

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde der
Gesamtfakultät für Mathematik, Ingenieur- und Naturwissenschaften
der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Vorgelegt von: Charlotte Nina Stirn

Tag der mündlichen Prüfung: 13.04.2022

Untersuchung und Bewertung der räumlichen und zeitlichen Einflussfaktoren auf die
Arsenmobilität im Grundwasser in Bangladesch

Gutachter: Prof. Dr. Olaf Bubenzer
Prof. Dr. Frank Keppler

für Gerd

Diese Arbeit ist zwar Gerd Schukraft gewidmet, aber viele Menschen haben mich gleichermaßen unterstützt, haben an mich geglaubt, mich fachlich beraten, mir menschlich beigestanden, meine Arbeit geschätzt, mich ermuntert, diese Arbeit zu schreiben oder sie finanziell ermöglicht.

Gerd Schukraft war ein wunderbarer, humorvoller Chef, Kollege, hervorragender Wissenschaftler und sehr besonderer Mensch, dessen Beratung und immer sehr hilfreiche Unterstützung, Motivation und Anregungen aber auch Leitplanken mir in den letzten zwei Jahren sehr schmerzlich gefehlt haben. Ich verdanke ihm, dass ich so viele Jahre Hiwi im Labor für Geomorphologie und Geoökologie sein durfte und dort unglaublich viel gelernt habe - dadurch bin ich dort, wo ich jetzt bin. Die „Schukraft“ wird immer mit mir sein.

Weiterhin ganz besonderer Dank gilt **Martin Maier**, der mich gelehrt hat, immer wieder und voller Mut weit über den eigenen Tellerrand hinaus zu schauen, nicht zu verzweifeln, Neues zu versuchen und durchzuhalten. Er war mir nicht nur ausdauernder Diskussionspartner, Hilfe bei Planung und Geländekampagnen sondern auch ein guter Freund, der mich immer wieder auch daran erinnert hat, dass es noch mehr gibt als Arbeit.

Sehr herzlich bedanken möchte ich mich bei **Prof. Dr. Olaf Bubenz** und **Prof. Dr. Frank Keppler** für die Begleitung, fachliche Unterstützung und die Ermöglichung dieser Arbeit sowie die Gestellung von Messgeräten und Arbeitsräumen sowie die Plattformen für fachlichen Austausch. Außerdem natürlich für die kritische Begutachtung und Beurteilung dieser Arbeit.

Besonderer Dank gilt **Nicola Manke** für die fachliche sowie sehr freundschaftliche Unterstützung sowohl bei Labortätigkeiten aber auch für die Schokolade und das Gegenlesen von Texten. Ebenfalls sehr herzlicher Dank gebührt **Christian Scholz**, **Stefan Rheinberger**, **Silvia Rheinberger** und **Max Engel** für die Messung der Wasser- und Sedimentproben sowie die Beratung und Unterstützung hinsichtlich technischer, fachlicher und analytischer Fragen. Für die Analytik der Gase vielen Dank an **Markus Greule**, **Moritz Schroll** und **Daniela Polag**. Ich danke auch **Gregor Austermann** für die Analyse und Bewertung sedimentologischer und mineralogischer Aspekte, die jedoch nicht Teil dieser Arbeit geworden sind. In diesem Zusammenhang möchte ich außerdem **Helena Noé** und **Susan Steinemann** danken, die im Rahmen ihrer Bachelorarbeiten einen Großteil der teils sehr aufwendigen Probenaufbereitung und Analytik durchgeführt haben. Bei den Themen der Geoinformatik danke ich der Beratung und Unterstützung von **Franz-Benjamin Mocnik**, **Michael Schultz** und **Dagmar Brombierstäudl**.

Alle in dieser Arbeit enthaltenen Arbeiten wären ohne unsere Kooperationspartner nicht möglich gewesen. Die umfassenden Probenahmen, die Logistik des Probentransportes und der Lagerung wurde gewährleistet durch die Zusammenarbeit mit dem Institut für Global Health, Heidelberg (mittlerweile am Potsdam Institut für Klimafolgenforschung): **Prof. Dr. Dr. Sabine Gabrysch**, **Amanda Wendt**, **Jillian Waid**, **Shafinaz Sobhan** und **Anna Müller** sowie mit dem **Heidelberger Verein AGAPE e.V.**. Weitere Unterstützung, insbesondere bei der Beschaffung von Wetterdaten aus Bangladesch, verdanke ich dem Kölner Kollegen **Mofizur Rahman**.

Die Arbeiten vor Ort wurden von dem Personal vor Ort, **Rakibul Hasan**, **Shohag** und **Sailen Akter** durchgeführt - auch ihnen bin ich sehr dankbar für ihre gründliche und unermüdliche Unterstützung. **Md. Abdul Wahab**, Vorstand von AGAPE Bangladesch, half uns dankenswerterweise ehrenamtlich in Bangladesch, unterstützte uns bei den Geländearbeiten vor Ort, stellte uns sein Auto inklusive Fahrer zu Verfügung, organisierte Genehmigungen, Bohrfirmen und alles Nötige an Equipment und Helfern.

Insbesondere danke ich den **Familien in Bangladesch**, die uns nicht nur Zugang zu ihren Brunnen gewährt haben, sondern uns auch sehr gastfreundlich, hilfsbereit und offen empfangen haben. Ich bin überaus dankbar für diese wundervolle und bereichernde Erfahrung.

Ebenfalls großer Dank gilt der **Johannes Hübner Stiftung**, die mich nicht nur finanziell, sondern auch fachlich und menschlich unterstützt haben. Die fachübergreifenden Diskussionen bei den Präsentationen oder bei persönlichen Treffen waren sehr inspirierend und anregend - wenn auch immer kritisch und anspruchsvoll. Ich bedauere sehr, dass nicht alle ursprünglich geplanten Aspekte Teil dieser Arbeit geworden sind und ich nicht alle Vorschläge mit aufnehmen konnte - dennoch habe ich sehr viel dazu gelernt. Besonders bedanken möchte ich mich bei **Frau Olga Riedl Hübner** für die Gewährung des Stipendiums, **Herr Dieter Wulkow** für die fachliche Betreuung der ersten zwei Jahre sowie das immer sehr konstruktive, ermunternde und positive Feedback, **Herr Prof. Dr. René Theska** für die technische Unterstützung und die sehr hilfreichen kritischen Nachfragen, **Herr Stefan Becker** und **Herr Bernhard Cloos** für die Betreuung im letzten Jahr sowie die sehr positive Rückmeldung, **Frau Angela Hofmann** für die Organisation sowie dem gesamten **Vorstand der Johannes Hübner Stiftung** für die Begleitung und Förderung dieses Projekts.

Nicht zuletzt gilt mein Dank allen weiteren Institutionen und deren Mitarbeitern, die Teil dieser Arbeit waren, sie ermöglicht haben, finanziert haben oder anderweitig unterstützt haben: Besonderer Dank gilt dem **Heidelberg Center for the Environment (HCE)**, dessen Anschubfinanzierung des Projektes „Einfluss von Haushaltsabwässern auf die Arsenmobilisierung ins Grundwasser – geochemische und epidemiologische Untersuchungen in Sylhet, Bangladesh“ den Grundstein für diese Arbeit gelegt und viele hilfreiche Kontakte geliefert hat. Ich möchte mich auch sehr herzlich für die finanzielle Unterstützung des **Forschungsdezernats** der Universität Heidelberg sowie der **Kurt-Hiehle-Stiftung** bedanken, die eine Forschungsreise zur Entnahme von Wasser und Gasproben finanziell unterstützt haben. Dank gilt auch dem Geographischen Institut der Universität Heidelberg, dem Institut für Geowissenschaften der Universität Heidelberg, dem Heidelberger Institut für Global Health und dem Potsdam Institut für Klimafolgenforschung. Außerdem der Bäckerei Görtz für die Versorgung mit Kaffee und Essen auch an Sonn- und Feiertagen.

Abschließender und ganz besonderer Dank gilt meinen Freunden und meiner Familie - ohne die es natürlich überhaupt nicht gegangen wäre.

Zusammenfassung

In Bangladesch weist das Grundwasser vielerorts Arsengehalte oberhalb des Grenzwertes auf, der von der Weltgesundheitsorganisation für Trinkwasser vorgeschlagen wird ($10\mu\text{g/l As}$). Arsen ist bereits in derart geringen Mengen gesundheitsschädigend, insbesondere bei kontinuierlicher Aufnahme. In vielen ländlichen Regionen Bangladeschs wird das Grundwasser ohne weitere Aufbereitung zur Arsenentfernung als Trinkwasser verwendet, mit meist langwierigen und schwerwiegenden gesundheitlichen Folgen für die betroffenen Familien.

Das Problem ist schon seit fast drei Jahrzehnten bekannt und wurde umfassend erforscht. Dennoch sind einige der zugrundeliegenden Prozesse, welche diese hohen Arsengehalte hervorrufen, noch nicht vollständig geklärt. Die Arsengehalte sind nicht alleine mit sedimentären hohen Arsengehalten zu erklären und auch für die hohe räumliche Variabilität der Arsengehalte in den Brunnen fehlt es an belegten Ursachen. Basierend auf bisheriger Forschung wird davon ausgegangen, dass organischer Kohlenstoff zur Ausbildung anoxischer Bedingungen im Untergrund führt. Unter sauerstofffreien Bedingungen im Bereich der Eisenreduktion lösen sich Eisenminerale auf, an die das Arsen gebunden vorliegt, wodurch es in das Grundwasser abgegeben wird. Es ist stark umstritten, ob der organische Kohlenstoff primär aus den Sedimenten stammt oder ob, v.a. auch angesichts der dichten Besiedlung, auch menschlicher Eintrag über Landwirtschaft, Latrinen und Haushaltstümpel stattfindet.

Die Ausbildung von anoxischen Bedingungen wird z.B. durch Überflutungsereignisse gefördert. In Bangladesch treten natürlicherweise durch die monsunalen Niederschläge regelmäßige Überflutungen auf. Gleichzeitig ist Bangladesch eine Hauptanbauregion von Reis, der unter wassergesättigten Bedingungen kultiviert wird und entsprechend während der Trockenzeit über lange Zeiträume bewässert werden muss.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde untersucht, ob über die Nutzung von hochaufgelösten Radar-Fernerkundungsdaten und umfassende saisonale sowie großflächige Daten zu geochemischen Grundwasserzusammensetzung in Brunnen ein Einfluss der Oberflächenbedeckung auf die Grundwasserqualität festgestellt werden kann. Anhand von Niederschlagsdaten sollte außerdem evaluiert werden, ob primär niederschlagsbedingte Überflutungsereignisse oder künstliche Überflutung zu Bewässerungszwecken einen Einfluss auf die Arsengehalte in den Brunnen haben. Dabei wurden auch die sedimentären Bedingungen an zwei der drei untersuchten Standorte berücksichtigt.

Die Ergebnisse zeigen eine stark standortabhängige Heterogenität, was darauf schließen lässt, dass lokale Untergrundbedingungen einen sehr starken Einfluss auf die Prozesse haben und Überflutungsereignisse an der Oberfläche nur bedingt mit den Arsengehalten in den untersuchten Brunnen im Zusammenhang stehen. Aufgrund der wenigen verfügbaren Informationen zu den hydrologischen Bedingungen an den jeweiligen Standorten lässt sich nicht klären, ob monsunale Niederschläge oder Bewässerungspraktiken stärker zu dem Arsenproblem beitragen. Allerdings ist eindeutig zu erkennen, dass nicht der organische Kohlenstoff direkt eine zentrale Rolle bei der Arsenmobilität spielt, sondern Methan von wesentlich größerer Bedeutung ist, das aus dem Abbau des organischen Kohlenstoffs resultiert. Außerdem zeigt sich, dass in Bangladesch hohe Methangehalte unter bereits sehr schwach anoxischen Bedingungen auftreten, sodass Migrationsprozesse des Methans relevant sind.

Diese Arbeit zeigt, dass die hier geprüfte Methodik zur Nutzung von Fernerkundungsdaten für die Qualität von Brunnenwässern nur bedingt geeignet ist, da die genutzten Radardaten nur kurze Zeit (7

Jahre) zurückreichen. Der Fokus zukünftiger Arbeiten sollte auf dem Kohlenstoffkreislauf liegen, der durch Methan und Kohlenstoffdioxid nicht nur die mikrobielle Aktivität antreibt, sondern auch die Verwitterung von Sedimenten beschleunigen kann. Außerdem sollten zukünftige Arbeiten den hoch komplexen Untergrundaufbau, z.B. durch geophysikalische Messungen, stärker miteinbeziehen.

Abstract

In Bangladesh, groundwater in many places has arsenic levels above the limit proposed by the World Health Organization for drinking water ($10\mu\text{g/l As}$). Even at low levels, Arsenic is harmful to health, especially when ingested continuously. In many rural areas of Bangladesh, groundwater is used as drinking water without further treatment to remove arsenic, usually with long-lasting and serious health consequences for the affected families.

The problem has been known and extensively researched for nearly three decades. Nevertheless, some of the underlying processes that cause these high arsenic levels are not fully understood yet. The arsenic levels cannot be explained by sedimentary high arsenic levels alone, and there is also a lack of documented causes for the high spatial variability of arsenic levels in wells. Based on previous research, it is assumed that organic carbon leads to the formation of anoxic conditions in the subsurface. Under oxygen-free conditions in the iron reduction zone, iron minerals to which the arsenic is bound dissolve, releasing the arsenic into the groundwater. There is considerable controversy as to whether the organic carbon originates primarily from sediments or whether human input also occurs via agriculture, latrines, and household ponds.

The formation of anoxic conditions is promoted by flooding events, for example. In Bangladesh, regular flooding occurs naturally due to monsoonal rainfall. At the same time, Bangladesh is a major rice growing region, which is cultivated under waterlogged conditions and accordingly requires irrigation for long periods during the dry season.

This work investigated whether an influence of surface cover on groundwater quality can be determined via the use of high-resolution radar remote sensing data and comprehensive seasonal as well as large-scale groundwater geochemical composition data in wells. Precipitation data were also used to evaluate whether primarily precipitation-related flooding events or artificial flooding for irrigation purposes have an effect on arsenic levels in wells. Sedimentary conditions at two of the three sites studied were also considered.

The results show strong site-dependent heterogeneity, suggesting that local subsurface conditions have a very strong influence on the processes and that surface flooding events have only a limited relationship with arsenic levels in the wells studied. Because of the limited information available on hydrologic conditions at each site, it is not possible to determine whether monsoonal precipitation or irrigation practices contribute more strongly to the arsenic problem. However, it is clear that organic carbon does not directly play a central role in arsenic mobility, but methane is of much greater importance, resulting from organic carbon decomposition. It also shows that high methane levels occur in Bangladesh under already very weakly anoxic conditions, so that migration processes of methane are relevant.

This work shows that the methodology reviewed here for using remote sensing data for well water quality is limited because the radar data used only go back a short time (7 years). Focus of future work should be on carbon cycling, which not only drives microbial activity through methane and carbon

dioxide, but can also accelerate sediment weathering. In addition, future work should more fully incorporate the highly complex subsurface structure, e.g., through geophysical measurements.

Grafische Zusammenfassung

	Probenahme	Detailprobenahme	Flächenprobenahme	Saisonale Probenahme
Geochemische Daten	Zeitpunkt	2019 & 2020	2019	2018-2019
	Durchgeführte Arbeiten (Analytik)	Grundwasser (vollständig) Gelöste Gase Sediment	Grundwasser (Kationen) Sozioökonomische Parameter	Grundwasser (vollständig)
	Probenanzahl	49	1441	ca.69
	Standorte	Boalia (Sirajgaj) Dadpur (Sirajganj) Bera (Pabna) Matlab (Chandpur) Chandpur Süd (Chandpur) Jagannathpur (Habiganj) Korgaon (Habiganj) Tajpur (Habiganj)	Habiganj	Habiganj
Analyse	Statistisch	Korrelation		
	Räumlich	Überflutungsdauer (Sentinel 1 + Google Earth Engine)		
	Zeitlich	Niederschlagsdaten (Meteorological Department Bangladesh) Überflutungszeitpunkte (Sentinel 1 + Google Earth Engine)		
Ergebnisse	Statistisch	As korreliert am Sediment mit Fe, im Grundwasser aber nicht As korreliert im Grundwasser positiv mit Ca und CH ₄	Brunnentiefe hat größten Einfluss auf As-Gehalt Kein Einfluss durch Latrinen feststellbar	Keine eindeutigen Ergebnisse
	Räumlich	Starker hydro-geologischer Einfluss Kein eindeutiger Einfluss von Oberflächen	Starker hydro-geologischer Einfluss Nass- und Feuchtgebiete nicht von Bedeutung	Geringe As-Variabilität, nur lokal und vor allem in flachen Brunnen
	Zeitlich			Keine saisonalen Schwankungen
Interpretation	<p>Arsengehalt in den Brunnen wird primär von lokaler Hydrogeologie und Geochemie beeinflusst. Die genauen Prozesse (Fällung, Verdünnung, Redoxänderung) sowie die Rolle relevanter Stoffe hinsichtlich Redoxmilieu (Fe, Mn) und kompetitiver Oberflächenkomplexierung (P, Si, Ca, HCO₃) müssen durch weitere, tiefenzionierte Untersuchungen festgestellt werden.</p> <p>Kleine Wasserflächen (Tümpel) können über Sentinel 1 nicht erfasst werden → ganzjährige Wasserflächen werden unterschätzt.</p> <p>Saisonale Überflutung hat keinen eindeutigen Einfluss.</p> <p>Oberflächennutzung im 100m Radius um den Brunnen wirkt sich am stärksten auf die Geochemie aus. Folgen allerdings lokal unterschiedlich.</p> <p>Anstieg der Wasserflächen tritt zeitverzögert auf und lässt sich daher nicht eindeutig dem Monsun oder der Bewässerung zuordnen. Ganzjährig hoher Anteil an Feuchtflächen weist allerdings auf Bewässerung während der Trockenzeit hin.</p>			
Synthese	<p>Oberflächenbedeckung im 100m Radius steht im Zusammenhang mit Wasserzusammensetzung in Brunnen, wirkt sich jedoch nicht nachweislich auf die Arsengehalte aus. Für die Arsenmobilität sind vermutlich geochemische Prozesse, insbesondere Redoxbedingungen und kompetitive Oberflächenkomplexierung sowie die lokale Geologie und mineralogische Zusammensetzung des Sediments von größerer Bedeutung.</p> <p>Differenzierung zwischen monsunalen und anthropogenen Wasserflächen/Feuchtflächen nur durch mehrjähriges Monitoring möglich.</p>			

Inhalt

Abbildungsverzeichnis	VIII
Tabellenverzeichnis	X
Abkürzungsverzeichnis	XI
1 Einleitung und zentrale Fragestellung	1
2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete	4
2.1 Lage der Untersuchungsgebiete	5
2.2 Geologische Rahmenbedingungen	5
2.3 Hydrologischer und hydrogeologischer Kontext	7
2.4 Klimatische Einordnung Bangladeschs und der Standorte	13
2.5 Landwirtschaft und Landnutzung	14
2.6 Sozioökonomische Parameter	14
2.6.1 Häusliche Abwässer (Latrinen)	15
2.6.2 Tümpel und Oberflächengewässer	16
3 Grundlagen und zentrale Prozesse der Arsenmobilität in Bangladesch	18
3.1 Sedimentäre Bindungsform	20
3.2 Geochemische Bedingungen im Untergrund	20
3.3 Organischer Kohlenstoff	22
3.4 Korngröße und Aquiferstruktur	23
3.5 Mineralverwitterung	23
3.6 Grundwasserfließgeschwindigkeit und Durchspülung des Aquifers	24
3.7 Geochemische Grundwasserkomposition	24
3.8 Grundwassernutzung	26
3.9 Nährstoffeintragspfade	27
3.10 Räumliche und zeitliche Wirkung der Faktoren	29
4 Material und Methoden	32
4.1 Quantitative Fragebögen	34
4.2 Wetter- und Klimadaten	34
4.3 Räumliche Faktoren über GIS und Fernerkundung	34
4.3.1 Nutzung von Satellitendaten	34
4.3.2 GIS-basierte Analysen	35
4.3.3 Ground-Truthing	36
4.4 Statistische Auswertung	37
4.5 Sedimentproben	37
4.5.1 Sedimentprobenahme	37
4.5.2 Probenaufbereitung Sedimentproben	38
4.5.3 Analysemethoden Sediment	38
4.6 Grundwasserproben	39
4.6.1 Probenahme Grundwasser	39
4.6.2 Analysemethoden Grundwasser	40

4.7	Gasproben.....	40
4.7.1	Probenahme Gas	40
4.7.1	Analysemethoden Gas	41
4.8	Statistische Bewertung	41
4.9	Fehlerbetrachtung	42
4.9.1	Probenahmefehler	42
4.9.2	Analytischer Fehler.....	43
4.9.3	Verortungsfehler	44
4.9.4	Klassifizierungsfehler	45
4.9.5	Fragebogenfehler	46
4.9.6	Interpretationsfehler.....	46
5	Ergebnisse	47
5.1	Sedimentärer Arsengehalt in Korgaon und Bera	47
5.2	Orientierende Grundwasseruntersuchungen in Habiganj, Sirajganj, Pabna und Chandpur	52
5.3	Großflächige Untersuchungen in Habiganj	57
5.3.1	Statistische Bewertung anthropogener Faktoren.....	58
5.3.2	Statistische Bewertung der geochemischen Daten	59
5.3.3	Räumliche Auswertung.....	62
5.4	Einfluss von Überflutungsprozessen auf die Brunnen.....	65
5.4.1	Beeinflussung von Arsengehalten und geochemischen Bedingungen....	65
5.4.2	Differenzierung zwischen natürlicher und anthropogener Überflutung .	69
5.5	Saisonale Variabilität in Habiganj	71
6	Diskussion	72
6.1	Geochemische Bedingungen sedimentär und im Grundwasser.....	72
6.2	Eintrag und Bedeutung von oberflächlichem TOC für die Arsenmobilität.....	73
6.3	Auswirkung von Latrinen auf Arsenmobilität	74
6.4	Zusammenhang zwischen Überflutung(sphasen) und Arsenmobilität	74
6.5	Differenzierung zwischen natürlicher und anthropogener Überflutung	75
6.6	Zeitliche Variabilität der Grundwasserzusammensetzung	75
6.7	Nutzung von Satellitendaten für Vorhersage der Arsengehalte in den Brunnen .	75
6.8	Einfluss der Landbedeckung auf geochemische Bedingungen im Untergrund ...	75
7	Schlussfolgerungen.....	76
	Bibliographie.....	77
	Anlagen	93

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Schematische Darstellung der Fragestellung	2
Abbildung 2-1: Lage Bangladeschs und Verortung der Untersuchungsgebiete.....	6
Abbildung 2-2: Schematischer geologischer Schnitt durch die alluvialen quartären Sedimente des Bengalischen Beckens von Norden nach Süden.....	9
Abbildung 2-3: Aquifertypen nach Pal & Mukherjee (2009).....	10
Abbildung 2-4: Geologische Schnitte durch das Bengalische Becken.....	11
Abbildung 2-5: Durchschnittliche monatliche Temperatur und Niederschlagsmengen der Station Dhaka	13
Abbildung 2-6: Prozentuale Anteile der Erwerbstätigen und der Bruttowertschöpfung nach Sektoren 2019 in Bangladesch	15
Abbildung 2-7: Alle Tümpel weisen Algen- oder Pflanzenbewuchs auf. Die meisten können über Treppen oder Stege von den umliegenden Haushalten genutzt werden	17
Abbildung 3-1: Arsengehalte im Grundwasser von Bangladesch und Westbengalen (Indien) in unterschiedlichen Tiefen.....	19
Abbildung 3-2: Redoxreaktionen und Redoxpotential.....	21
Abbildung 3-3: Grafische Übersicht der relevanten Prozesse hinsichtlich der Arsenmobilität	25
Abbildung 4-1: Grafische Zusammenfassung der Arbeitsschritte für die Aufbereitung und Klassifizierung der Satellitendaten	32
Abbildung 5-1: Bohrprofil Bera Bohrung 1 sowie TOC- und Arsen- und Phosphorgehalte in den Eluaten und im Königswasser.....	47
Abbildung 5-2: Bohrprofil Korgaon Bohrung 1 sowie TOC- und Arsen- und Phosphorgehalte in den Eluaten und im Königswasser.....	48
Abbildung 5-3: Prozentuale Wasser-eluibare TOC-Anteile im Sediment in Bera und Korgaon nach Tiefe.	49
Abbildung 5-4: Bohrprofil Bera Bohrung 1 sowie Calcium (Ca)-, Schwefel (S)- und Eisengehalte (Fe) in den Eluaten und im Königswasser.....	50
Abbildung 5-5: Bohrprofil Korgaon Bohrung 1 sowie Calcium (Ca)-, Schwefel (S)- und Eisengehalte (Fe) in den Eluaten und im Königswasser.....	50
Abbildung 5-6: Arsen und Eisengehalte der Königswasseraufschlüsse des Sediments aus allen Tiefen an den Standorten Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).	51
Abbildung 5-7: Arsen und Eisengehalte der HCl-Eluate des Sediments aus allen Tiefen an den Standorten Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).	51
Abbildung 5-8: Zusammenhang zwischen Arsen und CH ₄ an allen Standorten.	54
Abbildung 5-9: Zusammenhang zwischen CO ₂ und CH ₄ an allen Standorten.....	54

Abbildung 5-10: Zusammenhang zwischen Arsen und HCO ₃ an den geochemisch beprobten Standorten.	54
Abbildung 5-11: Zusammenhang zwischen Arsen und TOC an allen Standorten.	55
Abbildung 5-12: Zusammenhang zwischen CH ₄ und TOC an allen Standorten.	55
Abbildung 5-13: Arsengehalt (a), TOC-Gehalt (b), Schwefelgehalt (c) und Methangehalt (d) im Wasser an den Detail-Untersuchungsstandorten von 2019 und 2020.	56
Abbildung 5-14: Eisen- und Arsengehalte im Grundwasser der beprobten Haushaltsbrunnen aus Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).	56
Abbildung 5-15: Arsengehalte nach Brunnentiefe am Standort Habiganj.	57
Abbildung 5-16: Arsengehalte in Abhängigkeit von Abstand zwischen Latrine und Brunnen für die Brunnen bis 30 m Tiefe (n = 442) sowie die Mittelwerte der 58 Arsengehalte aller Brunnen pro Abstandsangabe.	58
Abbildung 5-17: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Eisengehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	59
Abbildung 5-18: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Mangangehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	60
Abbildung 5-19: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Calciumgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	60
Abbildung 5-20: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Phosphorgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	61
Abbildung 5-21: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Siliziumgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	61
Abbildung 5-22: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Schwefelgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.	61
Abbildung 5-23: Arsengehalte der flachen Brunnen (bis 50 m u. GOK) am Standort Habiganj und Verortung der Detailuntersuchungsgebiete.	63
Abbildung 5-24: Arsengehalte der flachen Brunnen (bis 50 m u. GOK) am Standort Habiganj und geologischer Kontext.	64
Abbildung 5-25: Jährliches Mittel der Feuchtflächenanteile [%] im 50, 100 und 500 m Radius um die flachen Brunnen der flächendeckenden Studie sowie die gemessenen Arsengehalte dieser Brunnen.	65
Abbildung 5-26: Arsen, Methan und TOC-Gehalt an den vier Standorten im Vergleich zu den jährlichen Feuchtflächenanteilen im 100 m Radius um die Brunnen.	68
Abbildung 5-27: Zeitlicher Verlauf der Niederschläge (Wetterstation Srimangal) und Bewässerung sowie Oberflächenanteile im 100 m Radius um alle 26 flachen Brunnen (<30 m tief)	70
Abbildung 5-28: Zeitlicher Verlauf der Niederschläge (Wetterstation Srimangal) und Bewässerung sowie Arsen- und TOC-Gehalte in den 26 flachen Brunnen (<30 m tief)	71

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1: Übersicht über die vorliegenden Daten und durchgeführten Probenahmen nach Standort	4
Tabelle 2-2: Geschätzte Kenndaten der oberen Aquifere.....	12
Tabelle 4-1: Übersicht der zugrundeliegenden Projekte, Kooperationen und Finanzierungen.....	33
Tabelle 4-2: Genauigkeiten der vor-Ort-Parameter-Sonden laut Hersteller.....	43
Tabelle 4-3: Gemittelte Wiederfindung, Abweichung und Standardabweichung für alle durchgeführten Wasser-Messungen.....	44
Tabelle 4-4: Ionenbilanzfehler der saisonalen Daten.	44
Tabelle 4-5: Gemittelte Wiederfindung, Abweichung und Standardabweichung für alle durchgeführten Gas und Sediment-Messungen.	44
Tabelle 4-6: Bewertung der Klassifizierungsqualität anhand des Ground-Truthings	45
Tabelle 5-1: Korrelation zwischen der Flächennutzung im 100 m Radius um die flachen Brunnen (2,7 bis 30 m tief, n = 657 Brunnen) und den gemessenen Gehalten an Kationen im Brunnenwasser.....	66
Tabelle 5-2: Korrelation zwischen dem Median der prozentualen Flächennutzung im 500, 100 und 50 m Radius um die flachen Brunnen (23-30 m tief) und die im Brunnen gemessenen Stoffe.....	66
Tabelle 5-3: Korrelation zwischen der mehr als 6 Monate im Jahr 2019 festgestellte prozentuale Flächennutzung im 100 m Radius um die Brunnen (n = 48) an den Standorten Korgaon, Jagannathpur, Tajpur, Bera, Boalia, Dadpur und Chandpur sowie die im Brunnen gemessenen Stoffe.	69

Abkürzungsverzeichnis

Kürzel	Bedeutung	Zusätzliche Erläuterung
%	Prozent	
<	kleiner als	
>	größer als	
°C	grad Celsius	Einheit für Temperatur
µg/l	Mikrogramm pro Liter	
µm	Mikrometer	
µS/cm	Mikrosiemens pro Zentimeter	Einheit für Leitfähigkeit
³ H	Tritium	
AG	Arbeitsgruppe	
aoi	area of interest	Gebiet von Interesse
As	Arsen	
BBS	Bangladesh Bureau of Statistics	
BGS	British Geological Survey	
Bidest	doppelt destilliertes Wasser	
BIP	Bruttoinlandsprodukt	
BP	before present	vor Heute (vor 1950)
bzw.	beziehungsweise	
Ca	Calcium	
ca.	zirka	
CART	Classification and Regression Tree	
CH ₄	Methan	
CIA	Central Intelligence Agency	
Cl/Br	Chlorid-Bromid-Verhältnis	
cm	Zentimeter	
cm/km	Zentimeter pro Kilometer	
CO ₂	Kohlenstoffdioxid	
d.h.	das heißt	
dB	Dezibel	
DOC	Dissolved organic carbon	gelöster organischer Kohlenstoff
DPHE	Department for Public Health Engineering	
Eh	Redoxpotential	
EL	Elektrische Leitfähigkeit	
EPSG	EPSG Geodetic Parameter Dataset	
ESA	European Space Agency	
et al.	et alia	und Andere
FAARM	Food and Agricultural Approaches to Reducing Malnutrition	
FAO	Food and Agriculture Organization	
Fe	Eisen	
ft	Fuß	1 ft = 0,3048 m
g	Gramm	
GEE	Google Earth Engine	
GEOGR	Geographisches Institut Heidelberg	
GEOW	Heidelberger Institut für Geowissenschaften	
GHz	Gigahertz	
GIS	Geographic Information System	

GOK	Geländeoberkante	
GPS	Global Positioning System	
h	Stunde	
H	horizontal	
H ₂	Wasserstoff	
H ₂ O	Wasser	
HCE	Heidelberg Center for the Environment	
HCl	Salzsäure	
HCO ₃	Hydrogenkarbonat	
HG	Hydridgenerierung	
HIGH	Heidelberg Institute for Global Health	
HNO ₃	Salpetersäure	
IC	Ionenchromatographie	
ICP-OES	inductively coupled plasma optical emission spectroscopy	
IW	Interferometric Wide Swath Mode	
K	Kalium	
ka	Kilo anno	tausend Jahre
km	Kilometer	
km ²	Quadratkilometer	
KöWa	Königswasser	HCl + HNO ₃ im Verhältnis 3:1
l	Liter	
LGMP	Last Glacial Maximum Paleosol	
M	Molar	
m	Meter	
m u. GOK	Meter unter Geländeoberkante	
Mg	Magnesium	
mg/kg	Milligramm pro Kilogramm	
mg/l	Milligramm pro Liter	
min	Minuten	
Mio.	Millionen	
ml	Milliliter	
mm	Millimeter	
Mn	Mangan	
mol/l	Mol pro Liter	
Mrd.	Milliarden	
mV	Millivolt	Einheit für Redox
N	Norden	
Na	Natrium	
NH ₄	Ammonium	
NO	Nordosten	
NO ₃	Nitrat	
NW	Nordwesten	
O	Osten	
O ₂	Sauerstoff	
P	Phosphor	
p.a.	per analysis	
pH	Potential des Wasserstoffs	

PIK	Potsdamer Institut für Klimafolgenforschung	
ppm	parts per million	mg/l, mg/kg
rpm	Rotationen pro Minute	
S	Süden	
S.	Seite	
SAR	Synthetic Aperture Radar	
SHE	Standard Hydrogen Electrode	Standardwasserstoffelektrode
Si	Silizium	
SO	Südosten	
SO ₄	Sulfat	
SRTM	Shuttle Radar Topography Mission	
SW	Südwesten	
TC	Total carbon	Gesamter Kohlenstoff
Temp.	Temperatur	
TIC	Total inorganic carbon	gesamter anorganischer Kohlenstoff
TOC	Total organic carbon	gesamter organischer Kohlenstoff
US\$	US-Amerikanische Dollar	
V	vertikal	
V	Volt	
v.a.	vor allem	
v _f	Filtergeschwindigkeit	
W	Westen	
WGS	World Geodetic System	
WHO	World Health Organization	
XRF	X-ray fluorescence	Röntgenfluoreszenz
z.B.	zum Beispiel	

1 Einleitung und zentrale Fragestellung

Wir leben in der Epoche des Anthropozäns – jenem geologischen Zeitalter, in der der Mensch den nachweislich größten Einfluss auf seine Umwelt hat und dies mehr als jemals eine Art oder die Natur selbst zuvor in der Erdgeschichte (Crutzen, 2002; Waters *et al.*, 2016). Bisher werden die deutlichsten Veränderungen, die derzeit zur Abgrenzung des Anthropozäns vorgeschlagen werden, von stark industrialisierten Ländern verursacht (z.B. Atombomben, CO₂-Emissionen, Biodiversitätsrückgang, Wassernutzung). Nach Waters *et al.* (2016) werden allerdings anthropogene Einflüsse auch in den Ländern des globalen Südens durch drei Faktoren verstärkt: Beschleunigte **technologische Entwicklung**, schnelles **Bevölkerungswachstum** und verstärkter **Verbrauch von Ressourcen**. Bangladesch zählt noch zu den am wenigsten industrialisierten Ländern, jedoch ist eine zunehmende Tendenz feststellbar (Human Development Index (HDI): 0,478 (2000), 0,632 (2019) (United Nations Development Programme, 2020). Gleichzeitig ist es das Land mit der höchsten Bevölkerungsdichte weltweit (United Nations Department of Economic and Social Affairs Population Division, 2020).

Die weiterhin weltweit stark wachsende Bevölkerung erhöht den Druck auf die Ernährungssituation, die unter anderem durch eine fortschreitende Optimierung der Landwirtschaft gelöst wird (FAO, 2017b). Diese geht mit verstärktem Düngemiteleinsatz, ertragsreicheren Anbaufrüchten, sowie optimierten Anbaumethoden mit verstärkter Bewässerung und zunehmendem Maschineneinsatz einher. Die schrittweise Verbesserung der Gesamtlebensumstände führt auch zu einer Verbesserung der hygienischen Bedingungen sowie verstärkter Nutzung von Grundwasser als Trinkwasserquelle.

Um der Bevölkerung Bangladeschs mikrobiell unbedenkliches Trinkwasser zur Verfügung zu stellen, wurden in den 1970er Jahren verstärkt tiefere Haushaltsbrunnen (meistens etwa 30 m tief) gebaut. Erst später, zwischen 1978 und 1998 wurde erkannt, dass in Bangladesch sowie angrenzenden Regionen Indiens und Pakistans dieses Grundwasser erhöhte Gehalte an Arsen enthält (Chakraborti *et al.*, 2015; Hoque & Butler, 2015). Auch andere Regionen der Welt, wie Taiwan, Vietnam, Ungarn, Mexiko, Argentinien und Chile sind von hohen Arsengehalten im Grundwasser betroffen (Podgorski & Berg, 2020; Shaji *et al.*, 2020).

Arsen ist bereits in sehr geringen Mengen bei kontinuierlicher Aufnahme stark gesundheitsschädigend, weshalb die Weltgesundheitsorganisation (WHO) einen Grenzwert von 10 µg/l Arsen (As) im Trinkwasser empfiehlt (Argos *et al.*, 2010; World Health Organization, 2017). Arsen ist geschmacks- und geruchslos und wird deshalb unbewusst aufgenommen, insbesondere wenn den Menschen die Belastung ihres Trinkwassers nicht bekannt ist. Aufgrund der chemischen Ähnlichkeit mit dem lebensnotwendigen Zellbestandteil Phosphor, kann Arsen im Körper leicht aufgenommen werden und eine Arsenvergiftung (Arsenikose) hat vielfältige, oft schleichend auftretende Auswirkungen. Die Symptome reichen von Herz-Kreislaufstörungen, Atembeschwerden, neurologischen Defekten, Entwicklungsstörungen bis hin zu einem erhöhten Krebsrisiko und generell erhöhter Anfälligkeit für Krankheiten (Flanagan *et al.*, 2012; Naujokas *et al.*, 2013; Chakraborti *et al.*, 2015).

Häufig diskutiert wird in diesem Zusammenhang auch, welchen Einfluss der Mensch auf den Prozess der Arsenmobilität hat. **Primär** ist anzunehmen, dass die **sedimentäre Bindungsform** für die Arsenbelastung im Grundwasser von Bedeutung ist. Als **Ursache für die Mobilität** des Halbmetalls werden verschiedene Prozesse vermutet – in Bangladesch in erster Linie die Entstehung anoxischer Bedingungen im Aquifer. Insbesondere unter Eisenreduktion wird Arsen mobil, wenn Eisenoxide und -

1 Einleitung und zentrale Fragestellung

hydroxide aufgelöst werden und das daran gebundene Arsen freigesetzt wird (BGS & DPHE, 2001; Chakraborty *et al.*, 2015; Edmunds *et al.*, 2015).

Mikrobieller Abbau von organischem Material führt zum Verbrauch von zunächst Sauerstoff und Nitrat (NO_3), und anschließend Metall-Sauerstoff-Verbindungen wie Mangan- und Eisenoxiden sowie -hydroxiden. Für diese schrittweise Reduktion von Sauerstoffträgern sind die entsprechende Mikrobiologie, Wasser und eine Kohlenstoffquelle erforderlich. In der Regel laufen diese Prozesse natürlicher ab, können aber anthropogen verursacht und/oder verstärkt werden. Eine Vielzahl an Arbeiten hat sich seit der Feststellung des Arsenproblems mit dieser Thematik auseinandergesetzt und den Einfluss von anthropogenem (z.B. durch Latrinen, Reisfelder, Tümpel) und natürlichen Faktoren (z.B. sedimentärer organischer Kohlenstoff, hydrogeologischer Kontext) auf die Arsenmobilität untersucht (zum Kenntnisstand siehe z.B. Reviews von Chakraborty *et al.*, 2015; Edmunds *et al.*, 2015). Wenig Berücksichtigung bei der Bearbeitung dieser Fragestellungen findet bisher der räumliche Kontext, weshalb insbesondere großflächige Faktoren, wie Überflutungsart und -dauer nur wenig studiert sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurden deshalb an drei Standorten in Bangladesch Grundwasserproben, Proben des im Wasser gelösten Gases sowie Sedimentproben untersucht und vor dem Hintergrund des räumlichen Kontextes ausgewertet (siehe Abbildung 1-1). Der Fokus der Arbeiten liegt dabei auf dem Einfluss von Feucht- und Wasserflächen. Feucht- und Nassgebiete sind in monsun geprägten Regionen mit großflächigem Reisanbau häufig und tragen durch den Luftabschluss und Zuführung von organischem Material maßgeblich zur Entstehung von anoxischen Bedingungen im Untergrund bei. Ebenfalls berücksichtigt wurden dabei saisonale Schwankungen der Oberflächenwasserbedeckung am Standort Nabiganj und dessen Einfluss auf die Arsengehalte sowie geochemischen Bedingungen in einer Auswahl von 70 regelmäßig beprobten Brunnen.

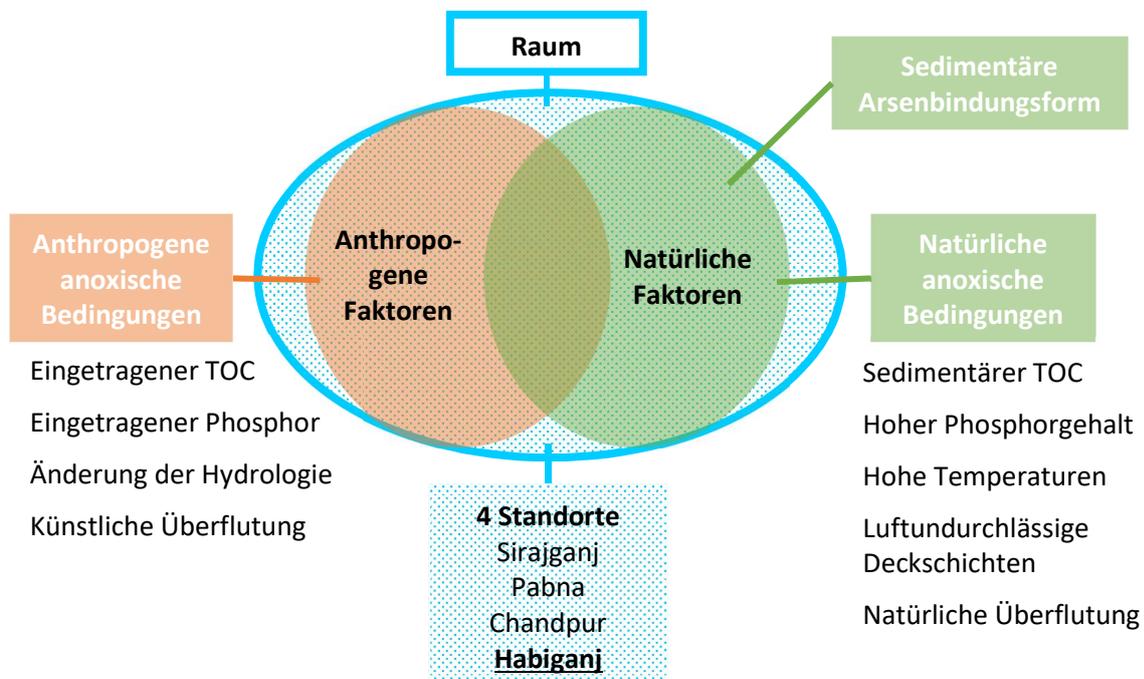


Abbildung 1-1: Schematische Darstellung der Fragestellung.

Übergeordnet soll dieser Dissertation folgende Forschungsfrage als Leitlinie dienen:

Welchen Einfluss hat die Landbedeckung/Landnutzung auf die geochemischen Bedingungen im Untergrund und damit die Arsenmobilität?

Für ihre Beantwortung lassen sich acht Fragenkomplexe identifizieren:

- Welche geochemischen Bedingungen liegen sedimentär und im Grundwasser an den Standorten vor?
- Stammt der gesamte organische Kohlenstoff (TOC) im Grundwasser aus dem Sediment oder wird er von der Oberfläche eingetragen? Sofern TOC von der Oberfläche eingetragen wird, stellt sich die Frage, ob dieser für die Prozesse der Arsenmobilität eine Relevanz besitzt
- Kann die Auswirkung von Latrinen auf die Arsenmobilität festgestellt werden?
- Besteht ein Zusammenhang zwischen Überflutung(sphasen) und arsenmobilisierenden Bedingungen?
- Ist es möglich, anhand des Zeitpunktes zwischen natürlicher Überflutung und anthropogener Flutung (Nassreisenaubau, Fischzucht) zu differenzieren?
- Gibt es eine zeitliche Variabilität der Grundwasserzusammensetzung bzw. der geochemischen Bedingungen und äußern sich diese in der Arsenmobilität?
- Können über die Nutzung von Satellitendaten (Sentinel 1 Radardaten) Rückschlüsse auf die Arsengehalte in den Brunnen gezogen werden?

Zu Klärung dieser Fragen werden zunächst die vorliegenden klimatischen, geologischen, hydrologischen und geochemischen Bedingungen an den drei Standorten vorgestellt (Kapitel 2). Anschließend wird der aktuelle Forschungsstand dargelegt und die zentralen Prozesse erläutert, die der Arsenmobilität und den erhöhten Arsengehalten im Grundwasser zugrunde liegen (Kapitel 3). Kapitel 4 stellt die angewendeten Methoden der Sediment- und Grundwasserprobenahme sowie der Fernerkundung dar. Anschließend werden die gewonnenen Ergebnisse grafisch dargestellt (Kapitel 5). In der Diskussion und der anschließenden Schlussfolgerung (Kapitel 6 und 7) sollen Antworten auf die oben gestellten Fragen auf Grundlage der Ergebnisse gefunden werden.

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

Die Bearbeitung der Fragestellung erfolgte über mehrere Probenahmekampagnen (Tabelle 2-1). An drei Standorten im Nordosten (Habiganj), Südosten (Chandpur) und Nordwesten (Sirajganj bzw. Pabna) Bangladeschs wurden Detailuntersuchungen zu Grundwasser, im Grundwasser gelösten Gasen sowie Sedimentproben durchgeführt. Großflächigere und zeitlich aufgelöste Probenahmen erfolgten am Standort Habiganj. Die Arbeiten in Habiganj entstanden in Kooperation mit verschiedenen Instituten: Dem Heidelberger Institut für Global Health (HIGH) und dem Heidelberger Institut für Geowissenschaften (GEOW) sowie dem Potsdamer Institut für Klimafolgenforschung (PIK).

Die Arbeiten in den nordwestlichen und südöstlichen Regionen wurden in Kooperation des Heidelberger Institut für Geowissenschaften (GEOW) mit den Heidelberger Verein AGAPE e.V. durchgeführt und von der örtlichen Trägerschaft, der AGAPE Bangladesh begleitet und unterstützt. Für diese Standorte bestand schon in einem vorangegangenen Projekt eine Kooperation zwischen dem GEOW und dem Geographischen Institut Heidelberg (GEOGR).

Die Arbeiten in Habiganj bauen auf eine langjährige Kooperation des GEOW mit dem Heidelberger Institut für Global Health (HIGH) bzw. dem Potsdamer Institut für Klimafolgenforschung (PIK) auf. Für den Standort Habiganj lagen Daten aus einem groß angelegten Forschungsprojekt des HIGH bzw. PIK, der Food and Agricultural Approaches to Reducing Malnutrition (FAARM) Studie (Wendt *et al.*, 2019) vor, die dankenswerterweise für diese Arbeit verwendet werden durften. Diese umfasst Daten zum sozioökonomischen Stand der Haushalte wie Haushaltsgröße, Einkommen, Familienstatus und Religionszugehörigkeit. Aufbauend auf diese FAARM-Studie wurde, finanziert durch den Heidelberg Center for the Environment (HCE), eine Kooperationsstudie zwischen dem HIGH und dem GEOW und dem GEOGR durchgeführt. Sie umfasste die Untersuchung der Arsenbelastungen im Grundwasser und der geochemischen Bedingungen am Standort, mit dem Ziel, einen Einfluss von häuslichen Abwässern (z.B. aus Latrinen) auf die Freisetzung von Arsen zu identifizieren. Hierfür wurden umfangreiche Grundwasseruntersuchungen durchgeführt und Daten zu Position der Latrinen und Brunnen, Tiefe, Alter und Nutzungsintensität sowie weitere Parameter erhoben (siehe Kapitel 4).

Tabelle 2-1: Übersicht über die vorliegenden Daten und durchgeführten Probenahmen nach Standort, fett hervorgehoben sind alle Probenahmen, die von der Autorin persönlich begleitet wurden.

Distrikt (Dorf)	Probenahme	Probenanzahl	Zeitpunkt
Sirajganj (Boalia, Dadpur)	Grundwasser (Geochemie)	18	2020
Pabna (Bera)	gelöste Gase	18	2020
Chandpur	Grundwasser (Geochemie)	11	2020
	gelöste Gase	11	2020
Habiganj (Korgaon, Jagannathpur, Tajpur)	Grundwasser (Geochemie)	20	2019
	gelöste Gase	20	2019
Habiganj (diverse Dörfer)	Grundwasser (Hauptkationen) Sozioökonomische Parameter	1441	2019
Habiganj (diverse Dörfer)	Grundwasser (Geochemie) Sozioökonomische Parameter	6 x ca. 67	2018-2019
Pabna (Bera), Habiganj (Korgaon)	Sediment	2 x 16	2020

2.1 Lage der Untersuchungsgebiete

Bangladesch liegt in Südasien auf dem indischen Subkontinent und erstreckt sich von 20°34' bis 26°38' in nördlicher Breite und von 88°01' bis 92°41' in östlicher Länge über eine Gesamtfläche von 147 570 km². Im Westen, Norden und Osten wird Bangladesch von Indien umrahmt, im Südosten grenzt es an Myanmar. Im Süden verläuft die Grenze an der Küste zum Golf von Bengalen (Alam *et al.*, 2003; Bangladesh Bureau of Statistics (BBS), 2019).

In Bangladesch gibt es acht administrative Einheiten, die sogenannten Divisionen. Diese sind wiederum in 64 Distrikte unterteilt, die auch Zilas genannt werden (Bangladesh Bureau of Statistics (BBS), 2020). Die Untersuchungsgebiete liegen in den Distrikten Sirajganj und Pabna der Division Rajshahi im Nordwesten Bangladeschs, dem Distrikt Habiganj der Division Sylhet im Nordosten sowie dem Distrikt Chandpur der Division Chittagong im Südosten des Landes. Die genaue Verortung der Untersuchungsgebiete ist in Abbildung 2-1 dargestellt.

Die Auswahl der Untersuchungsgebiete basierte auf der landesweiten Probenahmen des British Geological Surveys (2001). Demzufolge liegen die drei Gebiete in Regionen mit geringer (Sirajganj/Pabna), mittlerer (Habiganj) und hoher (Chandpur) Arsenbelastung des Grundwassers (siehe Anlage 1). Bei der Bearbeitung und Auswertung berücksichtigt wurden die Unterschiede der drei Gebiete hinsichtlich klimatischer, hydrologischer, geologischer und geochemischer Aspekte sowie sich daraus ergebender Landnutzung. Aufgrund der räumlichen Nähe werden die Standorte Boalia, Dadpur und Bera, in den Distrikten Sirajganj und Pabna, im Folgenden zusammen genannt (Sirajganj/Pabna).

Die drei Standorte weisen starke Unterschiede hinsichtlich der Niederschläge sowie regelmäßig vorkommenden Überflutungen auf. Auch die landwirtschaftliche Nutzung in Bezug auf die angebauten Feldfrüchte und Bewässerungspraktiken ist von den regionalen Niederschlägen geprägt. Außerdem liegen die Standorte an verschiedenen Flussläufen. An allen Standorten ist die Sedimentzusammensetzung dahingehend vergleichbar, dass fein- bis mittelsandige oberflächennahe Aquiferstrukturen von mächtigen, bindigen Deckschichten überlagert werden.

2.2 Geologische Rahmenbedingungen

Die Landesfläche Bangladeschs erstreckt sich zu großen Teilen über das Bengalische Becken, einem Vorlandbecken des Himalayas, das auf einem Kreuzungspunkt der Indischen, Eurasischen und Burmesischen Platte liegt. Die Bildung des Beckens begann im Rahmen der Alpidischen Orogenese im Miozän vor ca. 40-50 Mio. Jahren und dauert bis heute an. Die Beckenstruktur setzt sich aus mehreren, tektonisch aktiven Unterbeckenstrukturen zusammen und besteht in der gegenwärtigen Form seit etwa 10,5 Mio. Jahren (Mukherjee *et al.*, 2009).

Alle drei Untersuchungsgebiete liegen auf tektonischen Grenzen: Sirajganj/Pabna im Bereich der Calcutta-Mymansingh-Flexur, Habiganj auf der Grenze des Sylhet-Beckens zur Indo-Burman Gebirgskette und Chandpur im Grenzbereich zwischen Faridpur-Senke und Barisal-Höhe. Die Stratigraphie des Beckens ist geprägt durch tektonische Aktivität, das Ganges-Brahmaputra-Meghna Flusssystem sowie eustatische Meeresspiegelschwankungen im Zuge der Glazialen-Interglazialen Zyklen. Bis zu 16 km mächtige Sedimentablagerungen überlagern das Gondwanische Fundament (Persits *et al.*, 2001; Mukherjee *et al.*, 2009).

Nach der geologischen Karte (Persits *et al.*, 2001) liegen die Untersuchungsgebiete Sirajganj/Pabna und Chandpur in Ablagerungsbereichen von überwiegend alluvialem Schluff und stellenweise alluvialem

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

Schluff und Ton. Am Standort Habiganj dominierten Marsch, Ton und Torf. Auch am Standort Sirajganj/Pabna sind vereinzelte Bereiche von Marsch, Ton und Torf anzunehmen (siehe Anlage 2).

