

は し が き

本報告書は、平成13年度から15年度の3年間、日本学術振興会の科学研究費補助金基盤研究(B)(2)「ヒ素の化学形態に基づいたバングラデシュの地下水ヒ素溶出機構の解明に関する研究」の成果をまとめたものである。

バングラデシュを中心としたガンジス川流域では、土壌中のヒ素が地下水へ溶出しており、数千万の人々に影響を与えている。ヒ素の溶出機構の解明は、ヒ素軽減対策にも関わることであり、急務となっている。本研究は、主にバングラデシュのジェソール県サムタ村を中心とした地域の、水質分析結果からヒ素溶出機構の解明を行ったものである。

研究組織

研究代表者：田 辺 公 子(宮崎大学フロンティア科学
実験総合センター・講師)

研究分担者：横 田 漠(宮崎大学工学部・教授)

研究分担者：瀬 崎 満 弘(宮崎大学工学部・助教授)

研究分担者：林 幸 男(宮崎大学工学部・教授)

海外共同研究者:SK. Akhtar Ahmad (National Institute of Preventive
Social Medicine Bangladesh・助教授)

交付決定額(配分額)

(金額単位:千円)

	直接経費	間接経費	合計
平成13年度	11,700	0	11,700
平成14年度	1,600	0	1,600
平成15年度	1,800	0	1,800
総計	15,100	0	15,100

研究発表一覧

(1) 学会誌等

1. Y. Fujino, X.J.Guo, J. Liu, I. P. Matthews, K. Shirane, K. Wu, H. Kasai, M. Miyatake, K. Tanabe, T. Kusuda, T.i Yoshimura. And Japan Inner Mongolia Arsenic Pollution Study Group
Chronic arsenic exposure and urinary 8-Hydroxy-2'-deoxyguanosine in an arsenic-affected area in Inner Mongolia, China
Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology (2004) (in press)
2. 横田 漠、濱部和宏、田辺公子
 Bangladeshにおける地下水砒素汚染とその浄化
 用水と廃水、**45**, 10, 82-87(2003).
3. H. Yokota, K. Tanabe, M. Sezaki, Y. Yano, K. Hamabe, K. Yabuuchi, H. Tokunaga, AAN, RGAG, BIPSOM
 Arsenic contamination in groundwater of Samta, Bangladesh
 Water Science and Technology, **46**, 11-12, 375-380(2002).
4. Hiroshi Yokota, Kimiko Tanabe, Misuhiro Sezaki, Yasunori Yano, Kazuhiro Hamabe, Kazuhiro Yabuuchi, Hiroshi Tokunaga, AAN, RGAG, NIPSOM
 A study on arsenic contamination of groundwater in Samta village, Bangladesh
 Journal of Global Environment Engineering, 7,119-130(2001).
5. Kimiko Tanabe, Hiroshi Yokota, Hiromi Hironaka, Sachie Tsushima and Yoshihiro Kubota
 Arsenic pollution of groundwater in Bangladesh
 Applied Organometallic Chemistry, **15**, 4, 241-251(2001).
6. 田辺公子、矢野靖典、廣木峰也、濱部和宏、藪内一宏、横田 漠、廣中 博見、徳永裕司、ハミドール ラーマン、フェローゼ アーメッド
 Bangladeshにおける地下水のヒ素汚染について——サムタ村におけるヒ素濃度特性と溶出メカニズムに関する一考察——
 水環境学会誌, **24**, 6, 367-375(2001).

7. H. Yokota, K. Tanabe, M. Sezaki, Y. Akiyoshi, T. Miyata, K. Kawahara, S. Tsushima, H. Hironaka, H. Takafuji, M. Rahman, SK.A. Ahmad, M.H.S.U. Sayed and M.H. Feruquee
Arsenic contamination of ground and pond water and water purification system using pond water in Bangladesh
Engineering Geology, **60** (1-4), 323-331(2001).

