

Diss. ETH No.18553

**Arsenic dynamics in groundwater-irrigated
and seasonally flooded paddy fields in Bangladesh**

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
DOCTOR OF SCIENCES

presented by
LINDA CORINNA ROBERTS
Dipl. Umwelt-Natw. ETH.
born April 15, 1974
citizen of Germany & U.K.

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Bernhard Wehrli, examiner
Dr. Stephan J. Hug, co-examiner
Prof. Dr. Ruben Kretzschmar, co-examiner
Dr. Andreas Voegelin, co-examiner

Zurich 2009

Summary

Dry season rice (*boro*) cultivation was greatly increased over the past decades in Bangladesh and now accounts for more than 50% of national rice production. Since the irrigation demand of *boro* rice is mainly met by groundwater from shallow tube wells, often containing high arsenic (As) concentrations, approximately 1400 tons of As are added to arable soils each year. This is leading to increased As contents in paddy soils, rice straw and grain, and could potentially cause significant yield reductions associated with As toxicity. Whilst enabling Bangladesh to maintain food self-sufficiency at present, groundwater irrigation is threatening the sustainability of food production in the long term.

A comprehensive assessment of the risks associated with groundwater-based rice cultivation in Bangladesh requires a thorough understanding of the processes governing the behaviour of As in irrigated paddy fields. Lowland paddy fields in Bangladesh are irrigated from January until *boro* harvest in May and are often inundated by rain and river water during the monsoon season. This thesis contributes to the analysis of these complex systems by addressing (i) the spatial distribution of As with irrigation water, (ii) As remobilization from paddy soils during monsoon flooding, and (iii) As dynamics in soil porewater under intermittent irrigation, at a specific field site in Munshiganj District, Bangladesh. At the studied site, *boro* has been cropped with As-contaminated groundwater for the past ~18 years. The irrigation water is distributed by irrigation channels and enters the fields at single inlet locations. Fields are irrigated intermittently during *boro* growth, remain fallow after harvest and are deeply flooded during the monsoon period between mid-June and late October.

We found that formation and settling of As-bearing Fe colloids and As adsorption to soil minerals during irrigation water distribution lead to a laterally heterogeneous input of As to paddy soil, depending on groundwater composition and the type of irrigation system in place. At our field site, As loss from irrigation water was negligible within channels, due to fast flow velocities and low residence times. Within fields, irrigation water spread more slowly, and co-precipitation with Fe^{III} and sorption to soil minerals led to a pronounced As gradient in irrigation water. As input to paddy soil therefore decreased strongly with increasing distance from the irrigation inlet. Our results imply that in irrigation systems where water is directed through a succession of fields, highest As inputs can be expected in the field first receiving the irrigation water. Directing irrigation water across a designated treatment

field prior to its distribution may offer a simple means of reducing As input to soils used for crop production.

Over the course of the monsoon season, between 51 and 250 mg m⁻² As were released from paddy soil into the overlying floodwater at our field site, corresponding to 13-62% of the As annually added via irrigation. Arsenic was released from the soil as As^{III}, oxidized to As^V within the water column and prevented from sorbing to forming Fe colloids by sorption competition with phosphate. Arsenic therefore remained dissolved in floodwater, distributed into the entire water column by vertical mixing and was laterally removed when floodwater receded. Our findings identify release into floodwater, followed by lateral removal to rivers, as a major pathway attenuating As accumulation in paddy soils. This pathway is likely to be relevant in a significant portion of Bangladesh, 21% of which is annually affected by monsoon floodwaters exceeding 0.9 m depth. Though As volatilization or downward As leaching may lead to some As release from As-affected areas without pronounced monsoon flooding, these areas appear at greater risk of soil As accumulation than seasonally flooded fields.

Under the intermittent irrigation management in place at our field site, the soil above the plough pan transitioned from predominantly reducing to oxic conditions over the course of *boro* cultivation. Rice roots were thus exposed to porewater concentrations of up to 500 µg L⁻¹ As^{III} during early stages of rice growth, and to significantly lower As^V concentrations, which only intermittently increased to ~150 µg L⁻¹ As^V following irrigation events, during the later stages of *boro* growth. Our findings imply that the seasonal exposure of rice roots to As was less severe in our study field than in continuously flooded soils where porewater As concentrations tend to increase over time. This suggests that the dissemination of intermittent irrigation practices, currently advocated in Bangladesh for water-saving purposes, may prove beneficial in reducing As input to paddy soil and alleviating rice crop exposure to As.