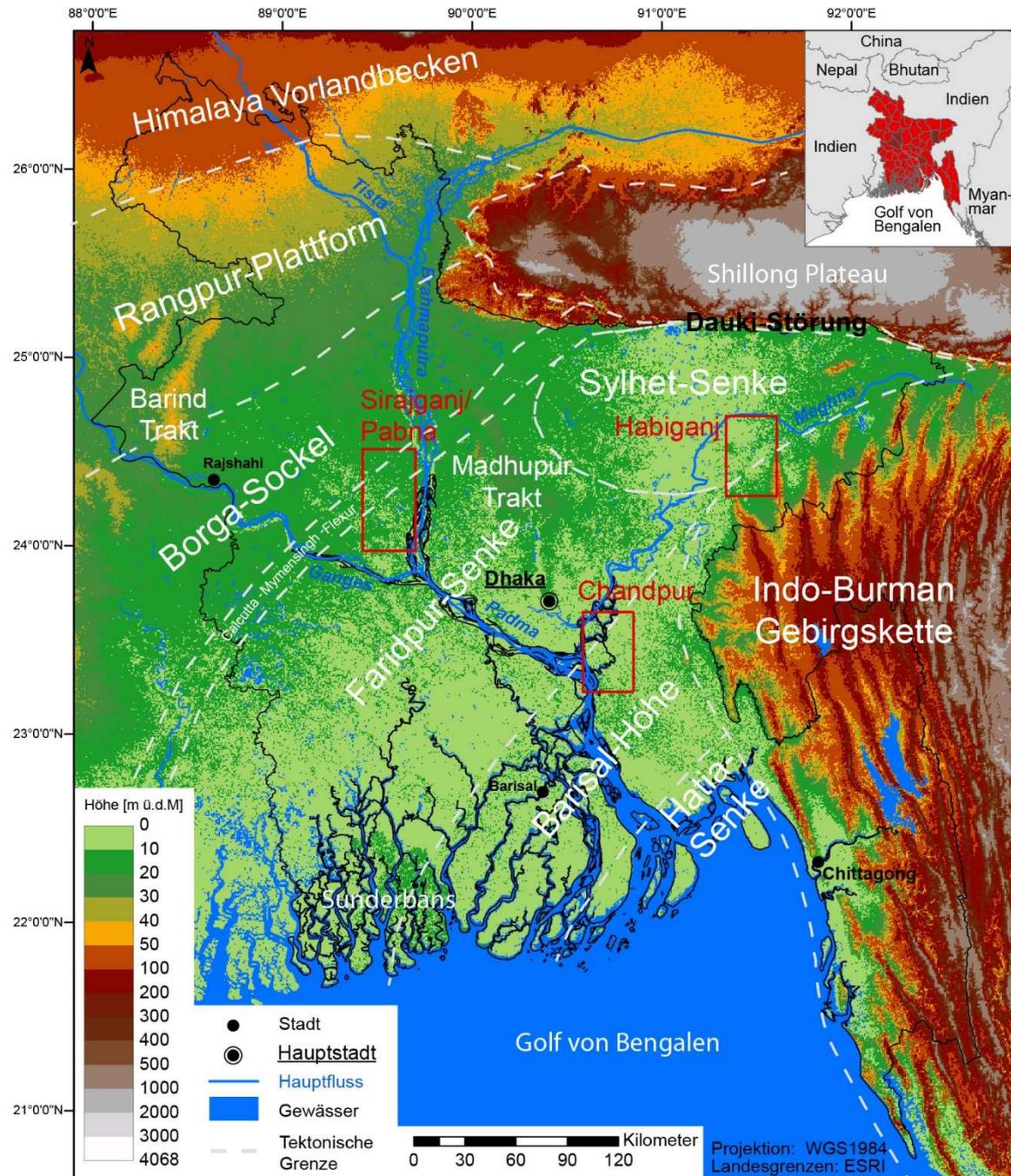


Abbildung 2-1: Lage Bangladeschs (in der Übersichtskarte hellrot) sowie der Distrikte (in der Übersichtskarte dunkelrot). Verortung der Untersuchungsgebiete in den Distrikten Sirajganj, Pabna, Habiganj und Chandpur (rote Kästen), Flüsse, tektonischen Grenzen und geologischen Formationen (weiße Beschriftungen). Datengrundlage Persits *et al.* (2001) und Geländehöhen (SRTM, 2000).

Die Sedimente des Bengalischen Beckens stammen aus dem Himalaya, wo sie durch glaziale und periglaziale Prozesse erodiert wurden. Aufgrund der relativ kurzen Transportdistanz über das Flusssystem des Ganges, Brahmaputras und Meghnas sind die meisten abgelagerten Sedimente noch relativ jung und nur moderat verwittert. Sie resultieren aus ultramafischen Gesteinen des Nordhimalayas sowie granitischen und hochgradig metamorphen Gesteinen des zentralen und südlichen Himalayas (BGS & DPHE, 2001).

Die Hauptbestandteile der abgelagerten Sedimente sind Quarz, Biotit und Feldspat (BGS & DPHE, 2001). Davon können vor allem Pyrit, Biotit, Magnetit und Apatit relevante Mengen an Arsen enthalten. Eine besondere Rolle bei der Arsenmobilität kommt den Eisenoxiden und Eisenhydroxiden (Hämatit, Goethit, amorphe Eisenoxide) zu, die sekundär aus diesen teils sehr eisenhaltigen Mineralen (v.a. Biotit und Magnetit) entstehen. Sie können große Mengen an Arsen sowohl oberflächlich als auch in der Mineralstruktur binden. Diese Eisenminerale sind unter anoxischen Bedingungen nicht stabil und geben dann das Arsen wieder in das Wasser ab (Smedley & Kinniburgh, 2002; Seddique *et al.*, 2008; Mukherjee *et al.*, 2009; Uddin *et al.*, 2011). Arsen kann auch an Tonmineralen, Manganoxiden sowie organischem Material und Calciumverbindungen adsorbieren (Akai *et al.*, 2004; Sørensen *et al.*, 2008).

Der gemittelte Arsengehalt der Erdkruste liegt bei etwa 1,8 ppm. Entsprechend liegt die durchschnittliche Arsenkonzentration im Boden zwischen 1 und 2 ppm (Hilberg, 2015, S. 19). Im Oberboden, bzw. dem sogenannten A-Horizont der Bodenabfolge, meist den oberen 7 cm des Bodens, können Hintergrundgehalte zwischen 4 und 22 ppm vorkommen (Blume *et al.*, 2010, S.462). In Bangladesch variieren die sedimentären Arsengehalte in Abhängigkeit von der Korngröße. Tareq *et al.* (2013) stellen fest, dass in Bangladesch die durchschnittliche Arsenkonzentration im Sediment höher ist als der durchschnittliche Arsengehalt der Erdkruste. Nach Uddin *et al.* (2011) treten in den obersten 10 m des Sediments die höchsten Arsengehalte von >4 ppm (= 4 mg/kg) auf. In stark arsenbelasteten Regionen des Landes (SO Bangladesch) wurden auch höhere Arsengehalte von im Durchschnitt 10 ppm, und bis zu 26 ppm in Tonlagen festgestellt (Bibi *et al.*, 2006). Sandige Lagen, d.h. die gesättigten Bereiche der Sedimentfolge weisen zwischen 1,0 und 6,2 ppm Arsen auf, während feinkörnigere Lagen mit höherem Schluff und Tonanteil bis zu 100 ppm enthalten können (BGS & DPHE., 2001, S.6; Pal *et al.*, 2009; Chakraborty *et al.*, 2015).

Durch den Fokus auf Prozesse, die durch Oberflächeneinfluss gesteuert werden sowie die hohe Arsenbelastung in den flacheren Aquiferbereichen, werden im Rahmen dieser Arbeit fast ausschließlich Sedimente bis 50 m Tiefe berücksichtigt, die den obersten flachen Aquifer bilden. Der tiefere Aquifer ist in zahlreichen Arbeiten umfassend beschrieben (DPHE, 2006; Burgess *et al.*, 2010; Halim *et al.*, 2010; Shamsudduha *et al.*, 2018). Eine generelle Differenzierung zwischen flachem und tiefem Aquifer ist nur begrenzt möglich, da dieser regional unterschiedlich ausgeprägt sein kann. Üblicherweise wird im betrachteten Raum erst von Tiefbrunnen gesprochen, wenn diese eine Tiefe von >150 m aufweisen.

2.3 Hydrologischer und hydrogeologischer Kontext

Die Landesfläche Bangladeschs liegt im Ganges-Brahmaputra-Meghna-Delta. Die drei Flüsse prägen die Geologie und Hydrogeologie Bangladeschs (Edmunds *et al.*, 2015). Das Flusssystem transportiert Sedimentmengen von rund 1 Mrd. Tonnen pro Jahr, wovon rund ein Drittel in den Delta- und Auebereichen abgelagert wird (Goodbred & Kuehl, 1999). Ein Großteil der Sedimentfracht sowie des Abflusses finden während des Monsuns statt, mit den höchsten Transport- und Abflussraten im August (BGS & DPHE, 2001).

Die Lage des Landes in einer Beckenstruktur sowie die primär durch Sedimentation geprägte Geologie, haben eine sehr geringe Topographie zur Folge. Das Gelände fällt über die gesamte Längserstreckung mit einem Gradienten von 8 cm/km (bzw. $i = 0,00008$) sehr flach von Norden nach Süden ab (eigene Berechnung aus SRTM-Datensatz).

Die Kollision der Indischen mit der Eurasischen und der Burmesischen Kontinentalplatte im Eozän und Miozän führte zur Entstehung der Beckenstruktur. Hierbei wurde der Norden der Indischen Platte

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

subduziert, was zur Auffaltung des Himalayas führte. Gleichzeitig senkte sich der südliche Plattenrand zum Vorlandbecken ab (BGS & DPHE, 2001; Ravenscroft *et al.*, 2005; Mukherjee *et al.*, 2009).

Durch die Entstehungsgeschichte des Beckens konnte sich eine sehr komplexe Aquiferstruktur mit hoher lokaler Variabilität herausbilden. Im Bereich der alluvialen Sedimente, die mit Ausnahme der pleistozänen Madhupur und Barind-Trakte nahezu im gesamten Becken auftreten (siehe Abbildung 2-1), wird die oberste Sedimentschicht von einem Aquitard aus glimmerreichen Schluffen und Feinsanden gebildet, die eine Mächtigkeit von 10-20 m erreichen (BGS & DPHE, 2001, S. 57). Tendenziell werden zwei Haupt-Grundwasserleiter angenommen, die durch eine mächtigere Tonschicht voneinander getrennt sind.

Der **oberste, flache Aquifer** (Abbildung 2-4, hellgrün) besteht aus alluvial abgelagerten Sedimenten, die während des Quartärs (letzten 6ka) sedimentiert wurden (McArthur *et al.*, 2016). Er ist etwa 25 bis 35 m mächtig und besteht aus glimmerreichem Fein- bis Mittelsand. Die Arsenbelastung dieses Aquifers ist meistens hoch (BGS & DPHE, 2001; McArthur *et al.*, 2016).

Die Ablagerungsbedingungen dieser quartären Sedimente wurden durch globale Klimaschwankungen und andauernde tektonische Vorgänge beeinflusst. Die Abflussraten der Flüsse, und damit die Ablagerung an Sedimentfracht, sind an die monsunale Zirkulation sowie den Meeresspiegel gebunden. Extrem niedrige Meerwasserspiegelstände während des letzten glazialen Maximums (vor 18ka BP 130m unter heutigem Niveau) führten dazu, dass sich die Flüsse tief in die zuvor abgelagerten, pleistozänen Sedimente eintieften und sie erodierten. Dabei blieben Flussterrassen zurück, die häufig mit einem undurchlässigen Paleosol (auch als Last Glacial Maximum Paleosol, LGMP, bezeichnet) bedeckt sind (BGS & DPHE, 2001; Mukherjee *et al.*, 2009; McArthur *et al.*, 2016).

In Transgressionszyklen (Meeresspiegelanstiege) während des Holozäns (12,8 und 9,7ka BP) führten verstärkte Abfluss- und Sedimentationsraten zu einer Ablagerung von Sedimentfracht. Dabei wurden die während der Regression entstandenen Kanäle wieder verfüllt. Während des Quartärs führten etwa zwanzig solcher eustatischer Schwankungen zur Bildung eines äußerst komplexen Aquifersystems (BGS & DPHE, 2001; Mukherjee *et al.*, 2009; McArthur *et al.*, 2016).

An den oberen, flachen Aquifer schließt sich unmittelbar, stellenweise durch eine graue oder rötliche Tonschicht unterbrochen, der untere flache Aquifer an (Abbildung 2-4, orange). Dieser setzt sich aus etwa 30m mächtigen Schluffen und Feinsanden zusammen und darunter liegenden 50 bis 65 m aus Mittel- bis Grobsand, Schotter und Kies (BGS & DPHE, 2001, S. 57).

Räumlicher und zeitlicher Einfluss auf die Arsenmobilität im Grundwasser in Bangladesch

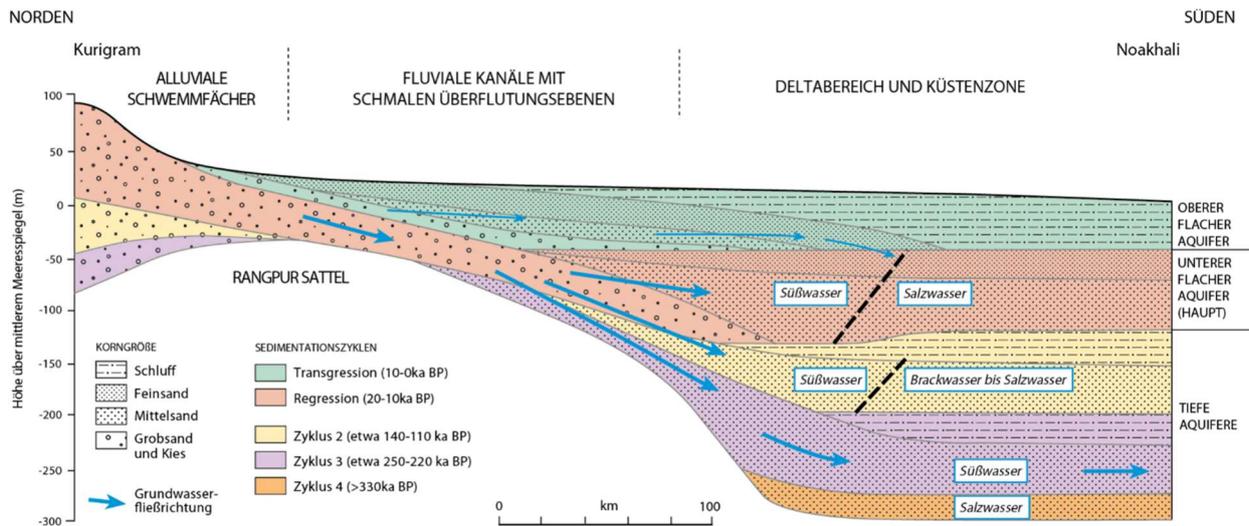
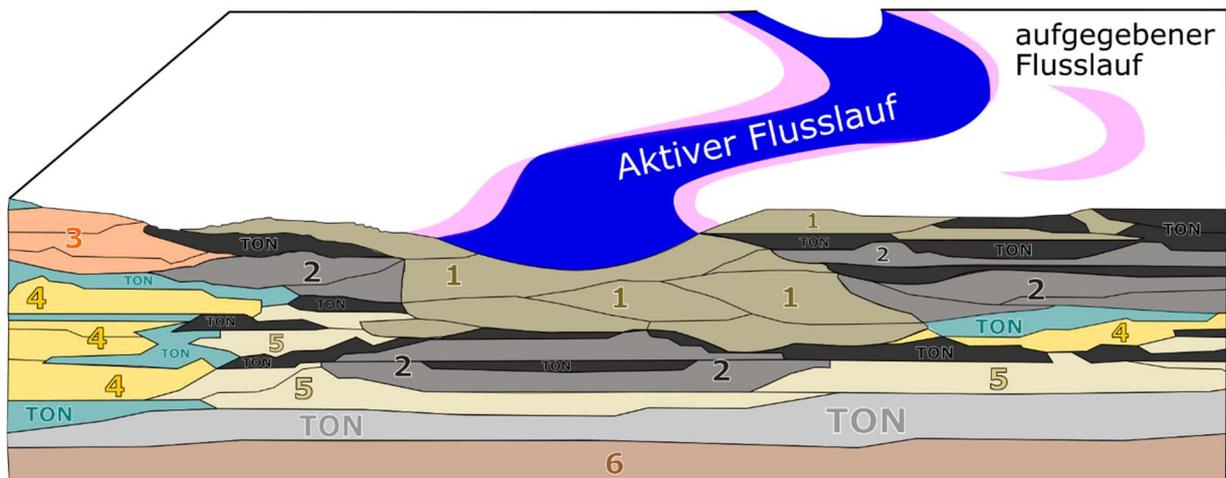


Abbildung 2-2: Schematischer geologischer Schnitt durch die alluvialen quartären Sedimente des Bengalischen Beckens von Norden nach Süden mit Darstellung der Sedimentationszyklen und den damit zusammenhängenden Korngrößen und Aquiferen (verändert nach (BGS & DPHE, 2001)).

Tatsächlich ist die Aquiferstruktur Bangladeschs wesentlich komplizierter, aufgrund der Vielzahl an stark mäandrierenden Flussläufen, die während der Trans- und Regressionen entweder Sediment abgelagerten oder auswuschen. Pal *et al.* (2009) beschreiben sechs Haupt-Aquifertypen in Westbengalen (Abbildung 2-3). Dieser Klassifizierung zufolge treten stark arsenbelastete Aquifere (bis zu 800 µg/l As, Aquifertyp 2, Abbildung 2-3) unter dunkelgrauen, weichen Tonlagen auf. Aquifere unter dichtem grau-bläulichem Ton weisen sie hingegen als sehr gering arsenbelastet und mikrobiell unbedenklich aus (Aquifertyp 4, Abbildung 2-3). Unter hellgrauen, weichen Tonlagen finden sich hingegen Aquifere mit mittlerer Arsenbelastung (Aquifertyp 5). Ebenfalls arsenfrei sind die tiefen Aquifere (Aquifertyp 6), deren Erschließung aufgrund ihrer Tiefe für die meisten Familien nicht erschwinglich sind. Flache Aquifere (Aquifertyp 1 und 3) sind aufgrund ihrer mikrobiellen Belastung ungeeignet für die Nutzung, auch wenn sie arsenfrei sind.

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete



	Charakteristik	As [$\mu\text{g/l}$]
1	Flach, ungespannt, Eisen- und manganreich, mikrobiell belastet	Gering
2	Flach bis mittelflach, teilgespannt, löchrig-gespannt, grauer Sand, überdeckt mit dunkelgrauem, weichem Ton	≤ 800
3	Flach, ungespannt, orangener Sand, Eisen- und manganreich, mikrobiell belastet	Gering
4	Mittelflach, gespannt, hoher Feinanteil, orangener Sand, überdeckt mit dichtem, braunem bis bläulichem Ton	Sehr gering
5	Mitteltief bis tief, teilgespannt, löchrig-gespannt, grauer, teilweise weißlicher oder rötlicher Sand, überdeckt mit hellgrauem, weichem Ton	10-150
6	Tief, gespannt, braun-grau-weißlicher Sand, überdeckt mit grauem, hartem Ton	Sehr gering

Abbildung 2-3: Aquifertypen nach Pal & Mukherjee (2009).

Nach den geologischen Schnitten von (Mukherjee *et al.*, 2009) liegt das Untersuchungsgebiet Sirajganj/Pabna im Bereich eines von Rinnensanden dominierten Aquifers, der von einer dünnen Lage aus modernem Auenschluff und -ton überlagert wird (Abbildung 2-4). Am Standort Chandpur werden mächtigere Auenschluff/-ton-Auflagen angenommen. Außerdem wird an diesem Standort die Rinnensandfüllung lokal von Paläoküsten bzw. Auenschluff/-ton unterbrochen. In der Region Habiganj treten mittlere Mächtigkeiten der modernen Auenschluff und -ton-Auflage auf, diese werden allerdings von mächtigen Paläoküsten bzw. Auenschluff/-ton-Lagen unterlagert. Erst im unteren Drittel des Aquifers treten Rinnensande und undifferenziertes Sedimentmaterial auf.

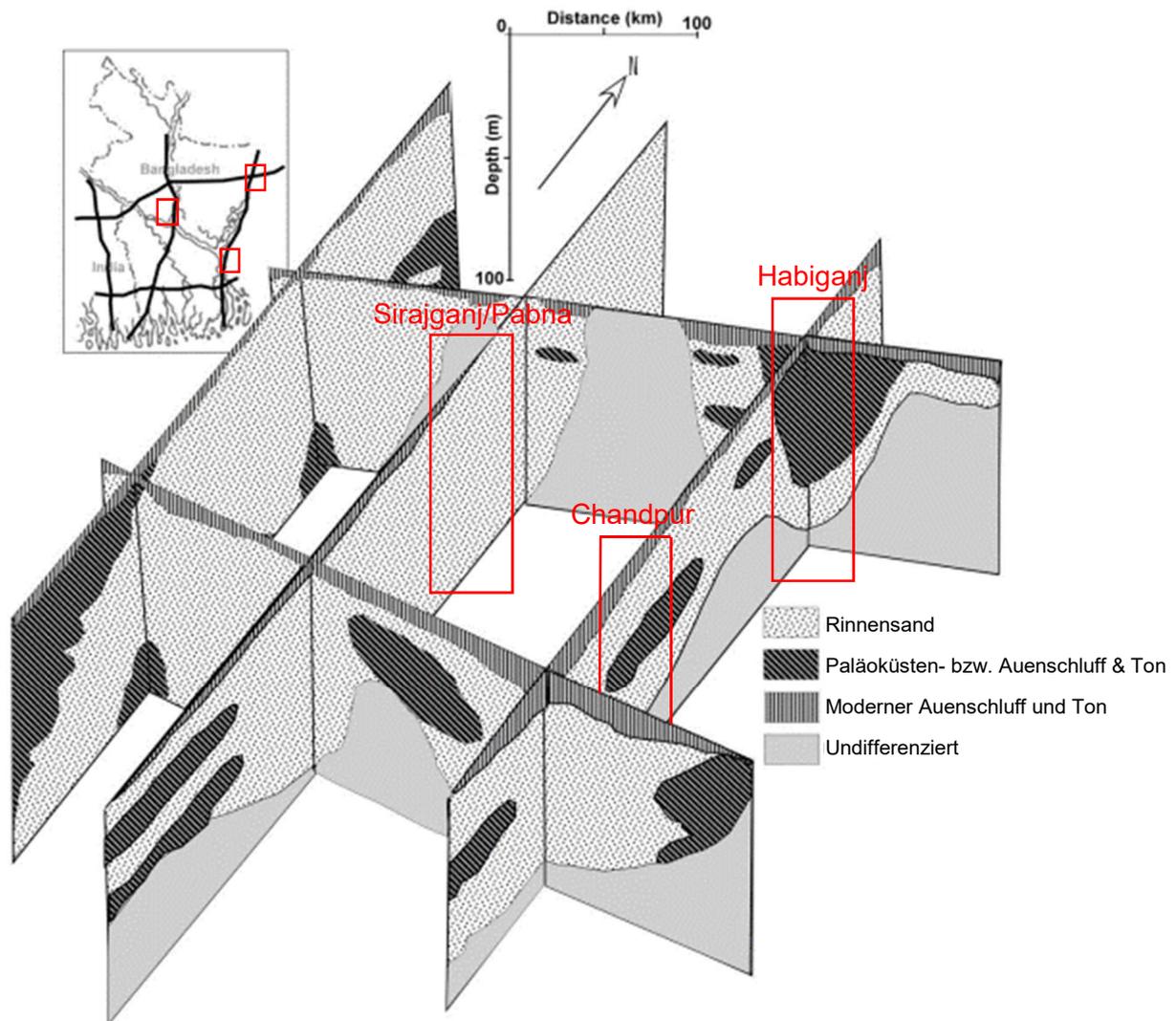


Abbildung 2-4: Geologische Schnitte durch das Bengalische Becken, rot eingekreist die Verortung der Standorte (Mukherjee *et al.*, 2009).

Im Folgenden wird insbesondere auf die Charakterisierung des **oberen und unteren flachen Grundwasserleiters** eingegangen, da in diesem die höchsten Arsengehalte festgestellt werden und dieser von den meisten Haushaltsbrunnen erschlossen wird.

Die Grundwasserfließrichtung ist theoretisch entsprechend des Gradienten von Norden nach Süden. Allerdings geht die flache Topographie auch mit einem extrem niedrigen hydraulischen Gradienten von $i = 0,0001$ sowie, unter Berücksichtigung des Durchlässigkeitsbeiwertes für Sand, einer Filtergeschwindigkeit nach Darcy (v_f) von 2 m/Jahr einher (Ravenscroft *et al.*, 2005). Die genauen Kenndaten der unterschiedlichen Aquiferbereiche können Tabelle 2-2 entnommen werden.

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

Tabelle 2-2: Geschätzte Kenndaten der oberen Aquifere (siehe Abbildung 2-2) im Bereich des Brahmaputra zwischen Faridpur und Dhamrai unter rezenten Bedingungen des hydrologischen Gradienten (verändert nach BGS & DPHE (2001), Tabelle 4.13).

Aquifer	Oberer flacher	Oberer Teil des unteren flachen	Unterer flacher
Geschätztes Alter (ka BP)	5 bis 8	~ 10	15 bis 18
Gradient (m/km)	0,08	0,08	0,08
Breite (km)	45	45	45
Transmissivität (m ² /Tag)	950	1325	2325
Durchfluss (m ³ /Tag)	3420	4770	8370
Mächtigkeit (m)	45	55	40
Versickerungsrate (m/Tag)	1,69x10 ⁻³	1,93x10 ⁻³	4,65x10 ⁻³
Porosität (-)	0,05	0,2	0,3
Darcy - Filtergeschwindigkeit (v _f) (m/Jahr)	12,34	3,52	5,66
Darcy - Filtergeschwindigkeit (v _f) (m/Tag)	3,38 x 10 ⁻²	9,64 x 10 ⁻³	1,55 x 10 ⁻²
Darcy - Filtergeschwindigkeit (v _f) (m/s)	3,91 x 10 ⁻⁷	1,12 x 10 ⁻⁷	1,79 x 10 ⁻⁷
Volumen des Grundwassers (m ³)	2,531 x 10 ¹¹	1,238 x 10 ¹¹	1,350 x 10 ¹¹

Durch die geringe Fließgeschwindigkeit können lokale Veränderungen wie verstärkte Grundwasserentnahmen durch Bewässerungspumpen sowie monsunale bedingte Überflutungen zu einer Veränderung der Grundwasserfließrichtung führen (Aziz Hasan *et al.*, 2009). Diese langsame Grundwasserfließgeschwindigkeit wird ebenfalls als Ursache für die hohen Arsengehalte betrachtet, da sich ohne Abtransport die gelösten Stoffe akkumulieren können (Radloff *et al.*, 2017).

Die Grundwasserspiegelstände des flachen Aquifers liegen zwischen 7,5 und <5 m u. GOK (BGS & DPHE, 2001), können aber vertikalen Schwankungen von 2 bis 8 m unterliegen (Shamsudduha *et al.*, 2009). Grundwasserspiegelstände sind von lokalen geologischen Gegebenheiten abhängig und werden von Faktoren wie Niederschlag, Abfluss, Grundwasserneubildung und Grundwasserentnahme beeinflusst (BGS & DPHE, 2001). In den Untersuchungsgebieten mit Sedimentprobenahme (Bera und Korgaon) wurden bei den Bohrungen im Februar 2020 Wasserstände von 5,84 m (Bera) und 2,66 m (Korgaon) unter GOK gemessen (Steinemann, 2020).

Die Grundwasserneubildung erfolgt in den holozänen Bereichen des Beckens vor allem über Niederschlagswasser. Nach Harvey *et al.* (2002) macht Niederschlagswasser 60% der Grundwasserneubildung aus. Die übrigen 40% des Grundwassers infiltrieren aus meist organikreichen Oberflächengewässern, vor allem während der Trockenzeit (Harvey *et al.*, 2002). Die Plio- und Pleistozänen Ablagerungen (Barind und Madhupur-Trakt) gewinnen Grundwasser über indirekten Zufluss über Flüsse (Majumder *et al.*, 2011; Nowreen *et al.*, 2020). Vollständig gefüllt sind die Aquifere zwischen August und Oktober. Ab diesem Zeitpunkt kann kein weiteres Niederschlagswasser mehr aufgenommen werden und staut sich auf oder fließt oberflächlich ab (BGS & DPHE, 2001). Nach Kulkarni *et al.* (2018) wirkt sich das Niederschlagswasser des Monsuns geochemisch nur auf die flachen Brunnen (hier: <40 m) aus.

Die geochemische Zusammensetzung des Grundwassers im Bengalischen Becken weist in erster Linie auf Prozesse der Karbonat- und Silikatverwitterung hin. Das Grundwasser entspricht überwiegend dem Ca-Mg-HCO₃ bis Ca-HCO₃-Typus nach der Klassifizierung von Piper (Dowling *et al.*, 2002; Mukherjee & Fryar, 2008; Shamsudduha *et al.*, 2008; Biswas, Gustafsson, *et al.*, 2014).

2.4 Klimatische Einordnung Bangladeschs und der Standorte

Bangladesch liegt in der ökologischen Zone der orographisch-monsunal geprägten immerfeuchten Tropen (Schultz, 2016). Die jahreszeitlichen Temperaturschwankungen sind nur gering, im Jahresdurchschnitt liegen die Temperaturen zwischen 25 und 28 °C. Deutlich stärker variieren die Niederschlagsmengen im Jahresverlauf – 85 % der jährlichen Niederschläge fällt in der Regenzeit zwischen Mai und September. In der Trockenzeit zwischen November und März fällt nur etwa 5 % der jährlichen Niederschläge, wodurch die Landwirtschaft in dieser Zeit auf Bewässerung angewiesen ist (BGS & DPHE, 2001).

Die Ursache für die heterogene Niederschlagsverteilung in Bangladesch liegt in den umliegenden Gebirgszügen und -ausläufern (Abbildung 2-5 und Anlage 3). Durch das über 1500m steil emporragende Shillong-Plateau im Nordosten Bangladeschs, nördlich des Sylhet Beckens, fallen in der Region Sylhet die meisten Niederschläge von über 3600 mm (Jahresmittel der Niederschläge von 1970 bis 2000). Am Standort Habiganj, im Südwesten des Sylhet-Beckens, liegen die Jahresmittel bei 3000 mm. An den anderen beiden Standorten sind es zwischen 2160 und 2280 mm (Chandpur) sowie 1560 mm (Sirajganj/Pabna) (Fick & Hijmans, 2017).

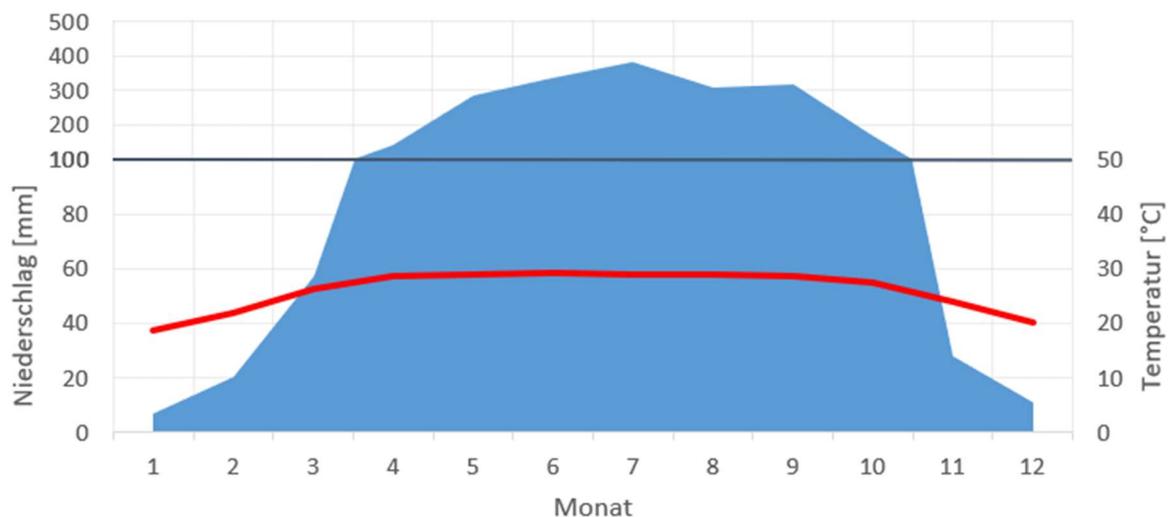


Abbildung 2-5: Durchschnittliche monatliche Temperatur und Niederschlagsmengen der Station Dhaka (Zeitraum 1980-2015), Daten des Bangladesh Meteorological Department, Dhaka.

Für die jährlichen Überflutungen, die bis zu einem Drittel der Landesfläche einnehmen, sind neben dem Niederschlag auch weitere Faktoren verantwortlich. Zu Beginn des Monsuns steigt der Meeresspiegel und führt in den Flussmündungen zum Anstieg der Pegel und somit zum Rückstau des anströmenden Oberflächenwassers. Zwischen April und Mai steigen die Pegel des Brahmaputra und des Ganges (Abbildung 2-1) durch die hinzukommende Schneeschmelze im Himalaya. Die monsonalen Regenfälle verstärken den Anstieg der Flüsse insbesondere zwischen Juni und Juli. Der Brahmaputra erreicht seinen

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

höchsten Wasserstand meist zwischen Juli und August, der Ganges zwischen August und September. Ein Rückgang der Wassermassen tritt umgehend mit Ende des Monsuns ein, zwischen September und November. Es ist davon auszugehen, dass während der stärksten Regenfälle zwischen Juni und August der Grundwasserspiegel die Geländeoberfläche übersteigt (BGS & DPHE, 2001).

2.5 Landwirtschaft und Landnutzung

In Bangladesch wurden 2017 etwa 58% der Fläche landwirtschaftlich genutzt, davon fast 70% bewässert (FAO, 2017a). Weitere 6,5% der Landesfläche werden von permanente Kulturen (z.B. Tee), 4,6% von permanenten Weideflächen und rund 11% von Waldgebiet eingenommen (Central Intelligence Agency (CIA), 2022).

Der jährliche Wasserverbrauch des Landes liegt bei rund 36 Mrd. m³, wovon ein Anteil von etwa 88% der Landwirtschaft zufällt, 2% von der Industrie sowie 10% von den Haushalten verbraucht werden (Deutschland: 24 Mrd. m³/Jahr, v.a. Industrie). Bewässert wird in der Landwirtschaft zu 79% mit Grundwasser und zu 21% mit Oberflächenwasser (FAO, 2017a). Damit kommt dem Grundwasser nicht nur als Trinkwasserressource eine bedeutende Rolle zu, sondern auch für die Landwirtschaft.

Die sogenannte „Grüne Revolution“ begann in Bangladesch 1960 mit zunehmender Verfügbarkeit von Bewässerung. Zu einer deutlichen Produktivitätssteigerung kam es ab 1980, mit der zunehmenden Nutzbarkeit von Grundwasser und der damit einhergehenden verstärkten Kultivierung hocheffizienter Reissorten (Shamsudduha, 2013).

Mittlerweile sind fast 80% der landwirtschaftlichen Flächen für die Bewässerung mit Grundwasser ausgerüstet. Die übrigen 20% nutzen zur Bewässerung Oberflächenwasser aus dafür angelegten Tümpeln, Flüssen oder Altarmen. Insbesondere in sehr niederschlagsreichen Regionen, wie am Standort Habiganj am Rande des Sylhet-Beckens, wird vor allem Oberflächenwasser für die Bewässerung herangezogen (FAO, 2017a). Insgesamt werden in Habiganj nur etwa 38% der landwirtschaftlichen Flächen mit Grundwasser bewässert. In den übrigen Distrikten sind es hingegen 49% (Pabna), 62% (Sirajganj) und 53% (Chandpur) (Bangladesh Bureau of Statistics (BBS), 2020).

2.6 Sozioökonomische Parameter

Bangladesch verfügt über eine Gesamtpopulation von mehr als 160 Mio. Menschen und hat eine mittlere Bevölkerungsdichte von 1079 Einwohner pro km². Damit ist es etwa fünfmal so dicht besiedelt wie Deutschland (United Nations Department of Economic and Social Affairs Population Division, 2020). Etwa zwei Drittel der Bevölkerung leben auf dem Land und ein Drittel in der Stadt. Dabei ist migrationsbedingt eine stärkere Zunahme der Stadtbevölkerung festzustellen (FAO, 2017a).

In den letzten zwei Dekaden ist in Bangladesch ein Bevölkerungszuwachs von mehr als +50% zu verzeichnen (Anlage 4, Abbildung A4-1). Dies resultiert nicht zuletzt aus verbesserten hygienischen Bedingungen und einer damit einhergehenden gestiegenen Lebenserwartung sowie verringerter Kindersterblichkeit.

Auch das Bruttoinlandsprodukt (BIP) verzeichnet ein deutliches Wachstum (Anlage 4, Abbildung A4-2). Von 2000 bis 2019 stieg das BIP um 218% auf 303 Mrd. US\$ (weniger als ein Zehntel des BIP von Deutschland). Damit kommt Bangladesch pro Kopf auf ein BIP (Stand 2019) von rund 1.850 US\$ (Deutschland pro Kopf BIP: 46.500 US\$), allerdings mit prognostizierter stark steigender Tendenz (The World Bank, 2020).

Das BIP generiert sich in Bangladesch Stand Ende 2020 zu mehr als 50% aus dem Dienstleistungssektor (Abbildung 2-6). Obwohl ein vergleichbarer Anteil an Erwerbstätigen in den Sektoren Dienstleistung und Landwirtschaft tätig sind (rund 40%), ist die Landwirtschaft für die Bruttowertschöpfung des Landes mit 12,7% relativ unbedeutend.

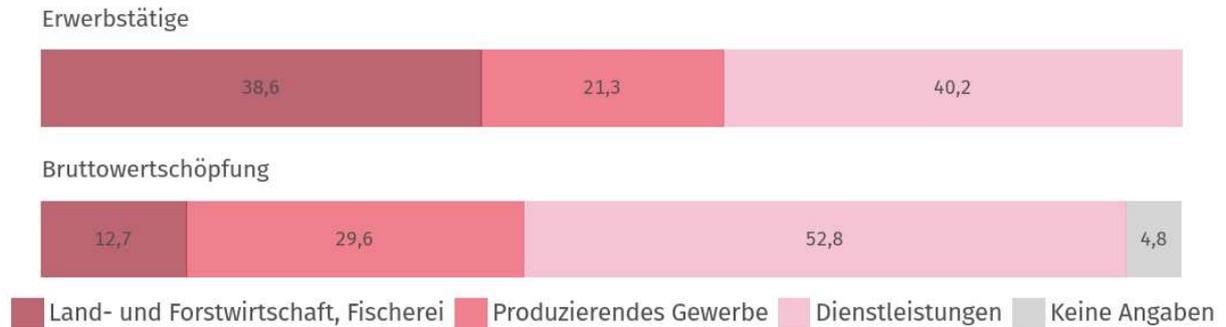


Abbildung 2-6: Prozentuale Anteile der Erwerbstätigen und der Bruttowertschöpfung nach Sektoren 2019 in Bangladesch (Destatis, 2021).

Wachsende Bevölkerung und zunehmender Wohlstand gehen mit stetig steigendem Ressourcenbedarf einher. Mit der Verbesserung der hygienischen Bedingungen steigt auch der Wasserverbrauch (zur Entwicklung der Wasserentnahme seit 1990 liegen keine Daten vor).

2.6.1 Häusliche Abwässer (Latrinen)

In Bangladesch fehlt eine zentrale Infrastruktur für häusliche Abwässer weitestgehend. Latrinen sind ein wichtiger Bestandteil für hygienische Bedingungen, da sie den direkten Kontakt zu Fäkalien und darin enthaltenen Krankheitserregern verringern (United Nations, 2015; Bangladesh Bureau of Statistics (BBS) & UNICEF Bangladesh, 2019).

In Bangladesch verfügen rund 85% der Haushalte über eine Latrine. In ländlichen Regionen ist nur 1% dieser Latrinen an ein Abwassernetz angeschlossen, in Städten fast 30%. Die hohe Bevölkerungsdichte zusammen mit dem hohen Anteil an Haushalten mit Latrine verdeutlichen eine ebenfalls hohe Latrinendichte (Bangladesh Bureau of Statistics (BBS), 2020).

Je nach Latrintyp wird das anfallende Abwasser in einer Bodengrube gesammelt (Pit), in einer Grube nach festen und flüssigen Bestandteilen aufgetrennt (Klärgrube/septic tank) oder in Oberflächengewässer eingeleitet (drain). Alle diese Systeme sehen prinzipiell vor, dass das Abwasser im Untergrund verbleibt (Bangladesh Bureau of Statistics (BBS) & UNICEF Bangladesh, 2019). Je nach Tiefe der Latrinen und Klärgruben sowie dem Grundwasserstand ist ein direkter Eintrag von Abwasserbestandteilen in das Grundwasser zu erwarten. Insbesondere in Gebieten mit starker Überflutung, hohen oder stark gespannten Grundwasserständen. Befragungen im Rahmen des HCE-Projekts im FAARM Studiengebiet ergaben, dass etwa 68% der Haushalte eine Grubenlatrine (Pit Latrine) besaßen. Etwa 43% dieser Latrinen wurden schon einmal geleert, 57% noch nie. Eine derart lange Nutzungsdauer ohne Leerung (Mittelwert 6,4 Jahre; Median 5 Jahre) zeigt, dass zumindest ein Teil der Fäkalien versickert.

Die meisten Latrinen sind Grubenlatrinen und zwischen 1 und 2,5 m tief. Sie bestehen aus einer Grube, in die 1-3 Betonringe eingelassen werden. Nach unten bleiben die Gruben geöffnet (Tilley *et al.*, 2014). Häufig zu beobachten ist, dass diese Gruben in unmittelbarer Nähe zu Tümpeln errichtet werden,

2 Beschreibung der Untersuchungsgebiete

wodurch die Abwässer in den nahegelegenen Tümpel abfließen können. Es werden auch Latrinen-Abwässer über Abflussrohre in Oberflächengewässer eingeleitet.

2.6.2 Tümpel und Oberflächengewässer

Zu Tümpeln und deren Nutzung liegen für Bangladesch nur sehr wenige aktuelle wissenschaftliche Daten vor. Künstlich angelegte Tümpel und natürliche Oberflächengewässer (Flüsse, abgeschnittene Altarme) werden vielfältig von der Bevölkerung genutzt: Als Sammelbecken für Abwässer, für Haushaltstätigkeiten (Wäsche/Geschirr waschen, Wasser zum Trinken und Kochen), zur Körperhygiene, als Viehtränke, sowie als Wassersammelbecken für die Bewässerung (Kränzlin, 2000; Ahmed *et al.*, 2006).

Besonders zugenommen hat die Anlage von Tümpeln seit 1989 für die Fischzucht bzw. Aquakultur (Kränzlin, 2000). 2017-2018 machte die Aquakultur in künstlichen Tümpeln mit etwa 44% der gesamten Fischzucht in Bangladesch den größten Anteil aus. Sie bedeckten damit eine Fläche von 3918 km², was 2,7% der Landesfläche entspricht (Bangladesh Bureau of Statistics (BBS), 2020).

Nach Harvey *et al.* (2006) wurden die meisten Tümpel in den letzten 50 Jahren ausgehoben. Basierend auf Messungen von Wasserspiegelständen und Modellierungen stellen sie fest, dass die Tümpel während der Trockenzeit mehr Wasser verlieren als durch Evaporation erklärt werden kann und vermuten deshalb, dass etwa 0,53 mm Wasser pro Tag von den Tümpeln in die Aquifere fließen. Ihre Rolle im Hinblick auf die Arsenmobilität ist stark umstritten (siehe Kapitel 3).

In eigenen Erhebungen im Juli 2021 wurden Eckdaten von 98 Tümpeln in der Region Habiganj erfasst. Von diesen Tümpeln waren 45% etwa 50 m² groß, 49% etwa 100 m² und 6% größer. Nur 1% dieser Tümpel war natürlichen Ursprungs. 60% wurden ausgehoben, um eine Erhöhung für den Bau einer Straße oder eines Hauses zu schaffen, 33% wurden aktiv für Aquakultur angelegt und 1% für Bewässerungszwecke als Wasserspeicher.

Die Tümpel sind geschätzt zwischen 3 und 120 Jahre alt, im Median 30 Jahre und im Mittel rund 36 Jahre. Sie erreichen eine Tiefe von etwa 2,4 bis 5,5 m (Median 3,7 m, Mittelwert 3,8 m). Keiner der Tümpel fällt im Jahresverlauf vollständig trocken, allerdings schwanken die Wasserspiegelstände bei 67% der Tümpel zwischen 1 bis 1,8 m. Woher das Wasser der Tümpel stammt, konnte nicht eindeutig geklärt werden, die meisten füllen sich jedoch während der Regenzeit. 10% der Tümpel werden mit einer Pumpe aus einem Fluss aufgefüllt.

Die meisten Tümpel werden für unterschiedliche Zwecke genutzt. 4% dienen als Trinkwasserquelle, aus 57% der Tümpel wird Wasser zum Kochen entnommen. 74% der Tümpel dienen als Waschstelle für Körperhygiene, Kleidung und Geschirr. Fische werden in 95% aller Tümpel gehalten, aber nur in 19% der erfassten Tümpel wird ausschließlich Fischzucht betrieben, ohne weitere Haushaltsnutzung. Nur in einen der Tümpel wird bewusst Abwasser eingeleitet. In allen Tümpeln wachsen entweder Algen oder andere Wasserpflanzen (Abbildung 2-7). In 28% der dokumentierten Tümpel war Gasbildung zu beobachten.

Die Bedeutung der Tümpel für die Haushalte wird daraus deutlich, dass 46% der dokumentierten Tümpel regelmäßig neu ausgehoben werden, 8% etwa alle zwei Jahre, 19% etwa alle 5 Jahre, 15% etwa alle 10 Jahre und 3% seltener als alle 10 Jahre (eigene Erhebung 2021).



Abbildung 2-7: Alle Tümpel weisen Algen- oder Pflanzenbewuchs auf. Die meisten können über Treppen oder Stege von den umliegenden Haushalten genutzt werden (Eigene Erhebung 2021, Aufnahmen von Md. Rakibul Hasan).

3 Grundlagen und zentrale Prozesse der Arsenmobilität in Bangladesch

Chemisch steht Arsen in der fünften Hauptgruppe des Periodensystems und zählt zu den Halbmetallen. Es kann die Oxidationsstufen -3, 0, +3 und +5 annehmen. Unter natürlichen Bedingungen liegt Arsen vor allem in dreiwertiger (As(III), H_3AsO_3 , Arsenit als Salz bzw. gelöst als Arsenige Säure) oder fünfwertiger (As(V), H_3AsO_4 , Arsenat als Salz bzw. gelöst als Arsensäure) Form vor (Smedley & Kinniburgh, 2002; Tretner, 2003).

Die Mobilität des Halbmetalls hängt von den geochemischen Bedingungen im Untergrund ab, insbesondere vom pH-Wert und dem Redoxpotential (Eh bzw. pe). Unter niedrigen pH-Bedingungen sorbiert Arsen an Sedimentoberflächen. Bei einem pH-Wert zwischen 6,5 und 8,5, d.h. dem pH-Bereich von natürlichem Wasser, ist Arsen überwiegend mobil und liegt als As(III) vor (Smedley & Kinniburgh, 2002). Wan *et al.* (2011) weist allerdings darauf hin, dass unter pH-Bedingungen zwischen 4 und 10 dennoch alle Arsenspezies parallel vorkommen können.

Bei Grundwasser von größerer Bedeutung ist das Redoxpotential, denn thermodynamisch ist das deutlich besser adsorbierende As(V) unter oxidischen Bedingungen stabil, das As(III) unter anoxischen Bedingungen. Die Mobilität von Arsen im Grundwasser ist stark von der Spezies abhängig. Das As(V) ist negativ geladen und sorbiert deshalb besser an Sedimentoberflächen (Tretner, 2003). Es verhält sich ähnlich wie Phosphat im Grundwasser (Maier, 2014, 2016). As(III) hingegen ist neutral weshalb es schlechter an Oberflächen adsorbiert und mobiler ist (Tretner, 2003). Im Grundwasser Bangladeschs ist As(III) mit Anteilen von 67 bis 99% die dominierende Spezies (Ahmed *et al.*, 2004).

Neben den anorganischen Arsenverbindungen Arsensäure (H_3AsO_4) und arsenige Säure (H_3AsO_3) können auch organische Arsenverbindungen in der Hydrosphäre vorkommen. Hierzu gehören die Monomethylarsensäure (MMAA) und Dimethylarsensäure (DMAA), die von Phytoplankton gebildet wird, außerdem Trimethylarsinoxid (TMAO), Trimethylarsin (TMA), Arsenobetain, Arsenocholin und arsenhaltige Zuckerderivate (Tretner, 2003). Der natürliche Anteil von organischen Arsenverbindungen im Grundwasser ist allerdings sehr gering (Smedley & Kinniburgh, 2002).

Weltweit treten die höchsten Arsenbelastungen des Grundwassers im asiatischen Raum auf und stehen in direktem Zusammenhang mit alluvialen Sedimenten in Vorlandsenken von jungen Orogenen (Coomar *et al.*, 2019; Shaji *et al.*, 2020). Die Arsenbelastung in Bangladesch sowie dem angrenzenden Westbengalen (Indien) ist ebenfalls natürlichen Ursprungs (Smedley & Kinniburgh, 2002).

Primär sind die sedimentären Arsengehalte der Beckenstruktur auf die Zusammensetzung des Grundgesteins der umliegenden Gebirgszüge zurückzuführen. Der durchschnittliche Arsengehalt von losem Sediment liegt zwischen 3 und 10 mg/kg. Im Bengalischen Becken enthalten die Sedimente bis zu 20 mg/kg Arsen (Smedley & Kinniburgh, 2002). Daneben werden wie natürlichen Arsengehalte auch von Faktoren wie Korngröße und chemischer Zusammensetzung des Sediments beeinflusst (Tretner, 2003; Blume *et al.*, 2010). Beispielsweise enthalten sandige Lagen im Durchschnitt mit 2,9 mg/kg deutlich weniger Arsen als bindige Aquiferbereiche mit 6,5 mg/kg im Mittel. Die höchsten Gehalte treten in tonigen oder torfigen Bereichen auf, mit bis zu 100 mg/kg Arsen (BGS & DPHE, 2001; Pal & Mukherjee, 2009; Chakraborty *et al.*, 2015).

Die Arsengehalte des Grundwassers in Bangladesch variieren regional. Sie sind am geringsten im Norden sowie den Plio-Pleistozänen Sedimenten des Madhupur- und Barind-Traktes (siehe Abbildung 2-1). Höchste Gehalte wurden in den flachen, holozänen Grundwasserleitern festgestellt, in 20 bis 50 m Tiefe (Abbildung 3-1). Diese bestehen aus der Wechsellagerung von glimmerreichen Sanden mit

Schluffen und Tonen und sind von einer Schluff- bzw. Tonlage abgedeckt. 27% der flachen Brunnen (Tiefe: 0-150 m) enthalten mehr als 50 µg/l Arsen (Smedley & Kinniburgh, 2002). Gleichzeitig können regional auch kleinräumig variierende Arsengehalte auftreten. (Ahmed *et al.*, 2004) beobachten den höchsten Anteil an arsenbelasteten flachen Brunnen vor allem im Sedimentationsraum des Meghnas.

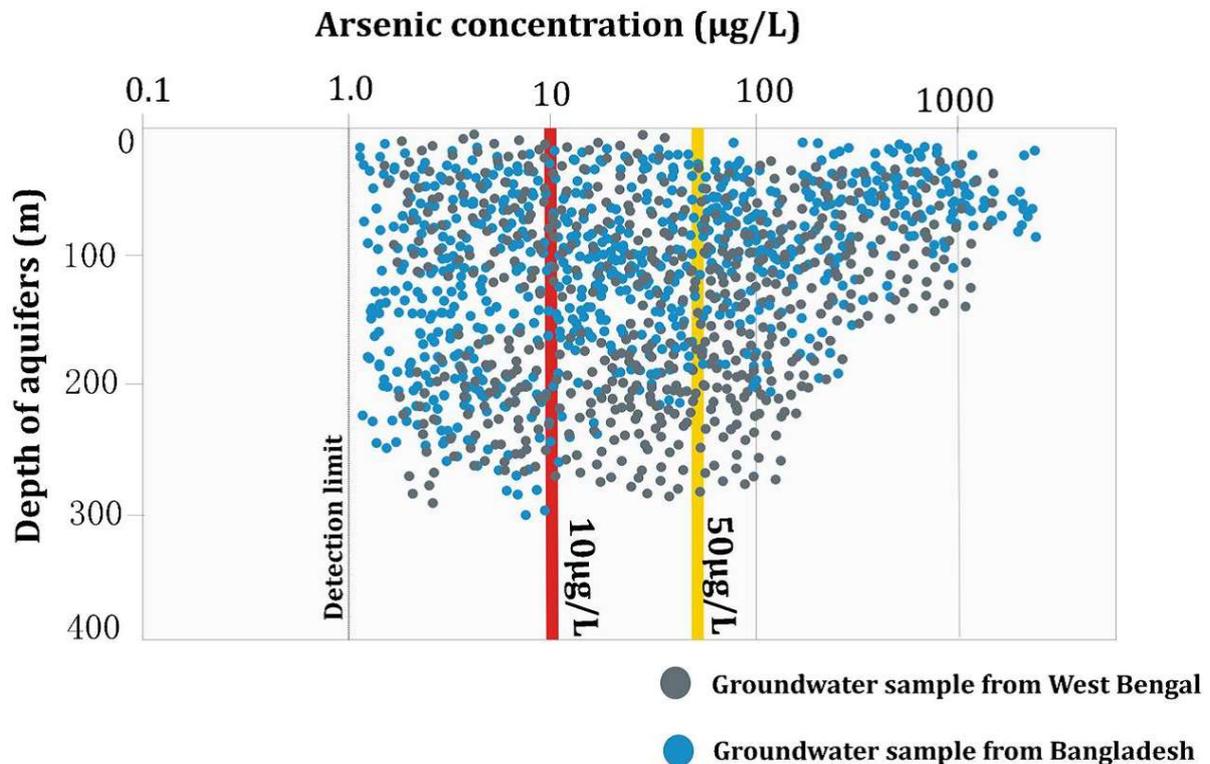


Abbildung 3-1: Arsengehalte im Grundwasser von Bangladesch und Westbengalen (Indien) in unterschiedlichen Tiefen. Die rote vertikale Linie zeigt den WHO-Grenzwert, die gelbe vertikale Linie den bangladeschischen Grenzwert (Chakraborty *et al.*, 2015).

Hohe Arsengehalte im Grundwasser hängen von mehreren Parametern ab:

- Der sedimentären Bindungsform (Eisenoxide/-hydroxide, Sulfide),
- den geochemischen Bedingungen im Untergrund,
- der Korngröße und Aquiferstruktur (Tonlagen, Deckschichten),
- dem Aquifertyp (frei oder gespannt),
- der Grundwasserfließgeschwindigkeit,
- der Durchspülung des Aquifers (Alter und Verwitterungsgrad der Sedimente),
- den mikrobiellen Prozessen (organischer Kohlenstoffabbau),
- der geochemischen Grundwasserkomposition (insbesondere kompetitiver Bestandteile wie Phosphat, Hydrogencarbonat, Silicat, organisches Material und dessen Abbauprodukte).

