

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18404009  
 研究課題名（和文） ガンジスデルタ帯水層のヒ素溶出・吸着平衡特性の解明に基づく持続的浄水資源の探索  
 研究課題名（英文） Exploration of sustainable clear water resources based on the arsenic absorption-desorption clarification in Ganges delta aquifer  
 研究代表者  
 真野 明 (MANO AKIRA)  
 東北大学・大学院工学研究科・教授  
 研究者番号：50111258

## 研究成果の概要：

バングラディシュ南西部で地下水のヒ素汚染の実態を調べるため、2007年、2009年、50mから230mの各種深度の井戸を各年数本掘り、土砂と地下水の試料を連続的に採取した。これら試料は、東北大学および東北学院大で分析・実験を行った。ヒ素の溶出・吸着に関する平衡状態を調べ、分配係数を鉄、アルミニウム、pHで説明するモデルを提案した。また、土砂と地下水中のヒ素の鉛直分布構造を統一的に説明する知見をえた。深層地下水は、現在ヒ素濃度が低く安全であるが、ここから大量取水した場合の安全性を、上記知見を組み込んだ数値モデルにより予測した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2007年度	4,600,000	1,380,000	5,980,000
2008年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
年度			
年度			
総計	13,400,000	4,020,000	17,420,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・水工水理学

キーワード：ヒ素、溶出、分配係数、鉄の共沈、有機物

## 1. 研究開始当初の背景

ガンジス川とブラマプトラ川の両大河川が形成した広大な河口デルタ地帯が国の大部分を占めるバングラデシュでは、人口1.3億人の95%以上が飲用水として井戸水を利用している。現在使われている数千万本といわれる井戸の25%以上が、WHOの安全基準0.01mg/lの5倍以上のヒ素

に汚染されており、3500万人が慢性ヒ素中毒の危険に曝されている。

## 2. 研究の目的

本研究はガンジスデルタ帯水層におけるヒ素の溶出や吸脱着特性を明らかにし、これを基礎に帯水層における長期的なヒ素輸送と濃度分布の予測を行い、安全で必

要な量の水資源をどのように確保したらよいかの知見を得ることを目的とするものである。

### 3. 研究の方法

これを実現するために、以下の5つの要素研究を行い統合する。

(1) 代表的な2つの帯水層である中層（完新世前期形成）と深層（更新世形成）について、堆積土砂および地下水の試料を採取し砒素化合物、鉄酸化物、硫化物、有機物などの含有量と形態を明らかにする。

(2) 各帯水層における堆積土砂試料を用いて、ヒ素の溶出および吸脱着試験を行い、反応速度定数、分配係数を明らかにする。

(3) 河川や降雨からの涵養、蒸発や井戸水揚水による消費の影響を取り入れた地下水流動シミュレーションを行い、地下水の挙動を明らかにする。

(4) ヒ素溶出作用因子の挙動解析および吸脱着における物理・化学的因子に対する定量的解析を行う。ヒ素溶出に作用するとされる物質として有機リン、無機リン、アンモニア、メタノール、さらに塩害を考慮した海水などに着目して地下水へのヒ素溶出挙動の把握に努める一方、pH値変化やORP値変動、化学的、生物的な観点からの作用因子を検討している。また、地下水流動解析の際の係数であるヒ素溶出化学平衡時の分配係数を算出している。

(5) ヒ素の溶出や吸脱着反応を組み込んだ、ヒ素輸送モデルを地下水および堆積土砂について構築し、地下水流動モデルと連立して解くことにより、堆積土砂および地下水のヒ素の長期的な時空間分布特性を明らかにする。

### 4. 研究成果

特にヒ素汚染が深刻な、西南バングラディ

シュのサトゥクヒラ地区を対象とし、2007年、2008年の2回、各1ヶ月程度を使って現地調査を行った。ここでは、50mから230mの各種深度の井戸を各年数本掘り、土砂と地下水に含まれる鉱物化学成分の鉛直構造を調べるため連続的に試料を採取した。

採取した試料は、東北大学が有する、ICP質量分析装置(ICP-MS)、X線回折装置(XRD)、蛍光X線分析装置(XRF)、走査型電子顕微鏡(SEM)など最先端の分析装置を用いて、各種陽イオン、陰イオンの含有量、錯体の形態などを定量分析した。また、各種溶出実験、吸着実験を行い、ヒ素の反応速度係数、分配係数  $K_d$  (平衡状態における土砂と地下水の中のヒ素の割合) を同定した。

