニウム態窒素の供給源は、窒素安定同位体比分析から、窒素化学肥料あるいはその混合物(土壌有機物との混合物を含む)と考えられた。

各地の地下水のヒ素濃度の大きい値(各地第1位から第3位までの値)を対象にすると、地下水のヒ素濃度が高いとき、酸化還元電位は低く(20mV~110mV)、アンモニウム態窒素濃度は高かった。地下水中におけるヒ素の優占形態は、pH-酸化還元電位図から、ヒドロヒ酸イオン(5価のヒ素)と推定された。

(2)堆積物の性質

堆積物のボーリング調査は、ガンジスデルタとタライ平原で行った。ただし調査箇所数は地下水調査の場合より少数であった。

ガンジスデルタ、タライ平原とも、PEAT堆積物のヒ素含有量は、同一地域の各堆積物中で最も高かった。PEAT堆積物の色は濃灰色～黒色であった。

タライ平原では、堆積物の鉄濃度とヒ素濃度間に正の相関があり、また堆積物の pH は全般にアルカリ性の値であった。

ガンジスデルタでは、PEAT堆積物層は地下水ヒ素汚染地域でない箇所には存在せず、PEAT堆積物層は地下水ヒ素汚染に密接に関連していた。

ガンジスデルタの堆積物では、ヒ素濃度は炭素濃度、窒素濃度と正相関が見られた。ヒ素濃度、炭素濃度、窒素濃度とも、PEAT堆積物では他の堆積物より大きかった。また、PEAT堆積物中の炭素の供給源は、炭素安定同位体比分析から水性植物で、また窒素の供給源は安定窒素同位体比分析から化学肥料であると見なされた。なお、化学肥料の窒素安定同位体比は、現地で使われる化学肥料を用いて求めた値である。これより、PEAT堆積物では、かつて水性植物が吸収したヒ素が炭素と共存し、窒素は炭素に吸着されていると見られた。

ガンジスデルタでは、PEAT堆積物中の窒素は、窒素安定同位体比より、供給源が窒素化学肥料あるいはその混合物であった。地下水のアンモニウム態窒素の供給源も安定同位体比からPEAT堆積物中の窒素の供給源と同様であった。

ガンジスデルタ、タライ平原の各場合とも、PEAT堆積物は、地下水面に接する浅い位置にあり、PEAT堆積物から地下水へのヒ素溶出は起こりやすい条件下にあった。

(3) 堆積物から地下水へのヒ素溶出における水環境微生物反応系の役割

タライ平原では、地下水（井戸水）のヒ素濃度と井戸の深さは関連性がなく、特定の井戸の深さのところで、地下水のヒ素濃度は最も高かった。この深さは、PEAT堆積物の存在する深さと関連すると考えられた。

堆積物（特にPEAT堆積物）では窒素肥料の付加により窒素濃度が高くなり、これにより窒素を利用する微生物（細菌）の代謝活動が活発化し、酸素が消費されて堆積物が還元状態になり、堆積物から地下水へのヒ素の溶出が促進すると考えられた。ヒ素溶出のメカニズムは還元溶出であると考えられた。

堆積物から地下水へのヒ素溶出には、水質環境や微生物活動からなる“水環境微生物反応系”が有機的に働いていると考えられた。

容器に水とPEAT堆積物を入れPEAT堆積物からのヒ素溶出を調べた。この場合、水中に窒素（窒素肥料）を投入した方がしない場合に比べ、水の酸化還元電位が低く、またアンモニウム態窒素濃度が高く、ヒ素濃度は高かった。これより水中に投入された窒素がPEAT堆積物からのヒ素溶出を促進させていることが確認された。

ガンジスデルタのPEAT堆積物について窒素利用菌群を観察した結果、脱窒菌2種と、アンモニア酸化菌2種が確認された。これら窒素利用菌は、PEAT堆積物から地下水へのヒ素溶出の促進に関連性を持つと考えられた。