Ein Verständnis der ablaufenden Prozesse ist nur unter Berücksichtigung der oben genannten Parameter möglich. Diese Arbeit fokussiert auf das geochemische Milieu, da dieses durch äußere Bedingungen (z.B. Klima, Landnutzung) beeinflusst werden kann. Nach aktuellem Stand der Forschung werden die übrigen Parameter für Bangladesch wie in den folgenden Kapiteln beschrieben betrachtet.

3.1 Sedimentäre Bindungsform

Ein Großteil der wissenschaftlichen Untersuchungen geht davon aus, dass in Bangladesch das Arsen sedimentär überwiegend in primären oder sekundären Eisenverbindungen vorliegt. Als primäre Eisenminerale werden Biotit und Hornblende beschrieben. Sekundäre Ausfällungen an Goethit, Hämatit oder amorphen Eisenoxiden und -hydroxiden sind sehr häufig in den flachen Aquiferbereichen (Seddiq *et al.*, 2008; Shamsudduha *et al.*, 2008).

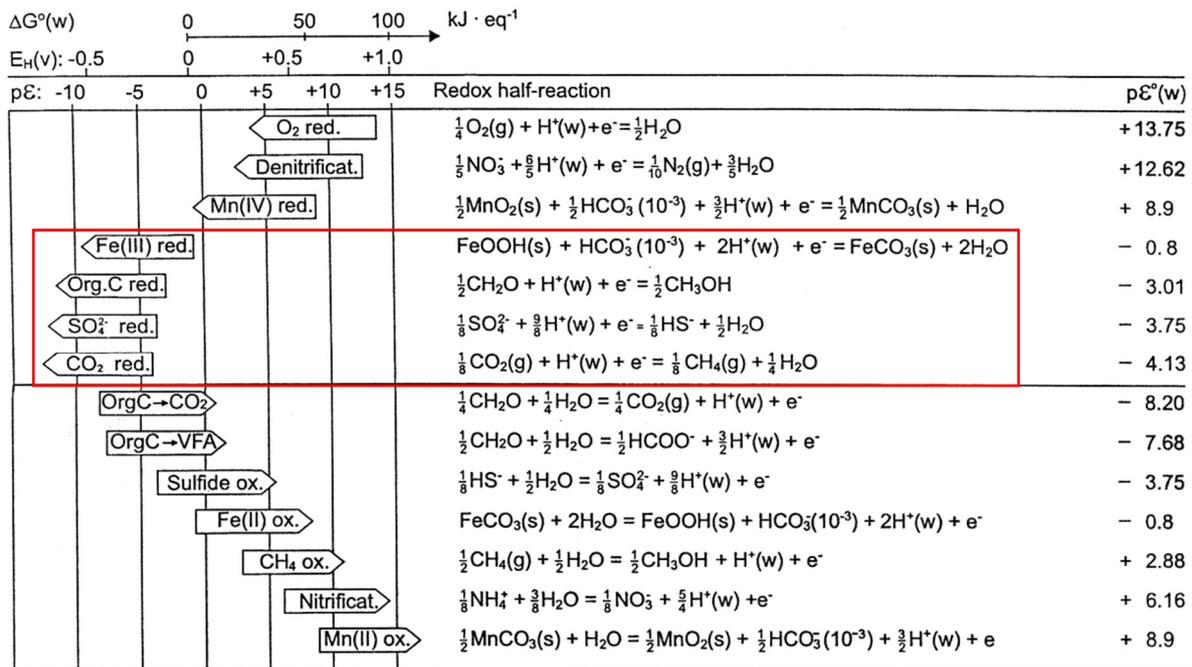
Lokal von Bedeutung sein können in Bangladesch auch Sulfide (z.B. Pyrit), die je nach Redoxbedingungen als Quelle für das Arsen (Polizzotto *et al.*, 2006) oder als Senke fungieren können (Uddin *et al.*, 2011). Sulfide können große Arsenmengen enthalten und bilden sich unter anoxischen Bedingungen, wenn ausreichend Schwefel zur Verfügung steht (Kirk *et al.*, 2010). In einem oxischen oder eisenreduzierenden Milieu lösen sie sich hingegen auf und geben das Arsen wieder ab. Nach Lowers *et al.* (2007) spielen authigen, d.h. im Sediment gebildete, Sulfide wie Pyrit in Tiefen zwischen 20 und 100 m, und damit in den flachen, hoch belasteten Aquiferbereichen, eine untergeordnete Rolle. Hier liegt das Arsen vor allem an sekundären Eisenoxiden gebunden vor, da verfügbarer Schwefel fehlt. Arsen kann auch karbonatisch gebunden (z.B. an Calciumkarbonat oder Dolomit) vorliegen (Sø *et al.*, 2008). In Bangladesch sowie im gesamten Bengalischen Becken wird diese Quelle allerdings selten als relevant betrachtet, obwohl im Sedimentationsbereich des Ganges hohe Calciumgehalte im Sediment und hohe Calcium sowie Hydrogencarbonatgehalte (HCO_3) im Grundwasser auftreten (BGS & DPHE, 2001). Modellrechnungen mit PHREEQC (Appelo *et al.*, 2005, S 587-589) weisen darauf hin, dass die Grundwasserzusammensetzung in Bangladesch nur unter Einbezug von CO_2 , der Auflösung von Carbonaten und der Konkurrenz von HCO_3 mit Arsen um Sorptionsplätze sowie der Fällung von Siderit erklärt werden kann.

Nach (Smedley & Kinniburgh, 2002) wirkt sich der sedimentäre Arsengehalt des Sediments nicht wesentlich auf die Arsengehalte im Grundwasser aus, da das Halbmetall nur dann mobil wird, wenn die geochemischen Bedingungen zur Auflösung des arsenhaltigen Sediments führen. Entsprechend relevanter sind die Bindungsform im Sediment sowie die vorherrschenden geochemischen Rahmenbedingungen hinsichtlich Redoxpotential, Sauerstoffgehalt, Wasserzusammensetzung und mikrobieller Aktivität.

3.2 Geochemische Bedingungen im Untergrund

In den meisten Studien wird davon ausgegangen, dass der zentrale Prozess der Arsenmobilität auf den mikrobiellen Abbau von organischem Kohlenstoff zurückzuführen ist (BGS & DPHE, 2001; McArthur *et al.*, 2001; Neumann *et al.*, 2014). Dieser Abbau ist eine Redox-Reaktion, bei der das organische Material unter Abgabe eines Elektrons oxidiert wird. Entsprechend der Redox-Reaktionen muss hierfür gleichzeitig eine Reduktion (Aufnahme eines Elektrons) stattfinden. Der Ablauf von Redoxreaktionen ist thermodynamisch vorbestimmt, wodurch leicht reduzierbare Stoffe (z.B. Sauerstoff, Nitrat) zuerst reduziert werden. Die Reihenfolge und das notwendige Redoxpotential sind in Abbildung 3-2 dargestellt.

In Bangladesch wird angenommen, dass die Arsenmobilität durch reduzierende (Redoxpotential $< +0,5\text{V}$) und anoxische (Sauerstoffgehalt $< 1\text{ mg/l}$) Bedingungen hervorgerufen wird. Unter diesen Bedingungen lösen sich Eisenminerale durch Reduktion von Fe(III) zu Fe(II) auf und geben dabei das gebundene Arsen frei (BGS & DPHE, 2001; Uddin *et al.*, 2011).



a. $pE^\circ(w)$ is the standard electron activity of the halfreaction at pH = 7.

Abbildung 3-2: Redoxreaktionen und Redoxpotential ($pE^\circ(w)$) (Standardelektronenaktivität der Halbreaktion bei pH 7, $E_H(v)$ = bezogen auf Standardwasserstoffelektrode) (Christensen *et al.*, 2000), rot umrahmt sind die relevanten anoxischen Prozesse in Bangladesch.

Ob das Arsen am Sediment drei- oder fünfwertig vorliegt, ist ebenfalls von den Redoxbedingungen abhängig. Unter zunehmend anoxischen Bedingungen überwiegt die trivalente Spezies, während unter oxidischen die pentavalente dominiert (Polizzotto *et al.*, 2006). Für die Mobilität des Arsens ist die Reduktion von As(V) zu As(III) notwendig. As(III) ist ungeladen und adsorbiert deshalb deutlich schwächer an Sedimentoberflächen als As(V) (Smedley & Kinniburgh, 2002). Die Reduktion von Arsen und Eisen ist ein Prozess, der mikrobiell katalysiert deutlich schneller abläuft als abiotisch, sodass der Mikrofauna im Untergrund eine besondere Rolle zukommt (Oremland & Stolz, 2005). Eine Vielzahl an Arbeiten beschreibt allerdings, dass im Grundwasser die Arsengehalte nicht mit den Eisengehalten korrelieren (BGS & DPHE, 2001; Horneman *et al.*, 2004; van Geen *et al.*, 2004; Zheng *et al.*, 2004). Diese Beobachtung weist auf weitere Prozesse hin, die dieser Korrelation entgegenwirken. Arsen kann beispielsweise an den verbleibenden Eisenmineralen adsorbieren, oder das freigesetzte Eisen kann ausfallen (z.B. als Eisenkarbonat Siderit) oder sich ohne Freigabe von Fe(II) in andere Eisenoxide mit geringerer Adsorptionsoberfläche umwandeln (z.B. Magnetit) (Wang *et al.*, 2017). Außerdem kann Silikatverwitterung zu höheren Eisengehalten führen, ohne einen Anstieg der Arsengehalte hervorzurufen (Biswas *et al.*, 2014). Pedersen *et al.* (2006) beschreiben, aus Versuchsreihen mit unterschiedlichen Eisenmineralen, dass Arsenat deutlich langsamer in Lösung geht als Eisen (Fe^{2+}). Das Arsenat verbleibt so lange an den verfügbaren Oberflächen der Eisenminerale, bis diese sich vollständig aufgelöst haben. Gleichzeitig führt die Rekristallisation der verbleibenden Eisenminerale, Katalysiert durch die verfügbaren Fe^{2+} -Ionen, dazu, dass Arsenat permanenter adsorbiert.

Ab einem Redoxpotential von -0,5 V setzt die mikrobielle Sulfatreduktion ein. Dabei wird Sulfat (SO_4) reduziert und bildet in Anwesenheit von Metallen feste Metallsulfide, wie Eisensulfid (FeS) oder Pyrit (FeS_2). Unter Abwesenheit freier Metalle kann es als gasförmiger Schwefelwasserstoff (H_2S) entweichen. In Metallsulfiden kann Arsen in größeren Mengen gebunden werden, weshalb sie auch als

Senke für Arsen gelten (Lowers *et al.*, 2007; Uddin *et al.*, 2011). Im Grundwasser Bangladeschs sind die Sulfatgehalte sehr gering, weshalb davon ausgegangen wird, dass dieser Prozess nur untergeordnet von Bedeutung ist (Smedley & Kinniburgh, 2002).

Weiter sinkendes Redoxpotential ($< -0,12\text{ V}$) führt zu dem fermentativen Prozess der Methanogenese. Hierbei wird Kohlendioxid (CO_2) reduziert oder organisches Material fermentiert und Methan (CH_4) gebildet (Appelo & Postma, 2005). Unter diesen Bedingungen wird Arsen am stärksten mobilisiert. Buschmann *et al.* (2009) gehen davon aus, dass in der Methanogenese keine Eisenmineraloberflächen mehr zur Verfügung stehen, an die das Arsen adsorbieren kann. Hohe Methangehalte im Grundwasser sind in Bangladesch häufig und gehen mit hohen Arsengehalten einher (Ahmed *et al.*, 1998; Dowling *et al.*, 2002; Stopelli *et al.*, 2021). Aktuelle Studien aus Vietnam lassen vermuten, dass Methan eine weitaus komplexere Rolle spielt als bisher angenommen und durch Migration in flachere Aquiferbereiche dort bei gleichzeitiger Reduktion von Eisen oxidiert wird (Glodowska *et al.*, 2020a, 2020b, 2020c; Stopelli *et al.*, 2020).

Wie die As-mobilisierenden, geochemischen Bedingungen zustande kommen, hängt von verschiedenen Faktoren ab – der Aquiferstruktur (abdichtenden Deckschichten), der Art und mikrobiellen Verfügbarkeit von organischem Kohlenstoff sowie von Überflutungen und Bewässerungspraktiken (Chakraborty *et al.*, 2015; Edmunds *et al.*, 2015).

3.3 Organischer Kohlenstoff

Die Rolle des organischen Kohlenstoffs ist ein zentraler Diskussionspunkt im Hinblick auf die Arsenmobilitätsforschung. Ursache ist die hohe Komplexität des organischen Materials, was sich entsprechend unterschiedlich auf die Arsenmobilität auswirkt. Organisches Material kann Arsen adsorbieren, weshalb die höchsten Arsengehalte meistens in organikreichen Schichten auftreten (Anawar *et al.*, 2013).

Im Grundwasser treten vor allem gelöste organische Verbindungen (dissolved organic carbon = DOC) auf, die zu 80% aus Huminstoffen bestehen und über verschiedene funktionale Gruppen und damit Eigenschaften verfügen (Ateia *et al.*, 2017). In den flachen Aquiferen von Westbengalen (Indien) wurden humifizierte, stärker mikrobiell umgesetzte organische Bestandteile festgestellt, die stärkeren Einfluss auf geochemische Prozesse haben können (Kulkarni *et al.*, 2017). Beispielsweise dienen organische Verbindungen als Elektronenshuttle, welche die Arsenmobilität verstärken, indem sie die Redox-Prozesse beschleunigen (Mailloux *et al.*, 2013). Huminstoffe können mit Arsen oder mit Eisen und Arsen Komplexe bilden und dadurch deren Mobilität verstärken (Kulkarni *et al.*, 2017, S. 201) oder die Adsorptionskapazität verstärken (Sharma & Kappler, 2011). Gleichzeitig konkurrieren organische Verbindungen mit Arsen um Adsorptionsoberflächen am Sediment und verhindern damit die Immobilisierung (Wang & Mulligan, 2006).

Besonders umstritten sind die Herkunft und die Art des Kohlenstoffs, der diese mikrobiellen Prozesse antreibt. Viele Studien vermuten, dass leicht abbaubarer Kohlenstoff eine besonders große Rolle spielt (Anawar *et al.*, 2013; Richards, Lapworth, *et al.*, 2019; Qiao *et al.*, 2020). Neumann *et al.* (2014) zeigen, dass sedimentärer organischer Kohlenstoff zur Arsenmobilität führt, sobald er durch mechanische Störung mikrobiell verfügbar gemacht wird. Gleichzeitig legen sie nahe, dass organischer Kohlenstoff aus Tümpeln eine größere Rolle spielt als schwer abbaubare Pflanzenreste auf Reisfeldern (Neumann *et al.*, 2009, 2010). Basierend auf Fluoreszenzanalysen belegen (Richards, Lapworth, *et al.*, 2019; Richards, Magnone, *et al.*, 2019), dass Eintrag von oberflächlichem gelöstem organischem Material in

Kambodscha zum gesamten organischen Kohlenstoff beiträgt, was die geochemischen Bedingungen im Grundwasser beeinflusst und die Arsenmobilität verstärkt.

3.4 Korngröße und Aquiferstruktur

Die Korngröße ist in mehrfacher Hinsicht von Bedeutung. Einerseits kann an den Tonmineralen und kleineren Sedimentfraktionen oberflächlich mehr Arsen gebunden werden, andererseits sind Schluff- und Tonlagen schlecht wasserdurchlässig und stellen somit Aquitarde (Wassergeingeleiter) dar.

In Bangladesch wird ein Großteil der Landesoberfläche von einer bis zu 20 m mächtigen Schluffschicht eingenommen. Diese weist, unabhängig von oberflächlichem Arseneintrag durch Bewässerung, erhöhte Arsengehalte auf. Aus diesem Grund kommen einige Studien zu dem Fazit, dass in diesen Schichten das As(III) mobilisiert wird und durch seine geringe Adsorptionsfähigkeit bis in die Bereiche hoher Belastung hinabgezogen wird (Polizzotto *et al.*, 2006).

Das Aquifersystem des Bengalischen Beckens ist sehr komplex, mit einer Wechselfolge von Sanden und lokalen Aquitarden und Aquicluden (=Wassernichtleiter). Diese verhindern einerseits, dass Schadstoffe in einen unbelasteten Aquiferbereich gelangen. Andererseits bestehen Aquitarde häufig aus feinkörnigem, organikreichen Material. Das langsame Auslaugen eben dieses organischen Kohlenstoffs kann dazu führen, dass anoxische Bedingungen in dem darunterliegenden Aquifer entstehen und Arsen mobil wird (Pal & Mukherjee, 2009; Mihajlov *et al.*, 2020)

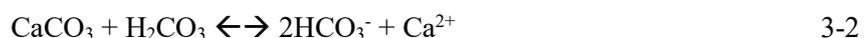
3.5 Mineralverwitterung

Für die Verwitterung von Mineralen sind drei Parameter besonders relevant: Die Temperatur, die Wasserverfügbarkeit und gelöstes Kohlenstoffdioxid (CO₂). In Bangladesch sind die Temperaturen relativ konstant hoch und im Grundwasser eine dauerhafte Wasserverfügbarkeit gegeben, wodurch für die vorliegende Fragestellung vor allem das gelöste CO₂ berücksichtigt wird.

CO₂ kann entweder über die Atmosphäre eingetragen werden, oder entsteht über den mikrobiellen Abbau von organischer Substanz (Formel 3-1, aus Wisotzky, 2011), am Beispiel eines Kohlenhydrats C₆H₁₂O₆). Mit Wasser (H₂O) reagiert CO₂ zu Kohlensäure (H₂CO₃).



Das Grundwasser in Bangladesch liegt in der Klassifizierung nach Piper im Bereich karbonatischer Wässer mit hohen Anteilen an Ca und HCO₃ (BGS & DPHE, 2001). Deshalb ist davon auszugehen, dass **Karbonatverwitterung** von zentraler Bedeutung ist. Karbonate wie Calcit (CaCO₃) oder Dolomit (CaMg(CO₃)₂) sind wasserlöslich in Abhängigkeit von der im Wasser gelösten Kohlensäure. Gleichzeitig ist der CO₂-Gehalt des Wassers temperaturabhängig, mit einem höheren CO₂-Druck im Boden und Grundwasser bei höheren Temperaturen aufgrund der stärkeren mikrobiellen Abbauaktivität (Appelo & Postma, 2005). Bei der Reaktion mit Karbonat (z.B. Calciumcarbonat CaCO₃) verbinden sich die Wasserstoff-Protonen (H⁺) mit dem Carbonat (CO₃²⁻) zu Hydrogencarbonat (HCO₃⁻) und das Calcium bzw. Magnesium wird freigesetzt (Formel 3-2, aus Appelo *et al.*, 2005, S. 179).



In karbonatischen Aquiferen (z.B. Alpujarras Aquifer in Südspanien) liegen die Ca-Gehalte im Wasser zwischen 24 und 63 mg/l. In Bangladesch ist der Calciumgehalt stark abhängig von der Sedimentationshistorie. Die Aquifere aus den Sedimentfrachten des Ganges, im Südwesten des Landes, sind deutlich Calciumhaltiger als die der beiden anderen Flüsse mit Ca-Gehalten >80 mg/l. Im Norden

sowie in der Sylhet-Region sind die Calcium-Gehalte deutlich niedriger - in Abhängigkeit von der Brunntiefe liegen sie bei bis zu <15 mg/l (BGS & DPHE, 2001).

Die **Silikatverwitterung** verläuft wesentlich langsamer als die Karbonatverwitterung, trägt jedoch zu 45% der gesamten gelösten Stoffe in Flüssen bei (Stumm & Morgan, 1996). Auch im Grundwasser können Silikate stark die chemische Komposition beeinflussen, was sich an hohen Silica-Gehalten im Grundwasser erkennen lässt (Stumm & Morgan, 1996; Appelo & Postma, 2005). Die Verwitterung von Silikaten spielt für die pH-Stabilität eine zentrale Rolle, da bei der Verwitterung von Silikaten CO₂ gebunden wird. Gleichzeitig kommt es durch die Verwitterung zur Freisetzung von Kationen (Ca, K, Mg, Na) sowie von HCO₃⁻ (Formel 3-3 aus Penman *et al.* (2020) am Beispiel Wollastonit (CaSiO₃)). Als Endprodukt des Verwitterungsprozesses eisenhaltiger Silikat-Mineralen (z.B. Biotit) können unlösliche Eisenoxide zurückbleiben (Stumm & Morgan, 1996; Appelo & Postma, 2005).



Durch die Verwitterung der Silikate entstehen Schichtsilikate, auch Phyllosilikate und ab einer Größe <2 µm Tonminerale genannt. Diese weisen eine sehr hohe Adsorptionskapazität und Wasserhalte- bzw. Quellfähigkeit auf (Blume *et al.*, 2010; Okrusch & Matthes, 2014). Zu den Schichtsilikaten gehören Biotit, Illit, Kaolinit, Vermiculit und Montmorillonit. Sie entstehen entweder sekundär durch Fällung oder durch Umstrukturierung und sind häufig mit sekundären Eisenoxid-Ausfällungen assoziiert. Sie können außerdem einen massiven Einfluss auf die Permeabilität des Aquifers haben. Insbesondere Illit-Aggregate können den Durchfluss deutlich reduzieren (Appelo *et al.*, 2005, S. 379).

Es wird davon ausgegangen, dass Silikate eine primäre Quelle für das Arsen sein können, da sie häufig einen großen Anteil des sedimentären Arsengehalts ausmachen. Alam *et al.* (2014) fanden in kanadischen Sedimenten 75% des Arsens in Silikaten und 16% in Eisenmineralen. Sie stellten fest, dass As-Freisetzung bei hohem pH (10) und niedrigem Redox-Potential (50 bis -150 mV) erfolgte.

3.6 Grundwasserfließgeschwindigkeit und Durchspülung des Aquifers

Nach Kinniburgh *et al.* (2007) korrelieren die hohen Arsengehalte mit den hydraulischen Eigenschaften des Aquifers. Bei geringen Grundwasserfließgeschwindigkeiten in feinkörnigeren Aquiferbereichen findet eine langsame Durchspülung statt. Das Arsen kann sich von den jungen, wenig verwitterten Sedimenten lösen und wird aufgrund der geringen Durchspülung nicht schnell abtransportiert. In gut durchspülten Bereichen des tiefen Aquifers (>150m) treten hingegen keine hohen Arsengehalte auf. Ausnahme stellen die hohen Arsengehalte im tiefen Aquifer der Region Sylhet dar (Ravenscroft *et al.*, 2018), die nach Kinniburgh *et al.* (2007) allerdings durch Filterschlitzte in mehreren Tiefenbereichen zustande kommen.

3.7 Geochemische Grundwasserkomposition

Die geochemische Grundwasserkomposition wird hinsichtlich ihrer Bestandteile wie Phosphat, Hydrogencarbonat, Silicat, organisches Material und dessen Abbauprodukte in mehreren Studien im Hinblick auf die Eigenschaften, kompetitiv mit Arsen zu reagieren und damit Arsen freizusetzen, beschrieben. Diese Ergebnisse stammen jedoch überwiegend aus Laboruntersuchungen (Wang *et al.*, 2017).

Phosphat (PO₄) ist Arsenat (fünfwertige Arsenspezies, As(V)) chemisch sehr ähnlich und konkurriert deshalb am effizientesten um Adsorptionsplätze (Sø *et al.*, 2012; Thi Hoa Mai *et al.*, 2014). In der Altlasten-Sanierungspraxis wird Phosphat deshalb auch zur in-situ Remediation von

Arsenschadensfällen eingesetzt, um das adsorbierte Arsenat zu lösen (Maier *et al.*, 2019). In Bangladesch sind die Phosphatkonzentrationen relativ hoch und werden, ebenso wie das Arsen, durch die Auflösung der Eisenoxide und -hydroxide freigesetzt (Neidhardt *et al.*, 2018). Biswas *et al.* (2014) gehen davon aus, dass die Kombination aus reduktiver Eisenauflösung zusammen mit der Konkurrenz um Sorptionsplätze durch Phosphat zu den hohen Arsengehalten in Bangladesch führen.

Hydrogencarbonat (HCO_3) und Arsen korrelieren ebenfalls häufig im Grundwasser von Bangladesch (Anawar *et al.*, 2004). HCO_3 entsteht beim Abbau von organischem Material und bei der Auflösung von Karbonatmineralen (Thi Hoa Mai *et al.*, 2014). Das umfassende Review von Thi Hoa Mai *et al.* (2014) kommt zu dem Fazit, dass Hydrogencarbonat sich nicht auf die Adsorption von Arsen auswirkt. Nach Saalfield *et al.* (2010) führt die Kombination aus Calcium (Ca) und Hydrogencarbonat zur Arsenfreisetzung bei neutralem pH-Wert. Ca und HCO_3 entstehen bei dem mikrobiellen Abbau von organischem Material (Saalfield & Bostick, 2010). Anawar *et al.* (2004) zeigen in Laborversuchen, dass HCO_3 (als NaHCO_3) unter oxidischen und anoxischen Bedingungen zur Freisetzung von Arsen führt, vermutlich durch Komplexierung. Geochemische Modellierungen von Appelo & Postma (2005) belegen, dass Austauschprozesse mit HCO_3 für die Arsenmobilität von zentraler Bedeutung sind.

Kieselsäure (Siliziumdioxid bzw. Silica (Si)) wird bei der Silikatverwitterung freigesetzt. Nach Alam *et al.* (2014) sind Silikate die bedeutendste primäre Quelle für das Arsen, bevor es sekundär in Eisenmineralen ausfällt. Seddique *et al.* (2008) vermuten, dass in den Aquiferen des Bengalischen Beckens vor allem das Schichtsilikat Biotit ein Hauptträger des Arsens ist. Basierend auf Modellierungen gehen Swartz *et al.* (2004) davon aus, dass Silica die meisten Adsorptionsflächen belegt. Luxton *et al.* (2008) beobachten, dass Silica zwar langsamer an Oberflächen adsorbiert als Arsen, allerdings einen Teil des bereits adsorbierten Arsens dauerhaft verdrängen kann.

Auch **organisches Material** kann mit Arsen um Sorptionsplätze konkurrieren (Wang & Mulligan, 2009).

In Abbildung 3-3 sind die relevanten Prozesse der Arsenmobilität zusammengefasst.

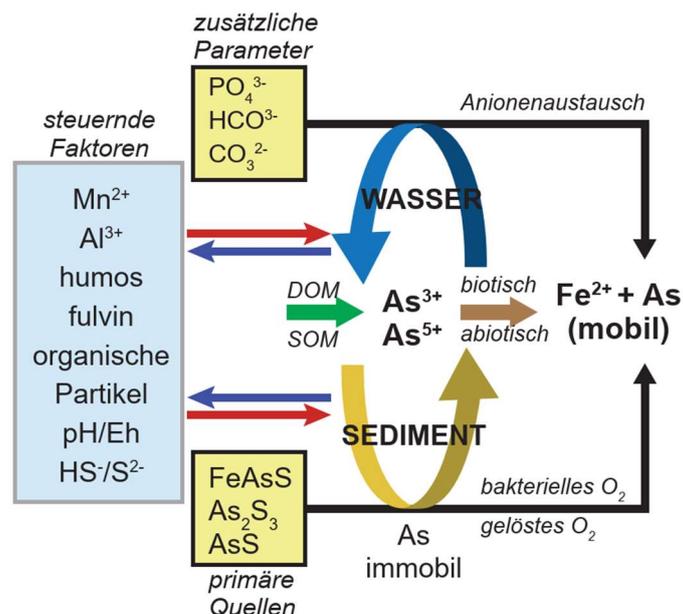


Abbildung 3-3: Grafische Übersicht der relevanten Prozesse hinsichtlich der Arsenmobilität (verändert nach Tareq *et al.* 2010).

3.8 Grundwassernutzung

Grundwasser wird in Bangladesch überwiegend für die Bewässerung von Reis entnommen. Gleichzeitig beschreiben einige Arbeiten auch die Auswirkungen der hohen Wasserentnahmen durch die Hauptstadt Dhaka auf die Brunnen der umliegenden Städte und Dörfer (Mozumder *et al.*, 2020).

Die starke Wasserentnahme wird als besonders kritisch für die Arsenmobilität betrachtet. Aufgrund des niedrigen Gradienten und der natürlicherweise sehr langsamen Grundwasserfließgeschwindigkeit führen große Wasserentnahmen zu einer starken Veränderung der hydraulischen Bedingungen im Untergrund, d.h. starken Absenkungen im Entnahmebereich. Dadurch verändert sich lokal die Grundwasserfließrichtung (Ahmed *et al.*, 2004). Die Umkehr der Grundwasserfließrichtung führt dazu, dass Wasser nicht von den Aquiferen in die Oberflächengewässer, wie Flüsse, abfließt, sondern von den Oberflächengewässern in die Aquifere infiltriert (Radloff *et al.*, 2017). Dies kann zur Infiltration von organischem Kohlenstoff führen, der wiederum für die Mobilisierung von Arsen verantwortlich gemacht wird (Kap. 3.3).

Eine Vielzahl an Arbeiten belegt, dass die starke Wasserentnahme für die Bewässerung zu einer deutlich schnelleren Grundwasserneubildung führt. Dadurch werden Oberflächenwasser sowie Niederschlagswasser schneller in die Tiefe gezogen, zusammen mit den darin gelösten Stoffen (Lawson *et al.*, 2013, S. 20; Chakraborty *et al.*, 2020; Nowreen *et al.*, 2020). Nach Harvey *et al.*, (2002) erreicht in Regionen mit starker Bewässerung (hier: Munshiganj, Zentral-Bangladesch, südlich von Dhaka) das Wasser innerhalb von 6,8 bis 28 Jahren eine Tiefe von 30m. Dies entspricht Grundwasserneubildungsraten von 400 bis 1000mm/a. Mihajlov *et al.* (2016) belegen anhand von Tritium (^3H), einem für Nuklear- und Wasserstoffbomben charakteristisches Wasserstoffisotop, dass 50% der flachen Brunnen (<90m, in Araihasar, NO von Dhaka) maximal 60 Jahre altes Grundwasser fördern. In komplexen Aquiferen mit zwischengelagerten, ton- und organikreichen Aquitarden können die hohen Pumpraten zu einer Freisetzung des organischen Kohlenstoffs aus den Tonlagen führen, der wiederum mikrobiell verstoffwechselt wird und die Arsenmobilität anregt (Mihajlov *et al.*, 2020; Mozumder *et al.*, 2020).

Radloff *et al.* (2017a) gehen hingegen davon aus, dass kein Kohlenstoffeintrag notwendig ist, um die hohen Arsengehalte zu erklären. Sie vermuten, dass die starke Wasserentnahme zur verstärkten Durchspülung und Störung des chemischen Gleichgewichts im Grundwasser führen (Araihasar, NO von Dhaka) wodurch das Arsen mobil wird. Harvey *et al.* (2005) postulieren, dass die hohe Wasserentnahme durch Bewässerungsbrunnen eine ausspülungsbedingte Abnahme der Arsengehalte im Grundwasser zur Folge hat. Allerdings wird das entnommene Arsen hierüber auf die Felder ausgebracht und organischer Kohlenstoff infiltriert in die Tiefe. Bewässerung verändert Harvey *et al.* (2006) zufolge das gesamte geochemische Gleichgewicht im Aquifer sowie den Ort, den Zeitpunkt und die Menge an Grundwasserneubildung. Die Störung dieses komplexen Systems hat damit noch ungeklärte Folgen (Harvey *et al.*, 2005).

Polizzotto *et al.* (2008) weisen darauf hin, dass Bewässerung nicht zwangsläufig eine Ursache für die Arsenmobilität ist. Sie führen ebenfalls hohe Arsengehalte an einem Standort ohne Bewässerung in Kambodscha darauf zurück, dass Arsen aus oberflächennahen Sedimenten über lange Zeiträume hinweg mobilisiert wird und auch schon vor anthropogenen Einflüssen stattgefunden hat.

3.9 Nährstoffeintragungspfade

Nährstoffverfügbarkeit, insbesondere über TOC, wird immer wieder als zentrale Ursache für hohe Arsengehalte genannt (siehe Kapitel 3.3). Der TOC kann sedimentär gebunden vorliegen, beispielsweise in Torflagen oder organikreichen Schluffschichten (McArthur *et al.*, 2004) oder über Oberflächengewässer sowie über Niederschlagswasser eingetragen werden (Aziz Hasan *et al.*, 2009; Wallis *et al.*, 2020).

Natürliche, sedimentäre Quellen für organischen Kohlenstoff sind in Bangladesch vielfältig. Torflagen sowie historisch und rezent stark bewachsene Feuchtgebietsflächen liefern einigen Studien zufolge den organischen Kohlenstoff in Bangladesch (McArthur *et al.*, 2004; Meharg *et al.*, 2006). Donselaar *et al.* (2017) stellen basierend auf Arbeiten in Indien (Bhojpur, NO Indien) fest, dass der organische Kohlenstoff überwiegend aus tonigen Bereichen abgeschnittener und trockenfallender Flussmäander stammt. Diese treten in den stark verzweigten und mäandrierenden Flusssystemen von Ganges, Brahmaputra und Meghna sehr häufig auf. Der freigesetzte Kohlenstoff führt zur Freisetzung von Arsen in den angrenzenden, sandigen Aquiferbereichen (Donselaar *et al.*, 2017).

Organikreiche Sedimentschichten sind allerdings nicht nur eine Quelle für Kohlenstoff, sondern häufig auch eine Senke für Arsen. Anawar *et al.* (2013) beschreiben, dass Komplexe mit Eisen und organischem Kohlenstoff ebenfalls erhöhte Arsenmengen enthalten können. Als Ursache für vereinzelt erhöhte Arsengehalte in kohlenstoffreichen Lagen sehen sie die Bioakkumulation von Arsen in manchen Pflanzenarten. So genannte Hyperakkumulatoren können große Mengen an Arsen aufnehmen. Gleichzeitig gehen die Autoren davon aus, dass der Eintrag von frischen Kohlenstoffverbindungen stärker zur Arsenmobilität beiträgt als der sedimentäre Kohlenstoff.

Weitere natürliche Quellen für organischen Kohlenstoff sind **Flüsse und natürliche Feuchtgebiete**. Hier spielt nicht nur organischer Kohlenstoff, sondern auch Methan eine zentrale Rolle für die Arsenmobilität. Arbeiten aus Vietnam und China legen nahe, dass über Flüsse eingetragener organischer Kohlenstoff zur Arsenmobilität führt (Wallis *et al.*, 2020; Stopelli *et al.*, 2021). Stopelli *et al.* (2021) gehen davon aus, dass nicht nur Methanoxidation (Glodowska 2020b), sondern auch Methanogenese zur Arsenmobilität beiträgt. Nach (Shi *et al.*, 2020) ist ein Viertel bis die Hälfte an Arsen im Grundwasser auf anaerobe Methanoxidation zurückzuführen, die mit Eisen- und Arsenreduktion einhergeht. Zhang *et al.* (2017) belegen allerdings, dass in Abhängigkeit von vorherrschenden mikrobiellen Gesellschaften, geochemischer Wasserzusammensetzung (z.B. Schwefelverfügbarkeit), Art an organischem Material und geochemischen Bedingungen (pH, Redox, Temperatur, Sauerstoff) Feuchtgebiete sowohl Quelle als auch Senke für Arsen sein können.

Neben der Bewässerung werden auch Stoffeinträge aus der **Landwirtschaft**, wie Düngemittel, kritisch betrachtet (Ayers *et al.*, 2016). Phosphat konkurriert mit Arsen um Sorptionsoberflächen und wird, basierend auf Laborversuchen, als Ursache für Arsenmobilität beschrieben (Anawar *et al.*, 2006; Lin *et al.*, 2016). In Bangladesch wird überwiegend Urea (Stickstoff-Verbindung) als Düngemittel eingesetzt (siehe Kapitel 2). Die hohe Korrelation zwischen Arsen- und Ammonium (NH₄) -Gehalten im Grundwasser von Bangladesch werden häufig durch natürliche Organik, wie Torflagen, erklärt (McArthur *et al.*, 2004). Nach Uddin *et al.* (2011) entspricht die Isotopensignatur des Stickstoffs ($\delta^{15}\text{N}$) im Grundwasser an ihrem Standort (Samta Village, SW Bangladesch) dem von aus Luftstickstoff gewonnenem Stickstoffdünger. Auch die Zugabe von organischem Material als Düngemittel kann die Arsenmobilität im Oberflächenwasser deutlich verstärken (Hossain *et al.*, 2021).

Versuche mit Reisfeldsediment aus Indien (Murshidabad, Westbengalen) weisen darauf hin, dass organischer Kohlenstoff aus dem nach der Ernte auf dem Feld verbleibenden Material ausreichend ist, um stark anoxische Bedingungen zu schaffen, damit Arsen mobil wird und in den oberen Aquifer zurückfließt (Farooq *et al.*, 2010). Andere Arbeiten gehen dagegen davon aus, dass Arsen in den Reisfeldern primär immobilisiert wird und eine Mobilisierung erst während des Monsuns stattfindet (Neumann *et al.*, 2009).

Ebenso diskutiert wird der Einfluss von **Tümpeln**, über die viel organischer Kohlenstoff durch Abwässer oder wirtschaftliche Nutzung eingetragen wird. Basierend auf Modellrechnungen (Harvey *et al.*, 2006) sowie Schwankung der Wasserstände in den Tümpeln (Zheng *et al.*, 2005) wird davon ausgegangen, dass Oberflächengewässer an ihren Untersuchungsstandorten (Araihazar, NO von Dhaka und Munshiganj, S von Dhaka) mit dem Grundwasser hydraulisch in Verbindung stehen. Die Grundwasserneubildungsrate aus Tümpeln ist mit 2230 mm/Jahr etwa doppelt so hoch wie die aus Reisfeldern (Stahl *et al.*, 2020).

Auf stabilen Isotopen ($\delta^{18}\text{O}$, $\delta^2\text{H}$) basierende Arbeiten gehen überwiegend davon aus, dass der Wassereintrag aus Tümpeln (Isotopensignatur mit Evaporationseinfluss) an ihren Standorten sehr gering ist - nämlich dem Meghna-Einzugsgebiet im Osten Bangladeschs (Aziz Hasan *et al.*, 2009), und in Westbengalen, Indien (Mukherjee *et al.*, 2007; Sengupta *et al.*, 2008; Datta *et al.*, 2011). Die Isotopensignatur weist primär auf Niederschlag als Grundwasserneubildungspfad hin (Mukherjee *et al.*, 2007; Aziz Hasan *et al.*, 2009). Sengupta *et al.* (2008) nehmen an, dass weder arsenbelastetes Oberflächenwasser noch organischer Kohlenstoff über Tümpel in das Grundwasser gelangt und schließen damit insgesamt einen Einfluss von Tümpeln auf die Arsenmobilität aus. McArthur *et al.* (2012) bestätigen diese Beobachtungen basierend auf Cl/Br-Verhältnissen (Westbengalen, Indien).

Biswas *et al.* (2014b) stellen, im Gegensatz zu den übrigen Arbeiten, einen Einfluss von Tümpeln und Feuchtgebieten an ihrem Standort (Westbengalen) anhand von Isotopen fest. Sie führen die Diskrepanz zu den anderen Arbeiten auf die Standortgeologie zurück und nehmen an, dass an Standorten mit mächtigen, tonigen-schluffigen Deckschichten kein Einfluss von Oberflächengewässern auftritt, an Standorten mit geringmächtigen Deckschichten hingegen schon. Auch Majumder *et al.* (2016) finden in flachem Grundwasser (Westbengalen, Indien) Isotopensignaturen von verschiedenen Oberflächengewässern. Cl/Br-Verhältnisse weisen außerdem auf eine vertikale Durchmischung der Wässer nach dem Monsun hin. Sie gehen davon aus, dass Evaporation und vertikale Durchmischung einen zentralen Einfluss auf die Arsenkonzentrationen in den Brunnen haben.

Genauere Untersuchungen der Ausbreitung von reaktiven Redoxfronten unter Tümpeln (Haushaltstümpel und Jute-Verarbeitungstümpel) weisen darauf hin, dass Tümpel nicht zur Arsenmobilität beitragen. Zwar entstehen durch den Kohlenstoffabbau sehr langsam unterhalb des Tümpels arsenmobilisierende, anoxische Verhältnisse, die sich jedoch nicht in weitere Tiefen verlagern. Hierdurch wird das Arsen unmittelbar unterhalb des Tümpels wieder immobil (Farooq *et al.*, 2012; Stahl *et al.*, 2020). Stahl *et al.* (2020) gehen davon aus, dass Tümpel eher eine Senke für Arsen als eine Quelle für TOC sind, da Arsen in den Tümpeln in Sulfiden und Eisenmineralen ausfällt. Sie vermuten einen stärkeren TOC-Eintrag durch natürliche Feuchtgebiete und Flüsse.

Auch über **Latrinen** kann organischer Kohlenstoff in das Grundwasser eingetragen werden. Als Indikator für Latrineneinfluss wird häufig die Belastung mit Kolibakterien (*E.coli*, wärmetolerante Coliforme) herangezogen. Ghosh *et al.* (2020) stellen eine positive Korrelation zwischen Arsen und

E.coli in flachen Brunnen (12-36m) von Westbengalen fest und vermuten, dass E.coli selbst zur Arsenmobilisierung beitragen. E.coli sind biologisch dazu in der Lage, Arsen zu reduzieren und damit zu mobilisieren (Mozumder *et al.*, 2020). Allerdings sind E.coli im Untergrund sehr immobil (Ravenscroft *et al.*, 2017). Über den Fäkalindikator Coprostanol und Cl/Br-Verhältnisse belegen Whaley-Martin *et al.* (2017) ebenfalls einen Zusammenhang zwischen TOC-reichem Abwassereinfluss und Arsengehalten in Brunnen (Araihazar, Bangladesch).

Am gleichen Standort (Araihazar) stellen Leber *et al.* (2011) hingegen keinen Zusammenhang zwischen Arsengehalten und E.coli fest. Sie führen diese Beobachtung auf die oberflächliche Tonlage zurück, durch die Kolibakterien zurückgehalten werden. Auch van Geen *et al.* (2011) finden einen negativen Zusammenhang zwischen Arsengehalten in Brunnen und Coliformen (Char Para & Matlab, O und W von Dhaka). Dabei sind sehr flache Brunnen (6-14m) häufiger mikrobiell belastet und weniger arsenbelastet aufgrund der Sauerstoffzufuhr bei der Grundwasserneubildung. Bei den stark arsenbelasteten Brunnen enthalten die tieferen (14-36m) mehr E.coli als die flachen (van Geen *et al.*, 2011). Aktuellere Studien weisen darauf hin, dass E.coli Bakterien primär über den Brunnen selbst in den Untergrund gelangen, z.B. über das Ansaugwasser, das zur Inbetriebnahme defekter oder länger nicht genutzter Handschwengelpumpen zugeführt werden muss (Ravenscroft *et al.*, 2017).

McArthur *et al.* (2012) kommen basierend auf Cl/Br-Verhältnissen als Indikator für anthropogene Abwassereinträge zu dem Schluss, dass in Bangladesch und Westbengalen etwa ein Viertel aller Brunnen mehr als 10% ungeklärtes Abwasser enthält. Sie vermuten, dass in unmittelbarer Nähe zur Latrinengrube Arsen zunächst immobilisiert wird, durch den Eintrag von Sauerstoff und Sauerstoffträgern wie Sulfat (SO₄). Ebenfalls durch die Latrinen eingetragener TOC wird langsam abgebaut und führt dadurch erst mit einem Abstand von etwa 30m zur Entstehung von anoxischen, arsenmobilisierenden Bedingungen. Hoque *et al.* (2014) stellen anhand von Cl/Br-Verhältnissen und Isotopen fest, dass in den Brunnen westlich von Dhaka (entlang Buriganga Fluss) hohe Anteile an Abwasser enthalten sind, im Gegensatz zu den übrigen Brunnen Dhakas. Dhaka liegt zum Großteil auf den Plio- bis Pleistozänen Deckschichten des Madhupur-Traktes, die das Grundwasser dort den Autoren zufolge vor Abwassereintrag schützen.

3.10 Räumliche und zeitliche Wirkung der Faktoren

In den meisten Regionen Bangladeschs weisen die Arsengehalte in den Brunnen eine hohe horizontale und vertikale Variabilität auf. Als Ursache kommen unterschiedliche Grundwasserströmungsmuster, Lage von Torfen sowie die Reaktivität und Abbaubarkeit von organischen Kohlenstoffverbindungen in Frage (Planer-Friedrich *et al.*, 2012), ebenso wie die sehr heterogenen geologischen Bedingungen mit unterschiedlich abgelagerten Sedimenten (Jakobsen *et al.*, 2018).

Das *et al.* (2021) zeigen anhand von Satellitenbilddatenauswertungen (Landsat) und Arsenmessungen an einem Standort in Westbengalen, dass hohe Arsengehalte besonders häufig im Bereich der älteren Deltaebene vorkommen. Sie stellen außerdem einen Zusammenhang zwischen Arsengehalten und geomorphologischen Merkmalen her. Die höchsten Arsengehalten finden sie bei Fluss-Altarmen, Sümpfen und anderen Wasserflächen. Räumliche Arbeiten zu Landnutzungsform (Landwirtschaft, Oberflächengewässer, Abwassereintrag) stellen einen Zusammenhang zwischen Arsengehalten in Brunnen und Abwassereintrag fest (Bhowmick *et al.*, 2013; Chatterjee *et al.*, 2017).

Basierend auf großräumigen und saisonalen Fernerkundungs- und Gewässerdaten aus Kambodscha, sowie geochemischen Grundwasserdaten stellen Connolly *et al.* (2022) einen eindeutigen

Zusammenhang zwischen der Überflutungsdauer und der Überflutungsfrequenz sowie den Arsengehalten in den Brunnen fest. Sie beobachteten außerdem einen Zusammenhang zwischen der Überflutung und der räumlichen Variabilität der Arsengehalte in den Brunnen. Ihre Auswertung der geochemischen Daten weist außerdem positive Korrelationen zwischen starken Überflutungen und hohen Gehalten an Fe, DOC, NH_4 sowie geringen SO_4 -Gehalten auf. Das anhand von Daten aus Kambodscha erstellte Modell zur Vorhersage von potenziell arsenbelasteten Brunnen ließ sich außerdem mit sehr hoher Treffergenauigkeit (83-94%) auch auf Vietnam und Bangladesch anwenden.

Temporäre Veränderungen der Arsengehalte werden überwiegend mit der Monsunzirkulation in Zusammenhang gebracht. Bisherige Arbeiten dazu kommen zu unterschiedlichen Ergebnissen. Majumder *et al.* (2016) stellen in Westbengalen eine geringfügige (7%) Zunahme der Arsengehalte in der Nachmonsunzeit fest, die sich auch in höheren Anteilen an As(III) zeigt. Ebenfalls erhöht sind dabei DOC und HCO_3 . Einen Unterschied zwischen Vormonsunzeit und Monsunzeit können Kulkarni *et al.* (2018) im Gegensatz dazu nicht beobachten. Die untersuchten flachen Brunnen (<40m) ihrer Studie in Westbengalen zeigen zwar Grundwasserneubildung während der Regenzeit, diese wirkt sich jedoch nicht auf die Arsengehalte aus, sondern nur auf Nitrat und Nitrit.

Mehrere Arbeiten aus Westbengalen und Bangladesch (Araihazar) beobachten saisonale Schwankungen der Arsengehalte, allerdings nur in vereinzelt Brunnen und ebenfalls ohne eindeutigen Trend. Einige Brunnen zeigen ansteigende, andere absinkende Arsengehalte und weitere keine Änderung des Arsens während der Regenzeit (Dhar *et al.*, 2008; Farooq *et al.*, 2011). Biswas *et al.* (2014a) stellen vor allem eine räumliche Variabilität der Arsengehalte in Westbengalen fest. Saisonale Schwankungen zeigten sich nur in flachen Brunnen (<30m), und waren auf Pyritoxidation zurückzuführen. Insgesamt beschreiben die Autoren einen ansteigenden Trend in den Arsengehalten über die 20 Monate des Studienverlaufs. Während des Monsuns führte verstärkte Grundwasserneubildung zu Verdünnungseffekten und entsprechend niedrigeren Arsengehalten in den flachen Brunnen (Biswas *et al.*, 2014a). Tareq *et al.* (2003) stellen an ihren Standorten in Faridpur und Sonargaon (S und SO-Bangladesch) ebenfalls keine eindeutigen saisonalen Schwankungen fest. Sie beobachteten nur lokal geringfügige und unregelmäßige Variationen im Arsengehalt im Rahmen von 10-16%.

Tiefenzionierte, saisonale Arbeiten aus Bangladesch zeigen über alle Tiefen hinweg einen Zusammenhang zwischen Arsen und DOC, unabhängig von saisonalen Einflüssen (Planer-Friedrich *et al.*, 2012). Lediglich in der Tiefe mit den höchsten Arsengehalten (37 m u. GOK) ist der Zusammenhang invers: die höchsten Arsengehalte wurden während der Regenzeit gemessen. Zu dieser Zeit waren die DOC-Gehalte am geringsten. Während der Trockenzeit gingen hohe DOC-Gehalte mit geringen Arsengehalten einher. Die Autoren führen diese Beobachtung auf die Adsorptionskapazität von DOC zurück, an dem das Arsen adsorbiert werden kann.

Bisher gibt es nur wenige Arbeiten zu den Auswirkungen der monsunalen Überflutung und wie die Wasserbedeckung sich auf die im Untergrund ablaufenden Redoxbedingungen auswirkt. Burton *et al.* (2014) untersuchten Bodenproben im Labor und konnten feststellen, dass es durch die Überflutung eine Arsenfreisetzung erfolgt, wenn diese nicht in Sulfiden wie Pyrit oder Mackinawit gebunden werden. Stuckey *et al.* (2015) führten im Mekongdelta Geländeversuche und Inkubationsversuche im Labor durch und beobachteten, dass Arsen nur in permanent wassergesättigten Feuchtgebieten freigesetzt wird. Das Arsen stammt dabei aus den oberflächennahen, arsenreichen Sedimenten, da dort ausreichend reaktiver Kohlenstoff verfügbar ist, um die Redox-Prozesse anzutreiben.

Insgesamt weist die Gesamtheit bisheriger Forschung darauf hin, dass die durch (Über)Flutungen ausgelösten geochemischen Prozesse von zentraler Bedeutung für die Arsenmobilität sind. Allerdings widersprechen sich einige der Annahmen im Hinblick auf die dadurch ablaufenden Prozesse, insbesondere im Hinblick auf den Kohlenstoffkreislauf und die saisonale Variabilität. Als ein zentrales Problem hierfür kann identifiziert werden, dass die Studien Daten auf unterschiedlichen Maßstabsebenen erzeugen. Eine Verknüpfung von großflächigen flächenhaften Daten und brunnenbezogenen geochemischen Daten ist nur über den Einbezug tiefenzonierter Proben möglich, worüber oberflächennahe geochemische Prozesse mit jenen in der Tiefe in Zusammenhang gebracht werden könnten. Ebendies war ursprünglich im Rahmen dieser Arbeit vorgesehen, jedoch aufgrund von Corona nicht möglich. Allerdings konnten für ein besseres Verständnis der geochemischen Prozesse des Kohlenstoffkreislaufs, die im Detail untersucht werden konnten, kleinräumig verfügbare neue Radar-Daten (Sentinel 1) einbezogen werden. Mit ihnen wurde geprüft, ob sie zur Beantwortung der o.g. Fragestellung geeignet sind.

4 Material und Methoden

Um die Ursache der ablaufenden geochemischen Prozesse besser zu verstehen, wurden die vorliegenden geochemische Daten mit kleinräumig klassifizierten Radar-Daten der Landnutzung in Zusammenhang gebracht (siehe Abbildung 4-1). Hierfür wurden vorprozessierte Radar-Daten zunächst semi-automatisch in drei Landnutzungsclassen (trocken, feucht, nass) klassifiziert. Die hohe zeitliche Auflösung der Radardaten ermöglicht eine Betrachtung monatlicher Änderungen dieser Landnutzungsflächen. Unter Einbezug von Niederschlagsdaten und Informationen zu Bewässerungspraktiken kann auf die Art der Überflutung (natürlich oder durch Bewässerung) rückgeschlossen werden.

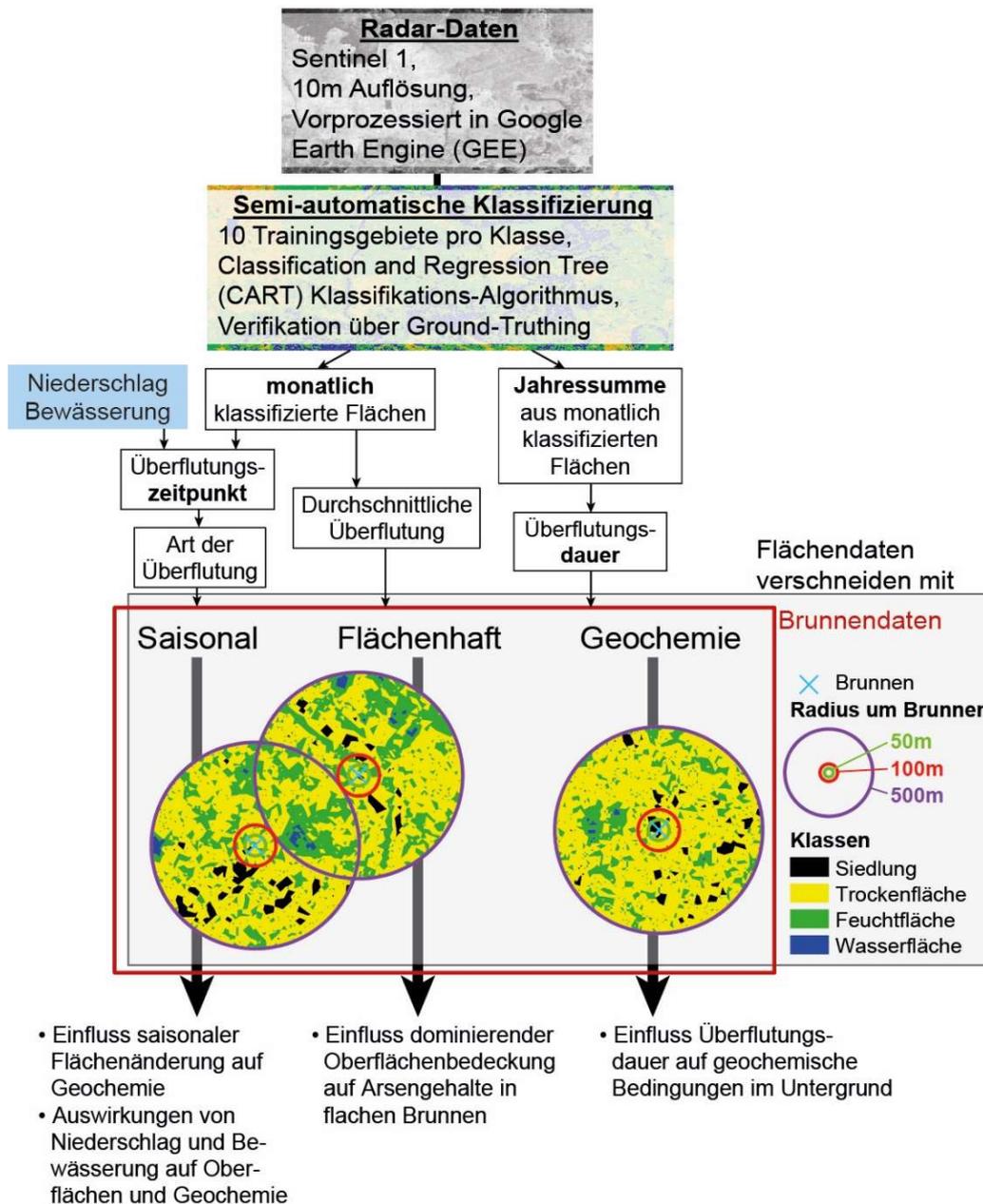


Abbildung 4-1: Grafische Zusammenfassung der Arbeitsschritte für die Aufbereitung und Klassifizierung der Satellitendaten, die gezielte Verschneidung mit den jeweiligen Brunnendaten und die daraus generierten Erkenntnisse.