同定した分配係数は、鉄、アルミニウムの各濃度と pH に強く依存することが分かり、現地および実験室で得られた分配係数を統一的に高精度に表現する、モデルを提案した。モデルと実測値の適合度は、決定係数  $R^2=0.72$  と高く、また化学反応の平衡理論からも追算でき、ヒ素の溶出・吸着を記述する高度なモデルを世界で始めて提案したもので、2008年にヒューストンで開催されたアメリカ地質学会の主催する国際会議で公表し高く評価された。

地下水中のヒ素濃度は、浅い帯水層で高く、深度 200m を超える大深度帯水層では、安全基準を満たす低濃度であることが分かった。最初に、帯水層の土砂に含まれるヒ素濃度の鉛直分布を分析した。浅い帯水層では、粘土やシルトが主な成分で、土砂中のヒ素濃度も高く、深い帯水層では砂が主な成分で、ヒ素濃度は低い。土砂に含まれるヒ素濃度は、土粒子の表面積で大局的に説明でき、粘土の領域ではそれに加えて、ヒ素と共沈して錯体を形成している鉄や粘土鉱物の主要な成分であるアルミニウムがヒ素濃度を説明するこ

とが分かった。さらに、深度により帯水層の土砂流径が異なるのは、ガンジスデルタの成因にあり、過去 15,000 年における海面水位の変動とこれに伴う、堆積環境の地形勾配で説明できることが分かった。この土砂中のヒ素濃度の鉛直分布と、前段落で述べた溶出・吸着の平衡特性を組み合わせると、地下水中のヒ素濃度の鉛直分布を統一的に説明できることが分かった。この知見は、これまで部分的に調べられてきた、ヒ素濃度の特性に関する知識を統合するもので、世界で始めて達成できたものである。詳細は、現在別紙研究成果のリストにあるとおり、公表準備中である。

ヒ素溶出に作用する要因を探る一環として、有機リンのトリフェニルホスフィン、無機リンのリン酸水素二カリウム、アンモニア、グルコース、メタノール、海水を作用物質と定め、物理化学的にその挙動をみた。

1) 上記に示した物質はコントロールと比較して 100 倍強から数 100 倍の高濃度のヒ素溶出がみられた。特に有機リンのトリフェニルホスフィンとアンモニアで著しい溶出がみられた。

2) リン酸はヒ素と競合してイオン交換を行うため、鉄に吸着されていたヒ素と置換し、ヒ素の溶出が促進され、一方、pH 値がアルカリ側にある状態でのヒ素溶出が多くなると考えられる。

3) 塩害にも関係する海水は、好気状態においてヒ素溶出濃度が増加する。

4) 微生物は好気性、嫌気性の状況変化に関与し、中にはヒ素耐性を持ち、かつヒ素除去能を有する微生物がいるといわれているが、モデル土壌から一部の微生物を単離した。

5) バングラデシュにおける帯水層中の平衡状態時の分配係数を算定し、バングラデシュでの調査地点での値に近似する結果が得た。

大深度帯水層では、土砂および地下水とも、ヒ素濃度が低いことが特定できたので、有望な水資源の候補であることがわかった。しかし、すべての取水を浅い帯水層から、大深度帯水層に切り替えると、高濃度に汚染された地下水が深部に移動して、大深度帯水層が汚染される懸念がある。このため、取水を大深度帯水層に切り替えた場合の、地下のヒ素輸送を予測する、数値モデルを開発した。地下構造を単純化したモデルでは、高濃度ヒ素は移動途中で吸着して、大深度までは達しないとの結果を得た。

## 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 12 件)

1. 高橋直樹、佐藤佳央、石橋良信、韓連熙、R. T. Rahman、真野明、バングラデシュ帯水層を想定したヒ素溶出作用因子の挙動解析、環境工学研究論文集、45 巻、2008 年、1-8、査読有
2. Tauhid-ur-Rahman, Md., A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Geochemistry of Arsenic in the Holocene Aquifer; South-Western Bangladesh, Advances in Geosciences, Hydrological Science, 11 巻、2008年、印刷中、査読有
3. Tauhid-ur-Rahman, Md., A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Desorption of arsenic and its mobilization in the subsurface Environment, 2008 Joint Annual Meeting, GSA, 2008年、524、査読有
4. Tauhid-ur-Rahman, Md., A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Geochemical Evidence of Arsenic Transport in Shallow Ground Water, Bangladesh, Proceedings of 16th APD-IAHR Congress, 2008 年、769-773、査読有
5. Tauhid-ur-Rahman, Md., A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Statistical Evaluation of Highly Arsenic Contaminated Groundwater in South-western Bangladesh, Journal of Applied Quantitative Methods, 4 巻、2008 年、112-121、査読有
6. A. Mano and K. Egawa, Prediction of base washout by acid rainfall, 4<sup>th</sup> AOGS Conference, 2007 年、CD-ROM、査読有