(2) 口頭発表等

1. 田辺公子、濱部和宏、宮武宗利、横田漠、徳永裕司、アジア砒素ネットワーク、
応用地質研究会
 Bangladeshにおける地下水の水質とヒ素の挙動に関する研究 ―ジェソール県サム
タ村およびマルア村の調査―
第 11 回ヒ素シンポジウム(札幌)、2003 年 10 月
2. 谷村晋、藤野善久、郭小娟、LiuJun、白根聖弓、宮武宗利、田辺公子、溝田勉、
楠田哲也、吉村健清
砒素汚染井戸封鎖による水汲負担増加量のシミュレーション評価
第 44 回日本熱帯医学会、第 18 回日本国際保健医療学会合同大会(北九州)、2003
年 10 月
3. K. Tanabe, Y. Toguchida, K. Kudo, K. Hamabe, H. Yokota
Arsenic pollution of groundwater in Bangladesh on the analytical results of
groundwater and soils in Samta and Marua village, Jessore district
Civil Engineering in Development Countries; Facing The Challenges (Malang,
Indonesia), October 2003.
4. K. Hamabe, K. Tanabe, H. Yokota, AAN, RGAG, NIPSOM and BUET
Arsenic Contamination of Groundwater and Low Cost Arsenic Removal Unit in
Bangladesh
Civil Engineering in Development Countries; Facing The Challenges (Malang,
Indonesia), October 2003.
5. Kazuhiro Hamabe, Kimiko Tanabe, Hiroshi Yokota, AAN, RGAG, NIPSOM and BUET
Arsenic Contamination of Groundwater and Arsenic-free Water Supply System in
Bangladesh
Proceedings of the International Symposium on Safe & Sustainable Exploitation of Soil

& Groundwater Resources in Asia (Okayama), May(2003).

6. 森川弘樹、横田漠、田辺公子、濱部和宏
 Bangladeshにおける地下水砒素汚染調査
平成14年度土木学会西部支部研究発表会(北九州), 2003年3月
7. 大脇一秀、横田漠、田辺公子、濱部和宏
 Bangladesh地下水におけるシュベルトマナイトによるヒ素吸着能力の検討
平成14年度土木学会西部支部研究発表会(北九州), 2003年3月
8. 上野一樹、横田漠、田辺公子、濱部和宏
 水平砂利層を用いたヒ素除去実験効果
平成14年度土木学会西部支部研究発表会(北九州), 2003年3月
9. 工藤一人、横田漠、田辺公子、濱部和宏
 Bangladesh・マルア村における地下水ヒ素汚染の特性
平成14年度土木学会西部支部研究発表会(北九州), 2003年3月
10. 森川弘樹、工藤一人、濱部和宏、横田漠、田辺公子
 Bangladesh・マルア村における地下水および地盤中のヒ素分布
第7回アジア地下水砒素汚染フォーラム(宮崎)2002年10月
11. 上野一樹、大脇一秀、横田漠、田辺公子、濱部和宏
 水平砂利層を用いたヒ素除去実験効果
第7回アジア地下水砒素汚染フォーラム(宮崎)2002年10月
12. K. Hamabe, K. Tanabe, H. Yokota, H. Tokunaga, RGAG, AAN
 Characteristics of arsenic contamination and water quality survey of groundwater
 in Bangladesh, the International Symposium on Lowland Technology (Saga),
 September, 2002.
13. Kimiko Tanabe, Koichiro Shiomori, Kazuhiro Yabuuchi, Kazuhiro Hamabe,
 Hiroshi Yokota
 Arsenic removal by of iron hydroxide and settlement of co-precipitation into gravel
 spaces
 13th Congress of the Asia Pacific Division of the International Association for Hydraulic

Engineering and Research (13th APD-IAHR Congress) (Singapore), August, 2002

14. Kazuhiro Yabuuchi, Hiroshi Yokota, Kimiko Tanabe
A study on co-precipitation with iron in gravel method for arsenic removal from groundwater in Bangladesh
10th International Symposium on Natural and Industrial Arsenic Japan (Tokyo), November, 2001.
 15. Sachio Hayashi, Masahiro Morimoto, Munetoshi Miyatake, Kimiko Tanabe
Screening and characterization of useful microorganisms to prevent arsenic pollution
10th International Symposium on Natural and Industrial Arsenic Japan (Tokyo), November, 2001.
 16. Hiroshi Yokota, Kimiko Tanabe, Mitsuhiro Sezaki, Yasunori Yano, Kazuhiro Hamabe, Kazuhiro Yabuuchi, Hiroshi Tokunaga, AAN, RGAG, NIPSOM
ARSENIC CONCENTRATION IN GROUNDWATER OF SAMTA VILLAGE, BANGLADESH
Asia Waterqual 2001 (Fukuoka), September, 2001.
- (3) 出版物
- Kimiko Tanabe, Yasunori Yano, Minenari Hiroki Kazuhiro Hamabe, Kazuhiro Yabuuchi, Hiroshi Yokota, Hiromi Hironaka, Hiroshi Tokunaga
A consideration for arsenic elution to groundwater from viewpoint of water quality in Samta village
Arsenic Contamination of Groundwater, pp.1-12(2001).
- (4) 研究成果による工業所有権の出願・取得状況
- 工業所有権の名称：新規微生物と微生物によるヒ素類の除去方法
発明者名：林 幸男、宮武 宗利、田辺 公子
権利者名：宮崎大学学長
工業所有権の種類、番号：特願、2004-75390
出願年月日：平成16年3月17日
取得年月日等：出願中