Zusammen mit den saisonal vorliegenden geochemischen Daten der Brunnen am Standort Nabiganj konnte bewertet werden, ob sich diese Überflutungsereignisse auf die geochemischen Bedingungen im Untergrund auswirken. Über die Jahresbetrachtung der Daten kann darüber rückgeschlossen werden, in welcher Landnutzungsklasse sich eine Fläche die meiste Zeit des Jahres befindet. Zusammen mit dem flächenhaft vorliegenden Datensatz sowie den geochemischen Datensätzen aller Standorte konnte bewertet werden, ob die im Jahresverlauf prominente Landnutzung eine Auswirkung auf die Arsengehalte in den Brunnen hat.

Der größte Datensatz am Standort Habiganj wurde im Rahmen anderer Studien sowie Kooperationsprojekten erhoben. Aufbauend auf ein langjähriges Forschungsprojekt „Food and Agricultural Approaches to Reducing Malnutrition“ (FAARM) des Heidelberg Institutes for Global Health (HIGH), die mittlerweile am Potsdamer Institut für Klimafolgenforschung (PIK) zusammen mit Helen Keller International (HKI) weitergeführt wird, wurde die vorliegende Infrastruktur für ein vom Heidelberg Center for the Environment (HCE) finanzierten interdisziplinären Projektes zwischen dem HIGH, dem Institut für Geowissenschaften Heidelberg (GEOW) und dem Geographischen Institut (GEOGR) Heidelberg genutzt. Weitere Datensätze wurden in Kooperation mit der Hilfsorganisation AGAPE e.V. Heidelberg bzw. der angegliederten örtlichen NGO AGAPE Bangladesh erhoben. Außerdem unterstützt die Johannes Hübner Stiftung, in Gießen, über ein Stipendium für die Autorin das Projekt. Alle Quellen und Geldgeber sind vollständig in Tabelle 4-1 aufgeführt. An allen in der Tabelle enthaltenen Projekte war die Autorin dieser Arbeit überwiegend (diese Promotion) oder teilweise (HCE-Start, FAARM) mit beteiligt.

Tabelle 4-1: Übersicht der zugrundeliegenden Projekte, Kooperationen und Finanzierungen.

Datensatz	Projekt	Kooperation	Partner/Finanzierung
Detail-Geochemie Sirajganj/Pabna, Chandpur, Habiganj	Diese Promotion	GEOW Geographisches Institut	Johannes Hübner Stiftung, Gießen Forschungsdezernat der Universität Heidelberg AGAPE e.V./ AGAPE Bangladesh
Sediment (Bera und Korgaon)	Diese Promotion	GEOW Geographisches Institut	Johannes Hübner Stiftung, Gießen AGAPE e.V. AGAPE Bangladesh
FAARM Endline Habiganj, Grundwasser und Sozioökonomie	FAARM HCE-Start Projekt	HIGH/PIK GEOW GEOGR	HCE HKI/HIGH/GEOW Johannes Hübner Stiftung, Gießen
FAARM seasonal Habiganj	FAARM	HIGH/PIK GEOW GEOGR	HCE HKI/HIGH/GEOW Johannes Hübner Stiftung, Gießen

4 Material und Methoden

4.1 Quantitative Fragebögen

Quantitativen Fragebögen wurden im Rahmen des FAARM-Projektes vom Heidelberger Institut für Global Health (S. Gabrysch, A. Wendt, J. Waid) erstellt und durchgeführt (Wendt *et al.*, 2019). Ein Teil der Datensätze wurde für die vorliegende Dissertation zur Verfügung gestellt. Befragt wurden alle 1441 Haushalte der FAARM-Studie, die eine zufällige Auswahl an Haushalten pro Dorf in der Region Habiganj, Sylhet, umfasste. Die Brunnen der Teilnehmer wurden mit ID-Nummern versehen, um eine Verwechslung auszuschließen, keine personenbezogenen Daten zu erheben und um eine wiederholte Probenahme im Rahmen der saisonalen Datenerhebung zu gewährleisten.

Die Fragebögen wurden mittels xls-Forms von Anna Müller (HIGH) erstellt und über die Plattform ONA (www.ona.io) verwaltet. Mittels eines mobilen Endgerätes (Tablet) konnte das eingewiesene lokale Außendienstpersonal die Daten erfassen und online direkt übermitteln. Auf den Tablets wurde hierfür die Fragebogensoftware ODK Collect verwendet. ODK Collect und ONA ermöglichen auch die Aufnahme von Standortkoordinaten über Global Positioning System (GPS) und Mobilfunk. Zusätzlich wurden Distanzen (z.B. zwischen Latrine und Brunnen) in Schritten gemessen und dokumentiert. Ein Schritt (= step) wurde nach umfangreichen Vergleichsmessungen auf 0,7m festgelegt. Zur weiteren Überprüfung der erhobenen Daten wurden zusätzlich Fotos von den Brunnen und Latrinen gemacht. Bei der Aufnahme der Brunnen sollte die nächstgelegene Latrine, wenn möglich, im Foto zu sehen sein.

Die Methode der quantitativen Fragebögen wurde für die Erhebung aller Standortdaten der Brunnen und Latrinen herangezogen sowie weiterer Informationen zu deren Nutzung. Außerdem wurde sie verwendet, um die klassifizierte Satellitenbilder über Ground-Truthing zu prüfen.

4.2 Wetter- und Klimadaten

Die vorliegenden Wetterdaten stammen vom Bangladesh Meteorological Department, Dhaka. Es wurden die Messdaten der Station Dhaka verwendet, aufgrund unvollständiger Datensätze bei kleineren Stationen. Die in dieser Arbeit verwendeten Niederschlagsdaten liegen als tägliche Messungen in mm vor.

Flächendeckende Niederschlagsmodelle wurden von der Climate Research Unit der University of East Anglia berechnet (Harris *et al.*, 2014; Fick & Hijmans, 2017). Sie wurden über die Homepage <https://www.worldclim.org/data/monthlywth.html> am 05.03.2021 abgerufen.

4.3 Räumliche Faktoren über GIS und Fernerkundung

Fernerkundung ermöglicht es, großflächige Veränderungen der Landoberfläche über längere Zeiträume zu erfassen. Neuere und aktive Messverfahren wie Radar können außerdem sehr hochaufgelöste Aufnahmen auch bei Wolkenbedeckung erstellen. Für die Auswertung müssen die Radardaten zunächst klassifiziert, d.h. unterschiedlichen Landnutzungsformen zugeordnet werden.

4.3.1 Nutzung von Satellitendaten

Für die Bewertung der Flächennutzung sowie der Überflutungsdynamik wurden Fernerkundungsdaten des Satelliten Sentinel 1 der European Space Agency (ESA) herangezogen. Sentinel 1 verfügt über ein C-Band Synthetic Aperture Radar (C-SAR), was für einen Netzfrequenzbereich von 8 bis 4 GHz steht, und einer Wellenlänge von 3,75 bis 7,5 cm entspricht. Diese Wellenlängen können dichte Wolken und die Atmosphäre durchdringen und somit auch während der Regenzeit durchgängig Daten der Erdoberfläche erfassen. Die Radarmessungen beruhen zudem auf einem aktiven Sensor und sind damit

tageslichtunabhängig. Das von der Erdoberfläche zurückgestreute Radarsignal ermöglicht Rückschlüsse über die Rauigkeit sowie den Wassergehalt der reflektierenden Oberfläche (ESA, 2021a, 2021b).

Das Radarsignal kann in horizontaler (H) oder vertikaler (V) Polarisierung sowohl ausgesendet als auch empfangen werden. Für die Detektion von Wasserflächen sind vertikal ausgesendete und ebenfalls vertikal empfangene Signale (VV) am geeignetsten (Clement *et al.*, 2018), weshalb in dieser Arbeit nur VV-Signale verwendet wurden.

Die Satelliten des Typs Sentinel 1 umkreisen die Erde meridian- und gegenläufig. Bangladesch wird alle 12 Tage überflogen. Durch die Gegenläufigkeit der Satelliten wird zwischen den Aufnahmewinkeln ascending (aufsteigend) und descending (absteigend) unterschieden. Für eine direkte Vergleichbarkeit wurden ausschließlich Daten mit dem Aufnahmewinkel „ascending“ gewählt.

Die Bearbeitung und Klassifizierung der Radar-Daten erfolgte über die Google Earth Engine (GEE) (Gorelick *et al.*, 2017). In der GEE sind die Sentinel 1 Radar-Daten bereits vorprozessiert zur Verfügung gestellt (GEE, 2021). Für die Arbeiten wurden Level 1 Ground Range Detected (GRD) Daten im Interferometric wide Swath Mode (IW) verwendet, die den Rückstreuungskoeffizienten (σ°) in Dezibel (dB) angeben. Der Rückstreuungskoeffizient zeigt an, wie gut die ausgesendete Mikrowellen-Strahlung vom auftreffenden Objekt zurückgeworfen wurde. Ist die Rückstreuung stark, kommen viele der ausgesendeten Strahlen wieder bei dem Sensor an ($\sigma^{\circ} > 0$). Eine geringe Rückstreuung ($\sigma^{\circ} < 0$) weist auf raue Oberflächen hin, die das Signal schlechter auf den Sensor zurückwerfen (GEE, 2021). Der Interferometric Wide Swath Mode ist der Hauptaufnahmemodus des Sensors. Dabei werden drei 250 km breite Streifen über mehrere versetzte und sich überlappende Aufnahmen mit einer räumlichen Auflösung von 5 x 20 m erfasst. Ein Datensatz besteht aus der Zusammenfügung aller Einzelaufnahmen (ESA, 2021a, Kapitel 2.2). Auf diese Weise ergibt sich eine räumliche Auflösung von 10 m pro Pixel im IW-Modus. Die Vorprozessierung in der GEE umfasst die Aktualisierung der Orbit-Daten, die Entfernung des GRD-Grundrauschens sowie von thermischem Rauschen, Radiometrische Kalibrierung und Terrain-Korrektur (Orthorektifizierung) (GEE, 2021). Alle nachfolgend beschriebenen Arbeiten erfolgten an jeweils einer Aufnahme pro Monat, die möglichst in der Monatsmitte (zwischen 10. und 20. des Monats) aufgenommen wurden.

Für die anschließende semi-automatische Klassifizierung in der GEE wurden zunächst Trainingsgebiete mit bekanntem Wasserbedeckungsgrad (Wasserfläche, Feuchtfläche, Trockenfläche, Siedlung) anhand von optischen Luftbildern (Sentinel 2) definiert. Danach wurden diese, zusammen mit den zu klassifizierenden Flächen, einem Klassifizierungs-Algorithmus übergeben, der jeden Pixel des Radar-Bildes einer der vorgegebenen vier Klassen zuordnet. Für die Klassifizierung wurde der Algorithmus CART (Classification and Regression Tree) verwendet. Zum Schluss wurden die klassifizierten Bilder auf die jeweiligen Untersuchungsgebiete (aoi = area of interest) zugeschnitten, die monatlichen Flächen berechnet und in eine Excel-Tabelle überführt. Eine Verifizierung des Algorithmus erfolgte über Ground-Truthing. Zur Auswertung der jährlichen Flächenanteile wurden bei der Klassifizierung den vier Flächen Werte zugeordnet, die eine spätere Differenzierung ermöglichen: waterbody = 10000, wetland = 100, dryland = 1, village = 0. Anschließend wurden die Rasterwerte des gesamten Jahres zusammenaddiert. Alle weiteren Arbeiten wurden mit ArcGIS oder Microsoft Excel durchgeführt.

4.3.2 GIS-basierte Analysen

Die Bewertung räumlicher Faktoren erfolgte über die Nutzung der Geoinformationssystem Software ArcGIS Desktop 10.6.1. Als Datengrundlage für Hintergrundkarten wurden sowohl die in ArcGIS

implementierten Datensätze (z.B. Ländergrenzen, Hauptstädte) von ESRI als auch Daten von Openstreetmap (z.B. Flussverläufe) herangezogen. Bei der Darstellung wurde in dem Geographischen Koordinatensystem WGS 84 (EPSG 4326) gearbeitet, in dem die erfassten Daten vorlagen. Die Berechnung von Flächen erfolgte nach Transformation der Daten in das projizierte lokale System Gulshan 303 / Bangladesh Transverse Mercator (EPSG 3106).

Um die klassifizierten Sentinel-Datensätze mit den Brunnendaten zu verknüpfen wurden diese in ArcGIS weiterbearbeitet. Basierend auf den Vorgaben deutscher Trinkwasserschutzgebiete konnte angenommen werden, dass die Landoberfläche im Umkreis von 50, 100 und 500 m Radius um einen Brunnen einen zentralen Einfluss auf dessen Wasserqualität hat (Bundesministerium für Umwelt Naturschutz nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz, 2012). Entsprechend der Schutzzone II (engere Schutzzone) ist jenes Einzugsgebiet zu schützen, von dem aus das Wasser in etwa 50 Tagen bis zur Entnahmestelle strömt. Aufgrund des extrem niedrigen Gradienten legt das Grundwasser in Bangladesch innerhalb eines Jahres maximal eine Strecke von 12m (berechnet aus v_f , Tabelle 2-2) zurück - wodurch die Schutzzone II nur wenige Meter umfassen würde. Dennoch wurde ein größerer Radius gewählt, um den Fehler durch die GPS- und Satellitendatenverortung zu relativieren. Zudem konnten im Rahmen der Studie nur Haushaltsbrunnen beprobt werden, die grundsätzlich in der Nähe von Siedlungsflächen liegen. Dadurch sind Trockenflächen im unmittelbaren Umkreis des Brunnens überrepräsentiert. Diese Überrepräsentation von Trockenflächen kann ebenfalls durch größere Radii etwas relativiert werden, bleibt jedoch ein relevanter systematischer Fehler. Außerdem kann nicht ausgeschlossen werden, dass Pumpvorgänge die Fließgeschwindigkeit beeinflussen (Harvey *et al.*, 2006). Um die Brunnen wurden entsprechend großer Puffer erstellt und mit den klassifizierten Daten über die Werkzeuge clip und intersect verknüpft. Pro Brunnen wurden ebenfalls die monatlichen bzw. jährlichen Flächenanteile im 50 m, 100 m und 500 m Radius berechnet und mit Excel ausgewertet. Von dem flächendeckenden Datensatz wurden hierfür nur die flachen Brunnen (<30m tief) herangezogen (Connolly *et al.*, 2022).

4.3.3 Ground-Truthing

„Ground-Truthing“ ist die Verifizierung der über Satellit detektierten und anschließend über trainierte Algorithmen klassifizierten Flächendaten. Hierfür müssen die vor Ort vorliegenden Bedingungen zum gleichen Zeitpunkt wie eine Satellitenbildaufnahme dokumentiert werden.

Die Klassifizierung erfolgte in drei Klassen mit folgender Definition:

- Trockenflächen: abgeerntete Reisfelder, Brachland, trockenes Ackerland, Weidefläche, keine Bebauung,
- Feuchtflächen: Moorgebiet, bewässertes Reisfeld,
- Wasserflächen: Flüsse, abgeschnittene Flussarme, Seen, Überflutungsflächen, größere Haushaltstümpel.

Hierfür wurden am 21.04.2021 und 22.04.2021 über das Untersuchungsgebiet Habiganj verteilte Punkte von einer Fachkraft vor Ort aufgesucht, an welchen die Oberflächenbedeckung eindeutig einer der drei Flächenklassen (Feuchtfläche, Wasserfläche, Trockenfläche) zugeordnet werden konnte. An dieser Stelle wurden die Koordinaten, ein Foto und die vorliegende Flächenbedeckung mittels eines digitalen

Fragebogens (ONA und ODK collect) aufgezeichnet. Insgesamt wurden 83 Punkte dokumentiert – etwa 30 pro Flächentyp.

Bangladesch wurde am 22.04.2021 von einem Sentinel 1-Satelliten (Ascending Orbit, VV Polarisation, IW-Mode) überflogen. Die dabei aufgezeichneten Radar-Daten wurden in der GEE mit dem gleichen Trainingsdatensatz und dem gleichen Klassifizierungs-Algorithmus (CART) wie die übrigen Flächen klassifiziert. Anschließend wurden die klassifizierten Daten und die Ground-Truthing-Flächen übereinandergelegt und geprüft, ob die über Satellit detektierte Klasse der vor Ort feststellbaren Klasse entspricht. Um Fehler durch GPS-Ungenauigkeit und Verortung des Satellitenbildes mit zu berücksichtigen, wurden die klassifizierten Pixel im 5 m, 10 m und 20 m Radius um den verifizierten Punkt für die Bewertung herangezogen. Bei der Bewertung wurde lediglich beurteilt, ob sich im jeweiligen Umkreis um die punktuell am Boden verifizierte Oberfläche diese Oberflächenklasse in den klassifizierten Radardaten befindet. Welchen Flächenanteil diese Oberflächenklasse ausmacht, wurde im Feld nicht evaluiert.

4.4 Statistische Auswertung

Die statistische Auswertung und grafische Darstellung erfolgte über Microsoft Excel oder RStudio.

Für die kumulierten Jahresdaten wurden die Flächen der jeweiligen Kategorie zugeordnet, wenn sie mindestens sechs Monate im Jahr entsprechende Bedeckung (Wasser, Feuchtgebiet, Trockenfläche) aufwiesen.

4.5 Sedimentproben

Die Sedimentproben wurden im Rahmen einer Bachelorarbeit von Frau Susan Steinemann (Steinemann, 2020) am Institut für Geowissenschaften Heidelberg geöffnet, aufgenommen, bearbeitet und ausgewertet. Die Messungen erfolgten am Labor der Arbeitsgruppe Hydrogeochemie (mittlerweile AG Biogeochemie) am Institut für Geowissenschaften Heidelberg.

4.5.1 Sedimentprobenahme

Die Sedimentproben wurden an den Standorten Korgaon (Habiganj, Sylhet) und Bera-Batiakhara (Pabna, Rajshahi) gewonnen (siehe Abbildung 2-1). Die Probenahmen erfolgten am 18.02.2020 (Korgaon) und am 10.02.2020 (Bera-Batiakhara) alle drei Meter (etwa 10 ft) punktuell aus einer Brunnenbohrung. Diese erreichte an beiden Standorten eine Endteufe von rund 49 m (160 ft). Bei der Bohrung wurde ein lokal gängiges Verfahren angewendet: die „Hand-Flapper“-Methode, die auch als „Sludger“-Methode bezeichnet wird (Horneman *et al.*, 2004; Pal & Mukherjee, 2009).

Für das Verfahren wird ein PVC-Bohrgestänge mit einem Eisen-Bohrkopf manuell und ohne maschinelle Unterstützung in den Untergrund gestampft. Das Bohrloch muss hierfür durchgehend wassergesättigt sein, weshalb zu Beginn der Bohrung eine Kuhle ausgehoben wurde. Während der gesamten Bohrung ist ein kontinuierliches Nachfüllen von Wasser notwendig, wofür bei beiden Bohrungen Oberflächenwasser eines nahegelegenen Tümpels herangezogen wurde.

Das Bohrgut wird im Inneren des PVC-Bohrgestänges über Unterdruck mit dem Wasser nach oben befördert. Den Unterdruck im Gestänge erzeugt der Bohrmeister durch das Abdecken der Gestänge-Öffnung mit der Hand beim Hochziehen des gesamten Bohrgestänges. Beim anschließenden schnellen Abwärts-Stoßen des Bohrgestänges öffnet der Bohrmeister das Gestänge und das Bohrgut wird oben aus dem Gestänge gedrückt. Für die Probenahmen wurde das Bohrgut beim Austritt aus dem Gestänge

4 Material und Methoden

in einer Edelstahlschüssel aufgefangen und überschüssiges Wasser abgeschüttet. In der Schüssel wurden die Proben fotografisch dokumentiert und beprobt.

Für den Transport wurden die Sedimentproben in 50 ml Probenröhrchen gefüllt und durch Überschichtung mit Standortwasser luftdicht verschlossen.

4.5.2 Probenaufbereitung Sedimentproben

Am Institut für Geowissenschaften der Universität Heidelberg wurden die Probengefäße längs mit einem Trennschleifer geöffnet und die Farben noch einmal mithilfe der Munsell Soil Color Chart in feuchtem Zustand dokumentiert. Die anschließende Wassergehaltsbestimmung erfolgte abgewandelt nach DIN 38 414 (November 1985). Alle Analysen wurden an den getrockneten, manuell im Mörser gemahlenden und homogenisierten Proben vorgenommen.

Königswasseraufschluss

Die Königswasseraufschlüsse erfolgten verändert nach DIN EN ISO 15587-1 (Juli 2002). Pro Probe wurde zweimal 1 g (A+B Probe) eingewogen und jeweils 9 ml 65 %ige HNO₃ (p.a., Firma Kraft) sowie 3 ml 32 %ige HCl (p.a., Merck) zugegeben. Das Kochen erfolgte unter Rückfluss über 3 h in einem Heizblock (DigiPrep MS, SCP Science). Abschließend wurden die gekochten Proben auf 50 ml mit Bidest-Wasser aufgefüllt und durch einen Faltenfilter filtriert. Die Qualitätssicherung erfolgte über den Aufschluss der Standards Montana Soil 2711, Sandy Loam 9, BAM U112a sowie eine Blindprobe (Steinmann, 2020).

Eluate

Die Eluate wurden verändert nach Keon *et al.* (2001) in drei Schritten erzeugt:

- H₂O-Eluate, zur Feststellung von schwach oberflächlich gebundenem Arsen,
- Phosphat (PO₄)-Eluate für Erfassung des leicht desorbierbaren, oberflächlichen Arsens,
- Salzsäure (HCl)-Eluate, zur Ermittlung des in Sulfiden, Manganoxiden, Karbonaten und amorphen Eisenoxiden gebundenen Arsens.

Für die H₂O-Eluate wurden 3,5 g feuchte Probe mit Bidest-Wasser auf 40 ml aufgefüllt und auf einer Rüttelplatte (Edmund Bühler SM 25) mit 75 rpm für 24 h geschüttelt. Wegen des hohen Feinanteils wurden die Proben am nächsten Tag für 10-20 min auf 2000 Umdrehungen zentrifugiert und weitere drei Tage im Kühlschrank zur Absetzung des Feinmaterials gelagert. Anschließend wurde das überstehende Wasser abgezogen, wobei 5-10 ml Wasser-Sedimentgemisch im Röhrchen zurückblieben. Das abgezogene Wasser wurde durch 0,45 µm Spritzenaufsatz-Membranfilter in 15 ml Röhrchen filtriert und mit 6 M HCl auf pH 2 angesäuert.

Im nächsten Elutions-Schritt wurden dem verbliebenen Wasser-Sedimentgemisch 40 ml 1 M Natriumdihydrogenphosphat (NaH₂PO₄)-Lösung zugegeben. Nach 24 h bei 75 rpm auf dem Rütteltisch wurden diese ebenfalls abgezogen und mit 0,45 µm filtriert. Dem verbliebenen Rückstand wurden im letzten Schritt 20 ml 1 M HCl zugegeben und wie bei den vorherigen Elutions-Schritten verfahren (Steinmann, 2020). Bei den Phosphat- und Salzsäure-Elutionsschritten ist ein Ansäuern der abgezogenen Probe nicht notwendig. Für die Messung wurden die Proben 1:10 verdünnt.

4.5.3 Analysemethoden Sediment

Die Königswasser- und Eluatproben wurden mit den gleichen Messmethoden analysiert, wie die Grundwasserproben. Die Messverfahren sind in Kapitel 4.6.2 näher erläutert.

Kohlenstoffspezies Sediment

Die Messung der Kohlenstoffspezies erfolgte am Feststoff mit dem gleichen Messgerät wie bei den Wasser- und Eluatproben (TOC-VCPH, Shimadzu), allerdings mit angebautem Feststoffmodul (SSM-5000A). Für die Messung des Gesamtkohlenstoffs (TC) wurde etwa 100 mg eingewogener Probe etwa 1 g Vanadium-V-Oxid zugegeben, das die Verbrennung bei 900 °C katalysiert. Die Messung des gesamten anorganischen Kohlenstoffs (TIC) erfolgte an einer separaten Probe nach Zugabe von 0,75 ml 25%iger H₂PO₄ (Kraft) bei 200 °C. Der organische Kohlenstoffgehalt (TOC) berechnet sich aus der Differenz von gesamtem und anorganischem Kohlenstoff (TC-TIC).

4.6 Grundwasserproben

Die Grundwasserproben der Detailprobenahme 2019 (Korgaon, Tajpur, Jagannathpur) wurden im Rahmen der Bachelorarbeit von Helena Noé am Institut für Geowissenschaften ausgewertet (Noé, 2019). Alle Messungen erfolgten am Institut für Geowissenschaften.

4.6.1 Probenahme Grundwasser

Bei den beprobten Brunnen handelte es sich ausschließlich um Haushaltsbrunnen mit Handschwengelpumpen. Vor der Probenahme wurden Alter und Tiefe des Brunnens von den Besitzern erfragt. Die saisonale Probenahme erfolgte an einer räumlich verteilten, zufälligen, repräsentativen Auswahl an Brunnen am Standort Habiganj. Hierfür wurden etwa 10 tiefe und 50 flache Brunnen zwischen 2018 und 2019 insgesamt sechsmal beprobt: Februar 2018, Juni 2018, September 2018, Januar 2019, März 2019 und Mai 2019.

Die Detailprobenahme wurde im Februar 2019 sowie im Februar 2020 durchgeführt. Hierfür wurde an den Auslass des Brunnens mittels eines Silikontrichters und eines Schlauchs die Messzelle mit den Sonden für die Vor-Ort-Parameter Temperatur, pH-Wert, Redoxpotential (Eh), elektrische Leitfähigkeit (EL) und Sauerstoffgehalt (O₂) montiert. Für die Messung der Parameter kam ein WTW-Multi-Messgerät mit den Sonden SenTix®940 für pH-Wert und Temperatur, FDO 925 für O₂, SenTix® ORP-T 900 für Eh sowie Tetracon® 925 für EL zum Einsatz.

Die Messung des Redoxpotentials erfolgte mittels einer Silber-/Silberchlorid-Elektrode (Ag/AgCl 3 KCl mol/L, Au). Das Messergebnis wurde anschließend mit der Formel 4-1 auf den Korrigierten Eh_{Korr}, also das Redoxpotential normiert auf die Standardwasserstoffelektrode (SHE), umgerechnet. Die Sondenspezifischen Konstanten a=50301 und b=297 stammen von <https://www.wolkersdorfer.info/umrechnungsfaktoren-fuer-redoxsonden.html> (zuletzt aufgerufen am 31.12.2021). T ist die im Grundwasser gemessene Temperatur in °C.

$$Eh_{Korr} [mV] = Messwert_{Ag/AgCl} - 0,198 * (T - 25) + \sqrt{50301 - 297 * T} \quad 4-1$$

Vor der Probenahme wurde das Wasser im Brunnen einmal vollständig ausgetauscht. Hierfür wurde etwa 5-10 min gepumpt. Die Detailprobenahme erfolgte nach Stabilisierung der Vor-Ort-Parameter über einen Bypass vor der Messzelle. Die flächenhafte Grundwasserprobenahme sowie die saisonale Probenahme (Standort Habiganj) wurde ohne Messung der Vor-Ort-Parameter durchgeführt. Die Proben wurden nach dem Vorpumpen in ein Gefäß gefüllt und von dort in die Probenahmespritze aufgezogen. Es wurden zwei Probenröhrchen (Sarstedt 15 ml, rot und Graner 15 ml, blau) verwendet.

Die Kationenprobenahme (in 15 ml Sarstedt Röhrchen) erfolgte mit der Probenahmespritze 0,2 µm membranfiltriert (Zelluloseacetat, Whatman Paradise) und unmittelbar mit 100 µl 6 Molarer Salzsäure

4 Material und Methoden

auf $\text{pH} < 2$ angesäuert, um ein Ausfällen der oxidierbaren Inhaltsstoffe zu vermeiden. Die Proben für Anionen und Kohlenstoffspezies (in 15 ml Graner Röhrchen) wurden nur $0,2 \mu\text{m}$ filtriert und vollständig gefüllt, um die Sauerstoffzufuhr so gering wie möglich zu halten. Bei der flächendeckenden Probenahme wurden nur Kationenproben genommen und eine kleine Auswahl an Anionenproben für die Qualitätssicherung über die Ionenbilanz.

Alle Proben wurden arbeitstäglich in einen Kühlschrank überführt und bei etwa 4°C gelagert, um biologische Abbauprozesse zu vermeiden. Der Transport nach Deutschland erfolgte im Reisegepäck unter Verwendung von Kühllakkus. Eine lückenlose Kühlung war dadurch weitestgehend gewährleistet.

4.6.2 Analysemethoden Grundwasser

Die Hauptkationen Calcium (Ca), Kalium (K), Magnesium (Mg), Natrium (Na) und die Metalle bzw. Halbmetalle Aluminium (Al), Arsen (As), Cadmium (Cd), Cobalt (Co), Chrom (Cr), Kupfer (Cu), Eisen (Fe), Mangan (Mn), Nickel (Ni), Phosphor (P), Blei (Pb), Silizium (Si), Zink (Zn) wurden mittels Optischer Emissionsspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-OES, Agilent 720) und Argon als Trägergas gemessen. Die Messung von Arsengehalten $< 20 \mu\text{g/l}$ (bis $1 \mu\text{g/l}$) erfolgte an den verdünnten PO_4^- und HCl Eluaten separat über Hydridgenerierung (HG) mit der Methode nach Råde (1996) und mit den Referenzmaterialien SPS-SW1 und dem nicht-zertifizierten As(III)-Standard ($10 \mu\text{g/l}$ As(III)). Vor jeder Messung wurden Standards mit festen Konzentrationen sowie die Referenzmaterialien SPS-SW2, SPS-WW2, TMDA 61.3 gemessen. Während der Messreihe wurden in regelmäßigen Abständen ein Standard gemessen, um eine Veränderung im Messverlauf (drift) auszuschließen.

Die Ammoniummessung erfolgte an den angesäuerten, 1:10 verdünnten Proben mit dem Ammoniumtest Spectroquant (Merck) photometrisch (Spektralphotometer PECORD 50, Analytik Jena) mit der Wellenlänge 695 nm. Anionen (F, Cl, NO_3 , Br, SO_4 , NO_2 , PO_4) wurden mittels Ionenchromatograph (Dionex ICS 1100, Fischer Scientific) an den nicht angesäuerten, filtrierten Proben analysiert unter Verwendung des Referenzmaterials SPS-NUTR-WW1.

Die Messung der Kohlenstoffspezies erfolgte ebenfalls an den nicht angesäuerten Proben über Verbrennung und Infrarotdetektion (TOC-VCPH, Shimadzu). Aus der Messung des gesamten Kohlenstoffs (TC) und des gesamten anorganischen Kohlenstoffs (TIC) wird der organische Kohlenstoff (TOC) berechnet ($\text{TOC} = \text{TC} - \text{TIC}$). Bei den wässrigen Eluaten der Detailprobenahme 2020 kam es zu einem Gerätedefekt, weshalb diese noch einmal in einer anderen Verdünnung gemessen werden mussten.

4.7 Gasproben

Die Auswertung der Gasprobenahme 2019 erfolgte im Rahmen der Bachelorarbeit von Helena Noé (2019). Gemessen wurden die Proben am Institut für Geowissenschaften, Arbeitsgruppe Biogeochemie mit Unterstützung von M. Greule und D. Polag.

4.7.1 Probenahme Gas

Die Gasprobenahme erfolgte aus dem gleichen Probenahmesystem wie die Wasserprobenahme. Der luftdichte Anschluss des Silikontrichters an den Brunnenauslass führt bei stetigem Pumpen zum Überlaufen des Brunnens. Auf diese Weise ist sichergestellt, dass bei der Probenahme kein Luftsauerstoff in die Probe gelangt.

Für die Gasprobenahme wurde eine Spritze mit Drei-Wege-Hahn über Luer-Lock mit einer Heidelberger Verlängerung direkt an den Probenahmeschlauch angeschlossen. Somit konnte die Spritze ohne Lufteintrag gefüllt werden. Durch mehrmaliges Füllen und seitliches Ablassen wurden alle Luftblasen weitestgehend entfernt. Nach dem letzten Füllen wurde so viel Wasser abgelassen, bis nur noch 60 ml in der Probenspritze verblieben und der Hahn bis zur Zugabe von 40 ml Trägergas (2019 Argon, 2020 Helium) verschlossen. Probe und Trägergas wurden ca. 90 s geschüttelt, um das im Wasser gelöste Gas vollständig auszutreiben. Anschließend wurde die Gasphase über Luer-Lock-Hähne in eine Gasprobenspritze überführt und mit einer Kanüle in einen evakuierten 12 ml Glas-Exetainer gepresst.

4.7.2 Analysemethoden Gas

An den Gasproben wurde Wasserstoff (H₂), Sauerstoff (O₂) (nur bei den 2020 genommenen Proben mit He als Trägergas möglich), Stickstoff (N₂), Kohlenmonoxid (CO), Kohlenstoffdioxid (CO₂) und Methan (CH₄) mittels Gaschromatographie und Barriere-Ionisationsentladungsdetektor (GC-2010 Plus mit BID-2010 Plus und Autosampler AOC-20i, Shimadzu) gemessen. Als Trägergas wurde sehr reines Helium 6.0 verwendet. Eine ausführliche Beschreibung der Analytik kann Noé (2019) entnommen werden. Für die Messung wurden der Standard CH₄ 1000 ppm verwendet.

Für die Qualitätssicherung wurden 2019 Dreifachmessungen sowie A und B Probenahmen durchgeführt, was 2020 aufgrund zu geringer Probenmengen nicht möglich war. Nach etwa 10-12 Messungen wurde jeweils Laborluft – Methanstandard (10000 ppm Linde) – Laborluft gemessen, um eine Messabweichung über die Zeit (drift) erkennen zu können.

Anhand von Berechnungen nach Hartmann *et al.* (2017) wurden die gemessenen Methangehalte auf die Wassermenge bezogen. Aufgrund des Probenahmeverfahrens kann davon ausgegangen werden, dass das gesamte Methan im Headspace der ursprünglichen Methanmenge im Grundwasser entspricht.

4.8 Statistische Bewertung

Für die Auswertung sowie die Fehlerevaluation wurde das arithmetische Mittel (\bar{x}) (Formel 4-2) berechnet für die Einzelwerte x_i ($i = 1, \dots, n$). Ebenfalls bei vielen Messwerten angegeben ist der Median (bei der Größe nach angeordneten Werten der in der Mitte stehende Wert), da bei diesem Ausreißer weniger stark repräsentiert werden als beim arithmetischen Mittel. Alle Formeln und Angaben zu statistischen Berechnungen stammen aus gängigen Lehrbüchern (Harris, 2014; Ritgen, 2019; Puhani, 2020).

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad 4-2$$

Um den analytischen Fehler der Labormessgeräte zu beurteilen, wurden außerdem die Wiederfindung (Formel 4-3), die Standardabweichung (s) (Formel 4-4) und die relative Standardabweichung (Formel 4-5) der Referenzmaterialien aus allen durchgeführten Messungen berechnet.

$$\text{Wiederfindung [\%]} = \frac{\bar{x}_{\text{Messwerte}}}{\text{Soll}_{\text{Referenz}}} * 100 \quad 4-3$$

$$s = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \quad 4-4$$

$$\text{Relative Standardabweichung [\%]} = \frac{S}{\bar{x}} * 100 \quad 4-5$$

Für die Beurteilung des Zusammenhangs zwischen Oberflächenbedeckung und gemessener Grundwasserparameter wurde der Korrelationskoeffizient (r) nach Pearson berechnet (Formel 4-6) wobei n die Anzahl der Brunnen ist sowie \bar{x} und \bar{y} jeweils die arithmetischen Mittelwerte der n Wertepaare:

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad 4-6$$

Der Korrelationskoeffizient r gibt einen Grad für den linearen Zusammenhang zwischen zwei Parametern an und liegt zwischen -1 und 1. Ein Korrelationskoeffizient von -1 bzw. 1 bedeutet, dass sich die Daten ideal durch eine Gerade beschreiben lassen und einen negativen bzw. positiven Zusammenhang aufweisen. Ein Korrelationskoeffizient von 0 sagt aus, dass kein linearer Zusammenhang besteht.

Um zu prüfen, ob es sich bei den berechneten Korrelationskoeffizienten um einen signifikanten Zusammenhang handelt, wurde außerdem ein Student t-Test auf Basis der zweiseitigen t-Verteilung durchgeführt (Formel 4-7). Dabei ist r der Korrelationskoeffizient und n die Anzahl an Brunnen.

$$t = \frac{r \cdot \sqrt{n-2}}{\sqrt{1-r^2}} \quad 4-7$$

Eine Aussage über die Signifikanz lässt sich anhand des p-Wertes treffen, der über t und die Freiheitsgrade ($n - 2$) in Microsoft Excel mit der Funktion T.VERT.2S berechnet werden kann. Liegt der p-Wert unter 0,05 ist die Korrelation signifikant und es ist davon auszugehen, dass ein nicht zufälliger Zusammenhang besteht. Bei einem p-Wert unter 0,01 ist die Korrelation sehr signifikant und ein zufälliger Zusammenhang der Variablen sehr unwahrscheinlich.

4.9 Fehlerbetrachtung

Diese Arbeit behandelt eine Vielzahl an Analyse- und Auswertungsmethoden, bei denen verschiedene Fehlerquelle auftreten können.

4.9.1 Probenahmefehler

Der Probenahmefehler im Gelände birgt gewöhnlich die größtmögliche Fehlerquelle, lässt sich aber zumeist nur bedingt abschätzen. Aus diesem Grund wurde auf die Darstellung des analytischen Fehlers in den Diagrammen verzichtet, da der Probenahmefehler den analytischen Fehler mit Sicherheit übersteigt. In zukünftigen Arbeiten sollte, wenn möglich, auf professionelle Probenahmeverfahren (z.B. Rammkernsondierung, Probenahmepumpsysteme) zurückgegriffen werden.

Die Grundwasserprobenahme erfolgte über einfache Handschwengelpumpen, die vor der Probenahme 5 bis 10 Minuten vorgepumpt wurden, bei den Vor-Ort-Parametermessungen (Detailprobenahme) bis zur Stabilität der Parameter. Die Probenahme sollte an frischem Wasser aus dem Aquifer erfolgen und das stehende Wasser im Brunnen vorher zweifach ausgetauscht werden. Insbesondere bei tiefen Brunnen ist ein Vorpumpen von 10 Minuten vermutlich nicht ausreichend für einen entsprechenden Austausch, zumal die Pumpen teilweise schwergängig sind. Ebenfalls konnte nicht immer geprüft werden, ob tatsächlich 10 Minuten vorgepumpt wurde. Versandete oder anderweitig defekte Brunnen liefern außerdem häufig zu geringe Wassermengen, um einen mehrfachen Austausch zu gewährleisten.

Insbesondere bei der flächendeckenden Probenahme ist eine Qualitätssicherung über vor-Ort-Parameter oder Ionenbilanzen nicht möglich.

Das angewendete Bohrverfahren der Hand-Flapper-Methode für die Sedimentprobenahme ermöglicht keine tiefengenaue Beprobung, sondern Probenahmen über einen nicht exakt definierbaren Tiefenabschnitt. Die in Fuß angegebenen Tiefen basieren auf der Auskunft des Bohrteams und sind vermutlich Schätzungen. Außerdem ist durch das angewendete Spülbohrverfahren eine Verschleppung von Sedimenten aus anderen Tiefen nicht auszuschließen. Als Spülwasser wurde Oberflächenwasser aus nahegelegenen Tümpeln oder Flüssen verwendet, über das Querkontaminationen (z.B. Organik, Abwasser) eingetragen werden kann. Weiterhin wurde das Sediment nicht unter Luftsauerstoff-Abschluss konserviert und beprobt, weshalb Veränderungen durch Oxidation (z.B. Auflösung von Pyriten, Ausfällen von gelöstem Eisen) aufgetreten sind.

Bei den Gasproben kann von drei Fehlerquellen ausgegangen werden. Durch die Handpumpen der Haushaltsbrunnen ist nicht vollkommen auszuschließen, dass Ausgasungen stattfinden konnten oder Querkontaminationen durch Luftsauerstoff. Außerdem bleibt in den Ventilen und Luer-Lok-Verbindungsstücken des Probenahme-Equipments immer ein kleiner Rest an Luftsauerstoff zurück. Der größte Fehler wird durch die bei der Probenahme auftretende extreme Veränderung der Druckverhältnisse auftreten. Der geringere Druck an der Erdoberfläche führt zu Entgasung der Wasserprobe. Dieses Gas kann z.B. über die Öffnung oben am Handbrunnen entweichen und wird damit nicht über die Probe erfasst.

Ein weiterer Fehler entsteht über den langen Transportweg sowie die Lagerung der Proben. Bei der Detailprobenahme lagen zwischen Beprobung und Analyse 1 bis 5 Wochen. Bei den flächendeckenden und saisonalen Probenahmen kam es zu Lagerzeiten von bis zu 5 Monaten. Diese Lagerzeiten führen bei den nicht stabilisierten Anionen und Kohlenstoff-Spezies-Proben des Grundwassers zu sichtbaren Ausfällungen, die mit entsprechend niedrigeren Messwerten einhergehen. Der hierdurch entstehende Fehler kann über die Ionenbilanz abgeschätzt werden und liegt zwischen 0,25 und 4,13 %.

4.9.2 Analytischer Fehler

Die Sonden für die Bestimmung der vor-Ort Parameter haben laut Hersteller die in Tabelle 4-2 aufgeführte Genauigkeit.

Tabelle 4-2: Genauigkeiten der vor-Ort-Parameter-Sonden laut Hersteller.

Parameter und Sondentyp	Genauigkeit
pH-Wert WTW pH-Electrode SenTix®940	± 0,004
Temperatur WTW pH-Electrode SenTix®940	± 0,1 °C
Leitfähigkeit WTW TetraCon® 925 IDS	± 0,5 %
Sauerstoff WTW FDO® IDS	± 1,5 %
Redox WTW SenTix® ORP-T 900	± 0,2 mV

Aus den Messungen der Referenzmaterialien ergeben sich für die Grundwassermessungen die in Tabelle 4-3 aufgeführten Fehler.

4 Material und Methoden

Tabelle 4-3: Gemittelte Wiederfindung, Abweichung und Standardabweichung für alle durchgeführten Wasser-Messungen.

	SM	Kationen	As<20 µg/l	Anionen
Referenzmaterial	SPS-SW2 SPS-WW2 TMDA 61.3	SPS-SW2	SPS-SW1 As(III)	SPS-NUTR- WW1
Wiederfindung [%]	101,6	99,6	103,3	96,4
Standardabweichung	258,2	0,1	0,6	0,1
Rel. Std.abw. [%]	13,1	2,25	5,8	12,8

Die Qualität einer vollständigen Wasseranalyse (Hauptkationen + Anionen + Kohlenstoffspezies) kann zusätzlich über die Berechnung einer Ionenbilanz erfolgen. Bei einem natürlichen Grundwasser ist davon auszugehen, dass sich Anionen (negativ geladene Ionen) und Kationen (positiv geladene Ionen) im Gleichgewicht befinden. Weicht die Bilanz mehr als 5% von einem Gleichgewicht (0%) ab, kann dies verschiedene Ursachen haben: a) es handelt sich nicht um ein unbeeinflusstes Wasser, b) es ist bei der Probenahme zu einer Kontamination gekommen, c) die Probenhandhabung (z.B. falsche Lagerung) hat zu Fällungsprozessen geführt (Wisotzky, 2011). Die Ionenbilanz wird nach DIN 38402-62 wie in Formel 4-8 berechnet.

$$\text{Ionenbilanzfehler [\%]} = \frac{\text{Summe Kationen} - \text{Summe Anionen}}{\text{Summe Kationen} + \text{Summe Anionen}} * 100 \quad 4-8$$

Bei den saisonalen Daten lag der Ionenbilanzfehler bei allen Probenahmen im Bereich von 5%. Auch bei den Detailuntersuchungen war der Ionenbilanzfehler mit 0,25% extrem gering.

Tabelle 4-4: Ionenbilanzfehler der saisonalen Daten.

Jun 2018	Sep 2018	Jan 2019	März 2019	Mai 2019
2,53	4,13	-3,03	0,95	-0,25

Aus den Messungen der Referenzmaterialien ergeben sich für die Gas- und Sedimentmessungen die in Tabelle 4-5 aufgeführten Fehler. Ausnahme ist die Heterogenität, die aus den Mehrfachmessungen der Proben berechnet wurde. Sie ist der Mittelwert der relativen Standardabweichung.

Tabelle 4-5: Gemittelte Wiederfindung, Abweichung und Standardabweichung für alle durchgeführten Gas und Sediment-Messungen.

	Gelöste Gase	Sediment
Referenzmaterial	CH ₄ 1000 ppm	BAM U 112a
Wiederfindung [%]	98,4	96,3
Standardabweichung	208,1	0,02
Rel. Std.abw. [%]	21,2	0,2
Heterogenität*	9,8	5,4

* Mittelwert der relativen Standardabweichung zwischen den Doppelmessungen der Proben

4.9.3 Verortungsfehler

Bei der Fragebogensoftware ONA wird der GPS-Fehler miterfasst. Er lag bei der Datenerhebung der 1441 Brunnen zwischen 3 und 5 m, im Median bei 4,9 m. Dieser Fehler wurde beim Ground-Truthing durch entsprechend gewählte Radii berücksichtigt.

Die Verortung der Sentinel 1 Level 1A GRD-Daten ist mit einem Fehler von 14 bis 28 cm (range und azimuth - entspricht horizontalem und vertikalem Fehler) extrem gut. Maximale Verortungsfehler des Produkts liegen bei rund 1,8 m (Schubert *et al.*, 2015).

4.9.4 Klassifizierungsfehler

Die Auswertungen des Ground-Truthings zeigen insgesamt eine Trefferquote (per Satellit beobachtete Fläche tritt am Boden im angegebenen Radius tatsächlich auf) zwischen 48 und 63 % (Tabelle 4-6). Dabei ist deutlich zu erkennen, dass vor allem Wasserflächen über die Satellitenbild-Klassifikation nicht gut erfasst werden. Nur etwa 9 % der am Boden bestätigten Wasserflächen wurden auch bei der Klassifizierung im 20 m Radius um den am Boden erfassten Punkt festgestellt. Im 10 m Radius waren es nur noch 3 %. Keine der als Wasserfläche klassifizierten Flächen lag innerhalb des 5 m Radius um einen beim Ground-Truthing als Wasserfläche identifizierten Punkt. Die Diskrepanzen sind auf mehrere Ursachen zurückzuführen:

- Die geringe Größe der Wasserflächen: Bei einer Auflösung von 10 x 10 m pro Pixel (Auflösung der Radar-Daten) müssen größere Bereiche der Wasserfläche in einem Pixel liegen, damit die Fläche bei der Klassifikation als „Wasser“ eingestuft wird. Dadurch werden die meisten kleineren Tümpel und Teiche nicht miterfasst.
- Vegetation: Starker Pflanzenbewuchs auf einigen Wasserflächen führt zur Klassifikation als Feuchtfläche; aber auch dichter Baumbestand um die meisten Teiche verkleinert die sichtbare Wasserfläche von oben.
- Die Blickrichtung beim Ground-Truthing wurde nicht mitberücksichtigt.
- Verortungs-Ungenauigkeit (siehe Kapitel 4.9.3).
- Zeitliche Änderung: Zwischen der Satellitenbilddaufnahme und dem Zeitpunkt des durchgeführten Ground-Truthings können bis zu 40 Stunden liegen. Innerhalb dieser Zeit können sich Oberflächen, insbesondere durch Bewässerung, stark verändern.

Tabelle 4-6: Bewertung der Klassifizierungsqualität anhand des Ground-Truthings angegeben als prozentualer Anteil der per Satellit beobachteten Flächen, die am Boden im angegebenen Radius tatsächlich auftreten (richtig klassifiziert).

richtig klassifiziert	5 m Radius	10 m Radius	20 m Radius
Insgesamt	48 %	54 %	62 %
Trockenflächen	92 %	96 %	100 %
Feuchtflächen	73 %	85 %	100 %
Wasserflächen	0 %	3 %	9 %

Trockenflächen wurden dagegen mit einer Trefferquote von 92 bis 100 % hinreichend sicher erfasst. Das Ground-Truthing wurde zum Ende der Trockenzeit durchgeführt, in der Trockenflächen größere Bereiche ausmachen und besser über Satellit festgestellt werden können.

Auch die Feuchtflächen wurden mit einer Trefferquote zwischen 73 und 100 % relativ gut erfasst. Die Diskrepanz zwischen den klassifizierten und den im Gelände beobachteten Feuchtflächen im 5 m Radius könnte auf die zeitliche Komponente zurückzuführen sein. Auch der Bewuchs durch adulte Reispflanzen, die mit einer Höhe von bis zu einem Meter den feuchten Boden darunter verdecken, könnte möglicherweise zu Fehlklassifizierungen führen.

4 Material und Methoden

Insgesamt wird damit deutlich, dass die Detektion von Oberflächenbedeckung mit Radardaten und dem eingesetzten CART Klassifizierungsalgorithmus besonders gut für großflächig auftretende Oberflächen geeignet ist. Kleine Flächen (z.B. Tümpel) werden hingegen stark unterbewertet. Eine Unterbewertung der Überflutungsflächen während der Monsunmonate ist hingegen nicht anzunehmen.

4.9.5 Fragebogenfehler

Bei der Auswertung der Fragebögen ist problematisch, dass lediglich die nächstgelegene Latrine auf dem Grundstück des Brunnenbesitzers erfragt wurde. Dabei wurde nicht berücksichtigt, dass eventuell die Latrine des Nachbarn, z.B. durch eine Mauer abgetrennt, näher an dem Brunnen liegt oder die stark genutzten Latrinen einer Schule. Auch die Dichte an umliegenden Latrinen oder das Verhältnis Brunnen/Latrine kann auf der vorliegenden Datenerhebung nicht beurteilt werden, da nur ein kleiner Anteil an Brunnen und Latrinen pro Dorf erfasst wurde. Auch wie stark die Latrinen und Brunnen genutzt werden, ist nicht dokumentiert. Obwohl die Haushaltsgröße erfasst wurde, lässt sich dadurch nicht automatisch auf den Nutzungsumfang rückschließen. Der Latrintyp (septic, pit, drain) sowie die Latrintiefe wurde zwar erfasst, zeigten jedoch keinen Zusammenhang mit dem Arsengehalt im Brunnen. Weiterhin ist nicht auszuschließen, dass die Befragten fehlerhafte Angaben bei den Fragebögen machen.

Bei den Fragebögen des Ground-Truthings stellte sich heraus, dass eine Erfassung der Blickrichtung sinnvoll gewesen wäre, um die Daten genauer beurteilen zu können. Da jedoch auch der Verortungsfehler als weitere Fehlerquelle hinzukommt, ist die Nichtberücksichtigung der Blickrichtung als hinnehmbar zu betrachten.

4.9.6 Interpretationsfehler

Insgesamt zeigte sich, dass für die Interpretation aller Ergebnisse im Zusammenhang sowohl die Grundwasserfließrichtung als auch die Grundwasserfließgeschwindigkeit und die Grundwasserspiegelstände zentrale Größen sind, die möglichst kontinuierlich erfasst werden sollten. Es ist davon auszugehen, dass diese drei Parameter die Aussagekraft der vorliegenden Daten stark beeinflussen können. Allerdings sind diese Daten nicht verfügbar und waren trotz mehrfacher Anfrage nicht von den jeweils zuständigen Behörden zu erhalten.

Obwohl die Haushalte der FAARM-Studie zufällig ausgewählt wurden, führt bereits die Beprobung der Brunnen zu einer Verzerrung der Daten. Da es sich dabei ausschließlich um Haushaltsbrunnen handelt, sind die Flächen in unmittelbarer Nähe (2-10m) zu den Brunnen überwiegend Siedlungsfläche mit einem überproportionalen Anteil an Trockenflächen - da die Gebäude und damit die Brunnen zum Schutz vor Hochwasser auf Erhöhungen stehen. Andere Brunnen für Probenahmen standen nicht zur Verfügung. Um diese Verzerrung zu relativieren, wurden etwas größere Radii gewählt, um den Oberflächeneinfluss zu bewerten.

5 Ergebnisse

5.1 Sedimentärer Arsengehalt in Korgaon und Bera

Die Standorte zeigen einen unterschiedlichen Schichtenaufbau. In Bera bedeckt eine schluffige (grüne Signatur), etwa 12m mächtige Deckschicht eine darunter anschließende Sandlage (orange Signatur, Abbildung 5-1). Diese konnte bis in rund 49m Tiefe festgestellt werden. Am Standort Korgaon wurde fast durchgängig schluffiges Sediment vorgefunden, das zwischen 18 und 24m Tiefe sowie ab 49m Tiefe von Sanden, sowie zwischen 40 und 46m Tiefe von einer Tonlage (rosa Signatur) unterbrochen wurde (Abbildung 5-2). Die Tonlage war trocken und kann deshalb als stauende Schicht angesehen werden.

