

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 25 日現在

機関番号：31302

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22404014

研究課題名（和文）バングラデシュにおけるヒ素溶出理論構築と水資源の探索

研究課題名（英文）Building of arsenic leaching theory and search for drinkable water resources in Bangladesh

研究代表者

石橋良信（YOSHINOBU ISHIBASHI）

東北学院大学・工学部・教授

研究者番号：10111246

研究成果の概要（和文）：

バングラデシュ南北方向のヒ素含有地質構造を明らかにした。ヒ素を含む堆積物の地質年代は 7,400 年前で、海進の影響は認められなかった。指標 K_d は溶出機構解明の基礎知見を与え、特に、pH, Fe, Al, PO_4 , SO_4 , HCO_3 は K_d に関連した。吸脱着実験から、 $NaHCO_3$, NaH_2PO_4 は As を溶出し、 $Fe_2(SO_4)_3$ は吸着を促進した。一方、As 輸送モデルの解析から 100 年後には 150 m 以深の帯水層のヒ素濃度は安全で、持続的な水資源になることが判明した。

研究成果の概要（英文）：

The geological feature structure in Bangladesh became clear. Geologic time of the sediment including arsenic was 7,400 years ago, and the influence of transgression was not accepted. The index k_d gave basic knowledge of the leaching mechanism. Especially, pH, Fe, Al, PO_4 , SO_4 and HCO_3 were related to k_d . $NaHCO_3$, NaH_2PO_4 leached As and $Fe_2(SO_4)_3$ promoted adsorption from adsorption and desorption experiments. Arsenic concentration was proved to become safe and sustained water resources 100 years later in the aquifer where is deeper than 150m from the analysis of As transport model

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 22 年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
平成 23 年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
平成 24 年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
総計	12,200,000	3,660,000	15,860,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・土木環境システム

キーワード：バングラデシュ ヒ素溶出理論 地下水流動 安全な水供給 地質年代

1. 研究開始当初の背景

1970年代のはじめ、バングラデシュの家庭用の井戸は、完新世の上層の浅い帯水層 (<60 m) から得られる地下水であった。

井戸はデルタゆえに容易に掘られたが、基本的なヒ素の検査は不十分であったため、1980年代に入ると高濃度のヒ素が含まれることが明らかになった。数千万本といわれる手掘り井戸 (tube well) の約30%の井水は、WHO および我が国の厚生労働省の安全基準 0.01 mg/L の5倍以上のヒ素に汚染され、約3千500万人に深刻な健康被害をもたらし、慢性中毒の症状は軽症な角化症や色素沈着にはじまり、烏足症を経て、重篤な皮膚がんや各種のがんに至る。このような状況から、早急に安全な水を供給する必要に迫られていたが、そのための地質学的、化学的知見等は十分とはいえない状況にあった。

2. 研究の目的

安全な水資源を見出すことが重要な目的である。この目的を達成する基礎知見として、ヒ素の吸着や溶出の考えを集約するとともに吸脱着特性を、実験を通して把握することをはじめとした以下に示すような項目を種々の観点から検討した。

- (1) 試掘を基に、南北方法を主軸とし、東西方向を副軸とした際の垂直方向の地質構造および粒径分布を調査し、堆積物や地下水のヒ素濃度分布を知る
- (2) 堆積物の成分を鉱物学的、光学的に知る
- (3) ヒ素含有堆積物の地質年代の測定と海進の影響を考慮しつつヒ素の由来を検討する
- (4) 化学的要因に着目しながら吸脱着実験を試み、分配係数 K_d と反応速度係数 K_r を適用した解析を行う
- (5) ヒ素輸送モデルの開発し、時間的、深さ方向のヒ素の挙動を求め、合わせて持続的に安全な水資源を見出す
- (6) 得られた成果を関連機関や大学と話し合う

