

Stoffaustrag aus mineralischen Abfällen: Untersuchung der zeitlichen Quellstärkeentwicklung in Großlysimetern des LUA NRW

Bernd Susset, Wolfgang Leuchs, Thomas Delschen, LUA NRW, Essen

1 Einleitung

Das Landesumweltamt beteiligt sich seit August 2002 am Forschungsverbund „Sickerwasserprognose“ (Förderschwerpunkt „SiWaP“) des BMBF mit dem Teilprojekt „Ermittlung der zeitlichen Quellstärke-Entwicklung mittels Großlysimeterversuchen im Freiland“. Im BMBF-Verbundprojekt erarbeiten insgesamt 41 Projektteilnehmer die wissenschaftlichen Grundlagen für fachlich begründete und möglichst breit anwendbare, konsensfähige Methoden zur Durchführung der Sickerwasserprognose nach BBodSchV [1].

Auch bei der Verwertung mineralischer Abfälle ist zu beurteilen, welche Sickerwasserkonzentrationen entstehen und ob sie als geringfügig zu betrachten sind. Grundlage für diese Beurteilung sind die „Grundsätze des vorsorgenden Grundwasserschutzes bei Abfallverwertung und Produkteinsatz“ [2,3]. Die LAWA-Grundsätze stellen die Grundlage für die Überarbeitung der Technischen Regeln für die Verwertung mineralischer Abfälle dar [4]. Im Rahmen der Überarbeitung des LAGA-Regelwerks erfolgt eine antizipierende Quellstärken- und ggf. Transportprognose (Sickerwasserprognose) auf der Basis heutiger Erkenntnisse. Dies bedeutet, dass die Geringfügigkeitsschwellen für das Sickerwasser in materialbezogene Eluatwerte übersetzt werden (siehe überarbeitete Endfassung LAGA M 20, 2003) [5].

Im Rahmen des LUA-Projektes wird die Quellstärkenentwicklung verschiedener verwertungsrelevanter mineralischer Abfälle und Altlastmaterialien in Großlysimeterversuchen im Freiland und parallel mit verschiedenen Laborelutionsversuchen untersucht. Bei letzteren stehen Verfahrensentwicklungen für grobstückiges Material und für die gemeinsame Untersuchung auf Anorganika und Organika im Vordergrund. Die Durchführung der Lysimeterversuche erfolgt in der Lysimeteranlage des LUA in Waldfeucht. Die Projektlaufzeit beträgt 3,5 Jahre.

2 Vorgehensweise

Die Untersuchungen betreffen insbesondere die Quellstärkenermittlung belasteter mineralischer Abfälle und nachgeordnet spezifisch belasteter Bodenmaterialien (Altlastenböden). Folgende Materialien werden untersucht: Recycling-Baustoff (RCL) unterschiedlicher Körnung, ein tongebundener und ein harzgebundener Gießereirestsand (GRS tongeb. bzw. harzgeb.), ein Bleihüttengranulat (PbG), eine Hochofenstückschlacke (HOS), Hausmüllverbrennungsaschen verschiedener Körnung (HMVA), ein Altlastenboden (ALB) sowie ein gewaschener Mittelkies als Nullvariante. Die genannten Materialien stammen von Anlagenbetreibern und Standorten in NRW. Die Recyclingmaterialien

(RCL) wurden durch Zumischung von pechhaltigen Straßenaufbruch auf eine Feststoffkonzentration von 50 mg/kg aufkonzentriert (offener Einbau von RCL bis 50 mg/kg PAK unter Einhaltung bestimmter Nutzungsbedingungen möglich), aus dem 0/32-Gemisch wurde dann für weitere Versuche die Körnung 0/10 ausgesiebt. Die Körnung 0/10 der Hausmüllverbrennungssasche (HMVA) wurde ebenfalls durch Absiebung der Körnung 0/32 hergestellt (gleiches "Muttermaterial).

Zusätzlich werden Referenzmaterialien (RM) für RCL, HMVA und ALB untersucht, die allen Projektnehmern im Verbundvorhaben vom Bundesamt für Materialforschung und -prüfung (BAM) zur Verfügung gestellt wurden. Mit Hilfe von Zentralprojekten, wie die Großlysimeterversuche am FZ Jülich und am GFS München zur Gewinnung naturnaher Schadstofftransportparameter und das hier dargestellte Großlysimeterprojekt zur Gewinnung einer naturnahen Quellstärke, können die von verschiedenen Verbundpartnern entwickelten Transportmodelle und Labormethoden anhand der Referenzmaterialien verglichen und validiert werden.

Die Materialien werden über die Bestimmung der Korngrößenverteilungen und des Gehaltes an anorganisch/organisch gebundenem Kohlenstoff charakterisiert. Feststoff und monatliche Sickerwasserproben werden auf ein breites Schadstoffspektrum anorganischer und organischer Stoffe untersucht. Sickerwasserproben werden nicht filtriert.

In den Sickerwassersammelbehältern findet innerhalb eines Sammelmonats eine leichte Absetzung von Trübe, Partikeln und geringfügig auch Fällungsprodukten statt, die beim Abfüllen der Proben nicht repräsentativ mitbeprobet werden können (Aufrühren aller Monatsmischsickerwässer in den Sickerwasserwannen (ca. 80-150 Liter) ist technisch nicht umsetzbar). Ein eventuell auftretende Effekte wurden über ein modifiziertes Probenahmeverfahren überprüft (vgl. Abschnitt 5)