An beiden Standorten treten die höchsten Arsengehalte in den bindigen und TOC-reichen Schichten (grüne und rosa Signatur) auf. Trotz der großen räumlichen Distanz liegen diese feinkörnigen und organikreichen Schichten mit Tiefen von 0 bis 15 m (40 ft) und zwischen 40 (130 ft) bis 46 m (150 ft) in vergleichbaren Tiefen (Abbildung 5-1 und Abbildung 5-2).

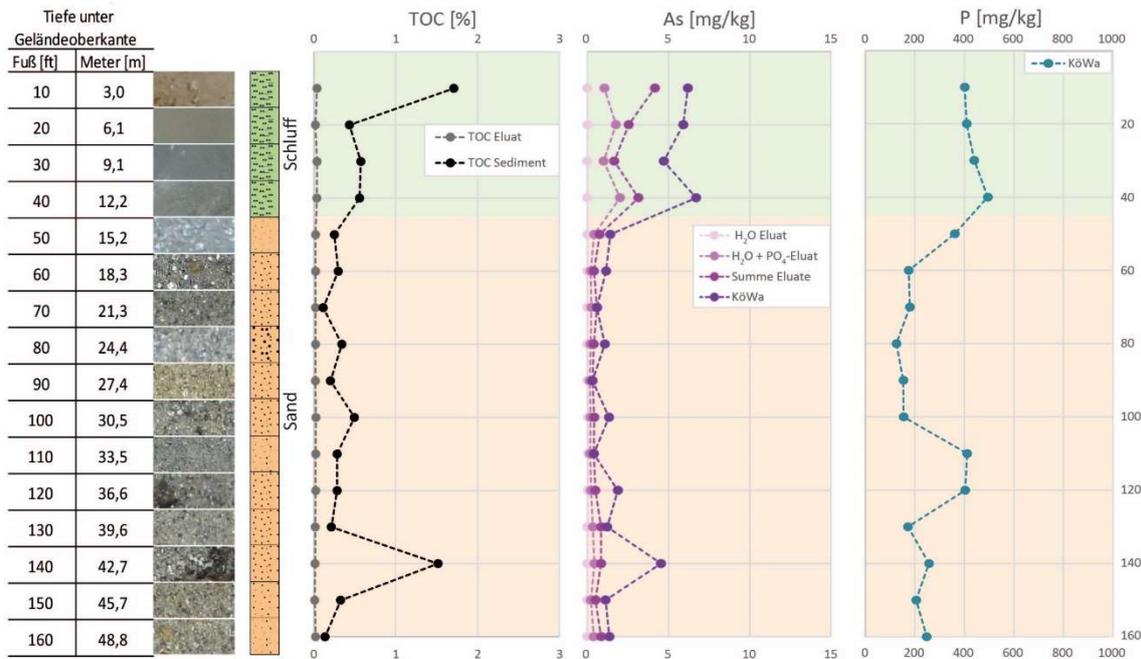


Abbildung 5-1: Bohrprofil Bera Bohrung 1 sowie TOC- und Arsen- und Phosphorgehalte in den Eluaten und im Königswasser. Die Korngrößen sind über die gesamte Tiefe interpoliert dargestellt, basieren jedoch auf einer Einzelprobe - in den Diagrammen als Punkte eingetragen.

In Bera steht in 0-12 m eine kalkreiche (hoher Anteil an IC, viel Calcium) schluffige Deckschicht an, die mehr Arsen (im Mittel rund 6 mg/kg), Eisen (Mittel etwa 33.000 mg/kg), Schwefel (Mittel ca. 177 mg/kg) und TOC (Mittel rund 0,8%, entspricht etwa 8.000 mg/kg) enthält als das übrige Profil (Abbildung 5-1). In den sandigen tieferen Lagen sind die Gehalte tendenziell gering (Arsen rund 1,4 mg/kg, Eisen etwa 10.000 mg/kg, Schwefel rund 50 mg/kg, TOC 0,5%) mit Ausnahme einer TOC (ca. 1,5%), Arsen (rund 4,5 mg/kg), Schwefel (etwa 270 mg/kg) und Eisen (rund 19.000 mg/kg)-reicheren Probe bei 42,7 m (140 ft). Eine außerordentlich ton- und organikreiche (9% TOC) Sonderprobe wurde außerdem in 36,6 m (120 ft) Tiefe entnommen - die weitaus höheren Parameter aller

5 Ergebnisse

Stoffe (38 mg/kg As, 10.000 mg/kg S) aufwies, jedoch aufgrund der extrem geringen Mächtigkeit nicht im Profil dargestellt ist. Im Mittel enthält das Sediment in Bera rund 2,5 mg/kg Arsen.

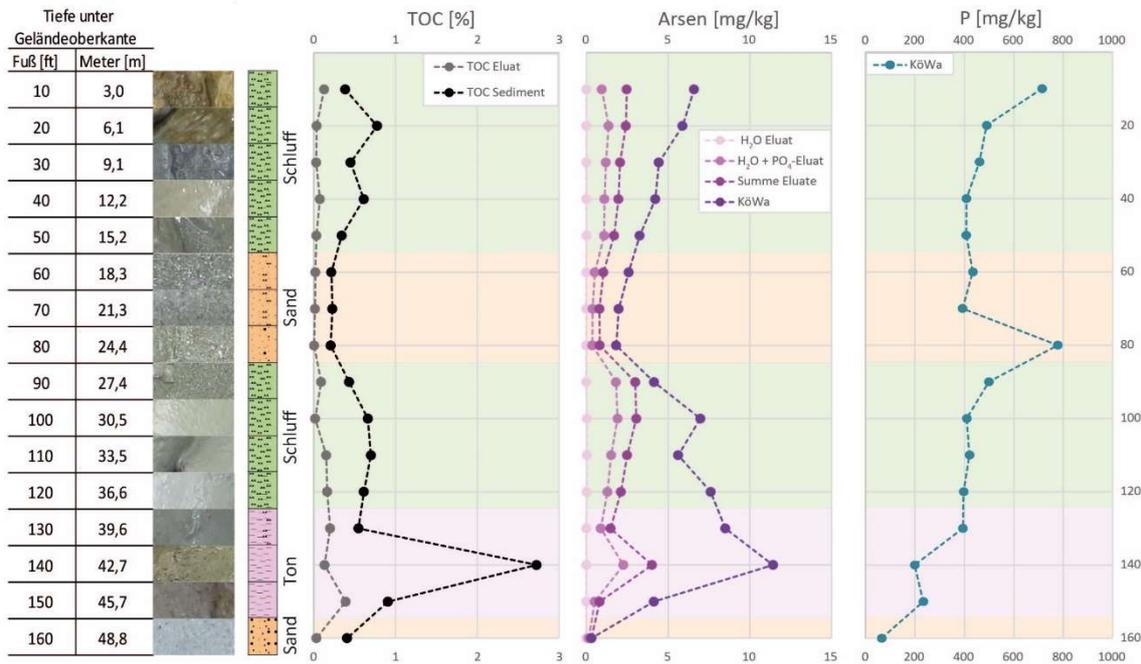


Abbildung 5-2: Bohrprofil Korgaon Bohrung 1 sowie TOC- und Arsen- und Phosphorgehalte in den Eluaten und im Königswasser. Die Korngrößen sind über die gesamte Tiefe interpoliert dargestellt, basieren jedoch auf einer Einzelprobe - in den Diagrammen als Punkte eingetragen.

In Korgaon sind die sedimentären Gehalte an Arsen mit im Mittel rund 5 mg/kg insgesamt höher als in Bera (Abbildung 5-2). Die Arsengehalte in den oberen, schluffigen Deckschichten (3 bis 15,2 m bzw. 10-50 ft) liegen zwischen 3 und 6 mg/kg Arsen mit nach unten abnehmendem Trend. In den sandigen unterlagernden Schichten (18,3-24,4 m bzw. 60-80 ft) wurden etwa 2 mg/kg Arsen im Mittel gemessen. Ab 27 m (90 ft) Tiefe nehmen die Arsengehalte stetig zu und erreichen ein Maximum von 11,4 mg/kg in der Tonlage bei 42,7 m (140 ft). Der darunterliegende Sandhorizont dagegen weist mit 0,5 mg/kg geringe Arsengehalte auf.

Das in dieser Tonlage gebundene Arsen ist in den Elutionen deutlich schlechter löslich. Lösungsprozesse aus dieser Schicht lassen sich ausschließen, da diese trocken ist, d.h. weitestgehend wasserundurchlässig. Die meisten Haushaltsbrunnen am Standort durchteufen diese mächtige Tonlage nicht und enden in 27 m Tiefe, wodurch sie Wasser überwiegend aus der Sandlage in 18 bis 24 m entnehmen.

Der wasserlösliche Anteil des Arsens lag in allen Proben beider Standorte unterhalb der Nachweisgrenze (0,4 mg/kg). Etwa 24% des gesamten sedimentären Arsens beider Standorte lassen sich mit PO₄ im Ionenauschangprozess von den Mineraloberflächen lösen. Die karbonatlöslichen Anteile (HCl-Eluat) liegen im Mittel in Bera bei etwa 28% und in Korgaon bei rund 19%.

Gesamte sedimentäre **Phosphorgehalte** zeigen an beiden Standorten einen vom Arsen abweichenden Verlauf. In Bera folgen sie in den oberen, schluffigen Schichten dem Konzentrationsprofil von Arsen mit den höchsten Gehalten (rund 500 mg/kg) bei etwa 12 m Tiefe. Im Gegensatz zu Arsen fallen die P-Gehalte mit weiterer Tiefe jedoch weniger drastisch ab und liegen in den Sanden mit Ausnahme zweier

erhöhter Werte (400mg/kg) in 33 bis 37m Tiefe nahezu durchgängig bei ± 200 mg/kg mit leicht zunehmendem Trend. In Korgaon nehmen die Phosphorgehalte im Sediment von oben (rund 700 mg/kg) nach unten ab (<100mg/kg) und zeigen keinen Zusammenhang mit vorherrschenden Korngrößen. Zwischen rund 12 und 40m unter GOK liegt der Phosphorgehalt fast durchgehend bei rund 400 mg/kg. Festzustellen sind allerdings zwei Maxima, die in 3 m und rund 24m Tiefe auftreten und damit in der aufliegenden Schluffdecke sowie im untersten Bereich des obersten sandigen Aquifers. In der Tonschicht mit den höchsten Arsengehalten sind die Phosphorgehalte etwas geringer als erwartet.

Hohe, bzw. erhöhte **TOC-Gehalte** im Sediment konnten in den oberen Deckschichten bis etwa 12m Tiefe festgestellt werden. In Bera erreichen sie einen TOC-Gehalt von 1,7% in den obersten 3m und in Korgaon konnten rund 0,8% (in 6m u. GOK) gemessen werden. Die unter den Deckschichten anschließenden sandigen Bereiche weisen an beiden Standorten nur geringe TOC-Gehalte auf, mit 0,3% in Bera (15-40m) und 0,2% in Korgaon (18-24m). An beiden Standorten tritt ein weiteres Maximum des sedimentären TOC in ca. 43m (140ft) Tiefe auf. Die organikreiche Tonschicht von Korgaon in eben dieser Tiefe enthält bis zu 2,8% TOC und somit moderate Gehalte an TOC, verglichen mit z.B. Torfen (30% TOC). Separat beprobte Organik (nicht dargestellt) in Bera (36,6m bzw. 120ft, Wechsellagerung von Sand, Ton und Organik) erreichte 9% TOC. Trotz der teilweise hohen TOC-Gehalte, konnte insbesondere aus diesen meist tonigen Bereichen nur sehr wenig im H₂O-Eluat gelöst werden. Insgesamt erweist sich die Wasserlöslichkeit der vorhandenen sedimentären Organik als relativ gering (Abbildung 5-3). Sie liegt in Korgaon mit im Mittel rund 15% aber deutlich höher als in Bera mit etwa 7%.

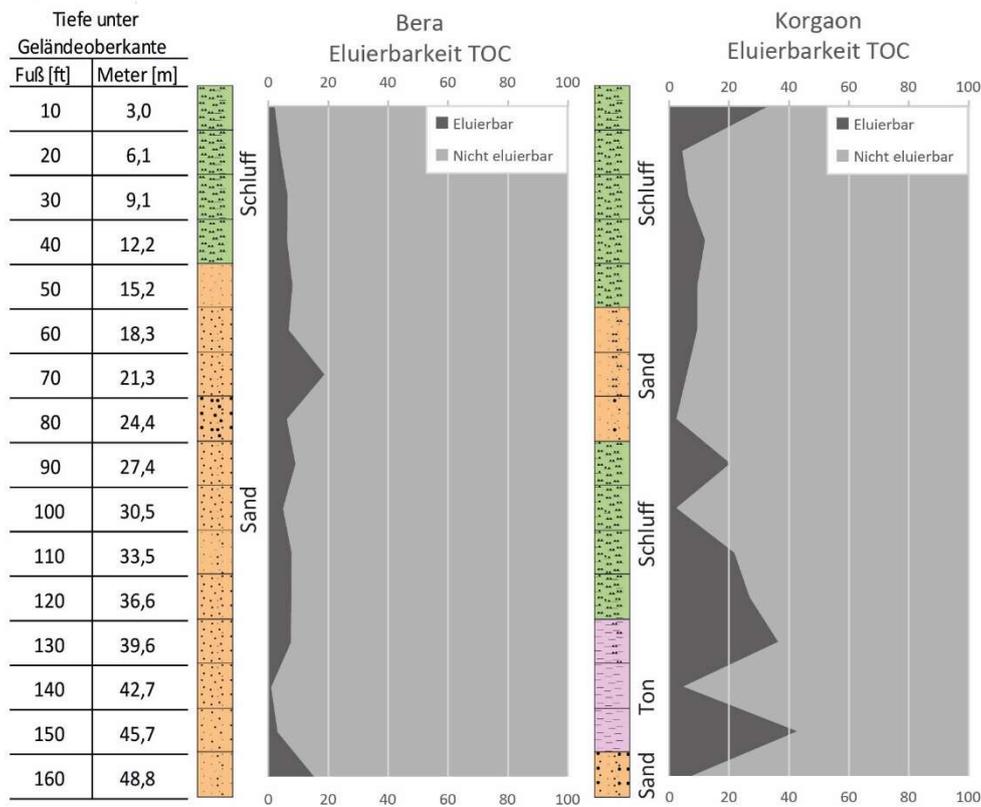


Abbildung 5-3: Prozentuale Wasser-eluiertbare TOC-Anteile im Sediment in Bera und Korgaon nach Tiefe.

5 Ergebnisse

Die Sedimente von Bera und Korgaon weisen hinsichtlich der **Eisengehalte** sehr große Konzentrationsvariationen auf (5 g/kg bis 35 g/kg) - in Bera tendenziell niedriger als in Korgaon. An beiden Standorten sind die höchsten sedimentären Eisengehalte in den feinkörnigeren, tonigen bis schluffigen Abschnitten der Profile festzustellen (Abbildung 5-4 und Abbildung 5-5).

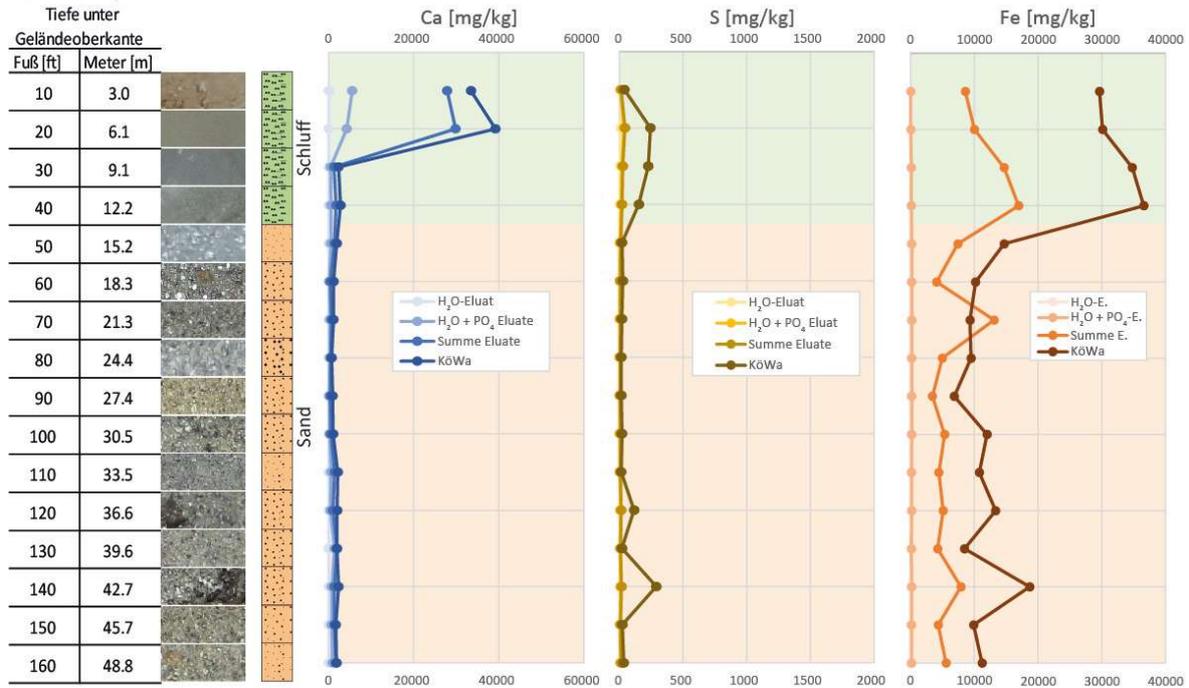


Abbildung 5-4: Bohrprofil Bera Bohrung 1 sowie Calcium (Ca)-, Schwefel (S)- und Eisengehalte (Fe) in den Eluaten und im Königswasser.

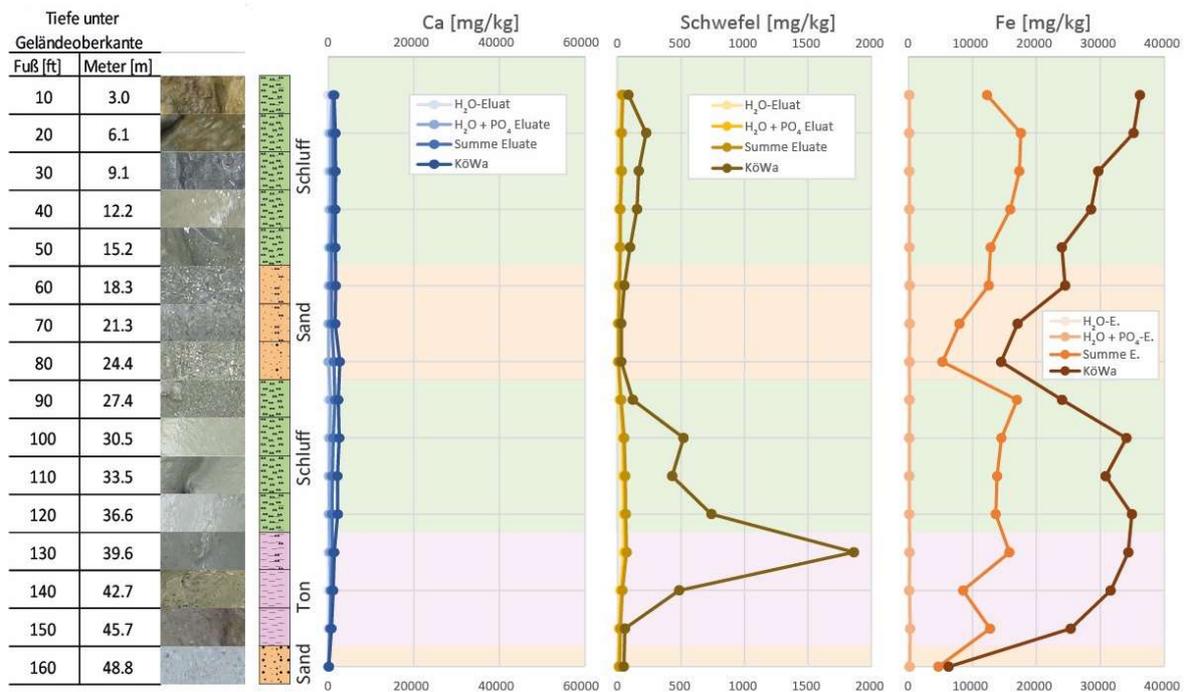


Abbildung 5-5: Bohrprofil Korgaon Bohrung 1 sowie Calcium (Ca)-, Schwefel (S)- und Eisengehalte (Fe) in den Eluaten und im Königswasser.

Außerdem weist im Sediment das Arsen an beiden Standorten einen sehr signifikanten positiven Zusammenhang mit Eisen auf (Abbildung 5-6). In Bera lässt sich dieser Zusammenhang als nahezu linear, mit einer hohen Korrelation (r^2 von 89,5%), beschreiben. Bei den Ergebnissen aus Korgaon ist dieser lineare Zusammenhang nicht erkennbar.

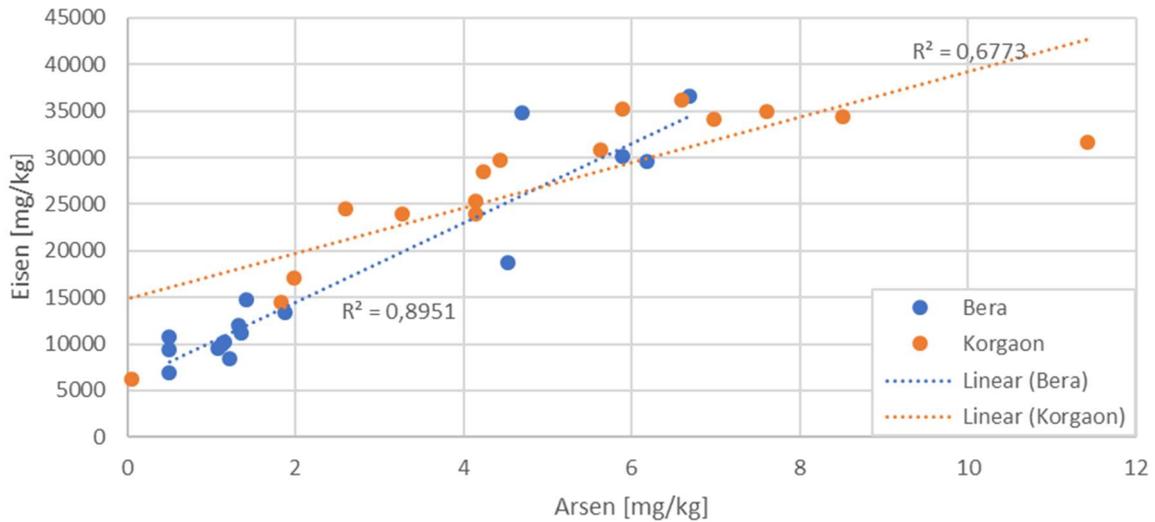


Abbildung 5-6: Arsen und Eisengehalte der Königswasseraufschlüsse des Sediments aus allen Tiefen an den Standorten Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).

An beiden Standorten ist das Eisen zu ca. 50% karbonatisch gebunden. Im HCl-Eluat besteht allerdings kein positiver oder linearer Zusammenhang zwischen Arsen und Eisen (Abbildung 5-7). Insgesamt weist Korgaon jedoch größere Mengen an karbonatisch gebundenem Eisen auf als Bera.

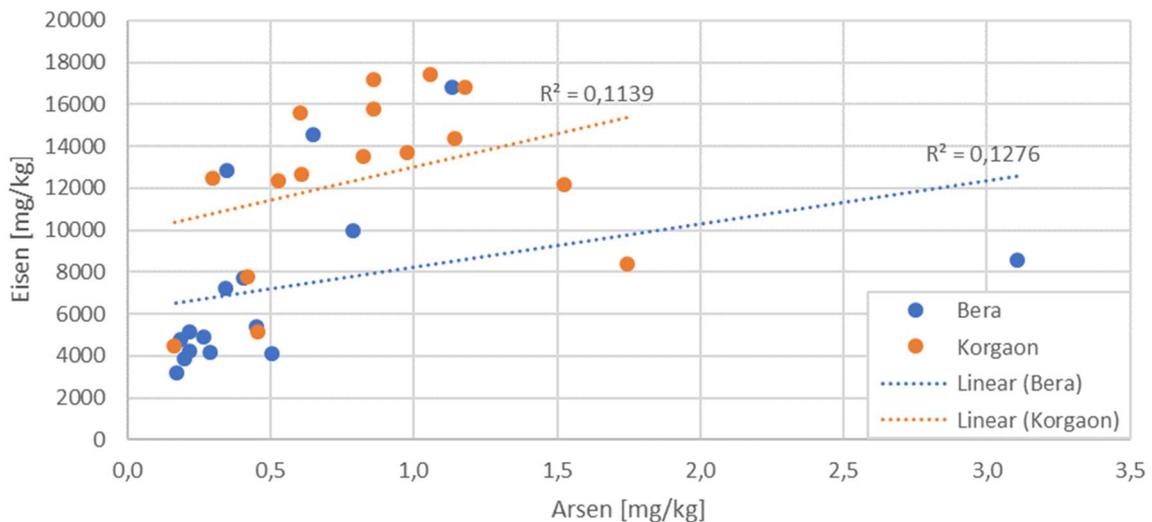


Abbildung 5-7: Arsen und Eisengehalte der HCl-Eluate des Sediments aus allen Tiefen an den Standorten Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).

Die sedimentären **Schwefelgehalte** sind in Bera nicht auffällig hoch und konnten nur im Königswasseraufschluss der oberen, schluffigen Bereiche sowie in ca. 43 m (140 ft) Tiefe festgestellt

5 Ergebnisse

werden, mit Mengen von etwa 250 mg/kg. In Korgaon treten Gehalte von bis zu 1.800 mg/kg Schwefel auf, in den obersten Bereichen der Tonschicht in rund 40 m bzw. 130 ft Tiefe. In den schluffigen, oberen Bereichen des Profils wurden ebenfalls Gehalte von bis zu 230 mg/kg gemessen, während die tiefere Schluffschicht, oberhalb der Tonlage (rund 27-37 m u. GOK), nach unten hin zunehmende (von 100 mg/kg bis 700 mg/kg) Schwefelgehalte aufweist. In den Sandlagen (ca. 18 bis 24 m und ca. 50 m u. GOK) ist kein Schwefel enthalten.

Besonders auffällig sind die Calciumgehalte, die in den oberen Profilbereichen (3 bis 6 m Tiefe) von Bera mit bis zu 40.000 mg/kg wesentlich höher sind als im übrigen Profil und in Korgaon. Bereits in 9 m Tiefe sind die Calciumgehalte auf rund 1.000 bis 2.000 mg/kg zurückgegangen.

5.2 Orientierende Grundwasseruntersuchungen in Habiganj, Sirajganj, Pabna und Chandpur

Die Ergebnisse der Grundwassermessergebnisse der Probenahme 2018-2019 zeigen, dass die Arsengehalte regional sehr stark streuen, besonders stark am Standort **Chandpur**. Hier liegen die Arsengehalte in den Brunnen zwischen <20 und $675 \mu\text{g/l}$. (Abbildung 5-13a). In mehr als der Hälfte der beprobten Brunnen lag Arsen unterhalb der Nachweisgrenze von $20 \mu\text{g/l}$. Fünf der elf beprobten Brunnen wiesen mit $247 \mu\text{g/L}$ bis $675 \mu\text{g/L}$ sehr hohe Arsengehalte auf. Die höchsten Arsengehalte treten in Brunnen mit hohen Methan-, Ammonium-, Eisen- und Hydrogencarbonatgehalten auf. Ein derartiger Zusammenhang ist für TOC nicht zu erkennen.

Mit Ausnahme von zwei Brunnen mit $\text{As} < 20 \mu\text{g/l}$, die 91 und 183 m tief sind, sind die übrigen Brunnen in Chandpur alle in einer Tiefe zwischen 18 und 30 m u. GOK verfiltrert. Hohe Arsengehalte treten tendenziell in den flacheren Brunnen (<25 m) auf. Besonders auffällig ist in Chandpur, dass Brunnen mittlerer Tiefe (etwa 30 m), die wenig Arsen enthalten, mit 3.900 bis 4.500 $\mu\text{S/cm}$ deutlich höhere Leitfähigkeiten aufweisen als die übrigen Brunnen (580 bis 1.200 $\mu\text{S/cm}$). Dies spiegelt sich vor allem in den ebenfalls hohen Gehalten an Na (650-750 mg/l) und Cl (1.200-1.300 mg/l) wieder. In den flacheren (<25 m) und tieferen (>90 m) Brunnen liegen diese zwischen 12 und 150 mg/l (Na) und 14 bis 120 mg/l (Cl), mit tendenziell höheren Gehalten in den tieferen Brunnen.

Methan verhält sich umgekehrt: In Brunnen mit salzigem Wasser sind die Methangehalte mit 148 bis 705 ppm extrem niedrig (Abbildung 5-13d). Die beiden tiefsten Brunnen weisen zwischen 5.400 und 10.000 ppm Methan auf, während in den flachen zwischen 28.000 und 72.000 ppm gemessen wurde (Abbildung 5-13c). Bei TOC ist keine derartige Tiefenzonierung festzustellen. Die Gehalte in den Brunnen reichen von 2,22 mg/l bis 44,3 mg/l TOC und liegen sowohl im Mittel als auch vom Median bei etwa 20 mg/l (Abbildung 5-13b). Ebenfalls keine auffälligen Schwankungen gibt es beim CO_2 , mit Gehalten zwischen 10.300 und 44.600 ppm (Median 28.300 ppm, Mittelwert 26.700 ppm).

Am Standort **Sirajganj/Pabna**, repräsentiert durch die Dörfer Bera, Boalia und Dadpur, sind die Arsengehalte insgesamt relativ gering mit maximal $190 \mu\text{g/l}$ As. Diese höchste Belastung wurde in Bera an einem neu errichteten Brunnen (Tiefe 20 m) gemessen. Im Median liegen die Arsengehalte in Bera bei $36 \mu\text{g/l}$ und damit unterhalb des Bangladeschischen Grenzwertes. In Boalia treten Arsenbelastungen zwischen $<20 \mu\text{g/l}$ und $79 \mu\text{g/l}$ auf, im Median $<20 \mu\text{g/l}$. Die Brunnen in Dadpur zeigen für dieses Untersuchungsgebiet insgesamt die höchsten Arsengehalte mit 70 bis $130 \mu\text{g/l}$ Arsen und einen Median von $98 \mu\text{g/l}$.

Auch die Methangehalte sind in Dadpur mit 5.000 bis 18.300 ppm (Median 6.800 ppm) am höchsten. In Bera liegen sie hingegen zwischen 440 und 15.600 ppm (Median 3.550 ppm) und in Boalia bei 0 bis 7.900 ppm (Median 56 ppm).

Auffällig ist dagegen, dass in Boalia und Bera deutlich höhere CO₂-Mengen auftreten als an allen übrigen untersuchten Standorten. In Bera wurden neben hohen CO₂-Gehalten (rund 70.000 ppm) in zwei Brunnen auch erhöhte Gehalte an Calcium (137 und 156 mg/l) und Schwefel (2,4 und 9 mg/l) nachgewiesen. Einer dieser beiden Brunnen enthält außerdem sehr viel Mangan 4.100 µg/l. In Boalia schwanken die CO₂-Gehalte stark und reichen von 26.500 ppm bis 122.000 ppm. In einigen Brunnen konnten noch Nitrat, Nitrit und Schwefel nachgewiesen werden. Boalia ist der einzige Standort mit nennenswerten Schwefel- (4,9 mg/l im Mittel) bzw. Sulfatgehalten (14,3 mg/l im Mittel) in fast allen beprobten Brunnen. Es besteht ein positiver Zusammenhang zwischen diesen Sauerstoffträgern und den CO₂-Gehalten. In Dadpur sind keine Auffälligkeiten zu beobachten, CO₂-Gehalte sind mit etwa 19.000 ppm nicht sehr hoch und Sauerstoffträger sind keine mehr nachweisbar. Eisengehalte sind mit 13,5 mg/l im Median relativ hoch bei ansonsten niedrigen Hauptkationen (Ca Median 24,5 mg/l).

Der TOC ist im Durchschnitt am Standort vergleichsweise hoch (27-34 mg/l), am höchsten in Dadpur (12 bis 41 mg/l, Median 38 mg/l). In Boalia liegen die Gehalte bei 17 bis 47 mg/l, Median 23 mg/l und in Bera bei 4 bis 42 mg/l, Median 33 mg/l. Allerdings besteht eine hohe Variabilität zwischen den jeweiligen Brunnen – in allen drei Dörfern schwankt der TOC deutlich zwischen 4 bis 47 mg/l und unabhängig von der Tiefe oder anderen untersuchten Stoffen.

In den Dörfern des Standortes **Habiganj** sind klare Unterschiede aufgrund der Brunntiefe zu erkennen. Flache Brunnen (<50m Tiefe) enthalten mehr Arsen, TOC und Methan als tiefere Brunnen (>50m), während tiefere Brunnen höhere Mengen an Eisen und Mangan aufweisen. Besonders fällt Jagannathpur auf, da hier in allen Brunnen die Arsengehalte mit im Mittel 371 µg/l extrem hoch sind. Auch in Korgaon sind die Gehalte mit 210 µg/l im Mittel deutlich über dem bangladeschischen Grenzwert. Ein Brunnen in Korgaon fördert allerdings arsenarmes Wasser. Dieser ist mit 55 m Tiefe etwas tiefer als die übrigen Brunnen in diesem Dorf (27-30 m) und weist deutlich eisenhaltigeres Wasser auf (31.800 µg/l Eisen).

Auch die höchsten Methangehalte sind in Jagannathpur festzustellen, mit bis zu 174.000 ppm sowie 132.000 ppm im Median. In Korgaon und Tajpur erreichen sie maximal etwa 100.000 ppm und liegen im Median bei 52.500 mg/l. Der TOC ist in Jagannathpur mit 32 mg/l im Median nicht wesentlich höher als an allen übrigen Standorten, aber fast doppelt so hoch wie in Korgaon (Median <20 mg/l) und Tajpur (Median <20 mg/l). Schwefelgehalte sind mit Ausnahme von zwei Brunnen in Korgaon mit 2,5 und 14,6 mg/l niedrig, ohne eindeutigen Tiefenzusammenhang. CO₂-Gehalte liegen an allen drei Standorten bei etwa 30.000 ppm.

Ähnlich verhält es sich mit den Hydrogencarbonatgehalten, die in Jagannathpur mit 444 bis 644 mg/l (Median 559 mg/l) deutlich höher liegen als an den anderen Standorten. In Bera und Chandpur liegen HCO₃-Gehalte im Median bei 374 und 333 mg/l. Boalia, Bera und Tajpur liegen im Median zwischen 214 und 287 mg/l. Die geringsten HCO₃-Gehalte treten in Dadpur auf mit 146 mg/l im Median.

Abbildung 5-8 zeigt an allen Standorten einen positiven Zusammenhang zwischen Arsen und Methan. Der TOC scheint dabei keine unmittelbar erkennbare Rolle zu spielen, da hohe TOC-Gehalte nur in Jagannathpur mit hohen Methan- und Arsengehalten einhergehen (Abbildung 5-11). Entsprechend besteht auch kein positiver Zusammenhang zwischen Arsen und HCO₃ (Abbildung 5-10). Zwischen CO₂ und CH₄ ist tendenziell ein negativer exponentieller Zusammenhang anzunehmen (Abbildung 5-9). Allerdings scheint an den Standorten Tajpur, Korgaon und Jagannathpur sowie an einigen Brunnen in Chandpur ein positiver Zusammenhang zwischen TOC und CH₄ zu bestehen (Abbildung 5-12).

5 Ergebnisse

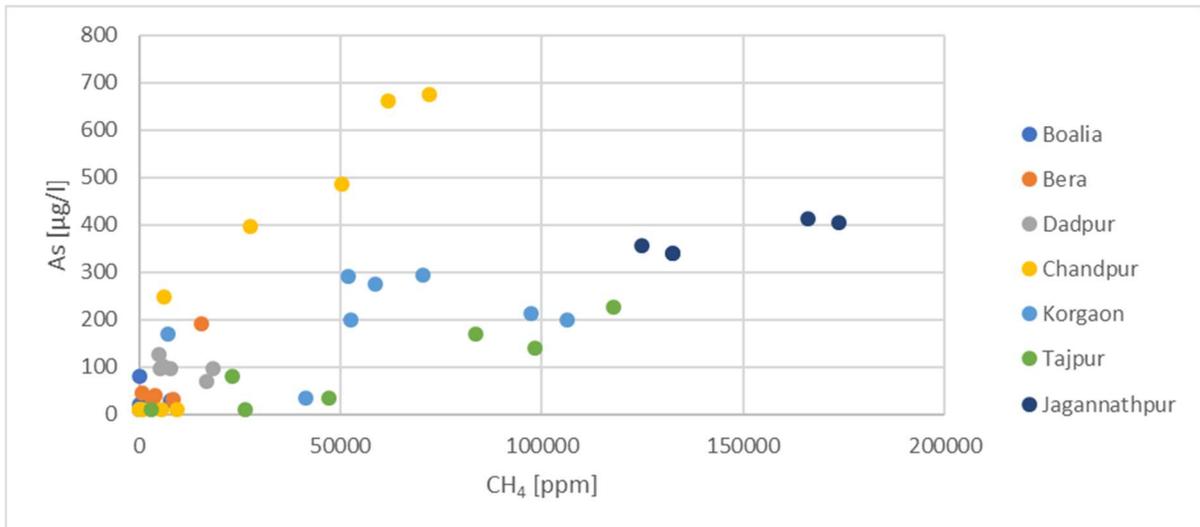


Abbildung 5-8: Zusammenhang zwischen Arsen und CH₄ an allen Standorten.

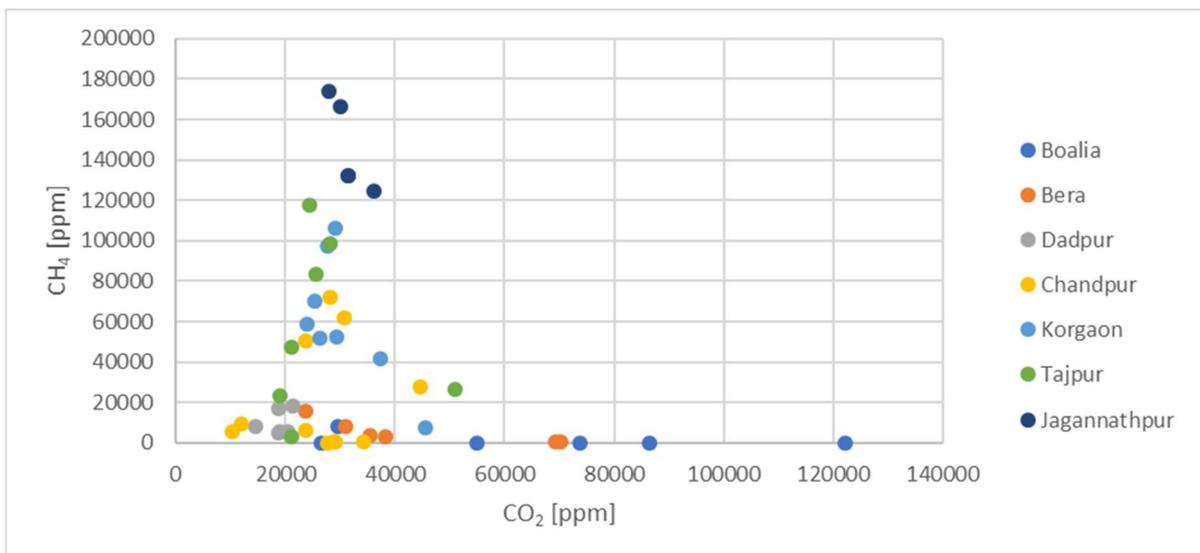


Abbildung 5-9: Zusammenhang zwischen CO₂ und CH₄ an allen Standorten.

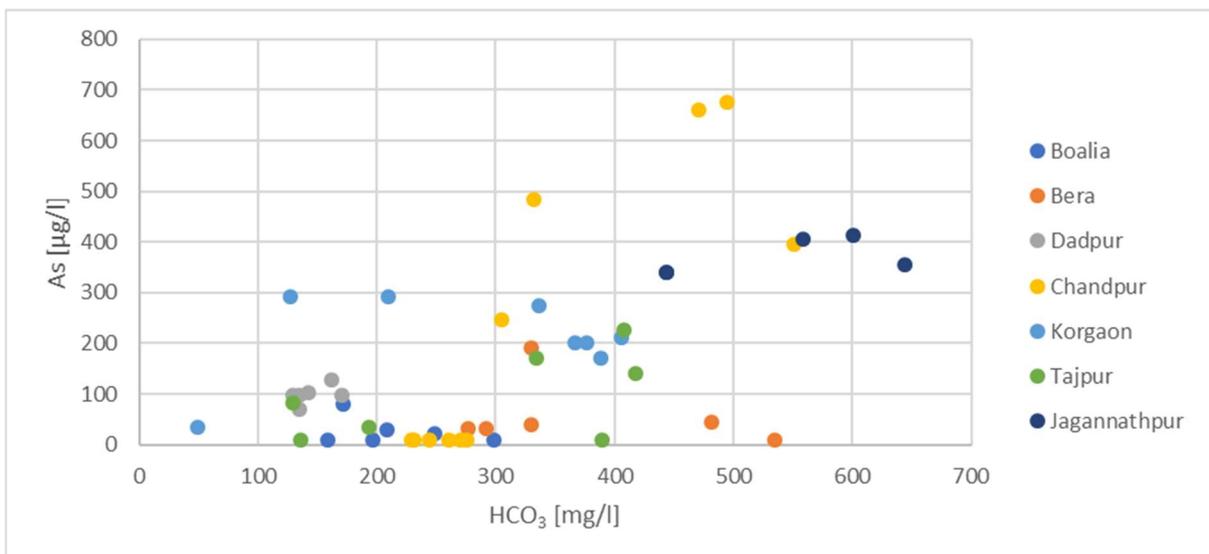


Abbildung 5-10: Zusammenhang zwischen Arsen und HCO₃ an den geochemisch beprobten Standorten.

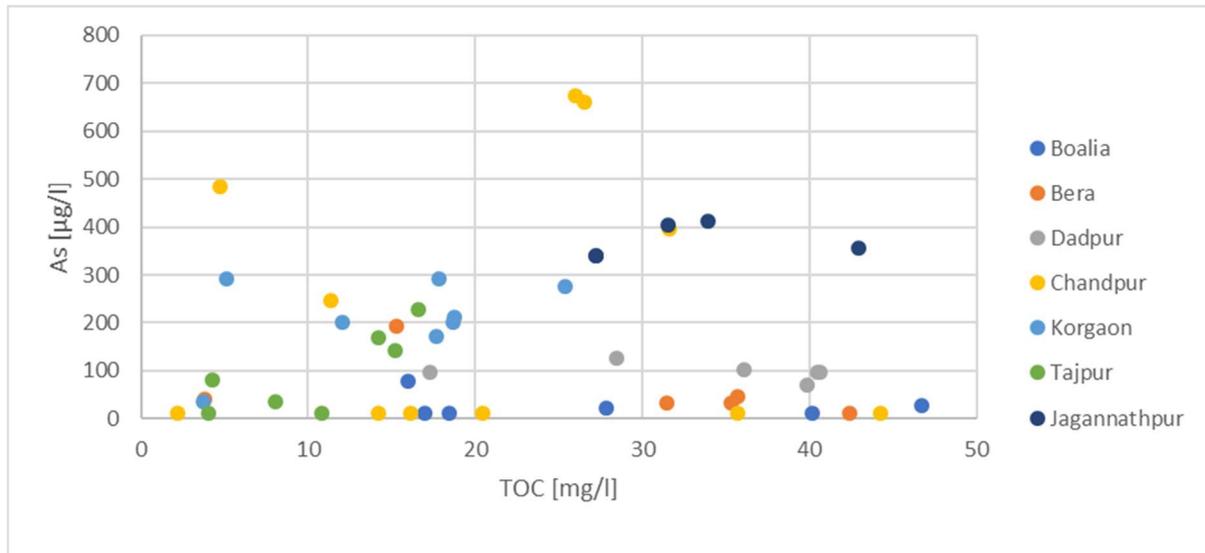


Abbildung 5-11: Zusammenhang zwischen Arsen und TOC an allen Standorten.

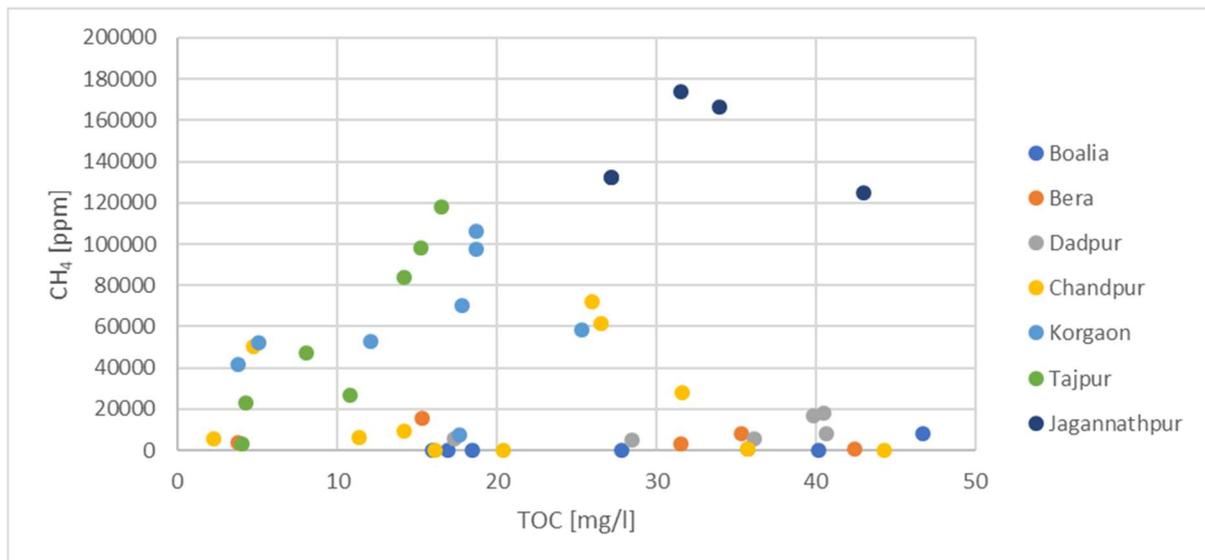


Abbildung 5-12: Zusammenhang zwischen CH₄ und TOC an allen Standorten.

Die Arsengehalte im Grundwasser lassen sich durchaus mit den höheren Anteilen an leicht verfügbarem, sedimentärem Arsen erklären. Im Sediment besteht ein positiver linearer Zusammenhang zwischen Arsen und Eisen (Abbildung 5-6). Allerdings ist an beiden Standorten im Grundwasser kein Zusammenhang zwischen Arsen- und Eisengehalten feststellbar (Abbildung 5-14). Tendenziell ist ein negativer Zusammenhang für Korgaon zu beobachten. Dies würde bedeuten, dass Eisen aus der Lösung entfernt wird.

5 Ergebnisse

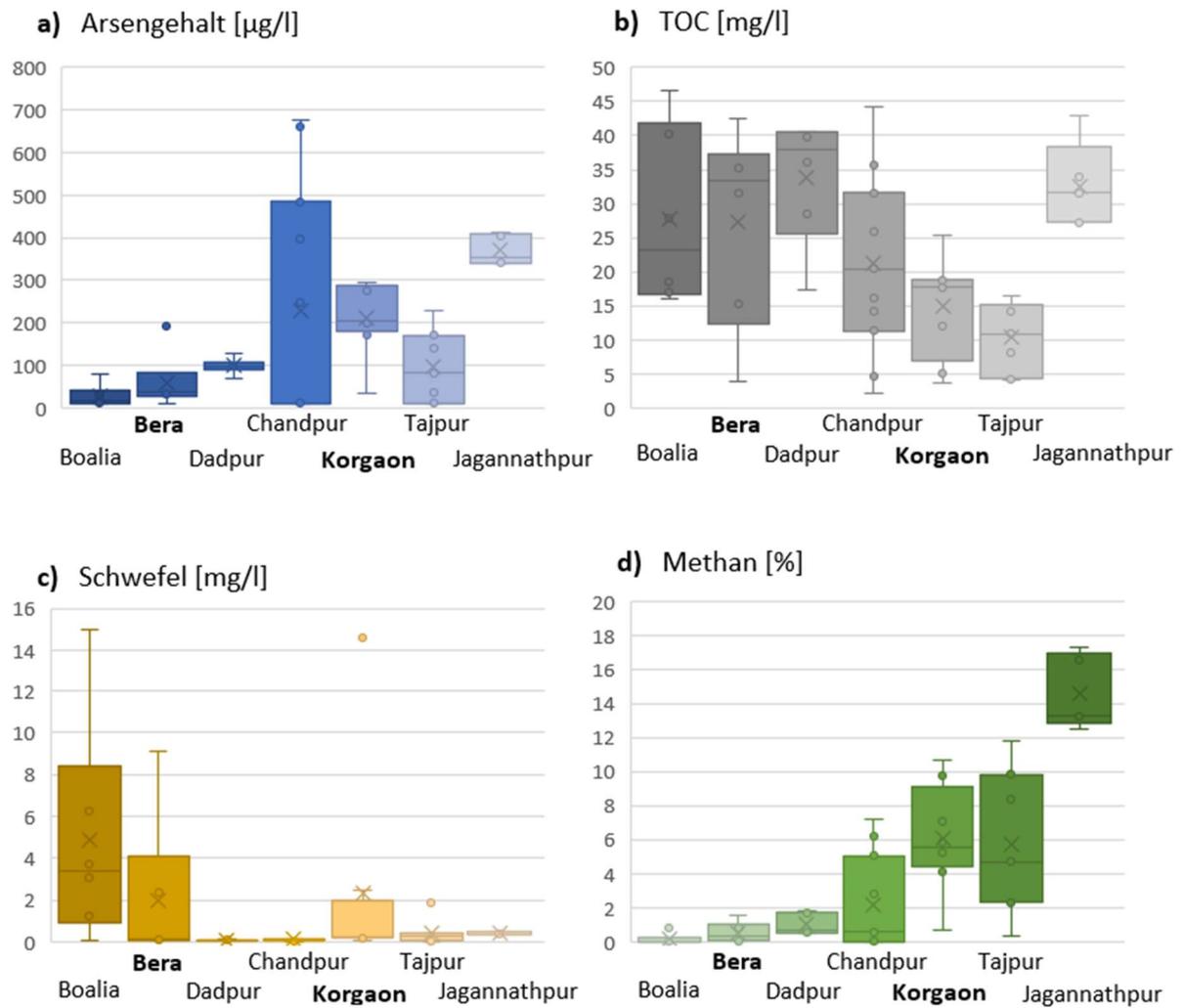


Abbildung 5-13: Arsengehalt (a), TOC-Gehalt (b), Schwefelgehalt (c) und Methangehalt (d) im Wasser an den Detail-Untersuchungsstandorten von 2019 und 2020. Fett hervorgehoben sind die Standorte mit Sedimentdaten.

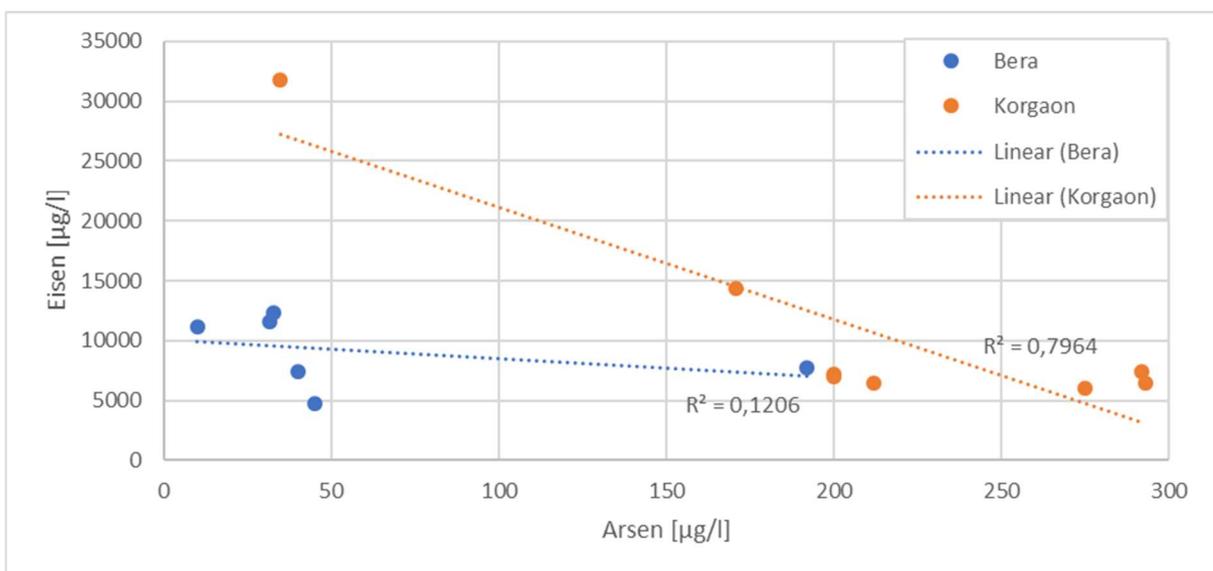


Abbildung 5-14: Eisen- und Arsengehalte im Grundwasser der beprobten Haushaltsbrunnen aus Bera (Pabna) und Korgaon (Habiganj).

5.3 Großflächige Untersuchungen in Habiganj

Bei den großflächigen Probenahmen am Standort Habiganj konnte festgestellt werden, dass etwas mehr als die Hälfte der Brunnen (786) am Standort flacher als 150m waren (Abbildung 5-15). Nur 8% dieser flachen Brunnen wiesen Arsengehalte unterhalb des WHO-Richtwertes (10 µg/l) auf, weitere 19% lagen noch innerhalb zulässiger Arsengehalte des Bangladeschischen Grenzwertes (50 µg/l). Mehr als ein Drittel der flachen Brunnen (39%) enthielten Arsenmengen >200 µg/l.