タライ平原の堆積物について、酸素がない状態（還元状態）で活動する還元菌（嫌気性菌）の存在を確認する実験を行った。容器中にPEAT堆積物を入れ、これに中性滅菌水を注入したのち容器内を無酸素状態にし、菌を培養した。培養1週間後には液体培地に還元菌のコロニーが発達し、堆積物中に還元菌が存在することが確認できた。液体培地のヒ素濃度は5-30ppbで、これは堆積物から地下水へのヒ素溶出を十分説明できる値であり、還元菌はヒ素溶出に密接に関わっていると判断された。

(4) ヒ素溶出要因のアジア大河デルタにおける共通性

調査地各地に共通する地下水の還元的状態（酸化還元電位：20mV～110mV mV）は、地下水に高いヒ素濃度が発生するための必要条件であるとみなされた。

このとき同時に観測された高濃度アンモニウム態窒素濃度については、安定窒素同位体比が地域間で類似し、窒素の供給源は共通に化学肥料である可能性が認められた。しかし調査地には化学肥料施肥量の少ない地域も含まれるので、アンモニウム態窒素の供給源は化学肥料以外のものである可能性も否定できなかった。今後、この点を具体的に明らかにすることが、アジア大河デルタの地下水ヒ素汚染を最終的に究明することにつながると考えられた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計6件)

Akiko Nakano, Kiyoshi Kurosawa, Uddin Md. Shamim, Masakazu Tani, Geochemical assessment of arsenic contamination in well water and sediments from several communities in the Nawalparasi District of Nepal, Environmental Earth Sciences, 査読有, 72(9), 2014, 3269-3280.

DOI:10.1007/s12665-014-3231-8

Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa, Effects of peat and water quality parameters on groundwater arsenic contamination in Bangladesh, Water and Environment Journal, 査読有, 28(2), 2014, 165-172, DOI:10.1111/wej.12017. Kiyoshi Kurosawa, Kazuhiko Egashira, Masakazu Tani, Relationship of arsenic concentration with ammonium-nitrogen concentration, oxidation reduction potential and pH of groundwater in arsenic-contaminated areas in Asia,

Physics and Chemistry of the Earth, 査読有, 58-60, 2013, 85-88. DOI:10.1016/j.pce.2013.04.016.

Tani, M., Jahiruddin, M., Egashira, K., Kurosawa, K., Moslehuddin, A.Z.M., Rahman, M.Z., Dietary intake of arsenic by households in Marua village in Jessore, Journal of Environmental Science and Natural Resources, 査読有, 5(1), 2012, 283-288, DOI: http://dx.doi.org/10.3329/jesnr.v5i1.11593.

Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa, Relationship of Carbon-Arsenic-Nitrogen in Sediment with Respect to Arsenic Release in Groundwater in Bangladesh - A Preliminary Study, International Journal of Environment, 査読有, 1, 2011, 1-6, http://benjapan.org/ije/ijevol01no01/ije010101.pdf.

M. S. Uddin, K. Kurosawa, Effect of chemical nitrogen fertilizer application on the release of arsenic from sediment to groundwater in Bangladesh, Procedia Environmental Sciences, 査読有, 4, 2011, 294-302, DOI:10.1016/j.proenv.2011.03.034.

[学会発表](計14件)

— Kiyoshi Kurosawa, Masakazu Tani, Kazuhiko Egashira, Multiple Regression Analysis of the Relationship between the Arsenic Concentration and Water Quality Parameters in Arsenic-Contaminated Areas in Asia. International Symposium on Effective Land, Water Use in Agriculture and Protection of Rural Environment in Viet Nam and Japan. 2014年9月14日, Hanoi(Vietnam).

— 松元 賢, ムハマド シャミム ウディン, 黒澤 靖, 土壤中のヒ素の溶出に關与する微生物の分離と同一バングラデシュのヒ素汚染地において, 第19回ヒ素シンポジウム, 2013年11月17日, 九州大学(福岡県・福岡市).