3 Konzept der Lysimeterbestückung und Fragestellungen

In Bild 1 sind die verschiedenen Varianten der Lysimeterbestückung in einer vereinfachten Übersicht zusammengestellt. Im Vordergrund der Großlysimeterversuche steht die Ermittlung der Quellstärke von Materialien, die als Schütt- oder Verfüllmaterialien im Verkehrsflächenbau oder im Erd- und Landschaftsbau eingesetzt werden. Dazu wurden die Materialien in wasserdurchlässigen Bauweisen, nach üblicherweise vorkommender Verdichtung in einheitlich dünnen Schichtdicken (0,5 m) eingesetzt (vgl. Regelbefüllung Bild 1). Auf diese Weise wurden 14 Lysimetergefäße mit den ausgewählten Materialien z.T. in verschiedenen Siebfraktionen bestückt, der Altlastenboden und RCL 0/32 wird in zwei Parallelen geführt. Diese Versuche erlauben Aussagen zur Dynamik des Stoffausstrags z.T. in Abhängigkeit von der Korngröße, Aussagen zur Karbonatisierungsgeschwindigkeit und speziell bei der Hochofenstückschlacke mit entsprechender Analytik Aussagen zur Oxidationsgeschwindigkeit des Thiosulfat-Schwefels zum Sulfat-Schwefel. Mit den Parallelen (ALB, RCL 0/32) wird die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse überprüft. In Variante I wird der Einfluss der Schichtmächtigkeit auf die Stoffausstragsentwicklung am Beispiel des RCL 0/10 erforscht. In Variante II soll der Einfluss der Ionenstärke bzw. des Salzgehaltes des HOS-Sickerwassers auf das Auslaugverhalten

des unterlagernden Bleihüttengranulats ermittelt werden. Zur Beurteilung von Transportvorgängen, der Rückhaltung und des Abbaus belasteter Sickerwässer beim Durchgang durch die Bodenzone wurden die Varianten III und IV konzipiert. Dort wurden die in früheren Untersuchungen [6] hinsichtlich der bodenphysikalischen und chemischen Eigenschaften und der hydraulischen Eigenschaften eingehend untersuchten Lößlehm- und Sandbodenmonolithe bis auf 50 cm Mächtigkeit abgetragen und mit je 50 cm RCL (0/10) überlagert. Auf diese Weise kann das Rückhaltevermögen der verschiedenen Böden verglichen werden und der Quellstärke ohne Rückhaltung (Regelbefüllung) gegenübergestellt werden.

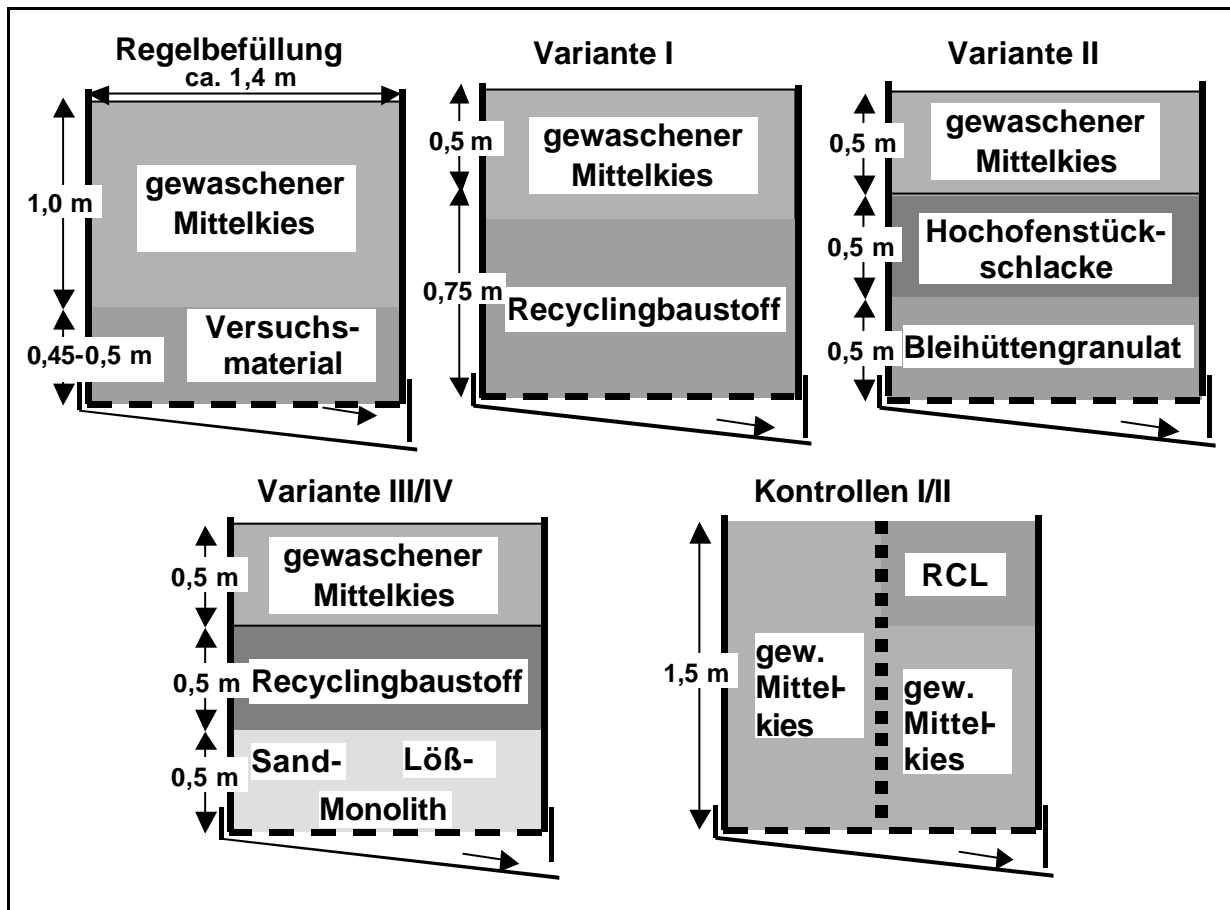


Bild 1: Regelbefüllung (alle Materialien) und verschiedene Varianten der Lysimeterbestückung

4 Lysimeteranlage des LUA in Waldfeucht

Bild 2 zeigt Aufbau und Abmessungen der Lysimetergefäße mit den wesentlichen Bauteilen sowie die Anordnung der Lysimeter im Feld.