Die mehr als 150m tiefen Brunnen waren deutlich weniger belastet als die flachen, trotzdem lagen nur 11% im zulässigen Bereich der WHO-Empfehlung. Dafür überschritten weitere 53% nicht den bangladeschischen Grenzwert. Nur knapp ein Viertel dieser tiefen Brunnen wies Gehalte oberhalb beider Grenzwerte auf, davon nur 4% deutlich mit >100 µg/l.

Aus Abbildung 5-15 wird die Tiefenabhängigkeit der Arsengehalte deutlich. Sehr hohe Arsengehalte werden fast ausschließlich in den flachen Brunnen angetroffen. Etwas tiefer gehen die Gehalte sprunghaft zurück. Dies ist mit einer Tonlage zu erklären, die den obersten Aquifer von den unteren abtrennt. Im Tiefenprofil ist diese Tonlage daran zu erkennen, dass es in dieser Tiefe nur sehr wenige Brunnen gibt. Ein weiterer, sehr mächtiger Aquitard befindet sich demnach im Tiefenbereich von 90 bis 220 m.

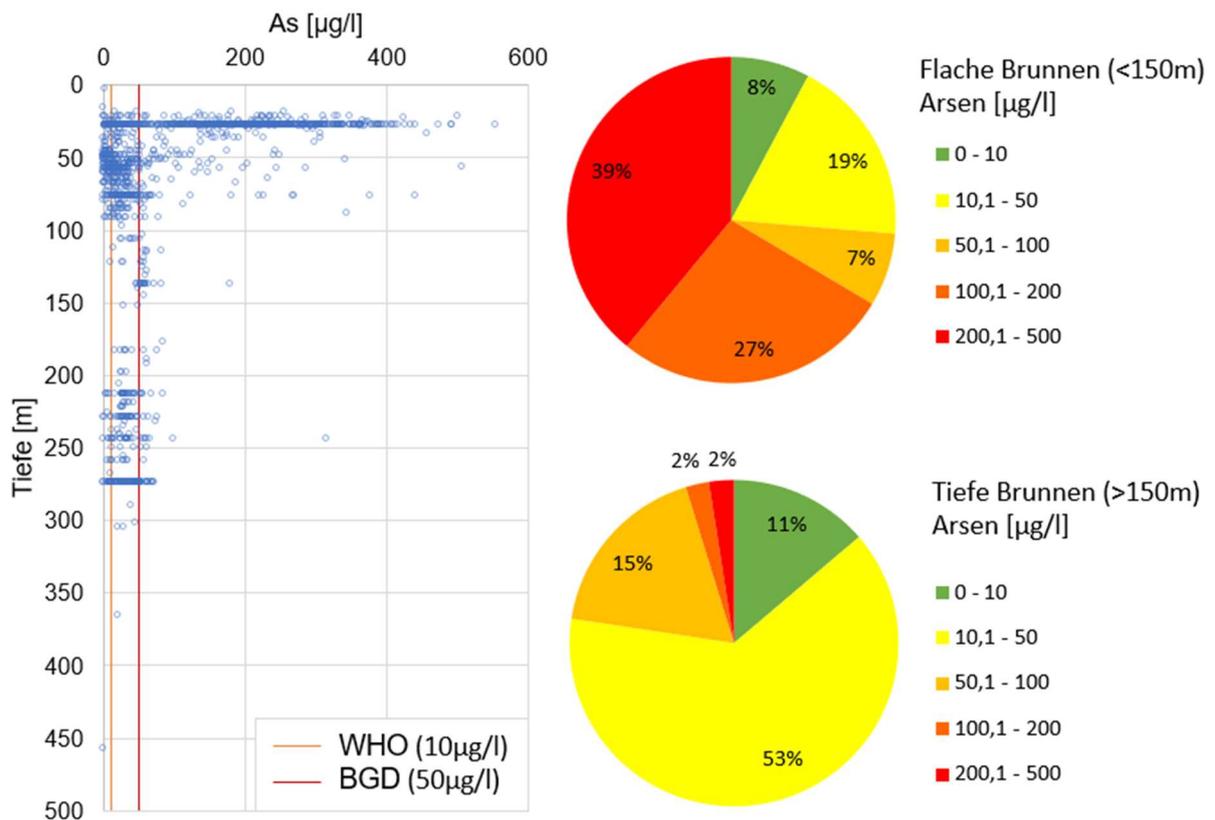


Abbildung 5-15: Arsengehalte nach Brunnentiefe am Standort Habiganj.

5.3.1 Statistische Bewertung anthropogener Faktoren

Am Standort Habiganj waren die Brunnen zwischen 2,7 und 457 m tief. Im Mittel erreichten sie eine Endteufe von 77 m bzw. im Median 42,7 m. Die Brunnenalter schwankten zwischen einem Monat und 50 Jahren, im Durchschnitt wurden sie vor etwa 9 Jahren (Median 7 Jahre) angelegt. Die Anzahl der Nutzer schwankte erheblich zwischen 2 und 800 Personen pro Brunnen. Das sind im Mittel 34 Personen bzw. im Median 16 Personen pro Brunnen. Die hohen Nutzerzahlen kommen dadurch zustande, dass sich oft mehrere Haushalte einen Brunnen teilen. Rund 97% der Brunnen wurden mit Handschwengelpumpen betrieben, die übrigen 3% mit automatischen, strombetriebenen Pumpen.

Die Latrinen waren zwischen 1,4 und 105 m von den erfassten Brunnen entfernt. Der Durchschnitt lag bei 9,5 m bzw. 6,3 m. Damit befanden sich die meisten Latrinen in unmittelbarer Nähe zu den Brunnen.

Bei Betrachtung der Arsengehalte in den sehr flachen (bis 30 m tiefen) Brunnen im Vergleich zu deren Abstand zur nächsten Latrine war kein eindeutiger Zusammenhang feststellbar. Die gemittelten Arsengehalte pro Abstandsangabe (Abbildung 5-16, blaue Kreuze) lassen vermuten, dass etwas höhere Arsengehalte in Brunnen auftreten, die zwischen 12 und 20 m entfernt von der Latrine lagen. Allerdings gab es mit zunehmender Entfernung zwischen Latrine und Brunnen auch immer weniger Datenpunkte, wodurch einzelne, hoch belastete Brunnen sehr stark ins Gewicht fielen.

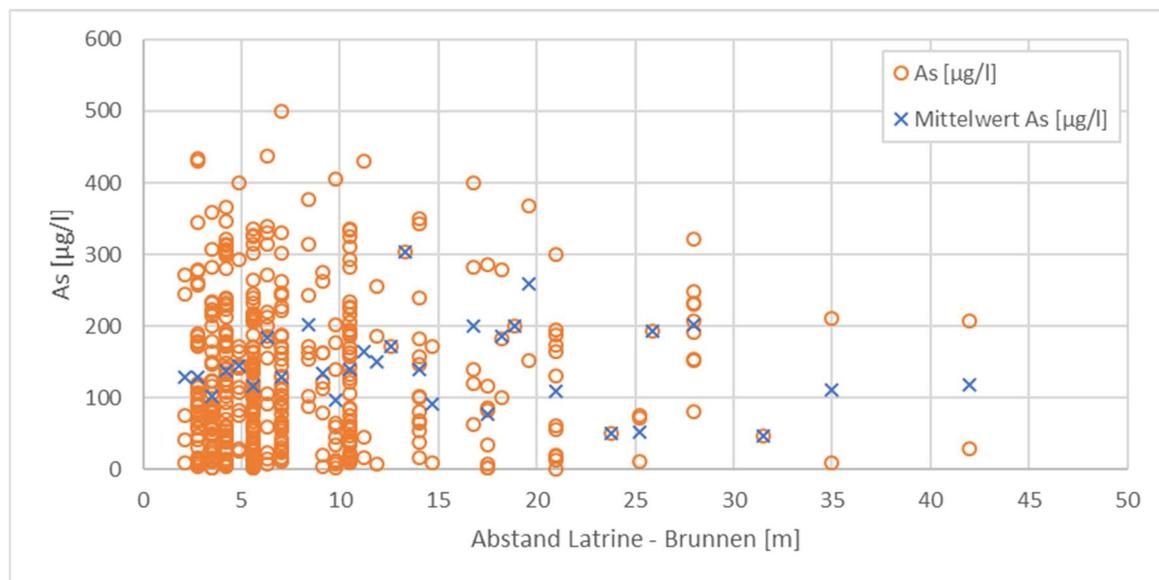


Abbildung 5-16: Arsengehalte in Abhängigkeit von Abstand zwischen Latrine und Brunnen für die Brunnen bis 30m Tiefe (n = 442) sowie die Mittelwerte der Arsengehalte aller Brunnen pro Abstandsangabe.

Die Daten zeigen, dass die Fallgrubenlatrinen (pit latrine) mit 68% die gängigste Latrinenform war, gefolgt von Latrinen mit Klärgruben (septic tank) mit 29%. 2% der Haushalte verfügten über keine Latrine. Latrinen mit Abwasseranschluss gab es in der Region nicht. Im Durchschnitt waren die Gruben der Latrinen 1,9m Tief (Median 1,8m). Rund 30% der Latrinen, insbesondere Fallgrubenlatrinen, verfügten über einen Ablauf, über den der flüssige Anteil abgeleitet wurde – meistens in ein Oberflächengewässer. 70% der Latrinen verfügten über keinen Ablauf.

Die Latrinen waren zwischen 1 Monat und 50 Jahre alt. Im Durchschnitt 7 Jahre und im Median 5 Jahre. Damit verfügten die meisten Haushalte schon etwa 2 Jahre länger über einen Brunnen als über eine Latrine. Die Latrinen wurden von 1 bis 350 Personen benutzt, im Durchschnitt von etwas mehr als 9 Personen und im Median von 7 Personen.

5.3.2 Statistische Bewertung der geochemischen Daten

Insgesamt waren die Arsengehalte aller Brunnen am Standort Habiganj mit $106,3 \mu\text{g/l}$ fast doppelt so hoch wie im bangladeschischen Mittel ($55,3 \mu\text{g/l}$, BGS 2001, National Survey Data). Auch Eisen lag im Durchschnitt bei $8,3 \text{ mg/l}$ und damit ebenfalls mehr als zweifach über dem nationalen Mittel von $3,4 \text{ mg/l}$ (BGS 2001, National Survey Data). Wesentlich unter dem Landesdurchschnitt von $51,7 \text{ mg/l}$ lagen hingegen die Calciumgehalte mit $26,8 \text{ mg/l}$.

Geochemisch weist das Untersuchungsgebiet einige Besonderheiten auf, die sich insbesondere in den flachen Brunnen zeigten, auf welchen im Folgenden der Fokus liegen soll. Abbildung 5-17 zeigt die Eisen- und Arsengehalte am Standort differenziert nach Brunnentiefe. Dabei ist ein starker negativer Zusammenhang zwischen Arsen und Eisen in den flachen Brunnen zu erkennen. Weiterhin fällt eine Zweiteilung des Datensatzes auf: Brunnen mit hohen Arsengehalten zeigen tendenziell eine negative Korrelation mit Eisen, während in Brunnen mit geringen Arsengehalten ein positiver Zusammenhang anzunehmen ist, ähnlich wie in den Brunnen mittlerer Tiefe (50-150 m).

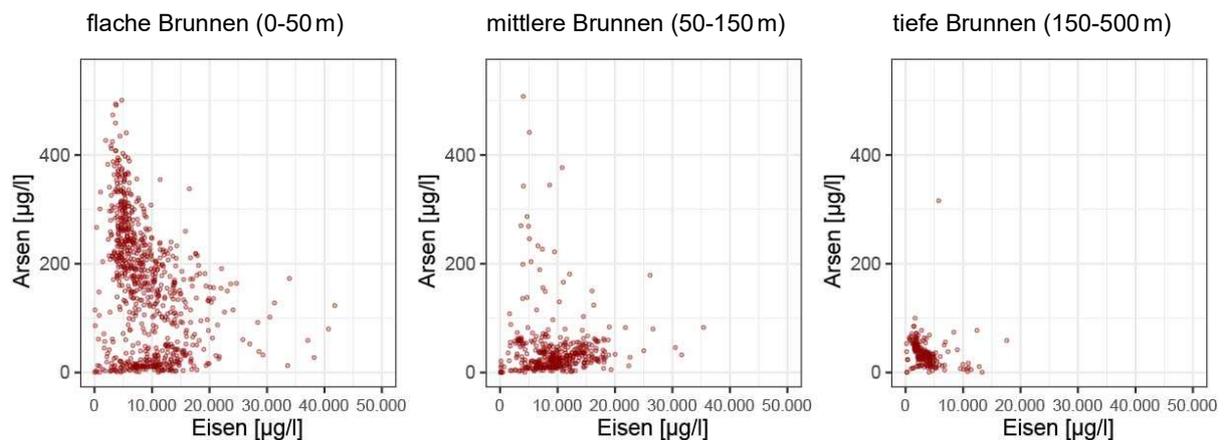


Abbildung 5-17: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Eisengehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

Ein anderes Bild ist bei den Mangangehalten gegenüber den Arsengehalten zu erkennen (Abbildung 5-18). Hier ist in allen Tiefen ein negativer Zusammenhang zu beobachten, mit hohen Arsengehalten bei niedrigen Mengen an Mangan.

Die Calciumgehalte der flachen Brunnen weisen eine deutliche Korrelation mit Arsen auf (Abbildung 5-19). Wie auch bei den Eisengehalten ist hier eine Zweiteilung der Daten zu erkennen mit hohen Arsen und Calciumgehalten in 68% der flachen Brunnen. Die übrigen 32% weisen geringe Calcium- und geringe Arsengehalte auf und finden sich räumlich vor allem im Nordosten und Süden des Untersuchungsgebiets. Damit ist wahrscheinlich, dass karbonatisch gebundenes Arsen an diesem Standort eine zentrale Rolle spielt.

5 Ergebnisse

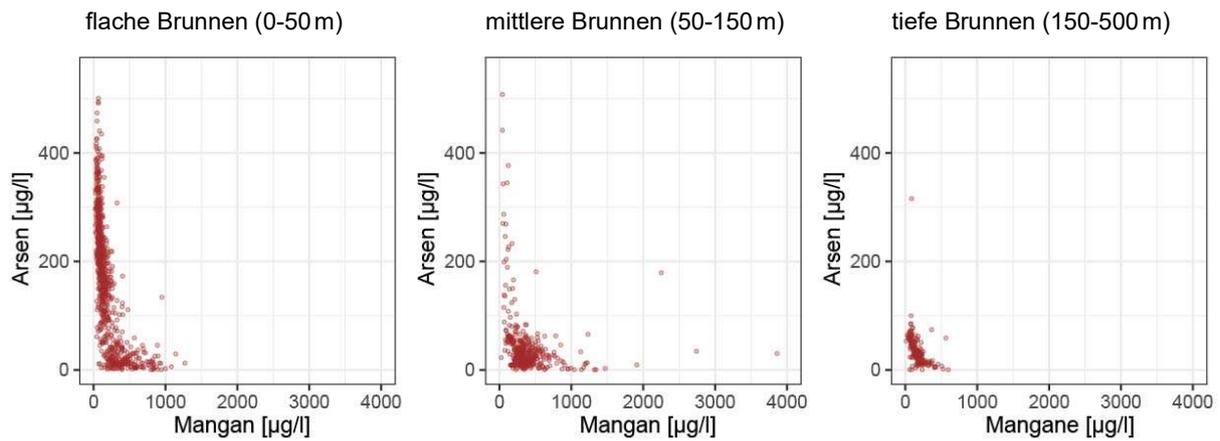


Abbildung 5-18: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Mangangehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

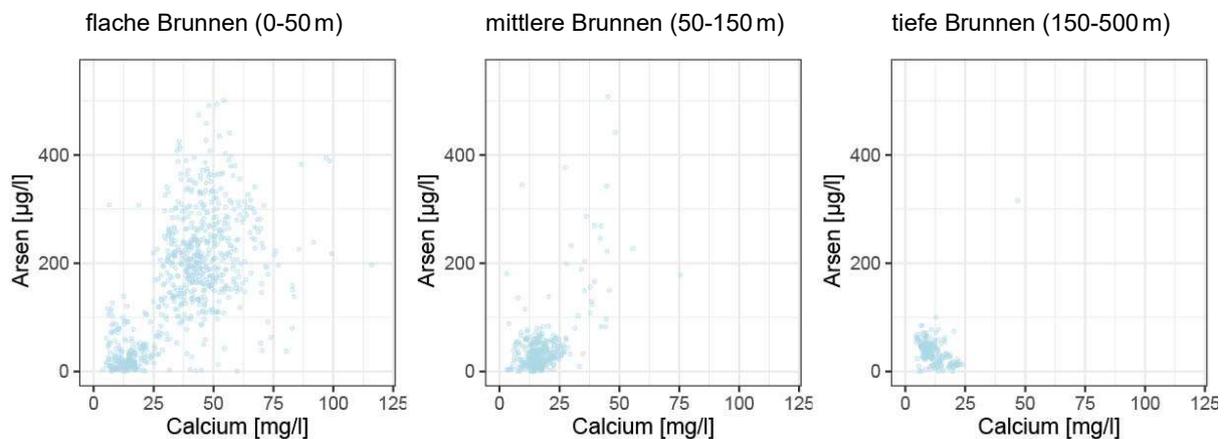


Abbildung 5-19: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Calciumgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

Die Phosphorgehalte zeigen in allen Brunnentiefen eine deutliche positive Korrelation, allerdings mit unterschiedlicher Steigung (Abbildung 5-20). Phosphorgehalte von mehr als 2.500 µg/l sind vor allem in den tiefen Brunnen festzustellen. Diese positive Korrelation weist darauf hin, dass Phosphor nicht von oben eingetragen wird oder in den flacheren Aquiferbereichen direkt verbraucht wird.

Die Siliziumgehalte in den flachen Brunnen gibt es hinsichtlich der Korrelation mit Arsen zwei Gruppen (Abbildung 5-21). In der einen Gruppe gehen niedrige Siliziumgehalte mit hohen Arsengehalten einher und es besteht mit steigenden Siliziumgehalten eine negative Korrelation zwischen Siliziumgehalt und Arsen. In einer anderen Gruppe der flachen Brunnen korrelieren die Siliziumgehalte wenig mit den Arsengehalten. In den mittleren und tiefen Brunnen ist nur die zweite Gruppe zu finden. Sie liegen alle im Bereich niedriger Silizium- und niedriger Arsengehalte.

Eine eindeutig positive Korrelation im Grundwasser der flachen Brunnen besteht zwischen Arsen und Schwefelgehalten (Abbildung 5-22). Dieser ist in den mittleren Brunnen nicht festzustellen, dafür in den tiefen Brunnen, allerdings mit einer anderen Steigung. Insgesamt sind die Schwefelgehalte in allen Tiefen sehr gering.

Räumlicher und zeitlicher Einfluss auf die Arsenmobilität im Grundwasser in Bangladesch

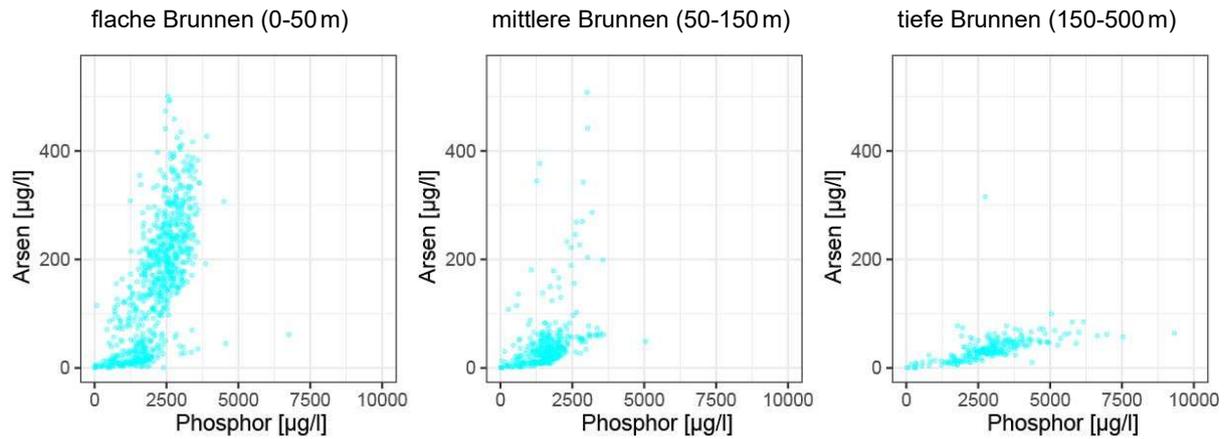


Abbildung 5-20: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Phosphorgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

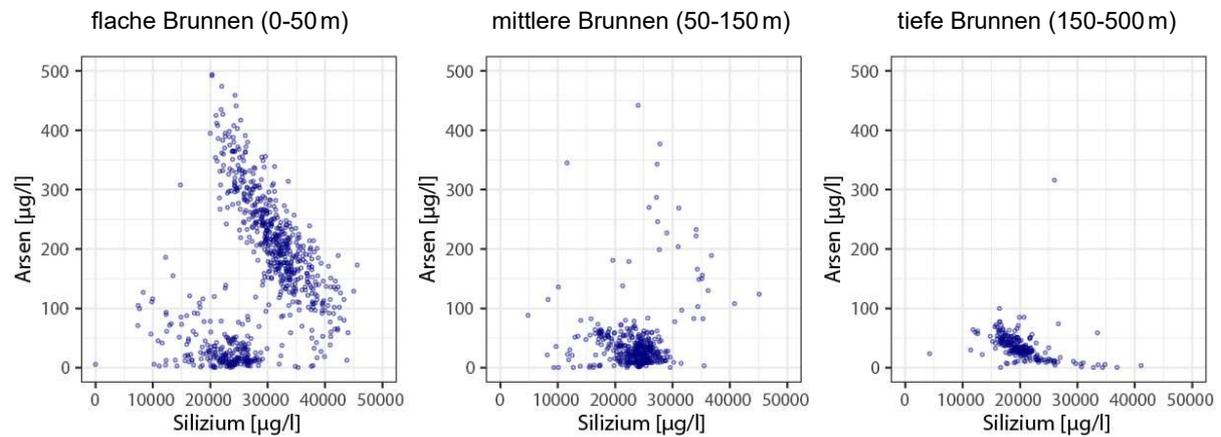


Abbildung 5-21: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Siliziumgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

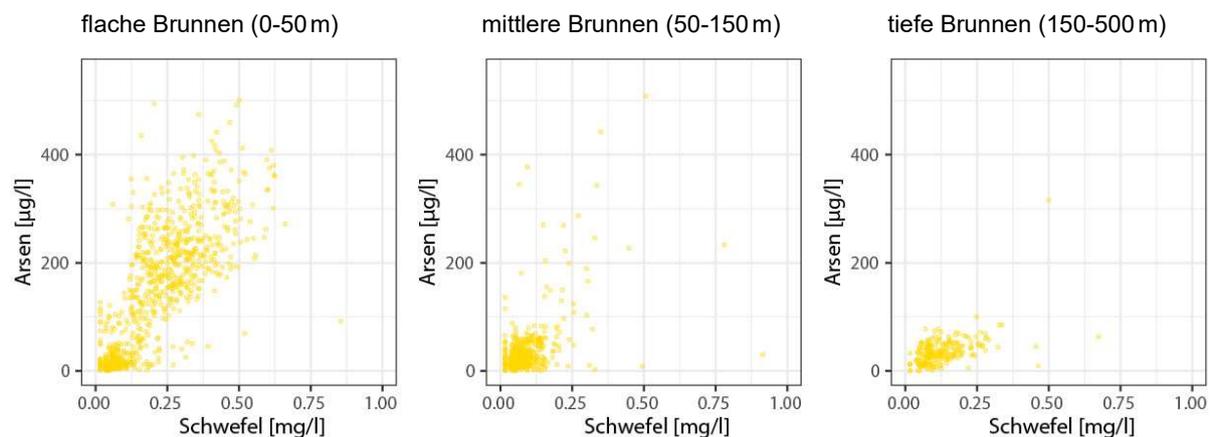


Abbildung 5-22: Zusammenhang zwischen Arsengehalt und Schwefelgehalt in den Brunnen am Standort Habiganj, differenziert nach Tiefe.

5.3.3 Räumliche Auswertung

In Abbildung 5-23 dargestellt sind die klassifizierten Arsengehalte der flächenhaft beprobten flachen Brunnen bis 50 m Tiefe am Standort Habiganj. Diese verdeutlicht, dass an diesem Standort ein sehr großer Anteil der flachen Brunnen von Arsenbelastungen über dem Bangladeschischen Grenzwert betroffen ist. Dennoch zeichnen sich auch räumliche Variationen ab. Besonders hohe Gehalte treten im Nordwesten des Untersuchungsgebietes auf, am Standort Jagannathpur sowie südlich davon und westlich des Standortes Korgaon. Eine Arsenbelastung zwischen 10 und 30 $\mu\text{g/l}$ As und vereinzelt etwas darüber ist rund um die Stadt Nabiganj zu beobachten sowie in allen Dörfern südwestlich davon. Tendenziell geringere Arsengehalte treten in den Brunnen im Nordosten des Untersuchungsgebietes auf sowie im Süden.

Unter Einbezug der lokalen, holozänen geologischen Verhältnisse ist zu erkennen, dass diese keinen Einfluss auf die Arsengehalte im Grundwasser hat. Hohe Arsengehalte treten sowohl in den Marschton und Torfgebieten auf als auch in den alluvialen Sanden und Tonen auf (Abbildung 5-24). Einen deutlich gravierenderen Einfluss auf den Arsengehalt im Brunnen hat die Tiefe des Brunnens. Insofern haben die geologischen Verhältnisse durchaus einen Einfluss auf den Arsengehalt. Es ist nicht auszuschließen, dass die vorliegenden geologischen Karten für den Standort nicht sehr akkurat sind.

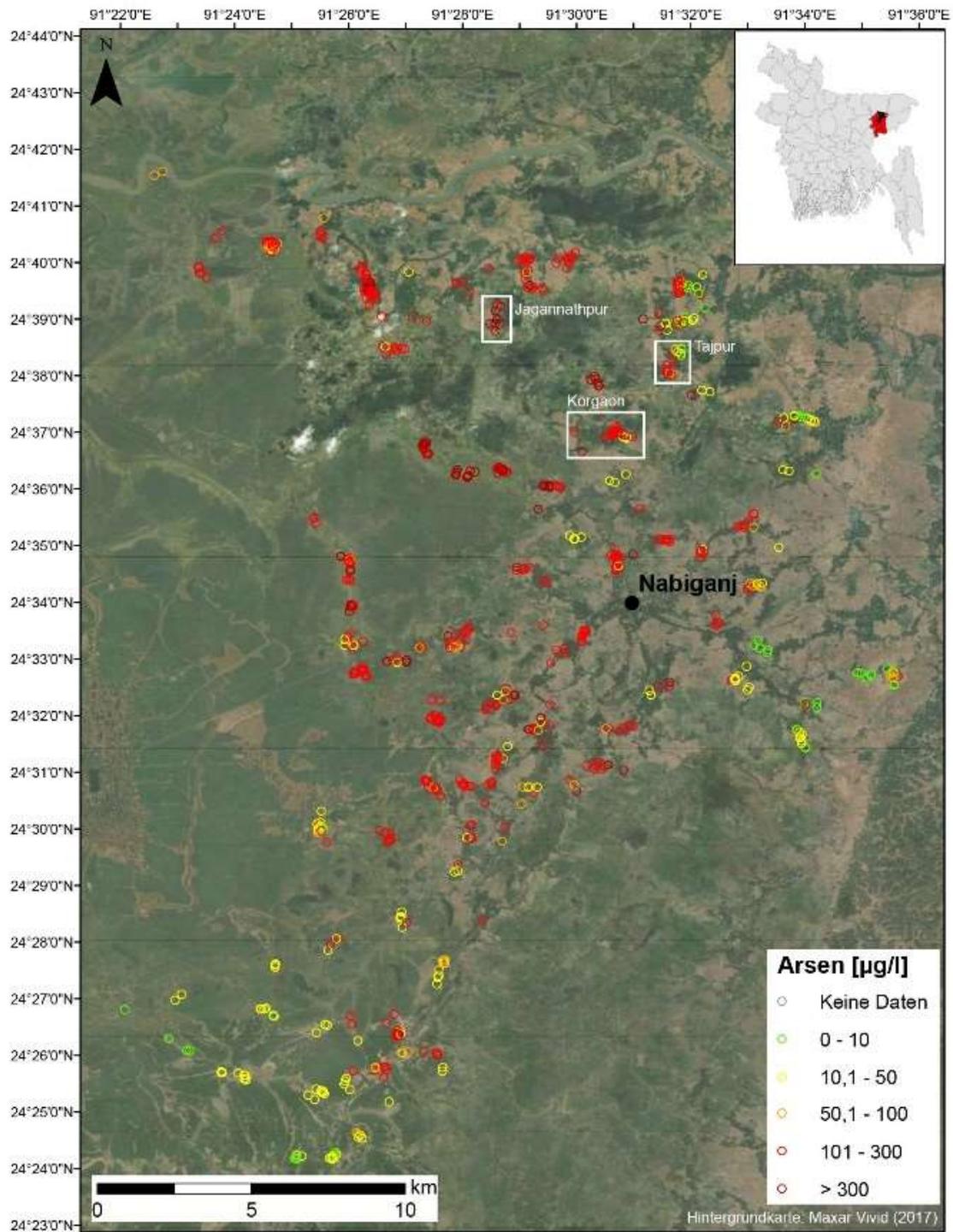


Abbildung 5-23: Arsengehalte der flachen Brunnen (bis 50m u. GOK) am Standort Habiganj und Verortung der Detailuntersuchungsgebiete.

5 Ergebnisse

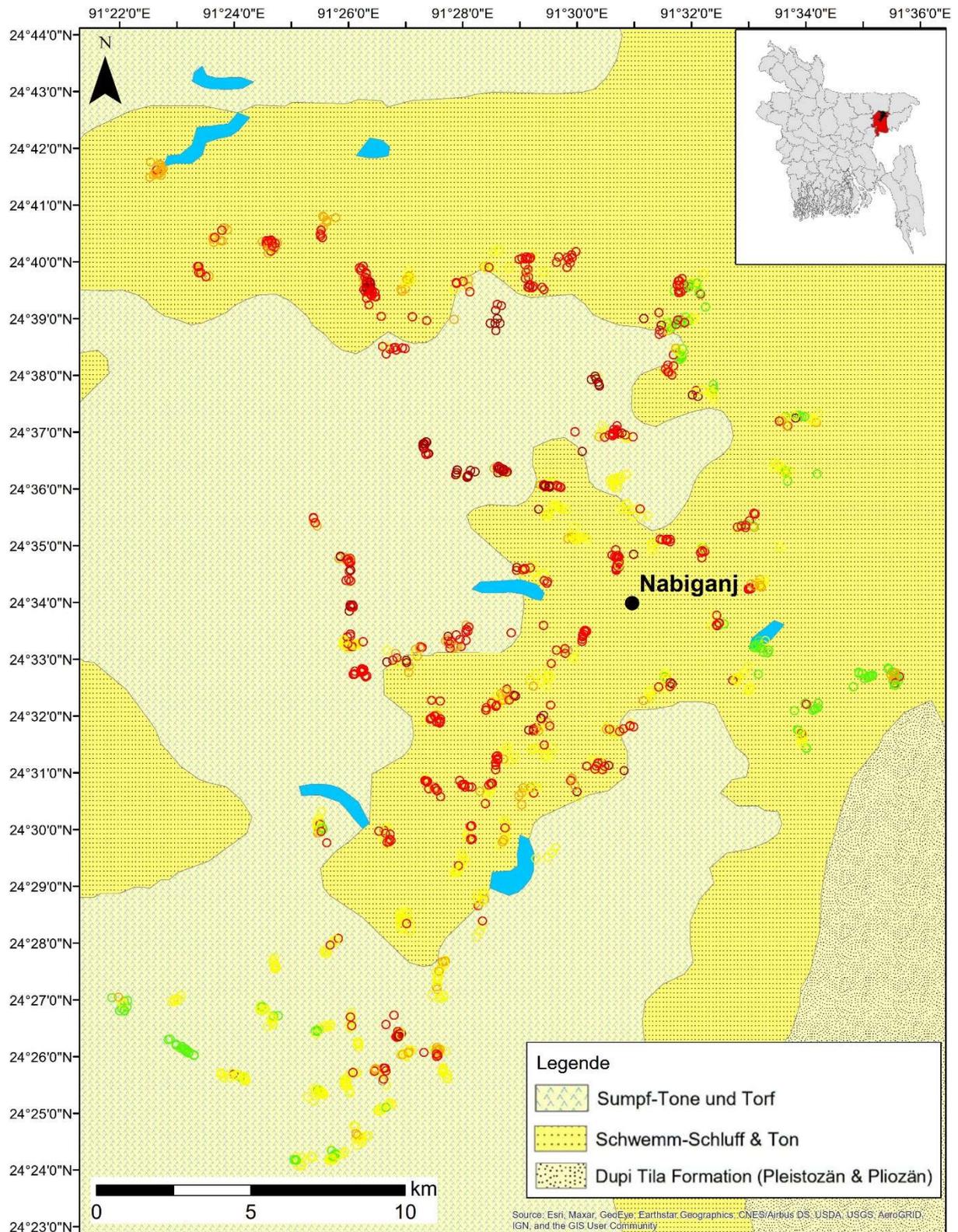


Abbildung 5-24: Arsengehalte der flachen Brunnen (bis 50m u. GOK) am Standort Habiganj und geologischer Kontext (Legende siehe Abbildung 5-23). Datengrundlage: Persits *et al.*, 2001.

5.4 Einfluss von Überflutungsprozessen auf die Brunnen

Nachfolgend wird dargestellt, wie sich die Überflutungsprozesse auf die geochemischen Bedingungen auswirken.

5.4.1 Beeinflussung von Arsengehalten und geochemischen Bedingungen

Bei dem **flächendeckenden Datensatz** vom Standort Habiganj wurden die Arsengehalte der sehr flachen Brunnen (bis 30m Tiefe, 657 Brunnen) den Anteilen an Wasser-, Feucht- und Trockenflächen im 500, 100 und 50m Radius um den Brunnen gegenübergestellt. Die Flächenanteile sind die gemittelten jährlichen Anteile. Wasserflächen machen nur zwischen 3% (50m Radius) und 4% (500m Radius) sowie maximal 12% (500m Radius) aus. Sie zeigen keinen Zusammenhang mit den Arsengehalten der dazugehörigen Brunnen.

Einen wesentlich größeren Anteil machen Feuchtflächen aus. Sie bedecken zwischen 10% (50m Radius), 20% (100m Radius) und etwa 40% (500m Radius) der Flächen. Tendenziell etwas höhere Arsengehalte sind bei höheren Feuchtflächenanteilen ab einem Radius von 100m zu beobachten (Abbildung 5-25).

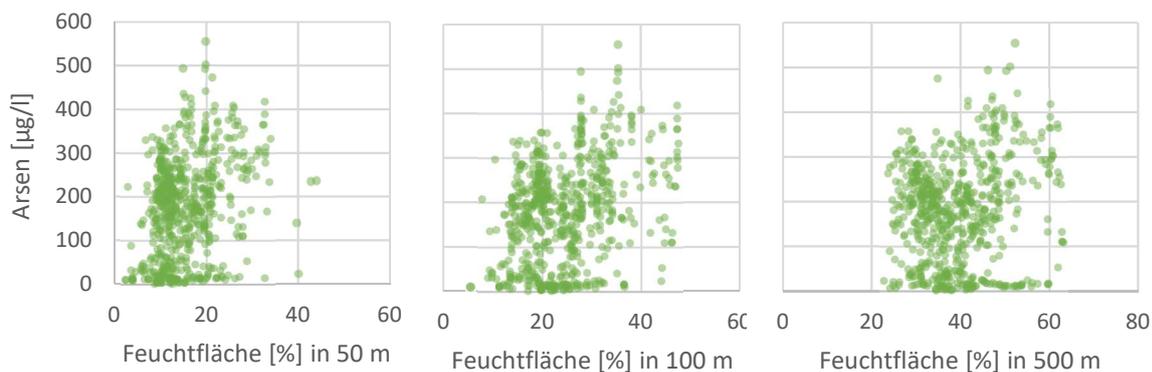


Abbildung 5-25: Jährliches Mittel der Feuchtflächenanteile [%] im 50, 100 und 500m Radius um die flachen Brunnen der flächendeckenden Studie sowie die gemessenen Arsengehalte dieser Brunnen.

Zwischen der Flächennutzung im 100m Radius um die 657 flachen (<30m tiefe) Brunnen und den gemessenen Kationen wurden Korrelationen analysiert (Tabelle 5-1). Diese weisen darauf hin, dass kein signifikanter Zusammenhang zwischen den geochemischen Parametern im Brunnen und der Oberflächennutzung im 100m Radius um den Brunnen besteht.

Bei den **saisonalen Daten** vom Standort Habiganj wurden die Daten der einzelnen flachen Brunnen sowie der Median dargestellt. Alle Korrelationsrechnungen auf Grundlage des saisonalen Datensatzes können Anlage 5 entnommen werden.

Die deutlichsten Zusammenhänge sind im 100m Radius zu erkennen (Tabelle 5-2). Einen geringfügig positiven aber signifikanten Zusammenhang mit Trockenflächen zeigt lediglich Eisen. Alle übrigen im Grundwasser gemessenen Parameter sind negativ oder nicht mit Trockenflächen korreliert. Das Gegenteil lässt sich für Feucht- und Wasserflächen feststellen, die mit allen Stoffen positiv korrelieren, mit Ausnahme von Eisen. Insbesondere Arsen ist sehr signifikant positiv mit Feuchtflächen korreliert und signifikant mit Wasserflächen. Ein starker positiver und sehr signifikanter Zusammenhang besteht

5 Ergebnisse

außerdem zwischen Wasserflächen und Natrium, Chlorid, Bromid und TOC, sowie etwas weniger signifikant ($p < 0,05$) zwischen Wasserflächen und Arsen, Phosphor und anorganischem Kohlenstoff.

Werden diese Korrelationsrechnungen allerdings für jede Probenahme einzeln durchgeführt, ist keine der zuvor genannten Korrelationen zu erkennen (Anlage 5). Jede einzelne Probenahme in sich zeigt weder auffällige positive oder negative Zusammenhänge mit Oberflächen.

Auch für die Brunnen des mittleren Tiefenbereichs (31-110 m) sind keine signifikanten Einflüsse durch Oberflächen mehr festzustellen.

Tabelle 5-1: Korrelation zwischen der Flächennutzung im 100 m Radius um die flachen Brunnen (2,7 bis 30 m tief, $n = 657$ Brunnen) und den gemessenen Gehalten an Kationen im Brunnenwasser. Es besteht keine Signifikanz ($p > 0,05$).

	<i>Trocken</i>	<i>Feucht</i>	<i>Wasser</i>
Calcium	0,0	0,1	0,2
Kalium	-0,1	0,1	0,1
Magnesium	0,0	0,1	0,1
Natrium	-0,2	0,3	0,1
Arsen	-0,1	0,3	0,1
Eisen	0,1	-0,2	0,0
Mangan	0,1	-0,2	-0,1
Phosphor	-0,1	0,2	0,1
Schwefel	0,0	0,0	0,0
Silizium	0,1	-0,1	0,0

Tabelle 5-2: Korrelation zwischen dem Median der prozentualen Flächennutzung im 500, 100 und 50 m Radius um die flachen Brunnen (23-30 m tief) und die im Brunnen gemessenen Stoffe. Signifikante Werte ($p < 0,05$) sind fett, sehr signifikante Werte ($p < 0,01$) fett und unterstrichen.

<i>Brunnentiefe:</i> <i>23-30 m</i>	<i>Trocken</i>			<i>Feucht</i>			<i>Wasser</i>		
	<i>Trocken</i>	<i>Feucht</i>	<i>Wasser</i>	<i>Trocken</i>	<i>Feucht</i>	<i>Wasser</i>	<i>Trocken</i>	<i>Feucht</i>	<i>Wasser</i>
Ca	-0,2	0,2	0,4	-0,2	0,2	0,1	-0,2	0,3	0,1
Mg	-0,3	0,3	0,2	-0,3	0,4	0,3	-0,3	0,4	0,2
Na	-0,3	0,4	0,1	-0,5	0,4	0,7	-0,4	0,4	0,2
K	-0,3	0,1	0,6	0,0	-0,1	0,1	-0,1	0,0	0,1
As	-0,3	0,4	0,2	-0,5	0,5	0,4	-0,3	0,5	0,3
Fe	0,4	-0,5	-0,1	0,5	-0,4	-0,4	0,4	-0,4	-0,3
Mn	0,1	-0,1	-0,1	0,3	-0,4	-0,2	0,2	-0,4	-0,2
P	-0,2	0,3	0,0	-0,4	0,4	0,4	-0,2	0,4	0,2
Si	0,3	-0,3	-0,1	0,3	-0,2	-0,3	0,3	-0,2	-0,3
Cl	-0,3	0,4	0,1	-0,4	0,4	0,7	-0,3	0,3	0,1
Br	-0,2	0,3	0,0	-0,3	0,4	0,8	-0,2	0,4	0,1
IC	-0,2	0,2	0,2	-0,4	0,5	0,4	-0,2	0,5	0,3
TOC	-0,2	0,3	0,0	-0,4	0,5	0,7	-0,3	0,5	0,2
NH ₄	0,0	0,1	-0,1	-0,2	0,4	0,3	-0,1	0,5	0,4

Die Auswertung der geochemischen Daten aller Standorte weist im Vergleich zum jährlichen Feuchtflächenanteil darauf hin, dass lokale Faktoren einen Einfluss auf diese haben. In Sirajganj und Pabna und Habiganj geht ein größerer Anteil an Feuchtflächen (Flächen, die mehr als 6 Monate im Jahr als solche klassifiziert wurden) tendenziell mit etwas höheren Arsen, Methan und TOC-Gehalten einher (Abbildung 5-26). Dennoch passen die Messwerte der Dörfer Bera und Boalia zu Chandpur, während sich die von Dadpur - trotz größerer räumlicher Distanz - besser zu denen von Habiganj einfügen. Besonders auffällig ist das Dorf Jagannathpur, das trotz großer Feuchtflächen nur etwa halb so hohe Arsengehalte aufweist wie Chandpur, mit den geringsten Anteilen an Feuchtflächen. Insbesondere in Chandpur, Tajpur und Korgaon streuen die Arsengehalte innerhalb der jeweiligen Dörfer stärker als dies in Abhängigkeit von den Oberflächennutzungen festgestellt werden kann.

Insgesamt ist Chandpur der Standort mit den höchsten Trockenflächenanteilen - rund 82% der Flächen sind mehr als 6 Monate im Jahr trocken, obwohl es am Zusammenfluss von Ganges und Brahmaputra liegt, sowie nur knapp 70km von der Küste entfernt. In vier von neun Brunnen mittlerer Tiefe (18 bis 34m) konnte ein sehr starker mariner Einfluss festgestellt werden. Dieser zeigt sich durch sehr hohe Leitfähigkeiten (mit bis zu 4.000 $\mu\text{S}/\text{cm}$ mehr als das Fünffache der übrigen Brunnen und von normalem Leitungswasser) und Gehalten an Natrium bzw. Chlorid. Diese Brunnen hatten dafür geringe Arsengehalte. An den Standorten Bera und Boalia, die mehr als 200km von der Küste entfernt sind, besteht kein mariner Einfluss.

Erwartungsgemäß sind bei den Trockenflächen gegenläufige Trends zu den Feuchtflächen zu beobachten. Die Korrelationsberechnungen für den geochemischen Datensatz ($n = 48$) basieren auf dem prozentualen Flächenanteil, der mehr als 6 Monate im Jahr 2019 im 100m Radius um den Brunnen vorliegt und den im Brunnen gemessenen Parametern (Probenahmen Februar 2019 und 2020). Bei diesem Datensatz zeigen sich Korrelationen, die deutlich von jenen des saisonalen Datensatzes und dem flächenhaften Datensatz aus Nabiganj abweichen (Tabelle 5-3). Besonders auffällig ist eine überwiegend negative Korrelation zwischen Stoffen und Feuchtflächenanteilen, die sehr signifikant bei Redox, Calcium, Mangan und Chlorid auftreten. Eben diese Stoffe sind stattdessen positiv mit Trockenflächen korreliert. Eine signifikant positive Korrelation besteht zwischen Kalium, Phosphor, Silica, Methan, Ammonium und Feuchtflächen. Wasserflächen haben mit Ausnahme von Silica, Fluorid und TC keinen signifikanten Einfluss auf die geochemische Zusammensetzung des Grundwassers.

Der im saisonalen Datensatz festgestellte Zusammenhang zwischen Feuchtflächen und Arsen sowie Feucht/Wasserflächen und TOC lässt sich mit diesem geochemischen Datensatz nicht bestätigen.

5 Ergebnisse

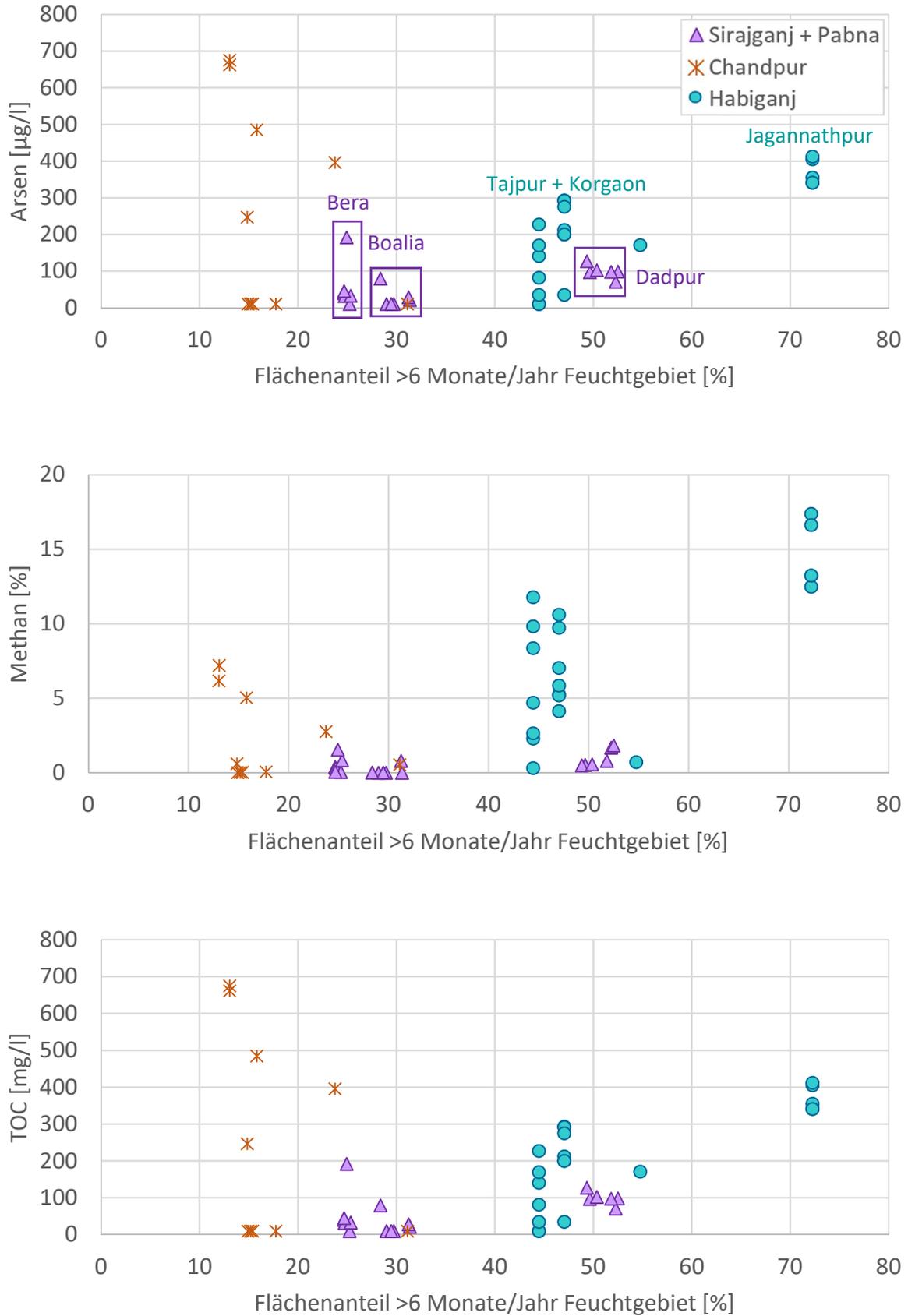


Abbildung 5-26: Arsen, Methan und TOC-Gehalt an den vier Standorten im Vergleich zu den jährlichen Feuchtflächenanteilen im 100m Radius um die Brunnen.

Tabelle 5-3: Korrelation zwischen der mehr als 6 Monate im Jahr 2019 festgestellte prozentuale Flächennutzung im 100m Radius um die Brunnen (n = 48) an den Standorten Korgaon, Jagannathpur, Tajpur, Bera, Boalia, Dadpur und Chandpur sowie die im Brunnen gemessenen Stoffe. Signifikante Werte ($p < 0,05$) sind fett, sehr signifikante Werte ($p < 0,01$) fett und unterstrichen.

	<i>Trocken</i>	<i>Feucht</i>	<i>Wasser</i>
pH-Wert	-0,1	0,2	-0,2
Leitfähigkeit	0,4	-0,4	-0,2
Temperatur	0,2	-0,2	-0,1
Redox	0,4	-0,4	-0,1
Sauerstoff	-0,1	0,0	0,2
Ca	0,6	-0,5	-0,1
K	-0,3	0,4	0,1
Mg	-0,1	0,1	0,3
Na	0,4	-0,4	-0,3
As	-0,1	0,2	-0,1
Fe	-0,1	0,1	0,1
Mn	0,4	-0,4	-0,2
P	-0,6	0,6	0,0
S	0,0	0,0	0,0
Si	-0,5	0,5	0,4
F	0,3	-0,3	-0,4
Cl	0,4	-0,4	-0,2
NO ₃	0,1	-0,1	0,2
SO ₄	0,0	-0,1	0,0
TOC	-0,1	0,1	-0,2
TC	-0,2	0,2	-0,3
IC	-0,1	0,1	-0,2
HCO ₃	-0,1	0,1	-0,2
CH ₄	-0,6	0,6	0,1
CO ₂	0,1	-0,2	0,2
NH ₄	-0,6	0,6	-0,1

5.4.2 Differenzierung zwischen natürlicher und anthropogener Überflutung

Zur Beurteilung natürlicher oder anthropogener Überflutungsflächen werden Niederschlagsdaten und die Bewässerungszeiten den über Fernerkundung detektierten Flächenanteilen im 100 m Radius um die saisonal beprobten Brunnen gegenübergestellt (Abbildung 5-27).

Insgesamt ist eine starke Streuung der einzelnen Brunnendaten zu erkennen. Im Median (dunklere Linie) zeigen sich kaum saisonale Schwankungen. Lediglich bei der letzten Probenahme im Mai 2019 ist eine leichte Abnahme bei den Feuchtflächen sowie eine leichte Zunahme bei den Trockenflächen festzustellen.

5 Ergebnisse

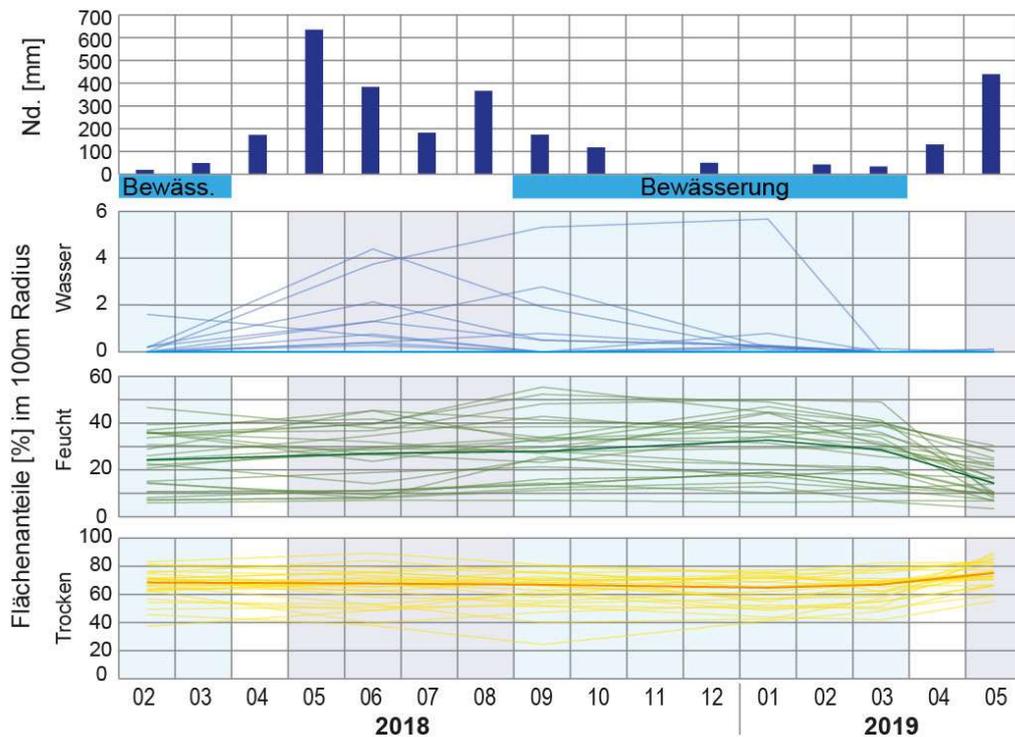


Abbildung 5-27: Zeitlicher Verlauf der Niederschläge (Wetterstation Srimangal) und Bewässerung sowie Oberflächenanteile im 100 m Radius um alle 26 flachen Brunnen (<30 m tief), die dunkelste Linie ist der Median der Gesamtdaten.

5.5 Saisonale Variabilität in Habiganj

Über die saisonalen Probenahmen zwischen 2018 und 2019 konnten keine saisonalen Schwankungen der Inhaltsstoffe in den Brunnen festgestellt werden. Zwar weisen einzelne der flachen Brunnen Änderungen der Arsen- und TOC-Gehalte auf (transparente Linien, Abbildung 5-28), die sich im Median (dunkle Linie, Abbildung 5-28) jedoch nicht nachweisen lassen.

