

Spatial distribution and sources of fluoride in groundwater of the north-eastern Kilombero floodplain, Tanzania

57 Pages

34 Figures, 8 Tables, 11 Annexes

Submitted as

Master Thesis

Steinmann Institute of Geology, Palaeontology und Mineralogy
Rheinische Friedrich-Wilhelms Universität Bonn

Maximilian Wieczorek

1st Supervisor: Prof. Dr. Barbara Reichert

2nd Supervisor: Dr. Ralph Krämer

Bonn, March 2017



Abstract

Previous investigations revealed increased groundwater fluoride concentrations at the north-eastern Kilombero floodplain, Tanzania (Burghof, unpublished). These concentrations lay partially above the WHO (2011) guideline value (1.5 mg/l). The groundwater is used by the regional population as drinking water and non-potable water (household use). Intake of increased fluoride concentrations leads to health implications like teeth decay, bone resorption, and signs of paralysis (Smedley et al., 2002; Shedafa & Johnston, 2013).

Thus, groundwater samples from wells and piezometers close to Ifakara were taken in order to determine the spatial distribution of fluoride. In addition, hydrochemical analyses were carried out to characterise groundwater imprints. During standardly analysis procedure at the ion chromatography water samples revealed partially difficulties when evaluating fluoride concentrations. This is because of interferences at the chromatograms caused by microbial background. Consequently, the standard addition method after DIN 32633 (2013) was implemented to circumvent these interferences. The standard addition turned out to be a successful method to determine fluoride concentrations more precise.

Hydrochemical analyses revealed that groundwater imprint is mainly depending on silicate weathering processes. Since the geology at the study site is strongly heterogeneous, hydrochemical composition of groundwater also varies greatly between the sampling points. Most frequent imprint type is Na-HCO₃, followed by Ca-Na-HCO₃ and scattered Na-Cl-(HCO₃) imprints.

A variogram analysis was implemented to determine the spatial coherence of the calculated fluoride concentrations. Thereby, the semivariance progress indicated a poor spatial coherence caused by the mentioned geological conditions. Certainly, fluoride concentrations at the study site were interpolated by inverse distance weighting method. Fluoride hotspots were associated with Neogene pale sand patches outcropping in the central part of the study site. Slightly increased fluoride concentrations occur at the eastern agricultural areas.

Due to the heterogeneous geology at the study site the fluoride origin cannot be determined assuredly. Fluorite saturation plot indicate that fluoride is undersaturated and thus, enriched by desorption processes (Jacks, 2016). Highest fluoride concentrations were attested at the Na-HCO₃-groundwater type indicating that groundwater strongly interacts with sediments. Hence, increased fluoride concentrations at the mentioned pale sands could be a result of fluoride desorption from argillaceous layers within the pale sands. Moreover, deepest wells exhibit the highest fluoride concentrations which leads to the conclusion, that fluoride is enriched by ascending mineralised deep water. In addition, solution of fluorapatite, as present in tooth and bone material of wild graves, could be another source of groundwater fluoride. In the case of the increased fluoride concentrations at the agricultural area most reliable source is the runoff and infiltration of pesticide and fertilizer residues. Main cause of increased groundwater fluoride in East Africa, the weathering of fluoride-bearing bedrocks, can be excluded as a source. This is because fluoride was not attested in stream water having its source in the northern granitic bedrocks (Burghof, unpublished).

Based on the discussion outcomes the Nalgonda technique, introduced by Bulusu et al. (1979) is most suitable to reduce fluoride in drinking water at the study site to harmless concentrations. At this technique fluoride is complexed by added aluminium and subsequently precipitated. The Nalgonda technique is already applied in Tanzania and turned out to be effective and especially, inexpensive. Main disadvantage of Nalgonda is the accrued toxic sludge (Dahi et al., 1996). Another appropriated method could be the fluoride adsorption onto calcium minerals (fluorite, fluorapatite). Fan et al. (2003) investigated that this method could be a future solution for drinking water fluoride removal in rural areas of

developing countries. Compared to the Nalgonda technique, no toxic waste is produced during fluoride removal, however the adsorption method is not applied in Tanzania as yet. Besides, the fabrication of the adsorption minerals is more expensive than the materials required for the Nalgonda technique. An alternative option to avoid the intake of harmful doses of fluoride by drinking water is the use of adjacent wells with attested harmless fluoride concentrations.

Kurzfassung

Vorangegangene Untersuchungen ergaben erhöhte Fluorid-Konzentrationen im Grundwasser der nord-östlichen Überflutungsebene des Kilombero in Tansania (Burghof, unveröffentlicht). Diese liegen teilweise über dem von der WHO (2011) ausgegebenen Empfehlungswert von 1,5 mg/l. Das Grundwasser wird von der regionalen Bevölkerung zum einen als Trinkwasser, aber auch als Brauchwasser im Haushalt genutzt. Die Aufnahme von erhöhten Fluorid-Konzentrationen durch Trinkwasser führt zu gesundheitlichen Folgeerscheinungen, wie z.B. Zahnverfall, Knochenabbau und Lähmungserscheinungen (Smedley et al., 2002; Shedafa & Johnston, 2013).