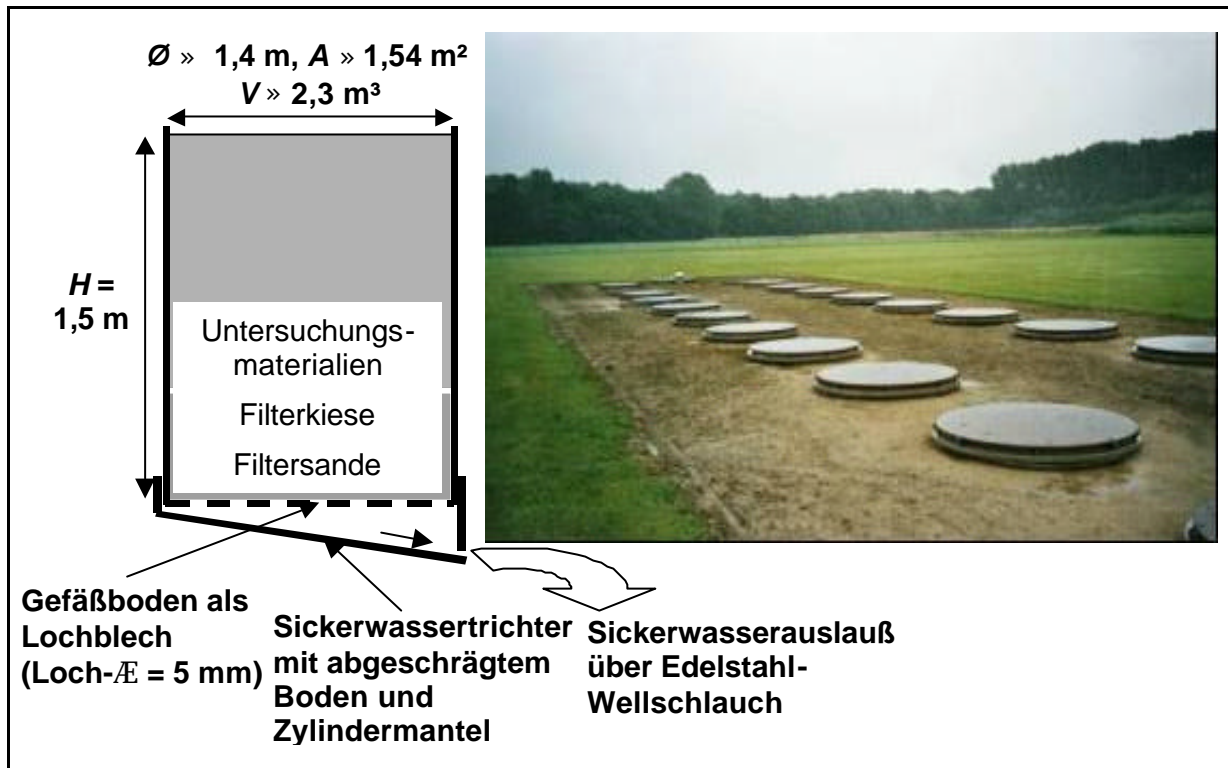


Bild 2: Schemaskizze zum geometrischen Aufbau und zu den Bauelementen der Lysimetergefäße sowie Anordnung der Lysimeter im Feld

Bild 3 stellt die für das Forschungsvorhaben installierten Komponenten des Sickerwassersammel- und Meßsystems im Lysimeterkeller der Anlage in Waldfeucht dar. Das Sickerwasser wird mit einem Edelstahlwellenschlauch aus dem Sickerwassertrichter der Lysimeter (Lysimeter hängen in vom Mittelgang abgetrennten Seitengängen des Lysimeterkellers) durch eine Durchflusszelle geführt und gelangt über ein Edelstahluflußrohr in den geschlossenen 300 l – Edelstahlbehälter. Dort wird es über einen Monat gesammelt und am Monatsende über die Probenahmeähne am Sammelgefäß beprobt. Die zufließende Sickerwassermenge kann aus dem Füllstandssignal der am Tankboden installierten Drucksonden über Kalibriertabellen berechnet werden. Die elektrische Leitfähigkeit des Sickerwassers wird mit in den Durchflusszellen am Lysimeterauslass installierten Lf-Sonden gemessen. Die Speicherung der Messdaten erfolgt stündlich mit einem zentralen Datenlogger. Eine automatische Wetterstation am Standort zeichnet alle für den Bodenwasserhaushalt relevanten Klimadaten auf. Die Korrelation kontinuierlich aufgezeichneter Niederschlagsdaten mit den Sickerwassermengendaten und Lf-Daten erlauben qualitative Aussagen über die Gleichmäßigkeit der Durchsickerung (Abschätzung des Beitrages präferentieller Fließwege) und über die Sickerwasserneubildungsraten in den Lysimetern.