研究成果

地下水のヒ素汚染が世界的に大きな社会問題となっている。ガンジス川流域のヒ素汚染は、その中でも規模と影響の大きさに特に深刻となっている。これらの地下水中のヒ素は地層中から溶出してきたと考えられている。

我々は、ヒ素汚染が確認されているバングラデシュ、ジェソール県サムタ村を中心とした地域と、ネパール、ナワルパラシ県クノワール村で、地下水ヒ素汚染の実態調査、水質分析特にヒ素の化学形態を基にしたヒ素の溶出機構の検討および安全な水供給システムの構築等を目的として、日本の NGO 組織 AAN (アジア砒素ネットワーク) や RGAG(応用地質研究会)、バングラデシュの National Institute of Preventive Social Medicine Bangladesh、バングラデシュ工科大学教授 Dr. M. Feroze Ahmed などとの共同で各種調査研究を行った。

1. 地下水ヒ素汚染の実態

(1) サムタ村(バングラデシュ、ジェソール県の南西)

村で使用されている飲料用の全井戸 282 個のヒ素濃度を測定した結果、地下水のヒ素濃度分布は村の北部で低く、南部に行くに従って高くなっていった。ヒ素濃度は WHO の推奨値 $0.01\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下の井戸が全体の 3.5%しかなく、バングラデシュの基準値 ($0.05\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) 以内まで広げても全体で 8%をわずかに超える程度であった。15%の井戸が $0.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を超えており、これまでに判明しているガンジス川流域のヒ素汚染地域の中でサムタ村は最も汚染が進行していた。また、周辺地域の調査からヒ素汚染は、サムタ村を中心に東西方向に広がっていた。なお、地下水のヒ素濃度は、経時的に上昇傾向が見られた。

(2) マルア村(バングラデシュ、ジェソール県の北西端)

村で使用されている全飲料用井戸(273 個)のヒ素濃度の分析結果から、バングラデシュの基準値を超えた井戸が全体の 64%、うち $0.5\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ を超えた井戸が 6%あり、サムタ村ほどではないが汚染が広がっていることが判明した。井戸深度は東部が平均 21 mで、西部が平均 31mであった。ヒ素濃度は村の東部で低く、西部で高かった。地質調査の結果から、東部には泥質層がなく、西部は泥質層が幾重にも重なっていた。このことより、東部は井戸深度が浅く同一帯水層からの取水であり、西部は井戸深度が深くなり、いくつかの帯水層から取水していると考えられる。

(3)クノワール村(ネパール、ナワルパラシ県)

ネパールでヒ素汚染が確認されている、タライ平原にあるクノワール村で調査を行った。その結果、村の東部にヒ素濃度の低い井戸が集中し、北部と南部においてヒ素濃

度の高い井戸が存在する傾向がみられた。WHO の推奨値以下のものは村全体で 23.8%しかなく、その井戸は村の東部にあった。ネパールの環境基準 $0.05 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ を超える井戸は村全体で 73.8%あり、タライ平原全体の中でも極めて深刻なヒ素汚染地域であることが明らかになった。

(4) ヒ素汚染された地下水による自然界・生態系へのヒ素の拡散

バングラデシュではヒ素を含む地下水を稲作の灌漑用水として使用している。自然界・生態系へのヒ素の拡散の実態を把握するため、マルア村の稲のヒ素含有量試験を行った。その結果、ヒ素は 95%が根に蓄積され、米には 0.27 mg/kg (根の 0.2%程度)しか含まれていなかった。なお、宮崎の米のヒ素含有量は 0.17 mg/kg であった。水田土壌中のヒ素含有量は 20 mg/kg 程度であり、通常の表土の 2 倍程度であった。また、灌漑用井戸による周辺土壌へのヒ素の拡散を確認した。