3. 研究の方法

(1) ガンジスデルタは、表層は南に向かってゆるく傾斜し、深層は急勾配で傾斜する地質構造を有する。そのため、南北方向に主軸を、東西方向に副軸をとり、各軸にそって試料採取地点を配置した。各調査地点で、手掘と打撃法およびドリリング法での試掘を行った。地下水は試掘孔に設置し手動のポンプで採取し、また、試掘孔周りの家庭用井戸水を蠕動ポンプで採水した。pH, DO, ORP, ECなどの水質項目は携帯用装置で現場測定した。室内での定量実験では、アニオン (PO_4 , SO_4 ,

Cl , $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, HCO_3) はイオンクロマトグラフィーで検出し、カチオン (Fe , Na , Ca , K , Al , Mn , Mg , Zn , Pb , Cr) は ICP-MS を用いて測定した。

(2) ヒ素含堆積物は XRD (X線回析), XRF (蛍光X線分析), SEM (走査電子顕微鏡), TEM (透過型電子顕微鏡) などの分光学的手法を適用して観察した。

(3) 放射性炭素年代は、高感度加速器質量分析計を用いて測定した。

(4) 化学的特性を知る実験では連続抽出法 (sequential extraction), 酸による温浸 (acid digestion) などを適用した。さらに、吸着試験と溶出特性をみる脱着試験は主にジャーテスターで行い、As, Fe, Al, Ca, Mn, Na, K, Mg の液相は、ICP-MS で分析した。得られたデータは分配係数 K_d と反応速度係数 K_r を計算で算出し、特性評価の資とした。

(5) 安全な水資源の探索は K_d と K_r を含むヒ素輸送方程式を構築し、時間的および深度方向のヒ素濃度の変化を見出した。

4. 研究成果

(1) 調査地点を南北方向3地域に取り、地質構造をみた結果、粒径は地層が深くなるにつれて粗くなる。表層近くの有機物の多いブラウンやブラックの粘土でヒ素濃度が高い傾向がみられた。図-1に垂直方向の地質構造と堆積物および地下水のヒ素濃度分布を示す。

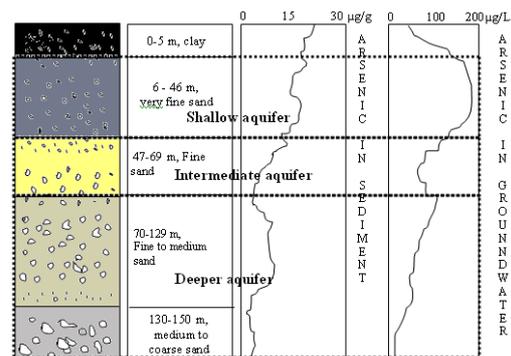


図-1 垂直方向の地質構造と堆積物および地下水のヒ素濃度分布 (Samta 村, Jessore 県)

(2) ヒ素を多く含有する地質年代は完新世の今から7,400年前と推定され、2万年前から6,000年前に生じた海進の検討からヒ素の堆積・蓄積は海由来ではなく、ヒマラヤを起源とする河川由来の可能性が高いと推察された。

(3) 吸着実験から、 NaHCO_3 、 NaH_2PO_4 を添加した場合、炭酸イオンやリン酸イオンがAsとのイオン交換で吸着量が少なくなり、時間経過で吸着量も減少した。pHの実験ではアルカリ側で吸着量の減少した。 As^{5+} は As^{3+} に比べてAsが吸着しやすく、水酸化鉄、二酸化マンガンとの相乗作用が溶出を助長した。Asに関する k_d 解析は、FeやAl酸化物の地下水へのAsの溶出過程の理解への基礎知見を与えた。 k_d は、pH、 PO_4 、Fe、Alと堆積物に含まれる有機炭素に依存することが判明し、 PO_4 は SO_4 と HCO_3 に特に関連が認められた。実験からの k_d は NaHCO_3 、 NaH_2PO_4 を添加した条件ではAs溶出を促進させて低くなり、 $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ を添加した条件ではAsの吸着を促進して高くなった。また、アルカリ側では添加した Na^+ によりAsとイオン交換で吸着量は減少し、 k_d は低くなった。