7. Rahman Tauhid-UR, A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Mobilization of arsenic in a contaminated aquifer; South-Western Bangladesh, Summer Symposium, JSCE, 2007年、319-322、査読有
8. Rahman Tauhid-UR, A. Mano, K. Udo and Y. Ishibashi, Geochemical factors in mobilizing arsenic transport in the deltaic aquifer; South-Western Bangladesh, 2<sup>nd</sup> Int. Symposium on Environmental Management, Zagreb, Croatia, 2007年、197-205、査読有
9. T. Umeki, A. Mano and Y. Ishibashi, Groundwater flow and arsenic contamination analyses in Southern Bangladesh, Journal of ASTM International, 3巻、2006年、44-51、査読有
10. K. Egawa, H. kardhana and A. Mano, Modeling and Prediction of Base Transport in Forest Soil by Acid Rain, 15<sup>th</sup> APD-IAHR & ISMH, 2006年、327-333、査読有
11. V. Nourani and A. Mano, Rainfall-Runoff Modeling of South-Western Iran by TOPMODEL, 5<sup>th</sup> APD-IAHR & ISMH, 2006年、487-500、査読有
12. Y. Ishibashi, A. Mano, N. Takahashi, T. Marui and Y. Sato, Conditions of Arsenic elution and influence of Water Intake from a Deep Aquifer in Southern Bangladesh, International symposium on health hazard by Arsenic contamination of groundwater and its countermeasures, 2006年、119-123、査読有

[学会発表] (計 12 件)

1. 真野 明、ヒ素の吸脱着における物理・化学的因子に対する数量的解析、43 回日本水環境学会年会、2009 年 3 月 16 日、山口大学吉田キャンパス
2. 真野 明、Geochemical Evidence of Arsenic Transport in Shallow Ground Water, Bangladesh, 16th APD-IAHR Congress 2008, 2008 年 10 月 21 日、Hohaii University (中国)
3. 真野 明、Desorption of arsenic and its mobilization in the subsurface Environment, 2008 Joint Annual Meeting, GSA, 2008 年 10 月 8 日、George R. Brown Convention Center (米国)
4. 真野 明、ガンジスデルタ帯水層を想定したヒ素溶出作用因子の検討、42 回日本水環境学会年会、2008 年 3 月 21 日、名古屋大学
5. 真野 明、ヒ素溶出作用因子としての有機物の影響、平成 19 年度土木学会東北支部

技術研究発表会、2008 年 3 月 8 日、岩手大学工学部

6. 真野 明、Mobilization of arsenic in a contaminated aquifer; South-Western Bangladesh, Summer Symposium, JSCE, 2007 年 9 月 18 日、横浜国立大学
7. 真野 明、Geochemical factors in mobilizing arsenic transport in the deltaic aquifer; South-Western Bangladesh, 2<sup>nd</sup> Int. Symposium on Environmental Management, 2007 年 9 月 13 日、Zagreb Fair (クロアチア)
8. 真野 明、Prediction of base washout by acid rainfall, 4<sup>th</sup> AOGS Conference, 2007 年 8 月 1 日、The Queen Sirikit National Convention Center (タイ)
9. 真野 明、Conditions of Arsenic elution and influence of Water Intake from a Deep Aquifer in Southern Bangladesh, International symposium on health hazard by Arsenic contamination of groundwater and its countermeasures, 2006 年 11 月 4 日、宮崎観光ホテル
10. 真野 明、Modeling and Prediction of Base Transport in Forest Soil by Acid Rain, 15<sup>th</sup> APD-IAHR & ISMH, 2006 年 8 月 8 日、Indian Institute of Technology (インド)
11. 真野 明、Rainfall-Runoff Modeling of South-Western Iran by TOPMODEL, 15<sup>th</sup> APD-IAHR & ISMH, 2006 年 8 月 8 日、Indian Institute of Technology (インド)
12. 真野 明、Groundwater flow and arsenic contamination analyses in Southern Bangladesh, ASTM International, 2006 年 5 月 24 日、静岡あざれあ会館

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○ 取得状況 (計 0 件)

[その他]

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

真野 明 (MANO AKIRA)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：50111258

##### (2) 研究分担者

石橋 良信 (ISHIBASHI YOSHINOBU)

東北学院大学・工学部・教授

研究者番号：10111246

##### (3) 連携研究者