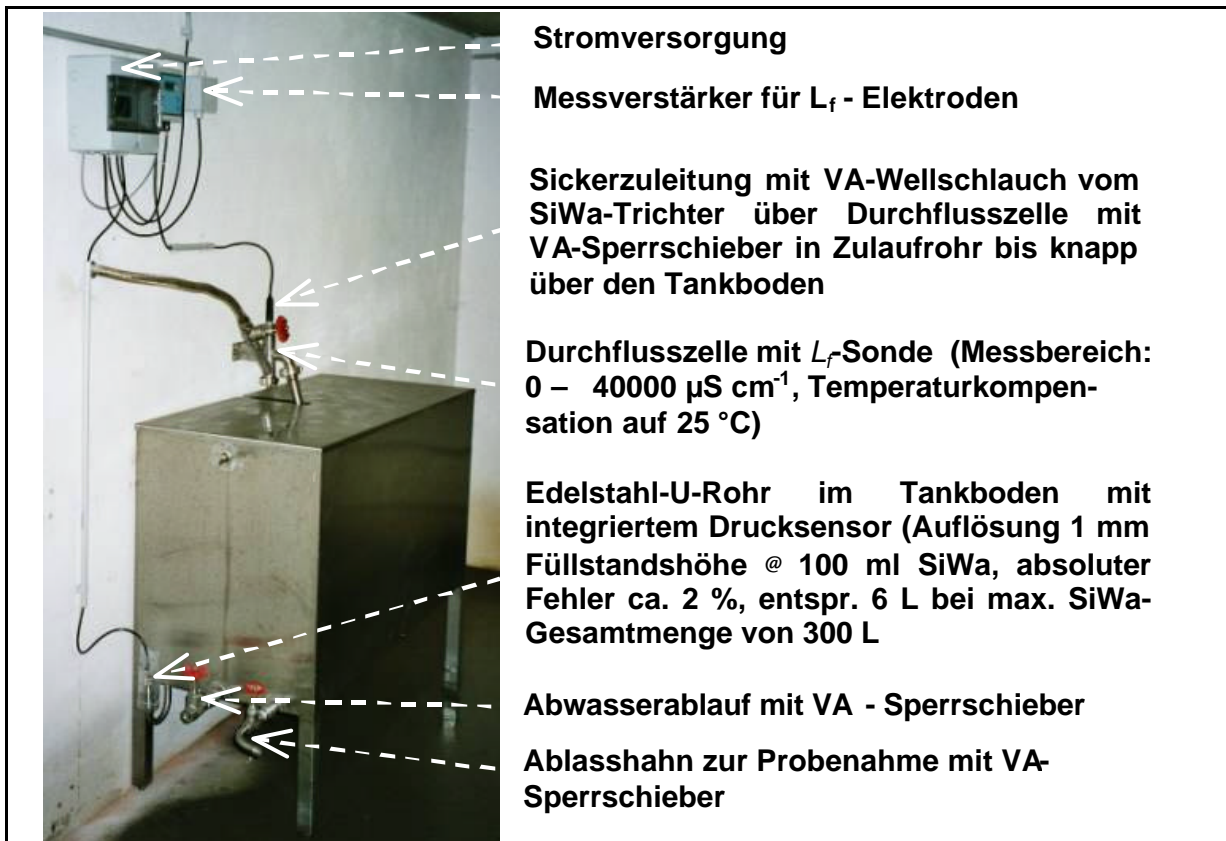


Bild 3: Im Rahmen des BMBF-Projekts installiertes Sickerwassersammel- und Messsystem (Firma UP GmbH, Ibbenbüren)

Die Lysimeteranlage war von Beginn an auch für die Untersuchung von organischen Wasserinhaltsstoffen und Schadstoffen konzipiert indem sämtliche Sickerwasserkontakte in Edelstahl ausgeführt wurden. Auch die im Rahmen dieses Projekts neu installierten Komponenten des in Bild 3 gezeigten Sickerwassersammel- und Messsystems sind ausschließlich in V2A-Edelstahl ausgeführt. Ergebnisverfälschungen durch Materialwechselwirkungen wie Sorptionseffekte, Desorption aus sorbierenden Bauteilen und "Memory-Effekten" in sorbierenden Bauteilen können also weitgehend ausgeschlossen werden. Hinsichtlich der Schwermetalle ist eine geringe Beeinflussung des Sickerwassers durch die Lysimeter-Baumaterialien für die Legierungsbestandteile des Edelstahls Chrom und Nickel gegeben. Die Einschätzung von Bielert et al. [7] beruht auf Untersuchungen in Lysimeterabläufen verschiedener Einrichtungen in der Bundesrepublik Deutschland, die mit verschiedenen unkontaminierten natürlichen Löß- und Sandböden befüllt waren und mit den Schwankungsbreiten von 102 Grundwässern deutscher Mittelgebirge verglichen wurden. Neben Chrom und Nickel haben Bielert et al. in der Lysimeteranlage Waldfeucht auch leicht erhöhte Kupferkonzentrationen festgestellt. Diese sind vermutlich auf den eingebauten Sandboden selbst zurückzuführen [7], wie die Analysen der Bodensättigungsextrakte nach Bielert et al. anzeigen. Eventuell auftretende Einflüsse werden im Rahmen dieses Projekts durch die Kontrollvarianten (Kies-Nullvariante, Lößmonolith und Sandmonolith) quantifiziert.

5 Qualitätskontrollen

5.1 Analytik

Zur Überprüfung der Qualität der Analytik des beauftragten Labors werden regelmäßig Parallelproben von Sickerwässern verschiedener Lysimeter durch ein zweites unabhängiges Labor analysiert. Bild 4 zeigt exemplarisch eine Gegenüberstellung der Analyse-
daten für Salze, Schwermetalle und Organika.