2. サムタ村の地下水へのヒ素溶出機構

サムタ村の地下水中のヒ素の形態別分析から、ヒ素濃度の低い村の北部では、ヒ素は 100~68%が五価で存在し、ヒ素濃度の高い南部では 100~98%が三価で存在していることが判明した。地下水の水質分析からヒ素濃度と、二価鉄イオン、炭酸水素イオンおよび電気伝導率の分布に相関があることも判明した。地質調査の結果から、サムタ村の北部には上部泥質層と呼ばれる粘土層がなく、南部に行くに従って、上部泥質層が厚くなっていること、地下水は村の北部から南部へ流れていることが分かった。ボーリング試料の分析から、この上部泥質層にヒ素が多く含まれていた。

以上の結果から、サムタ村の北部の地下水は、空気中の酸素を取り込み酸化状態にあり、ヒ素は五価で水に難溶な酸化水酸化鉄と共沈しており、地下水中へのヒ素の溶出が少なくヒ素濃度が低い。地下水が村の北部から南部へ流れるにつれ、ヒ素の供給源である上部泥質層が厚くなり、酸素の取り込みがなくなり、地下水は還元状態となってくる。そのため、酸化水酸化鉄は水酸化鉄に還元され、鉄は三価から二価になって地下水中に溶出し、ついでヒ素は五価から三価に還元されて、地下水中に溶出してくると考えられる。そのため、サムタ村では、村の北部でヒ素濃度が低く、南部に行くに従って高くなり、ヒ素は還元状態で溶出していると思われる。

3. 安全な水供給

(1) ヒ素吸着樹脂の開発

樹脂母体として生分解性の天然多糖類であるアルギン酸を用い、2 価の銅イオン (CuCAA)あるいは 3 価の鉄イオン (FeCAA)を配位させたキレート吸着剤を合成した。これらヒ素吸着剤の pH 依存特性を明らかにした。

(2) ヒ素耐性のある菌の検索

ヒ素除去装置から排出されたスラッジから微生物の分離を行い、約10種類の菌株を得た。得られた菌株について高濃度のヒ素($1\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)を含む培地中で培養したところ、ほとんどの菌株が増殖したことからヒ素耐性能を有することが分かった。また、新規微生物と微生物によるヒ素類の除去方法に関して、知見を得た。

(3) 安全なヒ素除去装置の構築

バングラデシュで建設したヒ素除去装置は実証実験中であり、良好な水を提供している。同装置から排出される汚泥のヒ素溶出実験を行った結果、ヒ素の溶出割合はわずかに5~10%であり、地下水から除去されたヒ素の90~95%は汚泥中に閉じ込められることがわかった。汚泥にセメントを少量[10%]添加したとき、ヒ素の閉じ込め割合は97~98%にのぼった。この結果より、ヒ素除去装置の実用化が可能となった。

4. 尿中のヒ素の化学形態分析

中国内モンゴル地区の地下水ヒ素汚染地域および対照地域の人々の尿中ヒ素の形態分析を行い、ヒ素代謝に関する多くの知見を得た。

謝 辞

本研究に対し、科学研究費補助金をご交付下さった、日本学術振興会に対し心から御礼申し上げます。

なお、共同で調査に当たり多くの助言を下さいました、日本のNGO組織AAN(アジア砒素ネットワーク)やRGAG(応用地質研究会)、バングラデシュのNational Institute of Preventive Social Medicine Bangladesh、バングラデシュ工科大学教授 Dr. M. Feroze Ahmed など多くの方々に厚く御礼申し上げます。

国立医薬品食品衛生研究所の徳永裕司先生および宮崎大学工学部宮武宗利先生にはヒ素の形態分析に関して大変お世話になりました。

また、本研究の実施にあたって協力頂いた、宮崎大学大学院工学研究科の学生の皆さんに感謝します。

濱部 和宏(大学院博士後期課程2年)	藪内 一宏(現 西都市役所)
森川 弘樹	工藤 一人(大学院博士前期課程2年)
上野 一樹(大学院博士前期課程2年)	大脇 一秀(大学院博士前期課程2年)
戸口田 裕子(大学院博士前期課程1年)	