Deshalb wurden Grundwasserproben aus Brunnen und Piezometern in der Nähe der Stadt Ifakara entnommen und die räumliche Verteilung der Fluorid-Konzentrationen ermittelt. Während der standardmäßig durchgeführten Analysen an der Ionenchromatographie ergaben sich teilweise Schwierigkeiten beim Auswerten der Fluorid-Konzentrationen. Dies wurde durch Störungen im Chromatogramm verursacht, die durch mikrobielle Belastungen hervorgerufen wurde. Um diese Störung zu umgehen, wurde die Standardaddition nach DIN 32633 (2013) durchgeführt. Die Standardaddition stellte sich dabei als erfolgreiche Methode heraus, um die Fluorid-Konzentrationen genau zu bestimmen.

Die hydrochemischen Analysen ergaben, dass die Grundwasserprägung hauptsächlich von Silikatverwitterungs-Prozessen bestimmt wird. Da die Geologie des Untersuchungsgebietes sehr heterogen ist, konnte auch in den Grundwasserzusammensetzungen eine Vielzahl an hydrochemischen Prägungen festgestellt werden. Häufigste Grundwassertyp ist Na-HCO₃, gefolgt von Ca-Na-HCO₃ und vereinzelt Na-Cl (HCO₃) Prägungen.

Eine Variogrammanalyse wurde durchgeführt, um den räumlichen Zusammenhang der berechneten Fluorid-Konzentrationen zu ermitteln. Dabei deutete der Verlauf der Semivarianz einen schwachen Zusammenhang der Fluorid-Daten an. Dies ist auf die angesprochenen geologischen Bedingungen zurückzuführen. Dennoch wurden die Fluorid-Konzentrationen mit der Inversen-Distanz-Gewichtung interpoliert. Die höchsten Konzentrationen wurden Neogenen Bleichsand-Linsen im zentralen Bereich des Untersuchungsgebietes zugeordnet. Zudem konnten leicht erhöhte Fluorid-Konzentrationen im östlichen Bereich, in dem Landwirtschaft betrieben wird, beobachtet werden.

Aufgrund der stark heterogenen Geologie der Neogenen und Quartären Sedimente im Untersuchungsgebiet kann die Ursache für die erhöhten Fluorid-Konzentrationen nicht mit Sicherheit zugeordnet werden. Die Darstellung der Fluorit-Sättigung zeigt an, dass sämtliche Grundwasserproben an Fluorit unter-sättigt sind. Dies deutet darauf hin, dass das Fluorid durch Adsorptionsprozesse angereichert wird (Jacks, 2016). Da die höchsten Fluorid-Konzentrationen in Na-HCO₃-Grundwässern vorliegen, kann davon ausgegangen werden, dass diese Grundwassertypen stark mit den umliegenden Sedimenten interagieren. Deshalb ist es sehr wahrscheinlich, dass die erhöhten Grundwasser-Fluorid-Konzentrationen innerhalb der Bleichsande durch Desorptionsprozesse mit tonigem Schichten hervorgerufen werden. Außerdem zeigen die tiefsten Brunnen die höchsten Fluorid-Konzentrationen auf, woraus sich schließen lässt, dass das Fluorid auch durch aufsteigende, mineralisierte Tiefenwässer angereichert wird. Weiterhin ist zudem die Lösung von Fluorapatit, vorhanden in Zahn- und Knochenmaterial aus wilden Gräbern, ein möglicher Ursprung der erhöhten Fluorid-Konzentrationen. Im Falle der leicht erhöhten Fluorid-Konzentrationen im landwirtschaftlich genutzten Gebiet kommen zudem der Abfluss und die Infiltration von Pestizid- und Düngerrückständen infrage. Dementgegen kann die am häufigsten verbreitete Ursache für erhöhte Fluorid-Konzentrationen, das Verwitterung von fluoridführenden Gesteinen, ausgeschlossen werden. Dies ergibt sich durch die Tatsache, dass beprobtes Flusswasser, das in den nördlichen Festgesteinen entspringt, kein Fluorid enthielt (Burghof, unveröffentlicht).

Basierend auf diesen Ergebnissen ist die Nalgonda-Technik, die von Bulusu et al. (1979) vorgestellt wurde, die am besten geeignete Methode, um Fluorid aus dem Grundwasser des Untersuchungsgebietes zu entziehen. Bei dieser Technik wird Fluorid durch zugegebenes Aluminium komplexiert und anschließend ausgefällt. Die Nalgonda-Technik wurde bereits erfolgreich in Tansania angewandt und ist zudem für die Bevölkerung eine kostengünstige Methode. Ein Hauptnachteil ist der anfallende giftige Schlamm (Dahi et al., 1996). Eine weitere, geeignete Methode könnte die Fluorid-Adsorption an Kalzium-Mineralen (Fluorit, Fluorapatit) sein. Fan et al. (2003) fanden heraus, dass diese Methode in Zukunft die Fluorid-Probleme in Trinkwasser, vor allem in ländlichen Regionen von Entwicklungsländern, beseitigen könnten. Verglichen mit der Nalgonda-Technik entstehen bei dieser Methode keine giftigen Abfälle, allerdings wurde die Methode noch nicht in Tansania angewandt. Zudem sind die Herstellungskosten, verglichen mit der Nalgonda-Technik, höher. Eine einfache Alternative um die Aufnahme von schädlichen Fluorid-Dosen zu verhindern, ist das Benutzen von nahegelegenen Brunnen mit erwiesenermaßen ungefährlich geringen Fluorid-Konzentrationen.