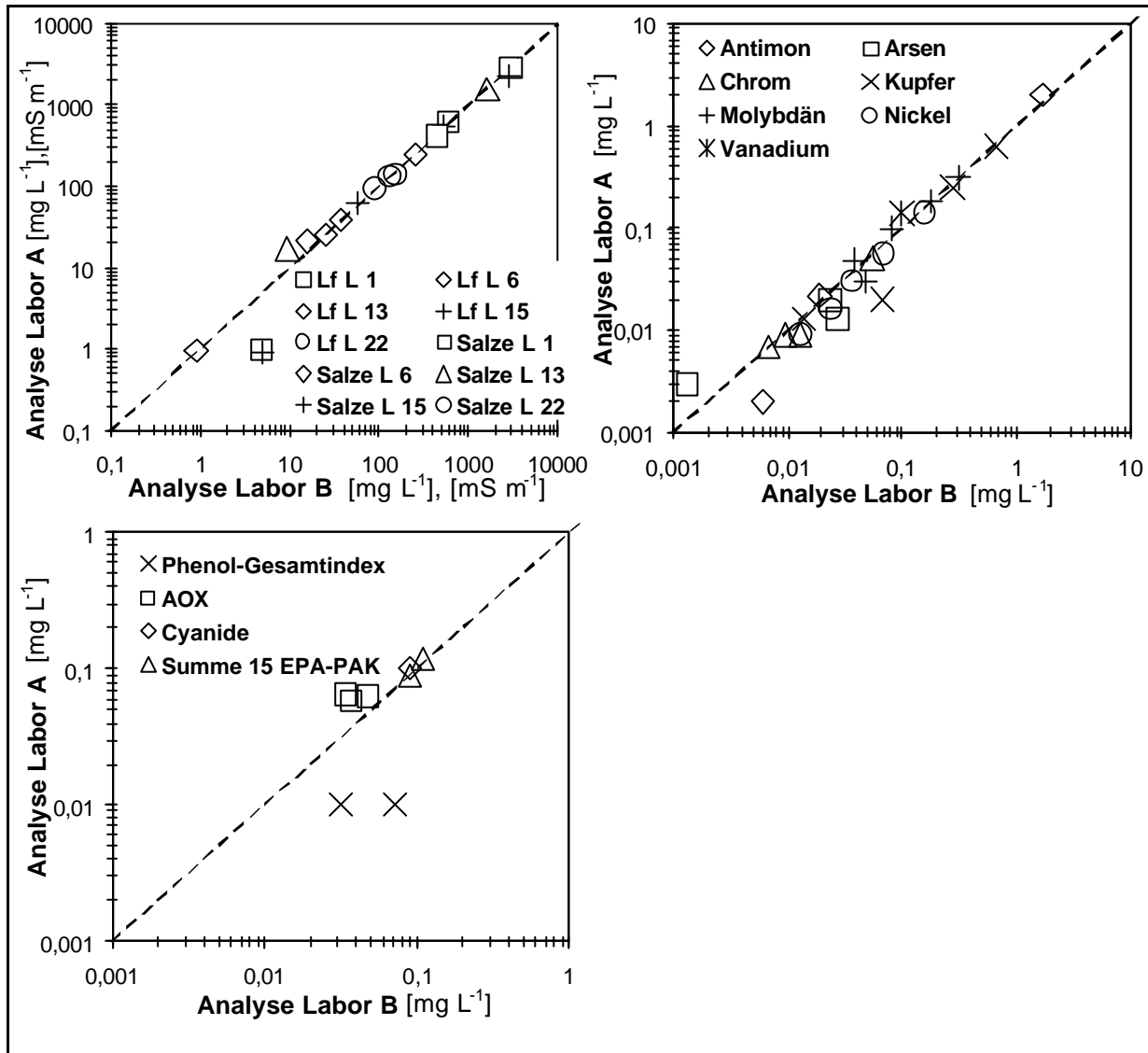


Bild 4: Gegenüberstellung von Analyseergebnissen zweier unabhängiger Laboratorien für verschiedene Schadstoffe in Parallelproben von Lysimetersickerwässern

Sowohl im hier gezeigten Beispiel als auch bei weiteren Qualitätskontrollen konnte eine sehr gute Übereinstimmung der Analyseergebnisse nachgewiesen werden.

5.2 Probenahmetechnik:

Zur Überprüfung einer eventuell auftretenden Beeinflussung von Analyseergebnissen durch die oben genannte Probenahmetechnik wurde eine nicht homogenisierte (Beprobung eines abgesetzten Monatssickerwassers über den Ablasshahn) und eine homogenisierte Monatsmischwasserprobe (Aufrührung des Trübeabsatzes in der Sickerwasserwanne) verschiedener Lysimeter analysiert. Die Proben werden **nicht** filtriert.