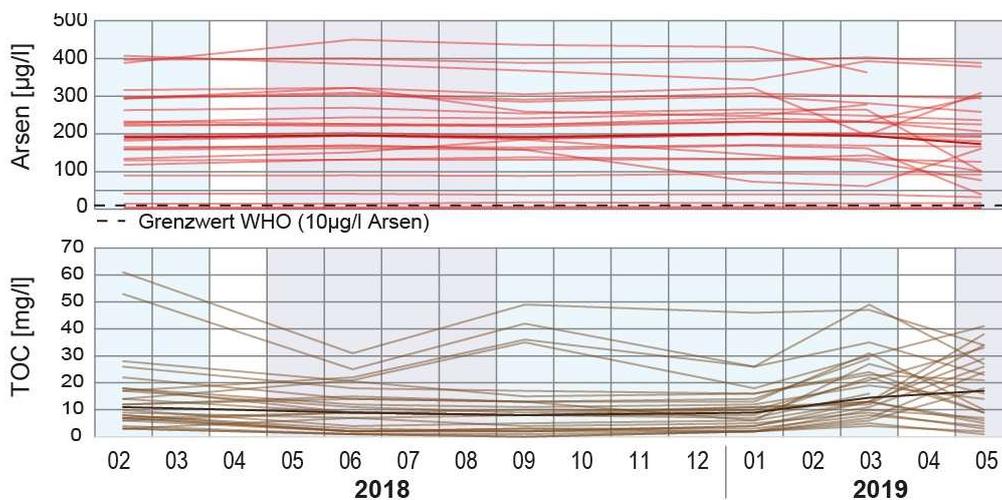


Abbildung 5-28: Zeitlicher Verlauf der Niederschläge (Wetterstation Srimangal) und Bewässerung sowie Arsen- und TOC-Gehalte in den 26 flachen Brunnen (<30 m tief), die dunkelste Linie ist der Median der Gesamtdaten.

6 Diskussion

Die Daten weisen darauf hin, dass die grundlegenden geologischen und hydrogeologischen Bedingungen an allen drei Standorten vergleichbar sind. Die Bohrungen an den beiden Standorten Korgaon und Bera zeigen in den oberen Bereichen schluffig-bindige Deckschichten, die von sandigen Schichten unterlagert werden. In Korgaon werden diese sandigen Schichten lokal von tonigen Sedimenten unterbrochen, die einen Aquitard bilden, der in der gesamten Region Habiganj aufzutreten scheint.

Bera und Korgaon liegen in der Ebene des Ganges-Brahmaputra-Meghna-Deltas. Bera nahe dem Zusammenfluss von Ganges und Brahmaputra und Korgaon nahe des Megna. Die Sedimente weisen jedoch darauf hin, dass trotz unterschiedlicher Transportwege relativ ähnliche Sedimentationsbedingungen vorgelegen haben. Auch die Geochemie des Grundwassers an beiden Standorten weist auf eine ähnliche Zusammensetzung der Sedimente hin.

Im Folgenden sollen die gewonnenen Ergebnisse auf Basis der im ersten Kapitel gestellten Fragen diskutiert werden.

6.1 Geochemische Bedingungen sedimentär und im Grundwasser

Insgesamt zeigen die Grundwasser- und Sedimentdaten, dass trotz regionaler Unterschiede das Grundwasser der meisten Haushaltsbrunnen aus einem Tiefenbereich stammt, in dem die Manganreduktion sowie die beginnende Eisenreduktion die vorherrschenden Prozesse sind. Die Sulfatreduktion scheint lediglich an einem Standort, Boalia (Sirajganj), von Bedeutung zu sein. Ansonsten sind die Schwefelgehalte sowohl im Sediment als auch im Grundwasser sehr niedrig, weshalb Prozesse der Sulfatreduktion, die durch Pyritbildung zur Fällung von Arsen führen könnten, an den untersuchten Standorten nicht in bedeutsamem Maß auftreten.

Im Sediment ist Arsen eindeutig mit Eisen assoziiert. Allerdings weist die negative Korrelation von Arsen und Eisen im Grundwasser aller Standorte darauf hin, dass Fällungs- oder Adsorptionsprozesse auftreten. Auf Grundlage der vorliegenden HCl-Eluate ist allerdings nicht davon auszugehen, dass Eisen als Eisenkarbonat (z.B. Siderit) ausfällt, sondern in anderer Form gefällt wird oder andere Prozesse Ursache dieser negativen Korrelation sind.

Unter manganreduzierenden bzw. eisenreduzierenden Bedingungen ist normalerweise keine Methanogenese zu erwarten. Die dennoch an einzelnen Standorten sowie einzelnen Brunnen beobachteten hohen Methangehalte wurden auch von anderen Studien festgestellt (Ahmed *et al.*, 1998). Neuere Studien weisen darauf hin, dass mikrobielle Methanoxidation mit der Reduktion von Nitrat, Eisen oder Mangan einhergehen und dabei Arsen mobilisieren kann (Glodowska *et al.*, 2020a, 2020b).

Die Daten dieser Arbeit bestätigen, dass Methan stärker für die Arsenmobilität verantwortlich ist als der TOC. Gleichzeitig steht der TOC im Grundwasser mit der Methanogenese im Zusammenhang, jedoch nur bedingt mit gelöstem Arsen. Dies weist auf einen mehrstufigen Prozess hin, bei dem zunächst der TOC zu Methan verstoffwechselt wird und anschließend zur Arsenmobilität führt. Sehr wahrscheinlich ist in diesem Zusammenhang auch, dass das Kalk-Kohlensäure-Gleichgewicht eine größere Rolle in den gesamten Prozessen spielt, als bisher angenommen.

Viele Arbeiten gehen davon aus, dass das Arsen aus den arsenreichen flachen Deckschichten stammt und entsprechend während der Überstauung in der Regenzeit mobilisiert wird (Harvey *et al.*, 2006; Polizzotto *et al.*, 2008; Stuckey *et al.*, 2015). Vor diesem Hintergrund ist sehr wahrscheinlich, dass von

unten aufsteigendes Methan sich unterhalb der dichten Deckschicht sammelt und schnell zu reduzierenden Bedingungen in diesen flachen Tiefen führt. Saisonale Schwankungen sind dennoch nicht festzustellen, was Neidhardt *et al.* (2014) ebenfalls beobachten und auf die hohe Adsorptionskapazität der Sedimente zurückführen, an denen das gelöste Arsen adsorbiert. Dennoch führt die kontinuierliche Lösung aus den oberen Schichten sehr wahrscheinlich zu einer langsamen und fortschreitenden Anreicherung in den darunter gelegenen Aquiferen. Um die genauen Prozesse zu verstehen, die unterhalb der Deckschicht ablaufen, sowie die Bedeutung von Methan in dem Prozess, sind tiefenzoniertere sowie saisonale Probenahmen notwendig.

Auffällig ist die Korrelation zwischen Arsen und Silizium im Grundwasser der flachen Brunnen. Die sehr hohen Siliziumgehalte weisen auf starke Verwitterungsprozesse hin, die wahrscheinlich mit den hohen Grundwassertemperaturen zusammenhängen (Fournier & Potter II, 1982). Ungeklärt ist jedoch, wie stark an den Standorten CO₂ zur Verwitterung von Silikaten beiträgt oder ob die verfügbaren Karbonate ausreichend sind für die Pufferung der Kohlensäure. Die tendenziell negative Korrelation zwischen Arsen und Silizium lässt vermuten, dass Fällungsprozesse stattfinden. Auch hierzu werden weitere Studien empfohlen.

6.2 Eintrag und Bedeutung von oberflächlichem TOC für die Arsenmobilität

Während die saisonalen Daten darauf hinweisen, dass es möglicherweise einen Eintrag von TOC durch Feucht- und Wasserflächen gibt, bestätigen die übrigen Daten diesen Zusammenhang nicht. Weitere und tiefer aufgelöste Daten sind notwendig, um die Bedeutung von oberflächlich eingetragenen TOC beurteilen zu können. Der Stoffeintrag über Tümpel, wie von Neumann *et al.* (2010) und Lawson *et al.* (2013) beschrieben, konnte über die hier vorgestellte Methodik allerdings nicht bewertet werden, da die kleinen Tümpel mit der geringen Auflösung der Radar-Daten nicht erfasst werden können. Daten mit höherer Auflösung wären hierfür notwendig oder die Nutzung anderer verfügbarer Datensätze. Die Arbeiten von Connolly *et al.* (2022) weisen allerdings darauf hin, dass eine derart detaillierte Erfassung von Wasserflächen für die Vorhersage von arsenbelasteten Brunnen nicht notwendig ist, da bereits gering aufgelöste Datensätze über lange Zeiträume (Landsat) für diese Prognosen ausreichen.

Die Korrelation der sedimentären TOC-Gehalte, mit den sedimentären Arsengehalten an beiden Standorten legt nahe, dass sedimentärer organischer Kohlenstoff möglicherweise eine zentralere Rolle für die Arsenmobilität spielt. Von besonderer Bedeutung scheint allerdings die Löslichkeit des organischen Kohlenstoffs zu sein und der unmittelbare Verbrauch dieses Kohlenstoffs. In Bera sind im Median nur 6,4% des sedimentären TOC wasserlöslich, während in Korgaon 9,5% im Wasser gelöst werden können. Trotz dieser höheren Löslichkeit konnten im Grundwasser in Korgaon nur 4 bis 25 mg/l TOC (Median 18 mg/l) nachgewiesen werden, in Bera hingegen fast doppelt so viel mit 4 bis 42 mg/l (Median 33 mg/l). Dies könnte auch darauf zurückzuführen sein, dass für die Grundwasserproben der Detailuntersuchung Membranfilter mit 0,22 µm verwendet wurden, was engermaschiger ist als 0,45 µm per analytischer Definition die Maschengröße für gelöstes Organisches Material (vgl. Regan *et al.*, 2017). Damit treten im Grundwasser Bangladeschs TOC-Gehalte auf, die nach Regan *et al.* (2017) unter normal landwirtschaftlich genutzten Flächen zu erwarten sind und nicht auf Feuchtgebiet-Bedingungen hinweisen (mit DOC von bis zu 200 mg/l). Ursache für diese Diskrepanz zwischen potenzieller TOC-Verfügbarkeit und tatsächlichem Vorkommen könnte die Umwandlung in Methan sein. An den Standorten Korgaon, Tajpur und Jagannathpur bestand im Grundwasser ein positiver Zusammenhang zwischen TOC und CH₄ bei einer gleichfalls positiven Korrelation zwischen Arsen und CH₄. Dies weist

darauf hin, dass hohe TOC-Gehalte im Sediment mit guter Wasserlöslichkeit zur Ausbildung von methanogenen Bedingungen führen, die wiederum mit erhöhten Arsengehalten einhergehen. Dabei ist die Löslichkeit des sedimentären TOC anscheinend von größerer Bedeutung als die Menge an vorhandenem TOC, da sowohl in Bera als auch in Korgaon sowohl sedimentäres Arsen als auch sedimentärer TOC verfügbar sind, aber nur in Korgaon eine verstärkte Mobilität des Arsens festzustellen ist.

Ob der TOC an den untersuchten Standorten von der Oberfläche eingetragen wird oder überwiegend aus dem Sediment stammt, lässt sich nicht final klären. Es konnten keine erhöhten TOC-Gehalte im Zusammenhang mit dem Monsun festgestellt werden oder mit intensiver Bewässerung.

6.3 Auswirkung von Latrinen auf Arsenmobilität

Die Erhebung der Latrinen und Brunnen weist darauf hin, dass selbst in der ländlichen Region Nabiganj eine hohe Dichte an Latrinen und Brunnen besteht - wodurch ein gegenseitiger Einfluss nicht ausgeschlossen werden kann. Basierend auf den im Rahmen der HCE-Studie erhobenen Daten konnte allerdings kein statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen dem Abstand der Latrine zum Brunnen und den Arsengehalten im Brunnen hergestellt werden.

Es ist anzunehmen, dass die mächtige schluffige Deckschicht und der insgesamt sehr feinkörnige Untergrundaufbau einen Transport von Abwassereintrag in den Aquifer verhindern. Graham *et al.* (2013) beschreiben die Ausbildung einer biologisch aktiven Schicht im Umkreis der Latrinengruben, die den direkten Eintrag von Mikrobiologie und Fäkalien stark limitiert. Außerdem wird über Latrinen nicht nur organischer Kohlenstoff eingetragen, sondern auch Schwefel und Sauerstoffverbindungen, die in unmittelbarer Nähe zur Latrine zur Immobilisierung des Arsens führen (van Geen *et al.*, 2011; McArthur *et al.*, 2012). Im Rahmen der HCE-Studie konnte nicht belegt werden, dass ein Eintrag von TOC über Latrinen stattfindet. Aufgrund der hohen Latrinen- und Bevölkerungsdichte ist ein solcher Eintrag nicht auszuschließen und möglicherweise über die verwendete Methode nicht zu erfassen. McArthur *et al.* (2012) gehen davon aus, dass anoxische Bedingungen durch Eintrag von Latrinenabwässern erst im 30m Abstand von der Latrine festzustellen sind. Möglicherweise stellt die hohe Latrindichte einen quasi-flächenhaften Eintrag dar, wie von Arbeiten in Malawi beschrieben (Back *et al.*, 2018). Dieser wäre über diese Methode möglicherweise nicht feststellbar.

Im Rahmen der HCE-Studie wurde davon ausgegangen, dass die Grundwasserfließrichtung bei 1441 Datenpunkten an Relevanz verliert und sich statistisch herausmittelt. Dennoch wäre die Berücksichtigung von hydrogeologischen Parametern wie Grundwasserfließrichtung, Grundwasserfließgeschwindigkeit und Grundwasserneubildung für zukünftige Arbeiten möglicherweise hilfreich.

6.4 Zusammenhang zwischen Überflutung(sphasen) und Arsenmobilität

Der in unterschiedlichen Studien eindeutig beschriebene Zusammenhang zwischen monsunalen Niederschlägen und erhöhten TOC-Gehalten (Majumder *et al.*, 2016) oder zwischen monsunalen erzeugten Überflutungen und Arsengehalten (Connolly *et al.*, 2022) konnten in dieser Arbeit nicht in dieser Eindeutigkeit beobachtet werden. Allerdings wurden im Rahmen dieser Arbeit lediglich Oberflächen im 50, 100 und 500m Radius um die Brunnen berücksichtigt, basierend auf den angenommenen Fließgeschwindigkeiten. Connolly *et al.* (2022) wählten hingegen einen Radius von 1,5km und beziehen Flussläufe sowie deren Arsengehalte in die Bewertung mit ein. Ihre Arbeiten

belegen einen Zusammenhang zwischen Arsengehalten in Brunnen und Überflutungen in Kambodscha, Vietnam und Bangladesch. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, dass die Fließgeschwindigkeiten in Bangladesch deutlich schneller sind, als bisher angenommen, was den Beobachtungen von Harvey *et al.* (2006) entspricht, wonach die starke Wasserentnahme durch Pumpvorgänge zu einer deutlichen Beschleunigung der Fließgeschwindigkeiten und der Grundwasserneubildung führt.

6.5 Differenzierung zwischen natürlicher und anthropogener Überflutung

Ob die Überflutung durch natürliche Prozesse (monsunaler Niederschlag) oder anthropogene Einflüsse (Bewässerung für landwirtschaftliche Nutzung) verursacht wird, konnte anhand der verfügbaren Daten nicht abschließend geklärt werden, da nur ein relativ kurzer Zeitraum (1,5 Jahre) berücksichtigt werden konnte. Die hydrogeologischen Bedingungen lassen vermuten, dass die Grundwasserneubildung zeitverzögert auftritt (Nowreen *et al.*, 2020) und auch Studien zu geochemischen Prozessen belegen, dass diese eine Zeitverzögerung aufweisen (Neidhardt *et al.*, 2014). Insgesamt gibt es zu wenige Daten zu den hydrogeologischen Bedingungen an allen untersuchten Standorten. Zukünftige Studien zu dem Thema sollten weitreichendere Datensätze sowie Tracerversuche für ein besseres Verständnis der lokalen hydrogeologischen Bedingungen umfassen.

6.6 Zeitliche Variabilität der Grundwasserzusammensetzung

Am Standort Nabiganj ist keine zeitliche Variabilität der Grundwasserzusammensetzung zu erkennen. Der hohe Feinanteil des Sediments führt hier vermutlich zur sehr langsamen Grundwasserneubildungsraten, weshalb sich Gleichgewichte einstellen. Es ist davon auszugehen, dass die saisonale Variabilität der geochemischen Zusammensetzung in flacheren Aquiferbereichen auftritt und nur über tiefenzoniertes Monitoring über längere Zeiträume erfasst werden kann.

6.7 Nutzung von Satellitendaten für Vorhersage der Arsengehalte in den Brunnen

Aktuelle Arbeiten belegen, dass Satellitendaten durchaus für die Beurteilung der Grundwasserqualität geeignet sind (Connolly *et al.*, 2022). Die in der vorliegenden Dissertation verwendeten Radarbasierten Sentinel 1-Daten verfügen über eine bessere räumliche und zeitliche Auflösung als die von Connolly *et al.* (2022) verwendeten Landsat-Daten, da auch Wolkenbedeckung kein Problem darstellt. Allerdings reichen die Sentinel-Daten nur bis 2014 zurück, wodurch umfassendere geochemische Grundwasserdatensätze aus Bangladesch (z.B. BGS & DPHE, 2001) im Rahmen dieser Arbeit und für diese Fragestellung nicht genutzt werden konnten. Für zukünftige Arbeiten ähnlicher Fragestellung stellt die Nutzung von Sentinel 1-Daten aber eine gute Möglichkeit dar.

6.8 Einfluss der Landbedeckung auf geochemische Bedingungen im Untergrund

Zusammenfassend weisen die Daten darauf hin, dass die Landbedeckung keinen unmittelbaren Einfluss auf die geochemischen Bedingungen in den Brunnen hat. Allerdings wurde in dieser Arbeit nur die Landbedeckung des Jahres mitberücksichtigt, in dem die Probenahmen durchgeführt wurden (2018 bis 2019). Vergleichbare Studien weisen darauf hin, dass die langfristige Oberflächenbedeckung durchaus Auswirkungen auf geochemische Prozesse hat (Connolly *et al.*, 2022).

7 Schlussfolgerungen

Insgesamt zeigen die vorliegenden Daten eine eindeutige Korrelation zwischen Methan und Arsen sowie eine weniger eindeutige Korrelation zwischen Arsen und TOC. Dieser Befund weist darauf hin, dass Methan eine Schlüsselrolle einnimmt, während der TOC nur indirekt zu hohen Arsengehalten führt. Damit in direktem Zusammenhang stehen der Kohlenstoffkreislauf und das Karbonat-Gleichgewicht - die bislang in den meisten Studien zu Bangladesch nur wenig berücksichtigt wurden. Positive Korrelationen zwischen Arsen und Calcium, die in dieser Studie festgestellt werden konnten, weisen allerdings darauf hin, dass dieser Aspekt in zukünftiger Forschung berücksichtigt werden sollte.

Weiterhin bestätigen die Ergebnisse die Hypothese, dass sich die entscheidenden Prozesse der Arsenmobilität in flacheren Bereichen des Aquifers abspielen, sich aber durch die ausschließliche Beprobung von Haushaltsbrunnen nicht vollständig erfassen lassen. Daher sollten zukünftige Arbeiten saisonale und tiefenzonierte Probenahmen umfassen, um Stoffeinträge von oben über Niederschläge oder Bewässerung sowie die Bedeutung von aufsteigendem Methan besser abschätzen zu können. Dabei sollten auch verstärkt Bewässerungsbrunnen bzw. siedlungsferne Brunnen in das Monitoring aufgenommen werden. Als weitere Ansätze für ein verbessertes Verständnis der ablaufenden Prozesse wird eine umfassendere Analytik des Sediments (z.B. über Röntgendiffraktometrie oder REM) oder die Berechnung von Sättigungsindizes vorgeschlagen, um Fällungsprozesse nachvollziehen zu können.

Die erbrachten Ergebnisse zu den Tümpeln und den Latrinen sind nicht ausreichend um zu belegen, dass über diese beiden anthropogenen Eintragungspfade organisches Material dem Untergrund zugeführt wird. Welches Ausmaß dieser Eintrag hat und wie er sich auf die geochemischen Prozesse auswirkt, sollte ebenfalls in zukünftigen Studien bewertet werden. Hierbei sollten alle Brunnen, Latrinen und Tümpel systematisch erfasst werden.

Im Rahmen dieser Dissertation konnte gezeigt werden, dass Radar-Daten eine sinnvolle Ergänzung zu den weit zurückreichenden aber schlechter aufgelösten Landsat-Daten darstellen. Für die Erfassung von kleinflächigen Haushaltstümpeln ist deren Auflösung jedoch weiterhin nicht ausreichend. Zusammenfassend wird deutlich, dass mit der vorliegenden Arbeit neue Daten und Ergebnisse, aber auch neue Fragen im Hinblick auf die drängende und komplexe Frage zum Auftreten hoher Arsengehalte im Grundwasser von Bangladesch erbracht werden konnten.

Bibliographie

- Ahmed, K. M.; Hoque, M.; Hasan, M. K.; Ravenscroft, P. & Chowdhury, L. R. (1998): 'Occurrence and Origin of Water Well Methane Gas in Bangladesh', in: *Journal Geological Society of India*, 51, 697–708.
- Ahmed, K. M.; Bhattacharya, P.; Hasan, M. A.; Akhter, S. H.; Alam, S. M. M.; Bhuyian, M. A. H.; Imam, M. B.; Khan, A. A. & Sracek, O. (2004): 'Arsenic enrichment in groundwater of the alluvial aquifers in Bangladesh: an overview', in: *Applied Geochemistry*, 19(2), 181–200. doi: 10.1016/j.apgeochem.2003.09.006.
- Ahmed, M. F.; Ahuja, S.; Alauddin, M.; Hug, S. J.; Lloyd, J. R.; Pfaff, A.; Pichler, T.; Saltikov, C.; Stute, M. & van Geen, A. (2006): 'Ensuring Safe Drinking Water in Bangladesh', in: *Science*, 314(5806), 1687–1688. doi: 10.1126/science.1133146.
- Akai, J.; Izumi, K.; Fukuhara, H.; Masuda, H.; Nakano, S.; Yoshimura, T.; Ohfuji, H.; Md Anawar, H. & Akai, K. (2004): 'Mineralogical and geomicrobiological investigations on groundwater arsenic enrichment in Bangladesh', in: *Applied Geochemistry*, 19(2), 215–230. doi: 10.1016/j.apgeochem.2003.09.008.
- Alam, M.; Alam, M. M.; Curray, J. R.; Chowdhury, M. L. R. & Gani, M. R. (2003): 'An overview of the sedimentary geology of the Bengal Basin in relation to the regional tectonic framework and basin-fill history', in: *Sedimentary Geology*, 155(3–4), 179–208. doi: 10.1016/S0037-0738(02)00180-X.
- Alam, M. S.; Wu, Y. & Cheng, T. (2014): 'Silicate minerals as a source of arsenic contamination in groundwater', in: *Water, Air, and Soil Pollution*, 225(11), 1–15. doi: 10.1007/s11270-014-2201-9.
- Anawar, H. M.; Akai, J.; Yoshioka, T.; Konohira, E.; Lee, J. Y.; Fukuhara, H.; Tari Kul Alam, M. & Garcia-Sanchez, A. (2006): 'Mobilization of arsenic in groundwater of Bangladesh: evidence from an incubation study', in: *Environmental Geochemistry and Health*, 28(6), 553–565. doi: 10.1007/s10653-006-9054-0.
- Anawar, H. M.; Akai, J. & Sakugawa, H. (2004): 'Mobilization of arsenic from subsurface sediments by effect of bicarbonate ions in groundwater', in: *Chemosphere*, 54(6), 753–762. doi: 10.1016/j.chemosphere.2003.08.030.
- Anawar, H. M.; Tareq, S. M. & Ahmed, G. (2013): 'Is organic matter a source or redox driver or both for arsenic release in groundwater?', in: *Physics and Chemistry of the Earth 58–60*, 49–56. doi: 10.1016/j.pce.2013.04.009.
- Appelo, C. A. J. & Postma, D. (2005): *Geochemistry, groundwater and pollution*. 2nd edn. Boca Raton, London, New York: CRC Press, Taylor & Francis Group.
- Argos, M.; Kalra, T.; Rathouz, P. J.; Chen, Y.; Pierce, B.; Parvez, F.; Islam, T.; Ahmed, A.; Rakibuz-Zaman, M.; Hasan, R.; Sarwar, G.; Slavkovich, V.; van Geen, A.; Graziano, J. & Ahsan, H. (2010): 'Arsenic exposure from drinking water, and all-cause and chronic-disease mortalities in Bangladesh (HEALS): a prospective cohort study', in: *The Lancet*, 376(9737), 252–258. doi: 10.1016/S0140-6736(10)60481-3.

- Ateia, M.; Ran, J.; Fujii, M. & Yoshimura, C. (2017): 'The relationship between molecular composition and fluorescence properties of humic substances', in: *International Journal of Environmental Science and Technology*, 14(4), 867–880. doi: 10.1007/s13762-016-1214-x.
- Ayers, J. C.; Goodbred, S.; George, G.; Fry, D.; Benneyworth, L.; Hornberger, G.; Roy, K.; Karim, M. R. & Akter, F. (2016): 'Sources of salinity and arsenic in groundwater in southwest Bangladesh', in: *Geochemical Transactions*, 17(4). doi: 10.1186/s12932-016-0036-6.
- Aziz Hasan, M.; Bhattacharya, P.; Sracek, O.; Ahmed, K. M.; von Brömssen, M. & Jacks, G. (2009): 'Geological controls on groundwater chemistry and arsenic mobilization: Hydrogeochemical study along an E–W transect in the Meghna basin, Bangladesh', in: *Journal of Hydrology*, 378, 105–118. doi: 10.1016/j.jhydrol.2009.09.016.
- Back, J. O.; Rivett, M. O.; Hinz, L. B.; Mackay, N.; Wanangwa, G. J.; Phiri, O. L.; Songola, C. E.; Thomas, M. A. S.; Kumwenda, S.; Nhlema, M.; Miller, A. V. M. & Kalin, R. M. (2018): 'Risk assessment to groundwater of pit latrine rural sanitation policy in developing country settings', in: *Science of The Total Environment*, 613–614, 592–610. doi: 10.1016/j.scitotenv.2017.09.071.
- Bangladesh Bureau of Statistics (BBS) (2019): Bangladesh Statistics 2019. Verfügbar unter: <http://www.bbs.gov.bd/site/page/02e10d71-a07c-4384-9934-cd62d9e88b3b/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Bangladesh Bureau of Statistics (BBS) (2020): Statistical Yearbook Bangladesh 2019. 39th edn. Dhaka: Government of the People's Republic of Bangladesh. Verfügbar unter: <http://www.bbs.gov.bd/site/page/29855dc1-f2b4-4dc0-9073-f692361112da/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Bangladesh Bureau of Statistics (BBS) & UNICEF Bangladesh (2019): Progotir Pathey, Bangladesh Multiple Indicator Cluster Survey 2019: Survey Findings Report. Dhaka, Bangladesh: Bangladesh Bureau of Statistics (BBS). Verfügbar unter: <https://www.unicef.org/bangladesh/en/reports/progotir-pathey-bangladesh> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- British Geological Survey (BGS) & Department of Public Health Engineering (DPHE) (2001): 'Arsenic contamination of groundwater in Bangladesh Vol 2: final report', in: *BGS Technical Report WC/00/19*, 2. Verfügbar unter: <https://www2.bgs.ac.uk/groundwater/health/arsenic/Bangladesh/reports.html> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Bhowmick, S.; Nath, B.; Halder, D.; Biswas, A.; Majumder, S.; Mondal, P.; Chakraborty, S.; Nriagu, J.; Bhattacharya, P.; Iglesias, M.; Roman-Ross, G.; Guha Mazumder, D.; Bundschuh, J. & Chatterjee, D. (2013): 'Arsenic mobilization in the aquifers of three physiographic settings of West Bengal, India: Understanding geogenic and anthropogenic influences', in: *Journal of Hazardous Materials*, 262, 915–923. doi: 10.1016/j.jhazmat.2012.07.014.
- Bibi, M. H.; Ahmed, F. & Ishiga, H. (2006): 'Distribution of arsenic and other trace elements in the Holocene sediments of the Meghna River Delta, Bangladesh', in: *Environmental Geology*, 50(8), 1243–1253. doi: 10.1007/s00254-006-0298-x.
- Biswas, A.; Gustafsson, J. P.; Neidhardt, H.; Halder, D.; Kundu, A. K.; Chatterjee, D.; Berner, Z. & Bhattacharya, P. (2014a): 'Role of competing ions in the mobilization of arsenic in groundwater

Bibliographie

- of Bengal Basin: Insight from surface complexation modeling', in: *Water Research*, 55, 30–39. doi: 10.1016/j.watres.2014.02.002.
- Biswas, A.; Neidhardt, H.; Kundu, A. K.; Halder, D.; Chatterjee, D.; Berner, Z.; Jacks, G. & Bhattacharya, P. (2014b): 'Spatial, vertical and temporal variation of arsenic in shallow aquifers of the Bengal Basin: Controlling geochemical processes', in: *Chemical Geology*, 387, 157–169. doi: 10.1016/j.chemgeo.2014.08.022.
- Blume, H.-P.; Brümmer, G. W.; Horn, R.; Kandeler, E.; Kögel-Knabner, I.; Kretzschmar, R.; Stahr, K.; Wilke, B.-M.; Thiele-Bruhn, S. & Welp, G. (2010): *Lehrbuch der Bodenkunde*. 16th edn. Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag. doi: 10.1007/978-3-8274-2251-4.
- Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (2012): Trinkwasserschutzgebiete. Verfügbar unter: <https://www.bmu.de/themen/wasser-ressourcen-abfall/binnengewasser/trinkwasser/trinkwasser-trinkwasserschutzgebiete> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Burgess, W. G.; Hoque, M. A.; Michael, H. A.; Voss, C. I.; Breit, G. N. & Ahmed, K. M. (2010): 'Vulnerability of deep groundwater in the Bengal Aquifer System to contamination by arsenic', in: *Nature Geoscience*, 3(2), 83–87. doi: 10.1038/ngeo750.
- Burton, E. D.; Johnston, S. G. & Kocar, B. D. (2014): 'Arsenic Mobility during Flooding of Contaminated Soil: The Effect of Microbial Sulfate Reduction', in: *Environmental Science & Technology*, 48(23), 13660–13667. doi: 10.1021/es503963k.
- Buschmann, J. & Berg, M. (2009): 'Impact of sulfate reduction on the scale of arsenic contamination in groundwater of the Mekong, Bengal and Red River deltas', in: *Applied Geochemistry*, 24(7), 1278–1286. doi: 10.1016/j.apgeochem.2009.04.002.
- Central Intelligence Agency (CIA) (2022): The world factbook. Verfügbar unter: <https://www.cia.gov/the-world-factbook/countries/bangladesh/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Chakraborti, D.; Rahman, M. M.; Mukherjee, A.; Alauddin, M.; Hassan, M.; Dutta, R. N.; Pati, S.; Mukherjee, S. C.; Roy, S.; Quamruzzman, Q.; Rahman, M.; Morshed, S.; Islam, T.; Sorif, S.; Selim, M.; Islam, M. R. & Hossain, M. M. (2015): 'Groundwater arsenic contamination in Bangladesh - 21 Years of research', in: *Journal of Trace Elements in Medicine and Biology*, 31, 237–248. doi: 10.1016/j.jtemb.2015.01.003.
- Chakraborty, M.; Sarkar, S.; Mukherjee, A.; Shamsudduha, M.; Ahmed, K. M.; Bhattacharya, A. & Mitra, A. (2020): 'Modeling regional-scale groundwater arsenic hazard in the transboundary Ganges River Delta, India and Bangladesh: Infusing physically-based model with machine learning', in: *Science of The Total Environment*, 748. doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.141107.
- Chakraborty, M.; Mukherjee, A. & Ahmed, K. M. (2015): 'A Review of Groundwater Arsenic in the Bengal Basin, Bangladesh and India: from Source to Sink', in: *Current Pollution Reports*, 1(4), 220–247. doi: 10.1007/s40726-015-0022-0.
- Chatterjee, D.; Kundu, A.; Saha, D.; Barman, S. & Mandal, U. (2017): 'Groundwater Arsenic in the Bengal Delta Plain: Geochemical and Geomorphological Perspectives', in: *Procedia Earth and Planetary Science*, 17, 622–625. doi: 10.1016/j.proeps.2016.12.166.

- Christensen, T. H.; Bjerg, P. L.; Banwart, S. A.; Jakobsen, R.; Heron, G. & Albrechtsen, H.-J. (2000): 'Characterization of redox conditions in pollution plumes', in: *Journal of Contaminant Hydrology*, 45(3–4), 181–188. doi: 10.1016/S0169-7722(00)00109-1.
- Clement, M. A.; Kilsby, C. G. & Moore, P. (2018): 'Multi-temporal synthetic aperture radar flood mapping using change detection', in: *Journal of Flood Risk Management*, 11(2), 152–168. doi: 10.1111/jfr3.12303.
- Connolly, C. T.; Stahl, M. O.; DeYoung, B. A. & Bostick, B. C. (2022): 'Surface Flooding as a Key Driver of Groundwater Arsenic Contamination in Southeast Asia', in: *Environmental Science & Technology*, 56(2), 928–937. doi: 10.1021/acs.est.1c05955.
- Coomar, P.; Mukherjee, A.; Bhattacharya, P.; Bundschuh, J.; Verma, S.; Fryar, A. E.; Ramos Ramos, O. E.; Muñoz, M. O.; Gupta, S.; Mahanta, C.; Quino, I. & Thunvik, R. (2019): 'Contrasting controls on hydrogeochemistry of arsenic-enriched groundwater in the homologous tectonic settings of Andean and Himalayan basin aquifers, Latin America and South Asia', in: *Science of the Total Environment*, 689, 1370–1387. doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.05.444.
- Crutzen, P. J. (2002): 'Geology of mankind', in: *Nature*, 415(6867), 23. doi: 10.1038/415023a.
- Das, A. & Mondal, S. (2021): 'Geomorphic controls on shallow groundwater arsenic contamination in Bengal basin, India', in: *Environmental Science and Pollution Research*, 28(31), 42177–42195. doi: 10.1007/s11356-021-13761-5.
- Datta, S.; Neal, A. W.; Mohajerin, T. J.; Ocheltree, T.; Rosenheim, B. E.; White, C. D. & Johannesson, K. H. (2011): 'Perennial ponds are not an important source of water or dissolved organic matter to groundwaters with high arsenic concentrations in West Bengal, India', in: *Geophysical Research Letters*, 38(20), 1–5. doi: 10.1029/2011GL049301.
- Destatis, Statistisches Bundesamt (2021): 'Statistisches Länderprofil Bangladesch'. Statistisches Bundesamt (Destatis). Verfügbar unter: <https://www.destatis.de/DE/Themen/Laender-Regionen/Internationales/Laenderprofile/bangladesch.html> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Dhar, R. K.; Zheng, Y.; Stute, M.; van Geen, A.; Cheng, Z.; Shanewaz, M.; Shamsudduha, M.; Hoque, M. A.; Rahman, M. W. & Ahmed, K. M. (2008): 'Temporal variability of groundwater chemistry in shallow and deep aquifers of Araihasar, Bangladesh', in: *Journal of Contaminant Hydrology*, 99(1–4), 97–111. doi: 10.1016/j.jconhyd.2008.03.007.
- Donselaar, M. E.; Bhatt, A. G. & Ghosh, A. K. (2017): 'On the relation between fluvio-deltaic flood basin geomorphology and the wide-spread occurrence of arsenic pollution in shallow aquifers', in: *Science of The Total Environment*, 574, 901–913. doi: 10.1016/j.scitotenv.2016.09.074.
- Dowling, C. B.; Poreda, R. J.; Basu, A. R.; Peters, S. L. & Aggarwal, P. K. (2002): 'Geochemical study of arsenic release mechanisms in the Bengal Basin groundwater', in: *Water Resources Research*, 38(9), 12-1–12-18. doi: 10.1029/2001WR000968.
- DPHE (2006): Final Report on Development of Deep Aquifer Database and Preliminary Deep Aquifer Map (First Phase). Department of Public Health Engineering, Local Government Division, Ministry of LGRD and Co-operatives, Government of the People's Republic of Bangladesh.
- Edmunds, W. M.; Ahmed, K. M. & Whitehead, P. G. (2015): 'A review of arsenic and its impacts in groundwater of the Ganges–Brahmaputra–Meghna delta, Bangladesh', in: *Environ. Sci.: Processes Impacts*, 17(6), 1032–1046. doi: 10.1039/C4EM00673A.

Bibliographie

- ESA (2021a): Sentinel-1 SAR Technical Guide. Verfügbar unter: <https://sentinel.esa.int/web/sentinel/technical-guides/sentinel-1-sar/products-algorithms/level-1-algorithms/products> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- ESA (2021b): Sentinel-1 SAR User Guide. Verfügbar unter: <https://sentinel.esa.int/web/sentinel/user-guides/sentinel-1-sar> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- FAO, Food and Agriculture Organization of the United Nations (2017a): Aquastat. Bangladesh. Verfügbar unter: <https://www.fao.org/aquastat/statistics/query/index.html?lang=en> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- FAO, Food and Agriculture Organization of the United Nations (2017b): The future of food and agriculture: trends and challenges, Rom. Verfügbar unter: <https://www.fao.org/3/i6583e/i6583e.pdf> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022). ISBN: 978-92-5-109551-5.
- Farooq, S. H.; Chandrasekharam, D.; Berner, Z.; Norra, S. & Stüben, D. (2010): 'Influence of traditional agricultural practices on mobilization of arsenic from sediments to groundwater in Bengal delta', in: *Water Research*, 44(19), 5575–5588. doi: 10.1016/j.watres.2010.05.057.
- Farooq, S. H.; Chandrasekharam, D.; Norra, S.; Berner, Z.; Eiche, E.; Thambidurai, P. & Stüben, D. (2011): 'Temporal variations in arsenic concentration in the groundwater of Murshidabad District, West Bengal, India', in: *Environmental Earth Sciences*, 62(2), 223–232. doi: 10.1007/s12665-010-0516-4.
- Farooq, S. H.; Chandrasekharam, D.; Abbt-Braun, G.; Berner, Z.; Norra, S. & Stüben, D. (2012): 'Dissolved organic carbon from the traditional jute processing technique and its potential influence on arsenic enrichment in the Bengal Delta', in: *Applied Geochemistry*, 27(1), 292–303. doi: 10.1016/j.apgeochem.2011.09.006.
- Fick, S. E. & Hijmans, R. J. (2017): 'WorldClim 2: new 1-km spatial resolution climate surfaces for global land areas', in: *International Journal of Climatology*, 37(12), 4302–4315. doi: 10.1002/joc.5086.
- Flanagan, S.; Johnston, R. & Zheng, Y. (2012): 'Arsenic in tube well water in Bangladesh: health and economic impacts and implications for arsenic mitigation', in: *Bulletin of the World Health Organization*, 90(11), 839–846. doi: 10.2471/BLT.11.101253.
- Fournier, R. O. & Potter II, R. W. (1982): 'A Revised and Expanded Silica (Quartz) Geothermometer', in: *Geothermal Resources Council Bulletin*, 11, 3–12.
- GEE, Google Earth Engine (2021): Sentinel 1 Algorithms. Verfügbar unter: <https://developers.google.com/earth-engine/guides/sentinell> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- van Geen, A.; Rose, J.; Thorai, S.; Garnier, J. M.; Zheng, Y. & Bottero, J. Y. (2004): 'Decoupling of As and Fe release to Bangladesh groundwater under reducing conditions. Part II: Evidence from sediment incubations', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(17), 3475–3486. doi: 10.1016/j.gca.2004.02.014.
- van Geen, A.; Ahmed, K. M.; Akita, Y.; Alam, M. J.; Culligan, P. J.; Emch, M.; Escamilla, V.; Feighery, J.; Ferguson, A. S.; Knappett, P.; Layton, A. C.; Mailloux, B. J.; McKay, L. D.; Mey, J. L.; Serre, M. L.; Streatfield, P. K.; Wu, J. & Yunus, M. (2011): 'Fecal Contamination of Shallow

- Tubewells in Bangladesh Inversely Related to Arsenic', in: *Environmental Science & Technology*, 45(4), 1199–1205. doi: 10.1021/es103192b.
- Ghosh, P.; Das, A.; Majunder, M.; Mukherjee, SK & Chatterjee, D. (2020): 'Arsenic Mobilization Process in Shallow Aquifer of Bengal Delta Plain: A Field Scale Study to Identify the Role of Coliform Bacteria', in: *Journal of Biomedical Research & Environmental Sciences*, 1(8), 372–382. doi: 10.37871/jbres1168.
- Glodowska, M.; Stopelli, E.; Schneider, M.; Lightfoot, A.; Rathi, B.; Straub, D.; Patzner, M.; Duyen, V. T.; Berg, M.; Kleindienst, S. & Kappler, A. (2020a): 'Role of in Situ Natural Organic Matter in Mobilizing As during Microbial Reduction of Fe III -Mineral-Bearing Aquifer Sediments from Hanoi (Vietnam)', in: *Environmental Science & Technology*, 54(7), 4149–4159. doi: 10.1021/acs.est.9b07183.
- Glodowska, M.; Stopelli, E.; Schneider, M.; Rathi, B.; Straub, D.; Lightfoot, A.; Kipfer, R.; Berg, M.; Jetten, M.; Kleindienst, S. & Kappler, A. (2020b): 'Arsenic mobilization by anaerobic iron-dependent methane oxidation', in: *Communications Earth & Environment*, 1(1), 1–7. doi: 10.1038/s43247-020-00037-y.
- Glodowska, M.; Stopelli, E.; Straub, D.; Vu Thi, D.; Trang, P. T. K.; Viet, P. H.; AdvectAs team members; Berg, M.; Kappler, A. & Kleindienst, S. (2020c): 'Arsenic behavior in groundwater in Hanoi (Vietnam) influenced by a complex biogeochemical network of iron, methane, and sulfur cycling', in: *Journal of Hazardous Materials*, 407, 124398. doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.124398.
- Goodbred, S. L. & Kuehl, S. A. (1999): 'Holocene and modern sediment budgets for the Ganges-Brahmaputra river system: Evidence for highstand dispersal to flood-plain, shelf, and deep-sea depocenters', in: *Geology*, 27(6), 559–562.
- Gorelick, N.; Hancher, M.; Dixon, M.; Ilyushchenko, S.; Thau, D. & Moore, R. (2017): 'Google Earth Engine: Planetary-scale geospatial analysis for everyone', in: *Remote Sensing of Environment*, 202, 18–27. doi: 10.1016/j.rse.2017.06.031.
- Graham, J. P. & Polizzotto, M. L. (2013): 'Pit Latrines and Their Impacts on Groundwater Quality: A Systematic Review', in: *Environmental Health Perspectives*, 121(5), 521–530. doi: 10.1289/ehp.1206028.
- Halim, M. A.; Majumder, R. K.; Nessa, S. A.; Hiroshiro, Y.; Sasaki, K.; Saha, B. B.; Saepuloh, A. & Jinno, K. (2010): 'Evaluation of processes controlling the geochemical constituents in deep groundwater in Bangladesh: Spatial variability on arsenic and boron enrichment', in: *Journal of Hazardous Materials*, 180(1–3), 50–62. doi: 10.1016/j.jhazmat.2010.01.008.
- Harris, D. C. (2014): *Lehrbuch der quantitativen Analyse*. 8. Auflage. Editoren: G. Werner & T. Werner. Berlin, Heidelberg: Springer. doi: 10.13109/9783666401510.38.
- Harris, I.; Jones, P. D.; Osborn, T. J. & Lister, D. H. (2014): 'Updated high-resolution grids of monthly climatic observations - the CRU TS3.10 Dataset', in: *International Journal of Climatology*, 34(3), 623–642. doi: 10.1002/joc.3711.
- Hartmann, J. F.; Schiller, A.; Gentz, T.; Greule, M.; Grossart, H. P.; Ionescu, D.; Keppler, F.; Martinez-Cruz, K.; Sepulveda-Jauregui, A. & Isenbeck-Schröter, M. (2017): 'Real Time Measurement of Concentration and $\delta^{13}\text{C}$ -CH₄ in Water', in: *Procedia Earth and Planetary Science*, 17, 460–463. doi: 10.1016/j.proeps.2016.12.116.

Bibliographie

- Harvey, C. F.; Swartz, C. H.; Badruzzaman, A. B. M.; Keon-Blute, N.; Yu, W.; Ali, M. A.; Jay, J.; Beckie, R.; Niedan, V.; Brabander, D.; Oates, P. M.; Ashfaq, K. N.; Islam, S.; Hemond, H. F. & Ahmed, M. F. (2002): 'Arsenic Mobility and Groundwater Extraction in Bangladesh', in: *Science*, 298(5598), 1602–1606. Verfügbar unter: <http://www.jstor.org/stable/3832844> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Harvey, C. F.; Swartz, C. H.; Badruzzaman, A. B. M.; Keon-Blute, N.; Yu, W.; Ali, M. A.; Jay, J.; Beckie, R.; Niedan, V.; Brabander, D.; Oates, P. M.; Ashfaq, K. N.; Islam, S.; Hemond, H. F. & Ahmed, M. F. (2005): 'Groundwater arsenic contamination on the Ganges Delta: biogeochemistry, hydrology, human perturbations, and human suffering on a large scale', in: *Comptes Rendus Geoscience*, 337(1–2), 285–296. doi: 10.1016/j.crte.2004.10.015.
- Harvey, C. F.; Ashfaq, K. N.; Yu, W.; Badruzzaman, A. B. M.; Ali, M. A.; Oates, P. M.; Michael, H. A.; Neumann, R. B.; Beckie, R.; Islam, S. & Ahmed, M. F. (2006): 'Groundwater dynamics and arsenic contamination in Bangladesh', in: *Chemical Geology*, 228(1–3), 112–136. doi: 10.1016/j.chemgeo.2005.11.025.
- Hilberg, S. (2015): *Umweltgeologie*, in: *Umweltgeologie*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. doi: 10.1007/978-3-662-46948-4.
- Hoque, M. A.; McArthur, J. M.; Sikdar, P. K.; Ball, J. D. & Molla, T. N. (2014): 'Tracing recharge to aquifers beneath an Asian megacity with Cl/Br and stable isotopes: The example of Dhaka, Bangladesh', in: *Hydrogeology Journal*, 22(7), 1549–1560. doi: 10.1007/s10040-014-1155-8.
- Hoque, M. & Butler, A. (2015): 'Medical Hydrogeology of Asian Deltas: Status of Groundwater Toxicants and Nutrients, and Implications for Human Health', in: *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 13(1), 81. doi: 10.3390/ijerph13010081.
- Horneman, A.; van Geen, A.; Kent, D. V.; Mathe, P. E.; Zheng, Y.; Dhar, R. K.; O'Connell, S.; Hoque, M. A.; Aziz, Z.; Shamsudduha, M.; Seddique, A. A. & Ahmed, K. M. (2004): 'Decoupling of As and Fe release to Bangladesh groundwater under reducing conditions. Part I: Evidence from sediment profiles', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(17), 3459–3473. doi: 10.1016/j.gca.2004.01.026.
- Hossain, M.; Mestrot, A.; Norton, G. J.; Deacon, C.; Islam, M. R. & Meharg, A. A. (2021): 'Arsenic dynamics in paddy soil under traditional manuring practices in Bangladesh', in: *Environmental Pollution*. 268, 115821. doi: 10.1016/j.envpol.2020.115821.
- Jakobsen, R.; Kazmierczak, J.; Sørensen, H. U. & Postma, D. (2018): 'Spatial Variability of Groundwater Arsenic Concentration as Controlled by Hydrogeology: Conceptual Analysis Using 2-D Reactive Transport Modeling', in: *Water Resources Research*, 54(12), 10,254-10,269. doi: 10.1029/2018WR023685.
- Keon, N. E.; Swartz, C. H.; Brabander, D. J.; Harvey, C. & Hemond, H. F. (2001): 'Validation of an Arsenic Sequential Extraction Method for Evaluating Mobility in Sediments', in: *Environmental Science & Technology*, 35(13), 2778–2784. doi: 10.1021/es001511o.
- Kinniburgh, D. G.; Smedley, P. L.; Davies, J.; Milne, C. J.; Gaus, I.; Trafford, J. M.; Burden, S.; Ihtishamul Huq, S. M.; Ahmad, N. & Ahmed, K. M. (2007): 'The scale and causes of the groundwater arsenic problem in Bangladesh', in: *Arsenic in Ground Water*, 211–257. doi: 10.1007/0-306-47956-7_8.

- Kirk, Matthew F.; Roden, Eric E.; Crossey, Laura J.; Brealey, Adrian J. & Spilde, Michael N. (2010): 'Experimental analysis of arsenic precipitation during microbial sulfate and iron reduction in model aquifer sediment reactors', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74(9), 2538–2555. doi: 10.1016/j.gca.2010.02.002.
- Kränzlin, I. (2000): 'Pond management in rural Bangladesh: problems and possibilities in the context of the water supply crisis', in: *Natural Resources Forum*, 24, 211–223.
- Kulkarni, H. V.; Mladenov, N.; Johannesson, K. H. & Datta, S. (2017): 'Contrasting dissolved organic matter quality in groundwater in Holocene and Pleistocene aquifers and implications for influencing arsenic mobility', in: *Applied Geochemistry*, 77, 194–205. doi: 10.1016/j.apgeochem.2016.06.002.
- Kulkarni, H. V.; Mladenov, N.; Datta, S. & Chatterjee, D. (2018): 'Influence of monsoonal recharge on arsenic and dissolved organic matter in the Holocene and Pleistocene aquifers of the Bengal Basin', in: *Science of The Total Environment*, 637–638, 588–599. doi: 10.1016/j.scitotenv.2018.05.009.
- Lawson, M.; Polya, D. A.; Boyce, A. J.; Bryant, C.; Mondal, D.; Shantz, A. & Ballentine, C. J. (2013): 'Pond-Derived Organic Carbon Driving Changes in Arsenic Hazard Found in Asian Groundwaters', in: *Environmental Science & Technology*, 47(13), 7085–7094. doi: 10.1021/es400114q.
- Leber, J.; Rahman, M. M.; Ahmed, K. M.; Mailloux, B. & van Geen, A. (2011): 'Contrasting Influence of Geology on E. coli and Arsenic in Aquifers of Bangladesh', in: *Ground Water*, 49(1), 111–123. doi: 10.1111/j.1745-6584.2010.00689.x.
- Lightfoot, A.; Brennwald, M. & Kipfer, R. (2021): 'The role of gases in an arsenic contaminated aquifer', in: *EGU General Assembly 2020*, 1. doi: 10.5194/egusphere-egu2020-10245.
- Lin, T. Y.; Wei, C. C.; Huang, C. W.; Chang, C. H.; Hsu, F. L. & Liao, V. H. C. (2016): 'Both Phosphorus Fertilizers and Indigenous Bacteria Enhance Arsenic Release into Groundwater in Arsenic-Contaminated Aquifers', in: *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 64(11), 2214–2222. doi: 10.1021/acs.jafc.6b00253.
- Lowers, H. A.; Breit, G. N.; Foster, A. L.; Whitney, J.; Yount, J.; Uddin, M. N. & Muneem, A. A. (2007): 'Arsenic incorporation into authigenic pyrite, Bengal Basin sediment, Bangladesh', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(11), 2699–2717. doi: 10.1016/j.gca.2007.03.022.
- Luxton, T. P.; Eick, M. J. & Rimstidt, D. J. (2008): 'The role of silicate in the adsorption/desorption of arsenite on goethite', in: *Chemical Geology*, 252(3–4), 125–135. doi: 10.1016/j.chemgeo.2008.01.022.
- Maier, M. (2014): Untersuchungen zum reaktiven Transport von Arsen im Grundwasserleiter: Prozessstudie und Entwicklung einer neuartigen Sanierungsmethode an einem Altstandort in Hessen, Deutschland. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg. doi: 10.11588/heidok.00017162.
- Maier, M. V. (2016): 'Insitu-Mobilisierung von Arsen im Grundwasser', in Franziskus, V., Altenbockum, M., und Gerhold, T. (eds) in: Handbuch Altlastensanierung und Flächenmanagement (HdA). Heidelberg: Hütig Jehle Rehm Verlag.

Bibliographic

- Maier, M. V.; Wolter, Y.; Zentler, D.; Scholz, C.; Stirn, C. N. & Isenbeck-Schröter, M. (2019): 'Phosphate Induced Arsenic Mobilization as a Potentially Effective In-Situ Remediation Technique—Preliminary Column Tests', in: *Water*, 11(11), 2364. doi: 10.3390/w11112364.
- Mailloux, B. J.; Trembath-Reichert, E.; Cheung, J.; Watson, M.; Stute, M.; Freyer, G. A.; Ferguson, A. S.; Ahmed, K. M.; Alam, M. J.; Buchholz, B. A.; Thomas, J.; Layton, A. C.; Zheng, Y.; Bostick, B. C. & van Geen, A. (2013): 'Advection of surface-derived organic carbon fuels microbial reduction in Bangladesh groundwater', in: *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110(14), 5331–5335. doi: 10.1073/pnas.1213141110.
- Majumder, R. K.; Halim, M. A.; Saha, B. B.; Ikawa, R.; Nakamura, T.; Kagabu, M. & Shimada, J. (2011): 'Groundwater flow system in Bengal Delta, Bangladesh revealed by environmental isotopes', in: *Environmental Earth Sciences*, 64(5), 1343–1352. doi: 10.1007/s12665-011-0959-2.
- Majumder, S.; Datta, S.; Nath, B.; Neidhardt, H.; Sarkar, S.; Roman-Ross, G.; Berner, Z.; Hidalgo, M.; Chatterjee, D. & Chatterjee, D. (2016): 'Monsoonal influence on variation of hydrochemistry and isotopic signatures: Implications for associated arsenic release in groundwater', in: *Journal of Hydrology*, 535, 407–417. doi: 10.1016/j.jhydrol.2016.01.052.
- McArthur, J. M.; Ravenscroft, P.; Safiulla, S. & Thirlwall, M. F. (2001): 'Arsenic in groundwater: Testing pollution mechanisms for sedimentary aquifers in Bangladesh', in: *Water Resources Research*, 37(1), 109–117. doi: 10.1029/2000WR900270.
- McArthur, J. M.; Banerjee, D. M.; Hudson-Edwards, K. A.; Mishra, R.; Purohit, R.; Ravenscroft, P.; Cronin, A.; Howarth, R. J.; Chatterjee, A.; Talukder, T.; Lowry, D.; Houghton, S. & Chadha, D. K. (2004): 'Natural organic matter in sedimentary basins and its relation to arsenic in anoxic ground water: the example of West Bengal and its worldwide implications', in: *Applied Geochemistry*, 19(8), 1255–1293. doi: 10.1016/j.apgeochem.2004.02.001.
- McArthur, J. M.; Sikdar, P. K.; Hoque, M. A. & Ghosal, U. (2012): 'Waste-water impacts on groundwater: Cl/Br ratios and implications for arsenic pollution of groundwater in the Bengal Basin and Red River Basin, Vietnam', in: *Science of The Total Environment*, 437, 390–402. doi: 10.1016/j.scitotenv.2012.07.068.
- McArthur, J. M.; Ghosal, U.; Sikdar, P. K. & Ball, J. D. (2016): 'Arsenic in Groundwater: The Deep Late Pleistocene Aquifers of the Western Bengal Basin', in: *Environmental Science & Technology*, 50(7), 3469–3476. doi: 10.1021/acs.est.5b02477.
- Meharg, A. A.; Scrimgeour, C.; Hossain, S. A.; Fuller, K.; Cruickshank, K.; Williams, P. N. & Kinniburgh, D. G. (2006): 'Codeposition of organic carbon and arsenic in Bengal Delta aquifers', in: *Environmental Science and Technology*, 40(16), 4928–4935. doi: 10.1021/es060722b.
- Mihajlov, I.; Stute, M.; Schlosser, P.; Mailloux, B. J.; Zheng, Y.; Choudhury, I.; Ahmed, K. M. & van Geen, A. (2016): 'Recharge of low-arsenic aquifers tapped by community wells in Araihasar, Bangladesh, inferred from environmental isotopes', in: *Water Resources Research*, 52(5), 3324–3349. doi: 10.1002/2015WR018224.
- Mihajlov, I.; Mozumder, M. R. H.; Bostick, B. C.; Stute, M.; Mailloux, B. J.; Knappett, P. S. K.; Choudhury, I.; Ahmed, K. M.; Schlosser, P. & van Geen, A. (2020): 'Arsenic contamination of Bangladesh aquifers exacerbated by clay layers', in: *Nature Communications*, 11(1). doi: 10.1038/s41467-020-16104-z.