In conclusion, our study indicates that irrigation water composition, irrigation management and the flooding regime during the monsoon season all need to be considered when assessing the site-specific risks of both As accumulation in soils and crop As contamination. Specifically, our results reveal areas without pronounced monsoon flooding to be particularly at risk of soil As accumulation. Since these areas are often double or triple cropped and therefore of key importance for agricultural production, assessing the extent of As accumulation in non-flooded paddy soils should be a priority of future research.

Zusammenfassung

In Bangladesch wurde der Anbau von *Boro* Reis während der Trockenzeit über die letzten Jahrzehnte stark intensiviert, und macht inzwischen mehr als 50% der Gesamtreisproduktion des Landes aus. Da der Bewässerungsbedarf von *Boro* Reis hauptsächlich durch oberflächennahes Grundwasser gedeckt wird, welches oft hohe Arsenkonzentrationen enthält, werden jährlich ca. 1400 Tonnen Arsen (As) auf Reisfelder gepumpt. Dies führt zu erhöhten Arsengehalten in Böden, Reisstroh und Reiskörnern, und könnte potentiell signifikante Ertragseinbußen zur Folge haben. Die Bewässerung mit Grundwasser ermöglicht es Bangladesch zum jetzigen Zeitpunkt, den nationalen Bedarf an Nahrungsmitteln zu decken, gefährdet die Nachhaltigkeit der Nahrungsmittelproduktion jedoch langfristig.

Eine umfassende Beurteilung der Risiken, die mit der Verwendung von Arsenhaltigem Grundwasser für den Reisanbau in Bangladesch verbunden sind, erfordert ein genaues Verständnis der Prozesse, die das Verhalten von Arsen in bewässerten Reisfeldern bestimmen. Reisfelder in Bangladesch werden von Januar bis zur *Boro* Ernte im Mai bewässert, und während der Monsunzeit oft von Regen- und Flusswasser überflutet. Die vorliegende Arbeit trägt zur Analyse dieser komplexen Systeme bei in dem sie (i) die räumliche Verteilung von Arsen durch das Bewässerungswasser, (ii) die Freisetzung von Arsen aus überfluteten Reisböden während des Monsuns, und (iii) das Verhalten von Arsen im Porenwasser unter periodisch gefluteten Bedingungen, an einem Feldstandort im Distrikt Munshiganj in Bangladesch untersucht. Am gewählten Standort wird *Boro* Reis seit ca. 18 Jahren mit Arsenhaltigem Grundwasser angebaut. Die Felder werden während der *Boro* Saison periodisch bewässert, wobei das Bewässerungswasser durch Kanäle und über je einen Wassereinlass auf die Felder geleitet wird. Nach der *Boro* Ernte bleiben die Felder brach und werden in der Monsunzeit von Mitte Juni bis Ende Oktober tief überflutet.

Unsere Ergebnisse zeigten, dass das Entstehen und Sich-Absetzen von Arsenhaltigen Eisenkolloiden während des Bewässerungsvorgangs, sowie die Adsorption von Arsen an Bodenmineralien zu einem räumlich heterogenen Arseneintrag in die Reisböden führt. Das Ausmass der räumlichen Heterogenität hängt sowohl von der Grundwasserzusammensetzung als auch vom Bewässerungssystem ab. An unserem Feldstandort war der Arsenverlust aus dem Bewässerungswasser innerhalb der Kanäle aufgrund hoher Fliessgeschwindigkeiten und

kurzer Aufenthaltsdauer vernachlässigbar klein. Innerhalb der Felder verteilte sich das Bewässerungswasser langsamer. Durch Ausfällung von Arsen mit Fe^{III} und Arsen-Sorption an Bodenmineralien entstand daher ein ausgeprägter Arsengradient im Bewässerungswasser; der Arseneintrag in den Reisboden nahm demzufolge mit zunehmender Distanz vom Bewässerungseinlass stark ab. Unsere Ergebnisse legen nahe, dass es bei Bewässerungssystemen, in denen das Wasser sukzessiv über Feldern geleitet wird, im ersten Feld zum höchsten Arseneintrag kommt. Ein einfaches Mittel um den Arseneintrag in landwirtschaftlich genutzte Böden zu verringern wäre daher, Landparzellen aus der Produktion herauszunehmen und Bewässerungswasser vor der Verteilung zwecks Arsenentfernung über diese Felder zu leiten.