— Kiyoshi Kurosawa, Md. Shamim Uddin, Yiping Xie, Masakazu Tani, Suman K. Shakya, Arsenic concentration and related water quality parameters of well water in the Terai Plain of Nepal. 第18回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2013年11月03日, 遺愛女子高等学校(北海道・函館市).

— Kiyoshi Kurosawa, Masakazu Tani, The vertical distribution of the sediments and their arsenic concentrations in Nawalparasi District of Nepal, 第17回アジア地下水ヒ素汚染フォーラ

ム, 2012年11月24日, 宮日会館(宮崎県・宮崎市).

— Kiyoshi Kurosawa, Masakazu Tani, Arsenic concentration and the oxidation-reduction potential of well water and the number of arsenic patients in Nawalparasi District of Nepal, 第17回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2012年11月24日, 宮日会館(宮崎県・宮崎市).

— Akiko Nakano, Kiyoshi Kurosawa, Masakazu Tani, The concentrations of arsenic and some other elements and pH in the sediments collected at Nawalparasi District of Nepal, 第17回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2012年11月24日, 宮日会館(宮崎県・宮崎市).

— S. Uddin, K. Kurosawa, Arsenic concentration of groundwater with respect to the sediment composition and some groundwater quality parameters in south-western Bangladesh, Urban Environmental Pollution, Amsterdam (The Netherlands), 2012年6月18日.

— Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa, Arsenic concentration in the water-soil-crop system on paddy and non-paddy fields in a village of Bangladesh, 第16回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2011年11月20日, 新潟土地改良会館(新潟県・新潟市).

— Kiyoshi Kurosawa, Kazuhiko Egashira, Masakazu Tani, The relationships of arsenic and ammonium-nitrogen concentrations and Oxidation-Reduction-Potential of the groundwater in some arsenic contaminated areas in Asia, 第16回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2011年11月19日, 新潟土地改良会館(新潟県・新潟市).

— Masaru Matsumoto, Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa, Isolation and Identification of Microorganisms in the Peat Sediments of An Arsenic Contaminated Area in Bangladesh, 第16回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2011年11月19日, 新潟土地改良会館(新潟県・新潟市).

— Md. Shamim Uddin, Kiyoshi Kurosawa, Effect of Groundwater Irrigation and Fertilizers Application on the Arsenic Contamination of Farmland Soil and Rice Grain. International Conference on Environmental Aspect of Bangladesh 2011, 2011年9月11日, 北九州大学(福岡県・北九州市).

— M. S. Uddin, K. Kurosawa, Arsenic

Concentration and some other Parameters of Groundwater Quality with respect to Hydrogeological Conditions in Southwestern Bangladesh, 第15回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2010年11月14日, JICA地球ひろば(東京都・渋谷区).

— Kiyoshi Kurosawa, Do Nguyen Hai, et al., A Comparison of Groundwater Arsenic Pollution between the Inland and Coastal Areas of the Red River Delta, Vietnam, 第15回アジア地下水ヒ素汚染フォーラム, 2010年11月13日, JICA地球ひろば(東京都・渋谷区).

— M.S. Uddin, K. Kurosawa. Relationship of Carbon-Arsenic-Nitrogen in Sediment with respect to Arsenic Release in Groundwater in Bangladesh - A Preliminary Study. International Conference on Environmental Aspects of Bangladesh, 2010年9月4日, 北九州大学(福岡県・北九州市).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

黒澤 靖 (KUROSAWA, Kiyoshi)

九州大学・熱帯農学研究センター・教授

研究者番号: 70128114

(2) 連携研究者

松元 賢 (MATSUMOTO, Masaru)

九州大学・熱帯農学研究センター・准教授

研究者番号: 60304771

(3) 研究協力者

Nguyen Huu Thanh

Nguyen Van Lap

M. Jahiruddin

Suman K. Shakya

Mao. Saray