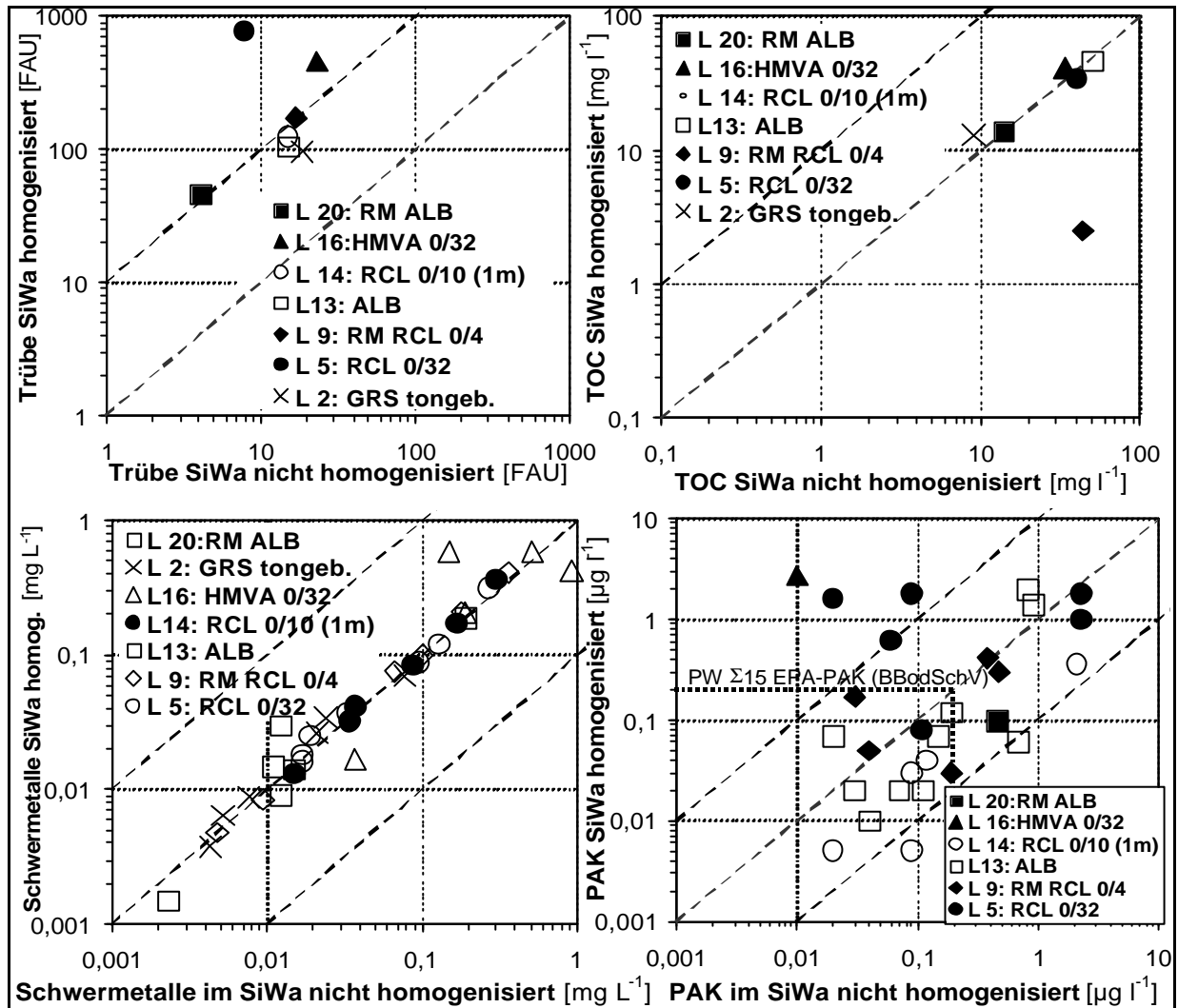


Bild 5: Gegenüberstellung von Analyseergebnissen für verschiedene Schadstoffe in homogenisierten bzw. nicht homogenisierten Sickerwasserproben verschiedener Lysimeter (keine Vorfiltration).

Die Probenahmetechnik hat zwar einen Einfluss auf die Trübe jedoch nicht auf die Schwermetallkonzentrationen und den TOC-Gehalt (sowie Hauptionen und Salze, hier nicht dargestellt) im Sickerwasser. Bei den PAK zeigt sich insgesamt eine relativ starke Streuung, jedoch kein signifikanter Trend der eine Unterschätzung der Konzentrationen durch die Standard - Probenahmetechnik anzeigen würde (Konzentrationen müssten sonst systematisch oberhalb der ersten Winkelhalbierenden liegen).

6 Ergebnisse und Diskussion

6.1 Sickerwasserhaushalt

In Bild 6 sind der kumulative Niederschlag (bezogen auf die einheitliche Lysimeteroberfläche von 1,54 m²) sowie Sickerwasserganglinien exemplarisch für die RM des BAM (Regelbefüllung) und zum Vergleich für die Kieskontrolle (maximale Durchlässigkeit) und den Lößmonolithen (minimale Durchlässigkeit) dargestellt. Im Bild unten sind entsprechende Leitfähigkeitsgänge dargestellt. Alle Daten stammen aus stündlichen Online-Messungen (Druckmembransonden und Lf-Platinsonden). Bei gleicher natürlicher Beregnung zeigen verschiedene Verwertungsmaterialien unterschiedliche Sickerwasserzuflussraten. Mit kleineren Korngrößen, steigendem Schluffanteil nimmt das Kappillarpotential und damit die SiWa-Aufnahmekapazität zu und sinkt die Durchlässigkeit des Materials. Der gutdurchlässige Grobkies stellt dagegen nahezu den ganzen Niederschlag als Sickerwasser zur Verfügung. Der erste Sickerwasserdurchbruch der trocken eingebauten Materialien fällt exakt mit dem ersten Durchbruch des Lösungsinhaltes zusammen. Es kann kein Zusammenhang zwischen Starkniederschlagsereignissen und Leitfähigkeitsverlauf erkannt werden (ein abrupter Lf-Rückgang wäre ein Hinweis auf präferentielle Fließwege oder Randumläufigkeiten im System).