Im Laufe einer Monsun-Saison wurden an unserem Feldstandort zwischen 51 und 250 mg m^{-2} As aus dem Reisboden in das darüberstehende Flutwasser freigesetzt. Dies entspricht 13-62% des jährlichen Arseneintrags aus der Bewässerung. Das Arsen wurde als As^{III} aus dem Boden gelöst und innerhalb der Wassersäule zu As^{V} oxidiert. Aufgrund von Sorptionskonkurrenz mit Phosphat wurde das Arsen nicht an sich bildende Eisenkolloide gebunden, sondern blieb als gelöste Spezies im Flutwasser. Durch vertikale Vermischung wurde das Arsen über die ganze Wassersäule verteilt und mit dem abfließenden Flutwasser seitlich ausgetragen. Unsere Ergebnisse zeigen, dass die Freisetzung von Arsen in Flutwasser, mit anschließendem lateralen Transport in Flüsse einen quantitativ bedeutenden Austragspfad darstellt, der die Arsenanreicherung in Böden abschwächt. Der Austrag über das Flutwasser dürfte in einen signifikanten Teil Bangladeschs von Bedeutung sein, da 21% der Landesfläche jährlich im Monsun mit mehr als 0.9 m Wasser überschwemmt werden. In Gegenden, die nicht stark überflutet werden, könnte es durch die Bildung volatiler Arsen-Spezies oder durch Arsen-Auswaschung mit versickerndem Regen- oder Bewässerungswasser zu einem gewissen Arsenaustrag kommen. Diese Gebiete erscheinen jedoch in Bezug auf die Anreicherung von Arsen in Böden stärker gefährdet als stark überflutete Gegenden.

Unter dem periodischen Bewässerungsregime an unserem Feldstandort, veränderten sich die Bedingungen im Boden über der Pflugsohle, im Laufe der *Boro* Saison von vorwiegend reduzierend zu oxidisch. Die Reiswurzeln waren so zu Beginn der Wachstumsperiode Porenwasserkonzentrationen von bis zu $500 \mu\text{g L}^{-1}$ As^{III} ausgesetzt; gegen Ende der Saison hingegen wesentlich geringeren As^{V} , Konzentrationen, die nur periodisch, nach Bewässerungsereignissen, auf $\sim 150 \mu\text{g L}^{-1}$ As^{V} anstiegen. Dies impliziert, dass die saisonale Arsenexposition von Reiswurzeln an unserem Feldstandort geringer war als in kontinuierlich überfluteten Böden, in denen die Arsenkonzentrationen im Porenwasser im

allgemeinen über die Zeit zunehmen. Der Reisanbau unter periodisch gefluteten Bedingungen wird zurzeit aufgrund des Wassersparpotenzials in Bangladesch gefördert. Unsere Ergebnisse deuten darauf hin, dass dies sich auch aufgrund verminderten Arseneintrags in die Reisböden, sowie verminderter Arsenexposition der Reispflanzen als vorteilhaft erweisen könnte.

Insgesamt zeigt diese Arbeit, dass die Grundwasserzusammensetzung, das Bewässerungssystem und das Überflutungsregime während der Monsun-Saison berücksichtigt werden müssen, um ortsspezifische Risiken der Arsenanreicherung im Boden und Arsenbelastung von Reispflanzen abzuschätzen. Im Besonderen weisen unsere Resultate Gegenden ohne ausgeprägte saisonale Überflutung als bezüglich Arsenanreicherung im Boden besonders gefährdet aus. Da in diesen Gegenden häufig zwei bis drei Ernten pro Jahr angebaut werden, kommt nicht überfluteten Böden eine Schlüsselrolle für die landwirtschaftliche Produktion in Bangladesch zu. Zukünftige Studien sollten sich daher prioritär mit dem Ausmass der Arsenanreicherung in nicht überfluteten Gegenden befassen.