- Mozumder, M. R. H.; Michael, H. A.; Mihajlov, I.; Khan, M. R.; Knappett, P. S. K.; Bostick, B. C.; Mailloux, B. J.; Ahmed, K. M.; Choudhury, I.; Koffman, T.; Ellis, T.; Whaley-Martin, K.; San Pedro, R.; Slater, G.; Stute, M.; Schlosser, P. & van Geen, A. (2020): 'Origin of Groundwater Arsenic in a Rural Pleistocene Aquifer in Bangladesh Depressurized by Distal Municipal Pumping', in: *Water Resources Research*, 56(7), 1–26. doi: 10.1029/2020WR027178.
- Mukherjee, A.; Fryar, A. E. & Howell, P. D. (2007): 'Regional hydrostratigraphy and groundwater flow modeling in the arsenic-affected areas of the western Bengal basin, West Bengal, India', in: *Hydrogeology Journal*, 15(7), 1397–1418. doi: 10.1007/s10040-007-0208-7.
- Mukherjee, A. & Fryar, A. E. (2008): 'Deeper groundwater chemistry and geochemical modeling of the arsenic affected western Bengal basin, West Bengal, India', in: *Applied Geochemistry*, 23(4), 863–894. doi: 10.1016/j.apgeochem.2007.07.011.
- Mukherjee, A.; Fryar, A. E. & Thomas, W. A. (2009): 'Geologic, geomorphic and hydrologic framework and evolution of the Bengal basin, India and Bangladesh', in: *Journal of Asian Earth Sciences*, 34(3), 227–244. doi: 10.1016/j.jseaes.2008.05.011.
- Naujokas, M. F.; Anderson, B.; Ahsan, H.; Aposhian, H. V.; Graziano, J. H.; Thompson, C. & Suk, W. A. (2013): 'The Broad Scope of Health Effects from Chronic Arsenic Exposure: Update on a Worldwide Public Health Problem', in: *Environmental Health Perspectives*, 121(3), 295–302. doi: 10.1289/ehp.1205875.
- Neidhardt, H.; Berner, Z. A.; Freikowski, D.; Biswas, A.; Majumder, S.; Winter, J.; Gallert, C.; Chatterjee, D. & Norra, S. (2014): 'Organic carbon induced mobilization of iron and manganese in a West Bengal aquifer and the muted response of groundwater arsenic concentrations', in: *Chemical Geology*, 367, 51–62. doi: 10.1016/j.chemgeo.2013.12.021.
- Neidhardt, H.; Schoeckle, D.; Schleinitz, A.; Eiche, E.; Berner, Z.; Tram, P. T. K.; Lan, V. M.; Viet, P. H.; Biswas, A.; Majumder, S.; Chatterjee, D.; Oelmann, Y. & Berg, M. (2018): 'Biogeochemical phosphorus cycling in groundwater ecosystems – Insights from South and Southeast Asian floodplain and delta aquifers', in: *Science of The Total Environment*, 644, 1357–1370. doi: 10.1016/j.scitotenv.2018.07.056.
- Neumann, R. B.; Polizzotto, M. L.; Badruzzaman, A. B. M.; Ali, M. A.; Zhang, Z. & Harvey, C. F. (2009): 'Hydrology of a groundwater-irrigated rice field in Bangladesh: Seasonal and daily mechanisms of infiltration', in: *Water Resources Research*, 45(9), 1–14. doi: 10.1029/2008WR007542.
- Neumann, R. B.; Ashfaq, K. N.; Badruzzaman, A. B. M.; Ashraf Ali, M.; Shoemaker, J. K. & Harvey, C. F. (2010): 'Anthropogenic influences on groundwater arsenic concentrations in Bangladesh', in: *Nature Geoscience*, 3(1), 46–52. doi: 10.1038/ngeo685.
- Neumann, R. B.; Pracht, L. E.; Polizzotto, M. L.; Badruzzaman, A. B. M. & Ali, M. A. (2014): 'Biodegradable Organic Carbon in Sediments of an Arsenic-Contaminated Aquifer in Bangladesh', in: *Environmental Science & Technology Letters*, 1(4), 221–225. doi: 10.1021/ez5000644.
- Noé, H. K. (2019): Prozesse der Arsenmobilisierung im Zusammenhang mit Methan und dessen Herkunft an drei Standorten in Bangladesch, Sylhet. Bachelorarbeit, Institut für Geowissenschaften, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.

Bibliographie

- Nowreen, S.; Taylor, R. G.; Shamsudduha, M.; Salehin, M.; Zahid, A. & Ahmed, K. M. (2020): 'Groundwater recharge processes in an Asian mega-delta: hydrometric evidence from Bangladesh', in: *Hydrogeology Journal*, 28(8), 2917–2932. doi: 10.1007/s10040-020-02238-3.
- Okrusch, M. & Matthes, S. (2014): Mineralogie. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. doi: 10.1007/978-3-642-34660-6.
- Oremland, R. S. & Stolz, J. F. (2005): 'Arsenic, microbes and contaminated aquifers', in: *Trends in Microbiology*, 13(2), 45–49. doi: 10.1016/j.tim.2004.12.002.
- Pal, T. & Mukherjee, P. K. (2009): 'Study of subsurface geology in locating arsenic-free groundwater in Bengal delta, West Bengal, India', in: *Environmental Geology*, 56(6), 1211–1225. doi: 10.1007/s00254-008-1221-4.
- Pedersen, H. D.; Postma, D. & Jakobsen, R. (2006): 'Release of arsenic associated with the reduction and transformation of iron oxides', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70(16), 4116–4129. doi: 10.1016/j.gca.2006.06.1370.
- Penman, D. E.; Caves Rügenstein, J. K.; Ibarra, D. E. & Winnick, M. J. (2020): 'Silicate weathering as a feedback and forcing in Earth's climate and carbon cycle', in: *Earth-Science Reviews*, 209, 103298. doi: 10.1016/j.earscirev.2020.103298.
- Persits, F. M.; Wandrey, C. J.; Milici, R. C.; Manwar, A.; Karshbaum, A. S. & Viger, R. J. (2001): Digital Geologic and Geophysical Data of Bangladesh. Denver, Colorado. Verfügbar unter: <http://pubs.usgs.gov/of/1997/ofr-97-470/OF97-470H/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Planer-Friedrich, B.; Härtig, C.; Lissner, H.; Steinborn, J.; Süß, E.; Qumrul Hassan, M.; Zahid, A.; Alam, M. & Merkel, B. (2012): 'Organic carbon mobilization in a Bangladesh aquifer explained by seasonal monsoon-driven storativity changes', in: *Applied Geochemistry*, 27(12), 2324–2334. doi: 10.1016/j.apgeochem.2012.08.005.
- Podgorski, J. & Berg, M. (2020): 'Global threat of arsenic in groundwater', in: *Science*, 368(6493), 845–850. doi: 10.1126/science.aba1510.
- Polizzotto, M. L.; Harvey, C. F.; Li, G.; Badruzzman, B.; Ali, A.; Newville, M.; Sutton, S. & Fendorf, S. (2006): 'Solid-phases and desorption processes of arsenic within Bangladesh sediments', in: *Chemical Geology*, 228(1–3), 97–111. doi: 10.1016/j.chemgeo.2005.11.026.
- Polizzotto, M. L.; Kocar, B. D.; Benner, S. G.; Sampson, M. & Fendorf, S. (2008): 'Near-surface wetland sediments as a source of arsenic release to ground water in Asia', in: *Nature*, 454(7203), 505–508. doi: 10.1038/nature07093.
- Puhani, J. (2020): Statistik: Einführung mit praktischen Beispielen. 13. Auflage. Wiesbaden: Springer Fachmedien Wiesbaden. doi: 10.1007/978-3-658-28955-3.
- Qiao, W.; Guo, H.; He, C.; Shi, Q.; Xiu, W. & Zhao, B. (2020): 'Molecular Evidence of Arsenic Mobility Linked to Biodegradable Organic Matter', in: *Environmental Science and Technology*, 54(12), 7280–7290. doi: 10.1021/acs.est.0c00737.
- Radloff, K. A.; Zheng, Y.; Stute, M.; Weinman, B.; Bostick, B.; Mihajlov, I.; Bounds, M.; Rahman, M. M.; Huq, M. R.; Ahmed, K. M.; Schlosser, P. & van Geen, A. (2017): 'Reversible adsorption and flushing of arsenic in a shallow, Holocene aquifer of Bangladesh', in: *Applied Geochemistry*, 77, 142–157. doi: 10.1016/j.apgeochem.2015.11.003.

- Ravenscroft, P.; Burgess, W. G.; Ahmed, K. M.; Burren, M. & Perrin, J. (2005): 'Arsenic in groundwater of the Bengal Basin, Bangladesh: Distribution, field relations, and hydrogeological setting', in: *Hydrogeology Journal*, 13(5–6), 727–751. doi: 10.1007/s10040-003-0314-0.
- Ravenscroft, P.; Mahmud, Z. H.; Islam, M. S.; Hossain, A. K. M. Z.; Zahid, A.; Saha, G. C.; Zulfiquar Ali, A. H. M.; Islam, K.; Cairncross, S.; Clemens, J. D. & Islam, M. S. (2017): 'The public health significance of latrines discharging to groundwater used for drinking', in: *Water Research*, 124, 192–201. doi: 10.1016/j.watres.2017.07.049.
- Ravenscroft, P.; McArthur, J. M. & Rahman, M. S. (2018): 'Identifying multiple deep aquifers in the Bengal Basin: Implications for resource management', in: *Hydrological Processes*, 32(24), 3615–3632. doi: 10.1002/hyp.13267.
- Regan, S.; Hynds, P. & Flynn, R. (2017): 'An overview of dissolved organic carbon in groundwater and implications for drinking water safety', in: *Hydrogeology Journal*, 25(4), 959–967. doi: 10.1007/s10040-017-1583-3.
- Richards, L. A.; Lapworth, D. J.; Magnone, D.; Gooddy, D. C.; Chambers, L.; Williams, P. J.; van Dongen, B. E. & Polya, D. A. (2019): 'Dissolved organic matter tracers reveal contrasting characteristics across high arsenic aquifers in Cambodia: A fluorescence spectroscopy study', in: *Geoscience Frontiers*, 10(5), 1653–1667. doi: 10.1016/j.gsf.2019.04.009.
- Richards, L. A.; Magnone, D.; Sültenfuß, J.; Chambers, L.; Bryant, C.; Boyce, A. J.; van Dongen, B. E.; Ballentine, C.; Sovann, C.; Uhlemann, S.; Kuras, O.; Gooddy, D. C. & Polya, D. A. (2019): 'Dual in-aquifer and near surface processes drive arsenic mobilization in Cambodian groundwaters', in: *Science of The Total Environment*, 659, 699–714. doi: 10.1016/j.scitotenv.2018.12.437.
- Ritgen, U. (2019): *Analytische Chemie I*, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. doi: 10.1007/978-3-662-60495-3.
- Rüde, T. R. (1996): Beiträge zur Geochemie des Arsens, in: *Schriftenreihe des Instituts für Petrographie und Geochemie*. Edited by H. Puchelt. Karlsruhe: Karlsruher Geochemische Hefte.
- Saalfeld, S. L. & Bostick, B. C. (2010): 'Synergistic effect of calcium and bicarbonate in enhancing arsenate release from ferrihydrite', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74(18), 5171–5186. doi: 10.1016/j.gca.2010.05.022.
- Schubert, A.; Small, D.; Miranda, N.; Geudtner, D. & Meier, E. (2015): 'Sentinel-1A product geolocation accuracy: Commissioning phase results', in: *Remote Sensing*, 7(7), 9431–9449. doi: 10.3390/rs70709431.
- Schultz, J. (2016): *Die Ökozonen der Erde*. 5. Auflage. Stuttgart: Verlag Eugen Ulmer (UTB).
- Seddique, A. A.; Masuda, H.; Mitamura, M.; Shinoda, K.; Yamanaka, T.; Itai, T.; Maruoka, T.; Uesugi, K.; Ahmed, K. M. & Biswas, D. K. (2008): 'Arsenic release from biotite into a Holocene groundwater aquifer in Bangladesh', in: *Applied Geochemistry*, 23(8), 2236–2248. doi: 10.1016/j.apgeochem.2008.03.007.
- Sengupta, S.; McArthur, J. M.; Sarkar, A.; Leng, M. J.; Ravenscroft, P.; Howarth, R. J. & Banerjee, D. M. (2008): 'Do Ponds Cause Arsenic-Pollution of Groundwater in the Bengal Basin? An Answer from West Bengal', in: *Environmental Science & Technology*, 42(1):, 5156–5164. doi: 10.1021/es702988m.

Bibliographic

- Shaji, E.; Santosh, M.; Sarath, K. V. V.; Prakash, Pranav; Deepchand, V. & Divya, B. V. V. (2020): 'Arsenic contamination of groundwater: A global synopsis with focus on the Indian Peninsula', in: *Geoscience Frontiers*, 12(3), 101079. doi: 10.1016/j.gsf.2020.08.015.
- Shamsudduha, M.; Uddin, A.; Saunders, J. A. & Lee, M. K. (2008): 'Quaternary stratigraphy, sediment characteristics and geochemistry of arsenic-contaminated alluvial aquifers in the Ganges–Brahmaputra floodplain in central Bangladesh', in: *Journal of Contaminant Hydrology*, 99(1–4), 112–136. doi: 10.1016/j.jconhyd.2008.03.010.
- Shamsudduha, M.; Chandler, R. E.; Taylor, R. G. & Ahmed, K. M. (2009): 'Recent trends in groundwater levels in a highly seasonal hydrological system: the Ganges-Brahmaputra-Meghna Delta', in: *Hydrology and Earth System Sciences Discussions*, 6(3), 4125–4154. doi: 10.5194/hessd-6-4125-2009.
- Shamsudduha, M. (2013): 'Groundwater-fed Irrigation and Drinking Water Supply in Bangladesh: Challenges and Opportunities', in Zahid, A. *et al.* (eds) in: *Adaptation to the Impact of Climate Change on Socio-economic Conditions of Bangladesh*. Alumni Association of German Universities in Bangladesh, German Academic Exchange Service (DAAD), Dhaka, 150–169.
- Shamsudduha, M.; Zahid, A. & Burgess, W. G. (2018): 'Security of deep groundwater against arsenic contamination in the Bengal Aquifer System: a numerical modeling study in southeast Bangladesh', in: *Sustainable Water Resources Management*, 5(3), 1073–1087. doi: 10.1007/s40899-018-0275-z.
- Sharma, P. & Kappler, A. (2011): 'Desorption of arsenic from clay and humic acid-coated clay by dissolved phosphate and silicate', in: *Journal of Contaminant Hydrology*, 126(3–4), 216–225. doi: 10.1016/j.jconhyd.2011.08.005.
- Shi, L. D.; Guo, T.; Lv, P. L.; Niu, Z. F.; Zhou, Y. J.; Tang, X. J.; Zheng, P.; Zhu, L. Z.; Zhu, Y. G.; Kappler, A. & Zhao, H. P. (2020): 'Coupled anaerobic methane oxidation and reductive arsenic mobilization in wetland soils', in: *Nature Geoscience*, 13(12), 799–805. doi: 10.1038/s41561-020-00659-z.
- Smedley, P. L. & Kinniburgh, D. G. (2002): 'A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters', in: *Applied Geochemistry*, 17, 517–568.
- Sø, H. U.; Postma, D.; Jakobsen, R. & Larsen, F. (2008): 'Sorption and desorption of arsenate and arsenite on calcite', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(24), 5871–5884. doi: 10.1016/j.gca.2008.09.023.
- Sø, H. U.; Postma, D.; Jakobsen, R. & Larsen, F. (2012): 'Competitive adsorption of arsenate and phosphate onto calcite; experimental results and modeling with CCM and CD-MUSIC', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 93, 1–13. doi: 10.1016/j.gca.2012.06.021.
- SRTM (2000): 'Shuttle Radar Topography Mission'. NASA. Verfügbar unter: <https://earthexplorer.usgs.gov/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Stahl, M. O.; Badruzzaman, A. B. M.; Tarek, M. H. & Harvey, C. F. (2020): 'Geochemical transformations beneath man-made ponds: Implications for arsenic mobilization in South Asian aquifers', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 288, 262–281. doi: 10.1016/j.gca.2020.08.012.

- Steinemann, S. N. (2020): Hydrogeochemische Untersuchungen an Sedimenten der Standorte Korgaon und Bera, Bangladesch. Bachelorarbeit, Institut für Geowissenschaften, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Stopelli, E.; Duyen, V. T.; Mai, T. T.; Trang, P. T. K.; Viet, P. H.; Lightfoot, A.; Kipfer, R.; Schneider, M.; Eiche, E.; Kontny, A.; Neumann, T.; Glodowska, M.; Patzner, M.; Kappler, A.; Kleindienst, S.; Rathi, B.; Cirpka, O.; Bostick, B.; Prommer, H.; Winkel, L. H. E. & Berg, M. (2020): 'Spatial and temporal evolution of groundwater arsenic contamination in the Red River delta, Vietnam: Interplay of mobilisation and retardation processes', in: *Science of The Total Environment*, 717, 137143. doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137143.
- Stopelli, E.; Duyen, V. T.; Prommer, H.; Glodowska, M.; Kappler, A.; Schneider, M.; Eiche, E.; Lightfoot, A. K.; Schubert, C. J.; Trang, P. K. T.; Viet, P. H.; Kipfer, R.; Winkel, L. H. E. & Berg, M. (2021): 'Carbon and methane cycling in arsenic-contaminated aquifers', in: *Water Research*, 200, 117300. doi: 10.1016/j.watres.2021.117300.
- Stuckey, J. W.; Schaefer, M. V.; Kocar, B. D.; Benner, S. G. & Fendorf, S. (2015): 'Arsenic release metabolically limited to permanently water-saturated soil in Mekong Delta', in: *Nature Geoscience*, 9(1), 70–76. doi: 10.1038/ngeo2589.
- Stumm, W. & Morgan, J. J. (1996): Aquatic chemistry - chemical equilibria and rates in natural waters. 3rd ed. New York: Wiley-Interscience.
- Swartz, C. H.; Blute, N. K.; Badruzzman, B.; Ali, A.; Brabander, D.; Jay, J.; Besancon, J.; Islam, S.; Hemond, H. F. & Harvey, C. F. (2004): 'Mobility of arsenic in a Bangladesh aquifer: Inferences from geochemical profiles, leaching data, and mineralogical characterization', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(22), 4539–4557. doi: 10.1016/j.gca.2004.04.020.
- Tareq, S. M.; Safiullah, S.; Anawar, H. M.; Rahman, M. M. & Ishizuka, T. (2003): 'Arsenic pollution in groundwater: a self-organizing complex geochemical process in the deltaic sedimentary environment, Bangladesh', in: *Science of The Total Environment*, 313(1–3), 213–226. doi: 10.1016/S0048-9697(03)00266-3.
- Tareq, S. M.; Islam, S. M. N.; Rahmam, M. M. & Chowdhury, D. A. (2010): 'Arsenic Pollution in Groundwater of Southeast Asia: an Overview on Mobilization Process and Health Effects', in: *Bangladesh Journal of Environmental Research*, 8, 47–67.
- Tareq, S. M.; Maruo, M. & Ohta, K. (2013): 'Characteristics and role of groundwater dissolved organic matter on arsenic mobilization and poisoning in Bangladesh', in: *Physics and Chemistry of the Earth*, 58–60, 77–84. doi: 10.1016/j.pce.2013.04.014.
- The World Bank (2020): GDP (current US\$) - Bangladesh. Verfügbar unter: <https://data.worldbank.org/indicator/NY.GDP.MKTP.CD?locations=BD> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Thi Hoa Mai, N.; Postma, D.; Thi Kim Trang, P.; Jessen, S.; Hung Viet, P. & Larsen, F. (2014): 'Adsorption and desorption of arsenic to aquifer sediment on the Red River floodplain at Nam Du, Vietnam', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 142, 587–600. doi: 10.1016/j.gca.2014.07.014.
- Tilley, E.; Lüthi, C.; Morel, A.; Zurbrügg, C. & Schertenleib, R. (2014): Compendium of Sanitation Systems and Technologies. 2nd revise. Verfügbar unter: <https://iwa->

- [network.org/learn_resources/compendium-of-sanitation-systems-and-technologies-2nd-edition/](https://www.unep.org/network.org/learn_resources/compendium-of-sanitation-systems-and-technologies-2nd-edition/) (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Tretner, A. (2003): 'Bedeutung und Verhalten von Arsen in der Hydrosphäre', in: *Grundwasser*, 8(1), 3–12. doi: 10.1007/s007670300001.
- Uddin, A.; Shamsudduha, M.; Saunders, J. A.; Lee, M. K.; Ahmed, K. M. & Chowdhury, M. T. (2011): 'Mineralogical profiling of alluvial sediments from arsenic-affected Ganges - Brahmaputra floodplain in central Bangladesh', in: *Applied Geochemistry*, 26(4), 470–483. doi: 10.1016/j.apgeochem.2011.01.006.
- Uddin, M. S. & Kurosawa, K. (2011): 'Effect of chemical nitrogen fertilizer application on the release of arsenic from sediment to groundwater in Bangladesh', in: *Procedia Environmental Sciences*, 4, 294–302. doi: 10.1016/j.proenv.2011.03.034.
- United Nations (2015): Transforming our world: The 2030 Agenda for Sustainable Development, in: A/RES/70/1. Verfügbar unter: https://sdgs.un.org/sites/default/files/publications/21252030_Agenda_for_Sustainable_Development_web.pdf (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- United Nations Department of Economic and Social Affairs Population Division (2020): World Population Prospects 2019, in: World Population Prospects 2019. Verfügbar unter: <https://population.un.org/wpp/> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- United Nations Development Programme (2020): Human development and the Anthropocene. Verfügbar unter: <http://hdr.undp.org/en/dashboard-human-development-anthropocene> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Wallis, I.; Prommer, H.; Berg, M.; Siade, A. J.; Sun, J. & Kipfer, R. (2020): 'The river-groundwater interface as a hotspot for arsenic release', in: *Nature Geoscience*, 13(4), 288–295. doi: 10.1038/s41561-020-0557-6.
- Wan, W.; Pepping, T. J.; Banerji, T.; Chaudhari, S. & Giammar, D. E. (2011): 'Effects of water chemistry on arsenic removal from drinking water by electrocoagulation', in: *Water Research*, 45(1), 384–392. doi: 10.1016/j.watres.2010.08.016.
- Wang, S. & Mulligan, C. N. (2006): 'Effect of natural organic matter on arsenic release from soils and sediments into groundwater', in: *Environmental Geochemistry and Health*, 28(3), 197–214. doi: 10.1007/s10653-005-9032-y.
- Wang, S. & Mulligan, C. N. (2009): 'Effect of natural organic matter on arsenic mobilization from mine tailings', in: *Journal of Hazardous Materials*, 168(2–3), 721–726. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.02.088.
- Wang, Y.; Pi, K.; Fendorf, S.; Deng, Y. & Xie, X. (2017): 'Sedimentogenesis and hydrobiogeochemistry of high arsenic Late Pleistocene-Holocene aquifer systems', in: *Earth-Science Reviews*, 189, 0–1. doi: 10.1016/j.earscirev.2017.10.007.
- Waters, C. N.; Zalasiewicz, J.; Summerhayes, C.; Barnosky, A. D.; Poirier, C.; Gałuszka, A.; Cearreta, A.; Edgeworth, M.; Ellis, E. C.; Ellis, M.; Jeandel, C.; Leinfelder, R.; McNeill, J. R.; Richter, D. B.; Steffen, W.; Syvitski, J.; Vidas, D.; Wagemann, M.; Williams, M.; Zhisheng, A.; Grinevald, J.; Odada, E.; Oreskes, N. & Wolfe, A. P. (2016): 'The Anthropocene is functionally and stratigraphically distinct from the Holocene', in: *Science*, 351, 6269. doi: 10.1126/science.aad2622.

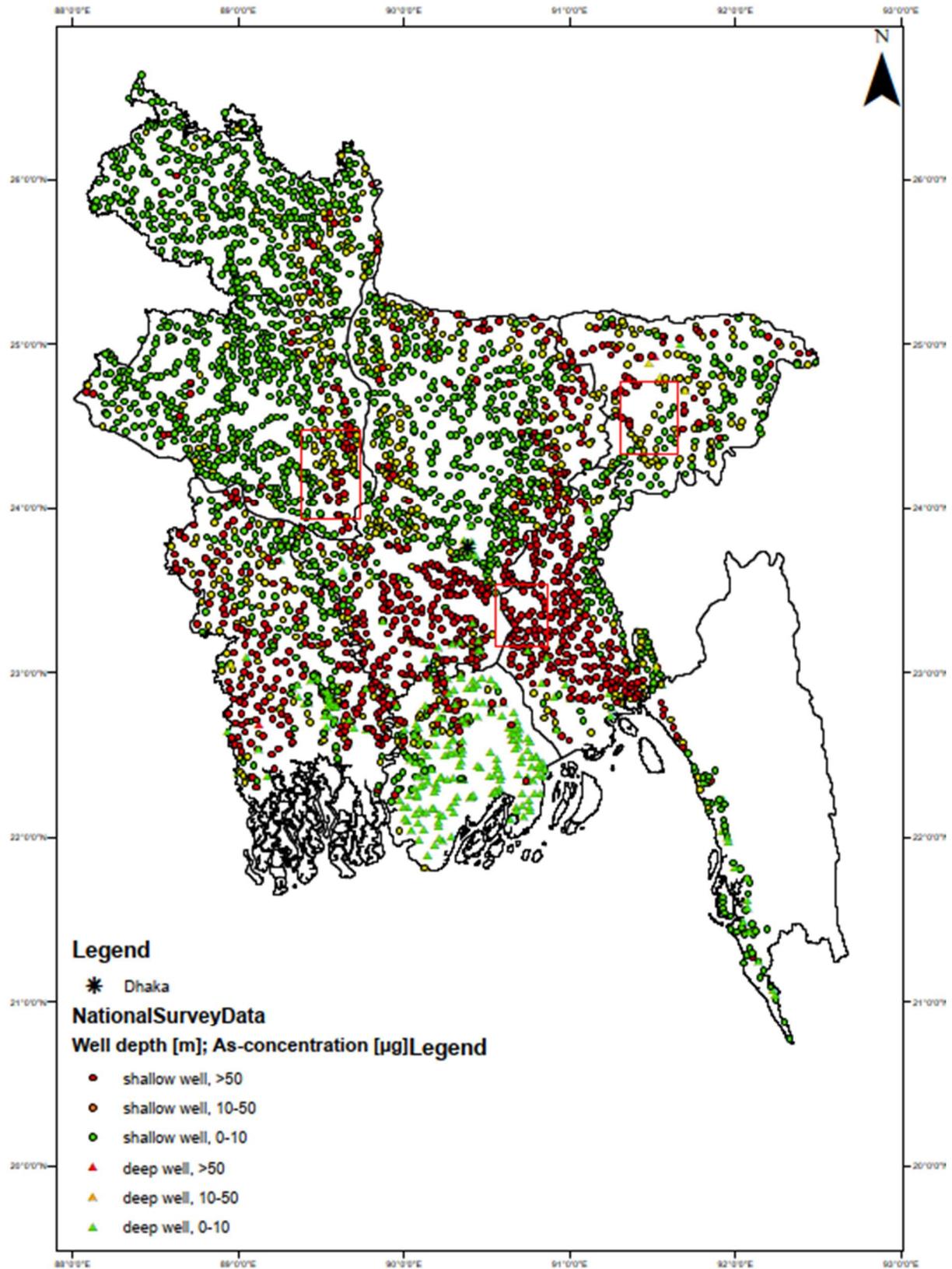
- Wendt, A. S.; Sparling, T. M.; Waid, J. L.; Mueller, A. A. & Gabrysch, S. (2019): 'Food and agricultural approaches to reducing malnutrition (FAARM): Protocol for a cluster-randomised controlled trial to evaluate the impact of a Homestead Food Production programme on undernutrition in rural Bangladesh', in: *BMJ Open*, 9(7), 1–11. doi: 10.1136/bmjopen-2019-031037.
- Whaley-Martin, K. J.; Mailloux, B. J.; van Geen, A.; Bostick, B. C.; Ahmed, K. M.; Choudhury, I. & Slater, G. F. (2017): 'Human and livestock waste as a reduced carbon source contributing to the release of arsenic to shallow Bangladesh groundwater', in: *Science of The Total Environment*, 595, 63–71. doi: 10.1016/j.scitotenv.2017.03.234.
- Wisotzky, F. (2011): *Angewandte Grundwasserchemie, Hydrogeologie und hydrogeochemische Modellierung*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. doi: 10.1007/978-3-642-17813-9.
- World Health Organization (WHO) (2017): *Guidelines for Drinking-water Quality: fourth edition incorporating the first addendum*. Geneva. Verfügbar unter: <https://www.who.int/publications/i/item/9789241549950> (zuletzt aufgerufen am 16.04.2022).
- Zhang, S. Y.; Williams, P. N.; Luo, J. & Zhu, Y. G. (2017): 'Microbial mediated arsenic biotransformation in wetlands', in: *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 11(1), 1. doi: 10.1007/s11783-017-0893-y.
- Zheng, Y.; Stute, M.; van Geen, A.; Gavrieli, I.; Dhar, R.; Simpson, H. J.; Schlosser, P. & Ahmed, K. M. (2004): 'Redox control of arsenic mobilization in Bangladesh groundwater', in: *Applied Geochemistry*, 19(2), 201–214. doi: 10.1016/j.apgeochem.2003.09.007.
- Zheng, Y.; van Geen, A.; Stute, M.; Dhar, R.; Mo, Z.; Cheng, Z.; Horneman, A.; Gavrieli, I.; Simpson, H. J.; Versteeg, R.; Steckler, M.; Grazioli-Venier, A.; Goodbred, S.; Shahnewaz, M.; Shamsudduha, M.; Hoque, M. A. & Ahmed, K. M. (2005): 'Geochemical and hydrogeological contrasts between shallow and deeper aquifers in two villages of Araihsazar, Bangladesh: Implications for deeper aquifers as drinking water sources', in: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69(22), 5203–5218. doi: 10.1016/j.gca.2005.06.001.

Anlagen

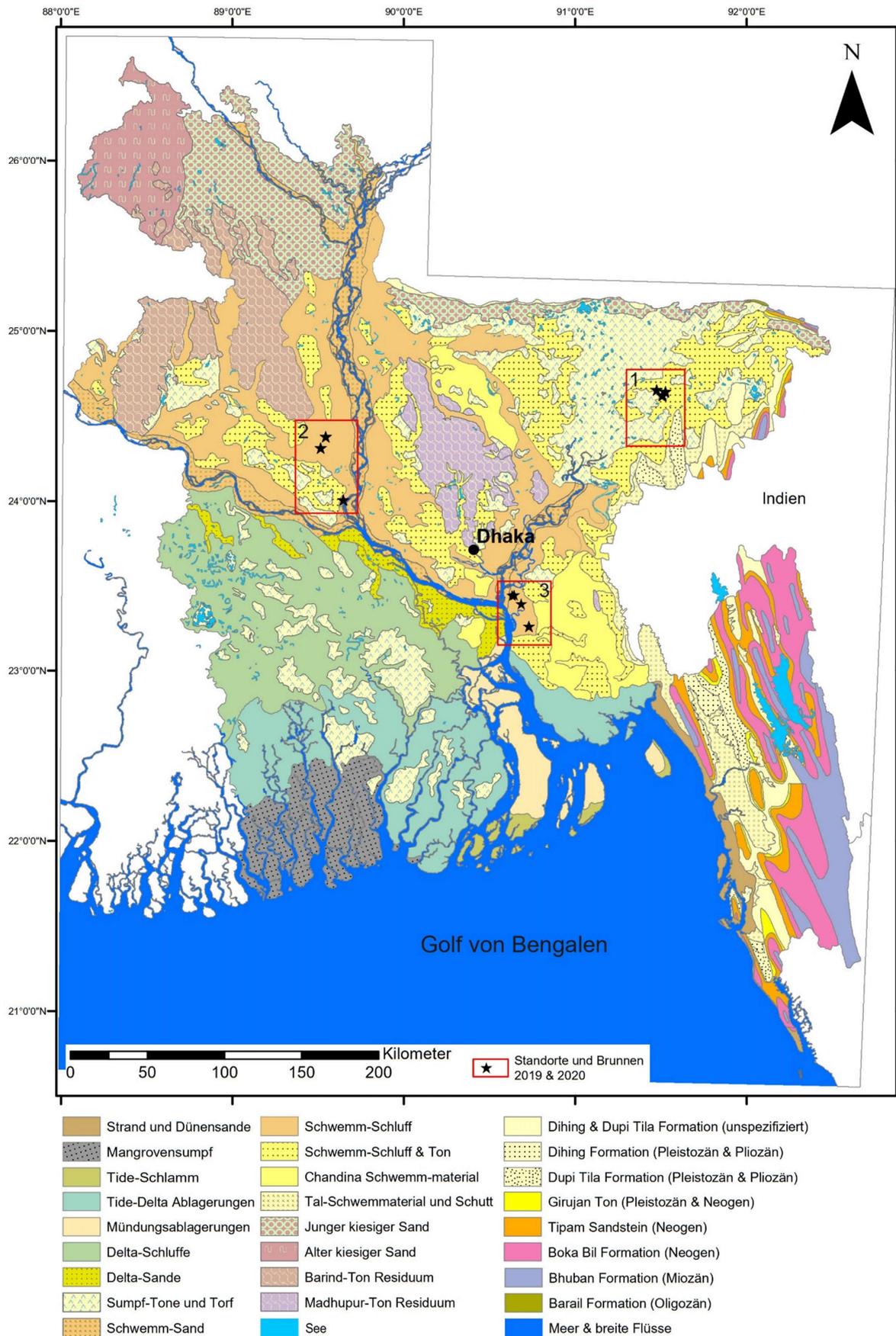
Anlagen

Anlage 1	Arsengehalte in den Brunnen Bangladeschs.....	93
Anlage 2	Geologische Übersichtskarte Bangladeschs mit Lage der Standorte.....	94
Anlage 3	Niederschlagskarte basierend auf Modellrechnungen der CRU.....	95
Anlage 4	Entwicklung der Bevölkerung und des BIP in Bangladesch.....	96
Anlage 5	Korrelationen zwischen Flächenanteilen und geochemischer Grundwasserzusammensetzung, saisonal.....	97

Anlage 1: Arsengehalte in den Brunnen Bangladeschs, Stand 2001, rote Kästen markieren die Standorte dieser Arbeit.

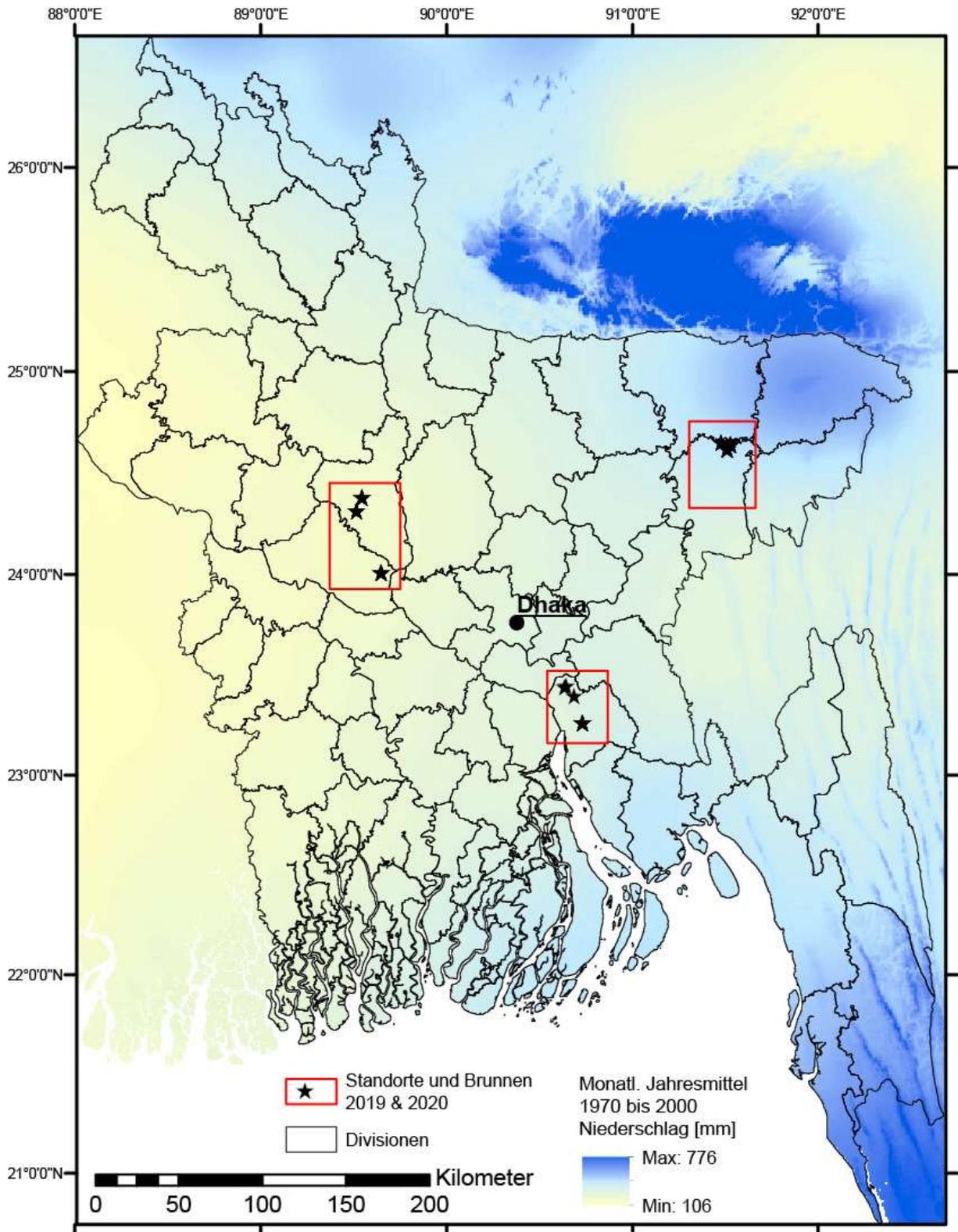


Anlage 2: Geologische Übersichtskarte Bangladeschs mit Lage der Standorte



Datengrundlage: Persits *et al.*, 2001

Anlage 3: Niederschlagskarte basierend auf Modellrechnungen der Climate Research Unit (CRU) der University of East Anglia, rote Kästchen markieren die Standorte dieser Arbeit.



Datengrundlage: Harris *et al.*, 2014; Fick & Hijmans, 2017

Anlagen

Anlage 4: Entwicklung der Bevölkerung und des Bruttoinlandsprodukts (BIP) in Bangladesch

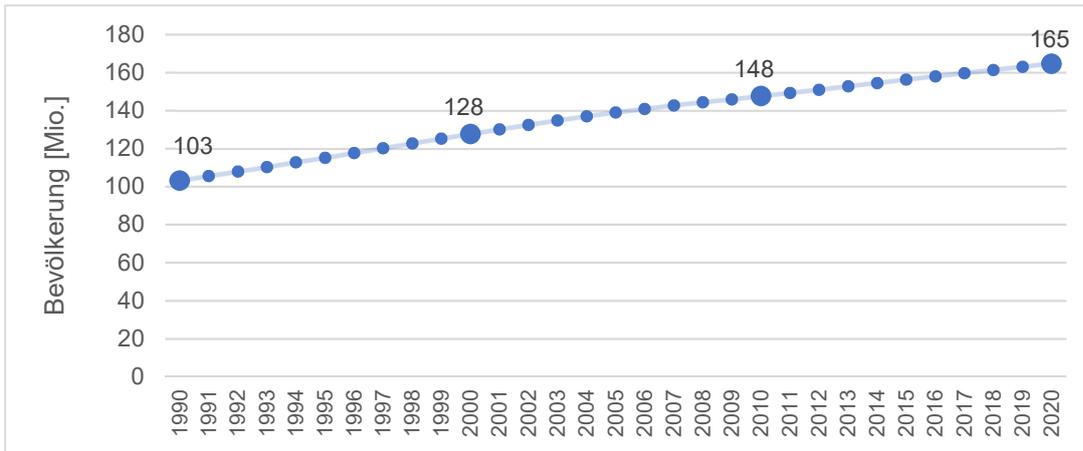


Abbildung A4-1: Bevölkerungsentwicklung Bangladeschs zwischen 1990 und 2020 (Datengrundlage: United Nations Department of Economic and Social Affairs Population Division, 2020).

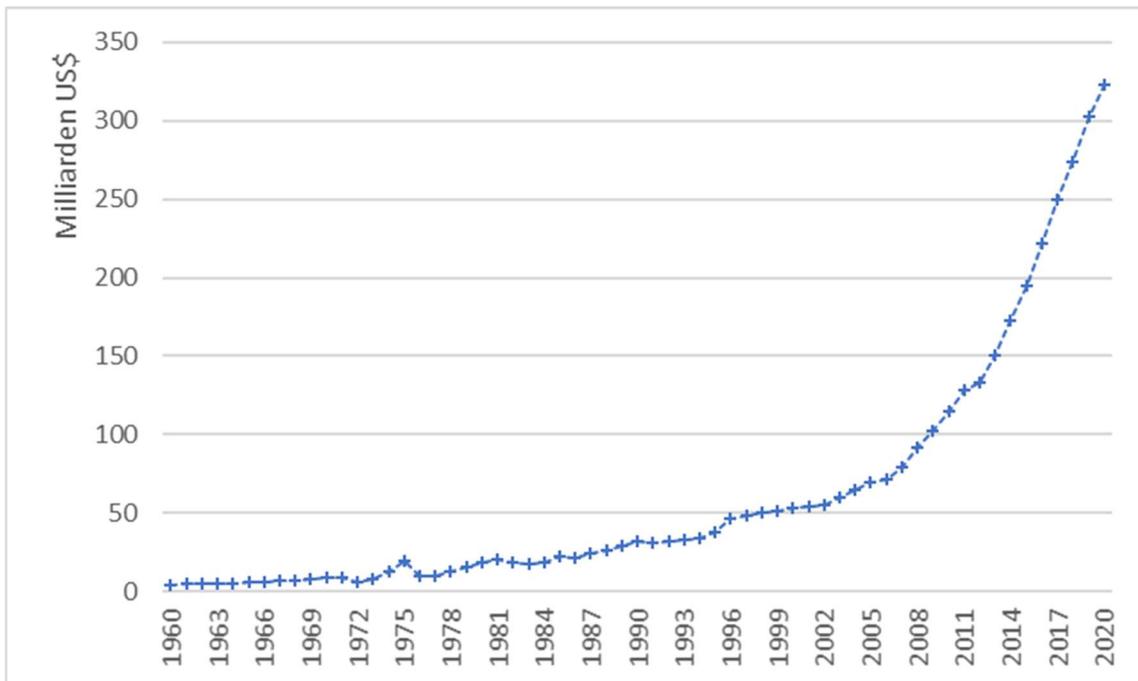


Abbildung A4-2: Bruttoinlandsprodukt (BIP) Bangladeschs von 1960 bis 2020 (Datengrundlage: The World Bank, 2020).

Anlage 5: Korrelationen zwischen prozentualen Flächenanteilen im 100m Radius um den Brunnen und geochemische Grundwasserzusammensetzung der flachen Brunnen (bis 30m tief) des saisonalen Datensatzes.

Feb. 2018	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	-0,5	0,5	0,3
Fe [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	0,3	-0,3	-0,1
Mn [$\mu\text{g/l}$]	0,1	0,3	-0,4	-0,1
P [$\mu\text{g/l}$]	-0,2	-0,2	0,3	0,1
Si [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	0,1	-0,1	-0,1
Cl [mg/l]	-0,1	-0,1	0,2	-0,1
Br [mg/l]	-0,2	-0,2	0,3	0,0
IC [mg/l]	-0,2	-0,3	0,4	0,2
TOC [mg/l]	-0,1	-0,4	0,4	0,1
Juni 2018	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	0,2	0,0	-0,1	0,0
Fe [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	-0,2	0,3	0,2
Mn [$\mu\text{g/l}$]	0,0	0,0	0,0	-0,1
P [$\mu\text{g/l}$]	0,1	0,0	-0,1	0,0
Si [$\mu\text{g/l}$]	-0,2	-0,1	0,2	0,3
Cl [mg/l]	0,2	0,1	-0,2	-0,1
Br [mg/l]	0,2	0,0	-0,2	-0,1
IC [mg/l]	0,1	0,0	-0,1	0,1
TOC [mg/l]	0,2	0,0	-0,2	0,0
Sept. 2018	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	0,2	-0,1	0,0	0,0
Fe [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	-0,1	0,2	0,2
Mn [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	0,0	0,1	-0,1
P [$\mu\text{g/l}$]	0,2	-0,1	-0,1	0,0
Si [$\mu\text{g/l}$]	0,0	-0,2	0,1	0,3
Cl [mg/l]	0,1	0,0	-0,1	0,0
Br [mg/l]	0,2	0,0	-0,1	-0,1
IC [mg/l]	0,3	-0,2	0,0	0,1
TOC [mg/l]	0,3	-0,1	-0,1	0,1
NH ₄ [mg/l]	0,3	-0,1	-0,1	0,0
Januar 2019	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	0,2	-0,3	0,1	0,0
Fe [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	0,0	0,1	0,1
Mn [$\mu\text{g/l}$]	-0,1	0,2	-0,1	0,0
P [$\mu\text{g/l}$]	0,2	-0,3	0,2	0,1
Si [$\mu\text{g/l}$]	0,0	-0,1	0,1	0,0
Cl [mg/l]	0,1	-0,1	0,0	0,1
Br [mg/l]	0,2	-0,2	0,0	0,2
IC [mg/l]	0,3	-0,3	0,1	0,1
TOC [mg/l]	0,3	-0,2	0,0	0,1
NH ₄ [mg/l]	0,3	-0,2	0,0	0,0

Anlagen

März 2019	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	0,0	-0,5	0,5	0,2
Fe [$\mu\text{g/l}$]	0,0	0,1	-0,1	-0,1
Mn [$\mu\text{g/l}$]	0,2	0,1	-0,2	-0,1
P [$\mu\text{g/l}$]	0,0	-0,4	0,4	0,1
Si [$\mu\text{g/l}$]	0,1	-0,3	0,1	0,0
Cl [mg/l]	-0,1	-0,4	0,4	0,0
Br [mg/l]	-0,2	-0,3	0,4	0,0
IC [mg/l]	-0,1	-0,4	0,4	0,1
TOC [mg/l]	-0,1	-0,3	0,4	-0,1
NH ₄ [mg/l]	-0,1	-0,3	0,4	0,1
Mai 2019	<i>Siedlung [%]</i>	<i>trocken [%]</i>	<i>feucht [%]</i>	<i>nass [%]</i>
As [$\mu\text{g/l}$]	0,0	0,0	0,0	0,0
Fe [$\mu\text{g/l}$]	-0,3	0,0	0,3	0,3
Mn [$\mu\text{g/l}$]	-0,2	0,2	0,0	0,0
P [$\mu\text{g/l}$]	-0,2	0,1	0,1	0,2
Si [$\mu\text{g/l}$]	-0,3	0,1	0,3	0,3
Cl [mg/l]	0,1	0,0	-0,1	0,0
Br [mg/l]	0,1	-0,1	0,0	0,0
IC [mg/l]	-0,1	-0,1	0,2	0,2
TOC [mg/l]	0,1	0,0	-0,1	-0,1
NH ₄ [mg/l]	0,0	-0,1	0,1	0,2



Eidesstattliche Versicherung gemäß § 8 der Promotionsordnung für die Gesamtfakultät für Mathematik, Ingenieur- und Naturwissenschaften der Universität Heidelberg / Sworn Affidavit according to § 8 of the doctoral degree regulations of the Combined Faculty of Mathematics, Engineering and Natural Sciences at Heidelberg University

1. Bei der eingereichten Dissertation zu dem Thema / **The thesis I have submitted entitled**

Untersuchung und Bewertung der räumlichen und zeitlichen Einflussfaktoren auf die Arsenmobilität im Grundwasser in Bangladesch

handelt es sich um meine eigenständig erbrachte Leistung / **is my own work.**

2. Ich habe nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt und mich keiner unzulässigen Hilfe Dritter bedient. Insbesondere habe ich wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommene Inhalte als solche kenntlich gemacht. / **I have only used the sources indicated and have not made unauthorised use of services of a third party. Where the work of others has been quoted or reproduced, the source is always given.**

3. Die Arbeit oder Teile davon habe ich wie folgt/bislang nicht¹⁾ an einer Hochschule des In- oder Auslands als Bestandteil einer Prüfungs- oder Qualifikationsleistung vorgelegt. / **I have not yet/have already¹⁾ presented this thesis or parts thereof to a university as part of an examination or degree.**

Untersuchung und Bewertung der räumlichen und zeitlichen

Titel der Arbeit / **Title of the thesis:** Einflussfaktoren auf die Arsenmobilität im Grundwasser in Bangladesch

Hochschule und Jahr / **University and year:** Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg 2022

Art der Prüfungs- oder Qualifikationsleistung / **Type of examination or degree:** Promotion

4. Die Richtigkeit der vorstehenden Erklärungen bestätige ich. / **I confirm that the declarations made above are correct.**

5. Die Bedeutung der eidesstattlichen Versicherung und die strafrechtlichen Folgen einer unrichtigen oder unvollständigen eidesstattlichen Versicherung sind mir bekannt. / **I am aware of the importance of a sworn affidavit and the criminal prosecution in case of a false or incomplete affidavit.**

Ich versichere an Eides statt, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit erklärt und nichts verschwiegen habe. / **I affirm that the above is the absolute truth to the best of my knowledge and that I have not concealed anything.**

Heidelberg, 27.05.2022
Ort und Datum / **Place and date**

.....
Unterschrift / **Signature**

¹⁾ Nicht Zutreffendes streichen. Bei Bejahung sind anzugeben: der Titel der andernorts vorgelegten Arbeit, die Hochschule, das Jahr der Vorlage und die Art der Prüfungs- oder Qualifikationsleistung. / **Please cross out what is not applicable. If applicable, please provide: the title of the thesis that was presented elsewhere, the name of the university, the year of presentation and the type of examination or degree.**

Eidesstattliche Versicherung

Belehrung

Die Universitäten in Baden-Württemberg verlangen eine Eidesstattliche Versicherung über die Eigenständigkeit der erbrachten wissenschaftlichen Leistungen, um sich glaubhaft zu versichern, dass der Promovend die wissenschaftlichen Leistungen eigenständig erbracht hat.

Weil der Gesetzgeber der Eidesstattlichen Versicherung eine besondere Bedeutung beimisst und sie erhebliche Folgen haben kann, hat der Gesetzgeber die Abgabe einer falschen eidesstattlichen Versicherung unter Strafe gestellt. Bei vorsätzlicher (also wissentlicher) Abgabe einer falschen Erklärung droht eine Freiheitsstrafe bis zu 3 Jahren oder eine Geldstrafe.

Eine fahrlässige Abgabe (also Abgabe, obwohl Sie hätten erkennen müssen, dass die Erklärung nicht den Tatsachen entspricht) kann eine Freiheitsstrafe bis zu einem Jahr oder eine Geldstrafe nach sich ziehen.

Die entsprechenden Strafvorschriften sind in **§ 156 StGB** (falsche Versicherungen an Eides Statt) und in **§ 161 StGB** (fahrlässiger Falscheid, fahrlässige falsche Versicherung an Eides Statt) wiedergegeben.

§ 156 StGB: Falsche Versicherung an Eides Statt

Wer vor einer zur Abnahme einer Versicherung an Eides Statt zuständigen Behörde eine solche Versicherung falsch abgibt oder unter Berufung auf eine solche Versicherung falsch aussagt, wird mit Freiheitsstrafe bis zu drei Jahren oder mit Geldstrafe bestraft.

§ 161 StGB: Fahrlässiger Falscheid, fahrlässige falsche Versicherung an Eides Statt:

Abs. 1: Wenn eine der in den § 154 bis 156 bezeichneten Handlungen aus Fahrlässigkeit begangen worden ist, so tritt Freiheitsstrafe bis zu einem Jahr oder Geldstrafe ein.

Abs. 2: Straflosigkeit tritt ein, wenn der Täter die falsche Angabe rechtzeitig berichtigt. Die Vorschriften des § 158 Abs. 2 und 3 gelten entsprechend.

Heidelberg, 27.05.2022

Ort und Datum



Unterschrift