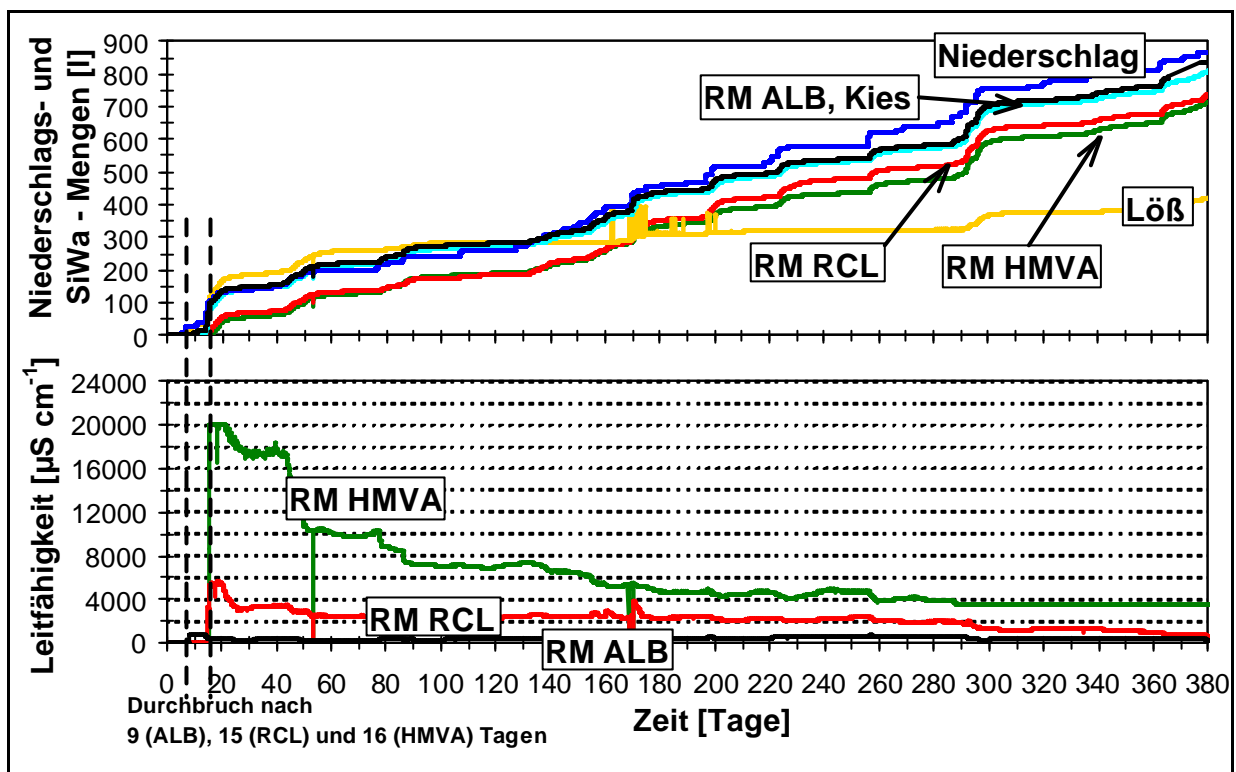


Bild 6: Erster Durchbruch und Verlauf des kumulativen Sickerwasserzuflusses und der elektrischen Leitfähigkeit (Lösungsinhalt)

6.2 Physikochemische Parameter und Salze

Bild 7 zeigt exemplarisch für die Referenzmaterialien des BAM und für eigene Materialien der entsprechenden Materialklasse (je zwei Parallelen in Regelbefüllung, zweites Material der Hausmüllverbrennungsasche feine Kornfraktion aus dem selben "Muttermaterial") die zeitliche Entwicklung der pH-Werte und der elektrischen Leitfähigkeiten.

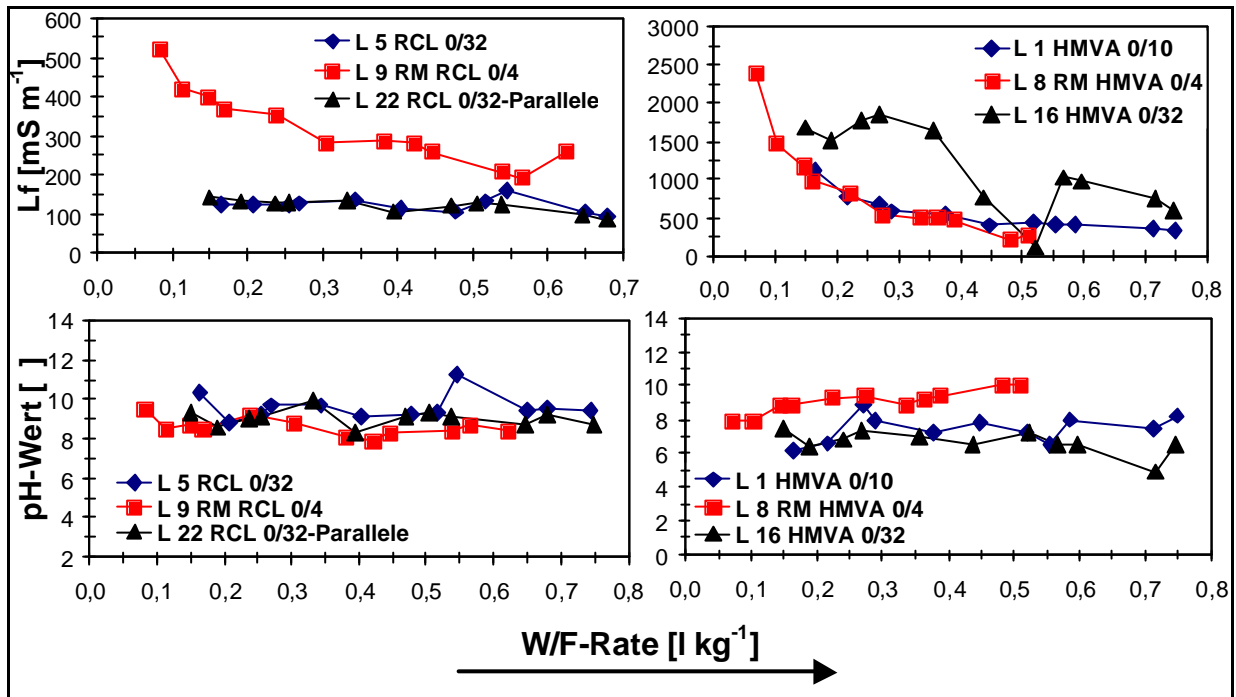


Bild 7: Zeitliche Verläufe von Lf- und pH-Werten im Sickerwasser ausgewählter RM und parallel untersuchter ähnlicher Materialien des LUA versus Wasser/Feststoffraten (W/F)

Es fällt eine sehr gute Reproduzierbarkeit der Ergebnisse durch Parallelversuche auf (dies gilt auch für die hier nicht dargestellten Altlastenböden). Die Lf-Werte im Sickerwasser des RM RCL und der Hausmüllverbrennungsaschen zeigen ein deutliches Abklingverhalten. Bei den RCL des LUA sind die Lf-Werte insgesamt niedriger und klingen wesentlich langsamer ab. Die Lf-Werte der Sickerwässer des RM ALB bleiben auf einem konstanten gegenüber RCL und HMVA wesentlich niedrigeren Niveau von ca. $900 \mu\text{S cm}^{-1}$ (hier nicht dargestellt). Die pH-Werte im Sickerwasser der RCL sind mit Werten zwischen 9 und 10 konstant schwach alkalisch, bei den schluffigen Altlastenböden erwartungsgemäß konstant neutral (Werte zwischen 7 und 8). Im Sickerwasser des RM HMVA steigen die pH-Werten von neutralen Werten auf pH-Werte über 10 an. Sickerwässer der eigenen HMVA zeigen keinen Anstieg der Alkalinität.