(4) 深さ方向と経時的なヒ素減少の挙動を把握するために、ヒ素輸送方程式と吸脱着反応速度式を求めた。南部のKalaroaと西部のSamtaを対象に、As輸送モデルを適用して地下水帯水層の持続可能性を評価した結果、帯水層が深いほどヒ素濃度は低下し、また、100年後には150 m以下深の帯水層のヒ素は $1\mu\text{g/L}$ 以下となり、安全で、持続的な水資源になることが判明した。(図-2)

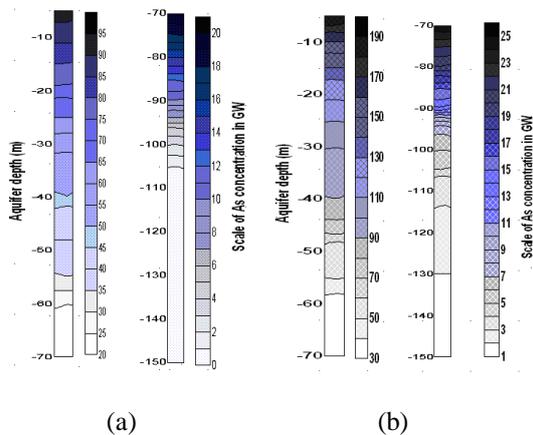


図-2 シミュレーション結果 (Samta)

- (a) 100年後の地下水のAs濃度
 (6-69 m) 左側, As濃度 (70-150 m) 右側
 (b) 60年後の地下水のAs濃度
 (6-69 m) 左側, As濃度 (70-150 m) 右側

(5) 得られた成果は共同で遂行した Sylhet にある Shahjalal University of Science & Technology と定期的に話し合ってきた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

- ① M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi, Exploring sustainability of aquifers based on predictive modeling of sorption characteristics of arsenic enriched Holocene sediments in Bangladesh. *Journal of Applied Geochemistry* (Elsevier), 査読有, Vol. 26 (4), 2011, pp. 636-647
- ② <http://www.sciencedirect.com/science/journal/>

[学会発表] (計18件)

- ① Nao Kato, Youn-Hee Han, Satoshi Takahashi, Shota Takahashi, Yoshinobu Ishibashi, Tauhid-Ur-Rahman and Akira Mano: Research on Physicochemical Factors in Arsenic release assuming the Deltaic Aquifer of South-Western Bangladesh, 2nd International Symposium on Health Hazards of Arsenic Contamination of Groundwater and Its Countermeasures –Expansion of India to Asia Area –, 2010, pp.89-93
- ② M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Geochemistry of Arsenic in the Holocene Aquifer; South-Western Bangladesh, *Advances in Geosciences, Hydrological Volume 11*, 2010, pp.89-101
- ③ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Arsenic Contamination in Groundwater and its Sorption in the Natural Aquifer Material; South-Western Bangladesh. 7th Annual Meeting of Asia Oceania Geosciences Society, 2010, AOGS, CDROM, HS04-A030, Hyderabad, India
- ④ Md. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Targeting Safer Aquifer at a Highly Arsenic Contaminated Community, South-Western Bangladesh Geophysical Research Abstracts Vol. 12, 2010, EGU2010-349, EGU General Assembly, Austria
- ⑤ Rahman MT, Mano A, Udo K, Ishibashi Y : Arsenic Contamination in Groundwater and its Sorption in the Natural Aquifer Material; South-Western Bangladesh, HS04-A030, Asian Oceania Geosciences Society, AOGS, 7th Annual meeting, 2010, HS04-A030, India
- ⑥ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Occurrence and fate of arsenic in an alluvial sandy aquifer; Kalaroa, Bangladesh, 2010 GSA Denver Annual Meeting, GSA Abstracts with Programs Vol. 42, No. 5, 2010
- ⑦ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko

- Udo, Yoshinobu Ishibashi: Targeting a safe aquifer in the arsenic contaminated alluvial deposits. Goldschmidt, 2010, pp. A 844, June, Knoxville, TN, USA
- ⑧ 高橋 啓, 韓 連熙, 石橋良信, 東北大学 真野 明, MT. Rahman : ヒ素溶出における鉄, マンガンの影響評価, 平成 22 年度土木学会東北支部技術研究発表会, 2011, CD VII-45
- ⑨ Md. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Attenuation of Groundwater Arsenic by the Natural Aquifer Solids in South-Western Bangladesh'. Geochemistry & Groundwater Session, The International Conference on Environment and Health, incorporating the 28th SEGH (Society for Environmental Geochemistry & Health), 2011, pp.26-27, England
- ⑩ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Characterization of Arsenic Contaminated Holocene-Deposits and Exploration of Sustainable Aquifer in South-Western Bangladesh, Workshop on International Drilling Recovery of Aquifer, Hanoi, Vietnam, 2011
- ⑪ M. TAUHID-UR-RAHMAN, A. MANO, K. UDO, Y. ISHIBASHI AND Y..H. HAN: Characteristics of arsenic distribution in the Holocene sediment deposits of South-Western Bangladesh, Mineralogical Magazine, Goldschmidt Conference Abstracts, 2011, p.1989, Czech Republic
- ⑫ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Distribution and mobilization of arsenic in the ganges delta aquifer sediment, Kalaroa, Bangladesh, Proceedings of the 3rd International Symposium on Environmental Management, October 26-28, Zagreb, Croatia, 2011
- ⑬ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: ACCUMULATION AND DISTRIBUTION OF ARSENIC IN THE GANGES FLOOD PLAIN SEDIMENT DEPOSITS, SOUTH-WESTERN BANGLADESH. GSA Abstracts with Programs Vol. 43, No. 5, 2011, 10th October, Minneapolis, USA
- ⑭ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Yoshinobu Ishibashi: Distribution and Mobilization of Arsenic in the Ganges plain sedimentary deposits of South-western Bangladesh; implications from field and laboratory observations . Submitted to American Geophysical Union meeting, San Francisco, CA, 2011
- ⑮ Md. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Y. H. Han, Satoshi Takahashi, and Yoshinobu Ishibashi: Accumulation and Mobilization of Arsenic in the Holocene sediment deposit of the Ganges Delta plain of Southern Bangladesh, AOGS-AGU (WPGM) Joint Assembly, 2012, Singapore.
- ⑯ M. Tauhid-Ur-Rahman, Y. H. Han, Yoshinobu Ishibashi, Satoshi Takahashi, Akira Mano and Keiko Udo: Arsenic Accumulation in Sediments and its Associated Contamination in Groundwater of the Ganges Floodplain Aquifers of Bangladesh, 18th Congress of the Asia and Pacific Division of the International Association for Hydro-Environment Engineering and Research (APD-IAHR 2012), 2012, Jeju Island, Korea
- ⑰ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Y. H. Han, Yoshinobu Ishibashi: Partitioning and contamination of Arsenic in the sediment and groundwater interface of the Ganges-Meghna river basin aquifers, in Bangladesh, AOGS 10th Annual Meeting, Brisbane Australia, June, 2013.(accepted : IG-26-A002)
- ⑱ M. Tauhid-Ur-Rahman, Akira Mano, Keiko Udo, Y. H. Han, Yoshinobu Ishibashi: Toxic effect of Arsenic on public health due to its long term consumption through contaminated drinking water, AOGS 10th Annual Meeting, Brisbane Australia, June, 2013. (accepted : IG-26-A001)

[図書] (計 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 件)

名称 :
 発明者 :
 権利者 :
 種類 :
 番号 :
 出願年月日 :
 国内外の別 :

○取得状況 (計 件)

名称 :
 発明者 :
 権利者 :
 種類 :
 番号 :
 取得年月日 :
 国内外の別 :

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

石橋 良信 (YOSHINOBU ISHIBASHI)

東北学院大学・工学部・教授

研究者番号：10111246

(2)研究分担者

真野 明 (AKIRA MANO)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：50111258

(3) 研究分担者

韓 連熙 (YOUN-HEE HAN)

東北学院大学・工学部・準教授

研究者番号：00380692