Bild 8 zeigt die zeitlichen Konzentrationsverläufe von Chlorid und Sulfat im Sickerwasser ausgewählter Materialien.

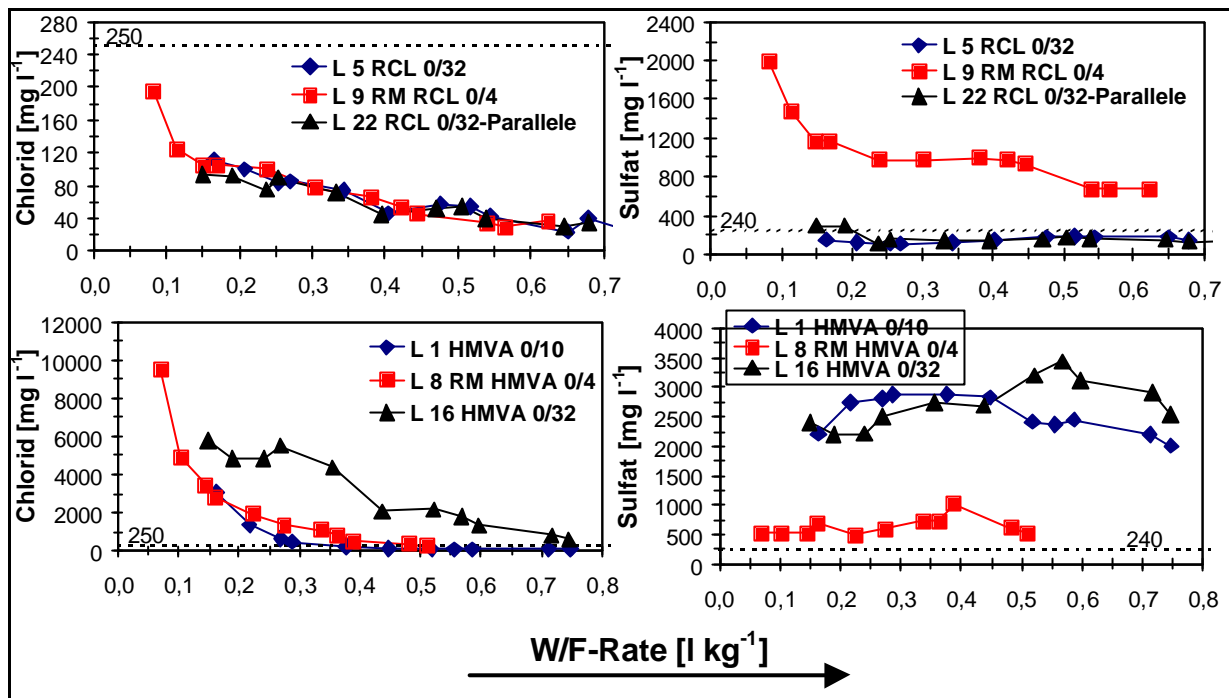


Bild 8: Konzentrationsverläufe von Chlorid und Sulfat im SiWa der RM und ähnlicher Materialien des LUA versus W/F (gestrichelte Linien=Geringfügigkeitsschwellen nach LAWA-Entwurf, 2003)

Wiederum zeigt sich eine sehr gute Reproduzierbarkeit in den Parallelversuchen (gilt auch für die hier nicht dargestellten ALB). Die Salze zeigen überwiegend ein deutliches Abklingverhalten, welches exakt mit dem Lf-Verlauf korreliert (Bild 7). Die Salzkonzentrationen der Sickerwässer aus der Feinfraktion der HMVA (0/10) sind niedriger als die der Grobfraktion (0/10). Da die Salzfreesetzung weniger durch korngößenabhängige Diffusionsprozesse, sondern eher durch Lösungsprozesse limitiert wird, könnte dieser Konzentrationsunterschied auf unterschiedliche Stoffinhalte der beiden Korngrößenfraktionen (gleiches "Muttermaterial") zurückgeführt werden. Demnach konnte mit dem speziellen Aufbereitungsverfahren (Abschnitt 2, gemeinsames Brechen des Muttermaterials und Absiebung der Korngrößenfraktionen) der Stoffinhalt des Muttermaterials nicht gleichmäßig über die beiden Korngrößenfraktionen verteilt werden. Nach mündlicher Auskunft durch das BAM wurden dem RM RCL Gips- und Mörtelanteile zugemischt. Das Abklingverhalten von Sulfat ausgehend von einem sehr hohen Konzentrationsniveau könnte auf einen Gipslösungsprozess zurückgeführt werden.

In den Sickerwässern des RM RCL, des ALB (Material des LUA) werden aktuell diskutierte Geringfügigkeitsschwellen (GFS nach LAWA-Entwurf 2003) von Sulfat und bei allen HMVA die GFS von Chlorid und Sulfat um eine Vielfaches überschritten. Die Zeitdauer von über einem Jahr reichte trotz des gegenüber realen Verwertungsszenarien stark erhöhten Wasserdurchsatzes nicht zur Abreicherung der Salze auf Werte unterhalb der GFS aus.

6.2 Relevante Schwermetalle

Bild 9 zeigt exemplarisch zeitliche Konzentrationsverläufe verschiedener Schwermetalle im SiWa ausgewählter Materialien und der Kies-Kontrollvariante (Hintergrundwerte).

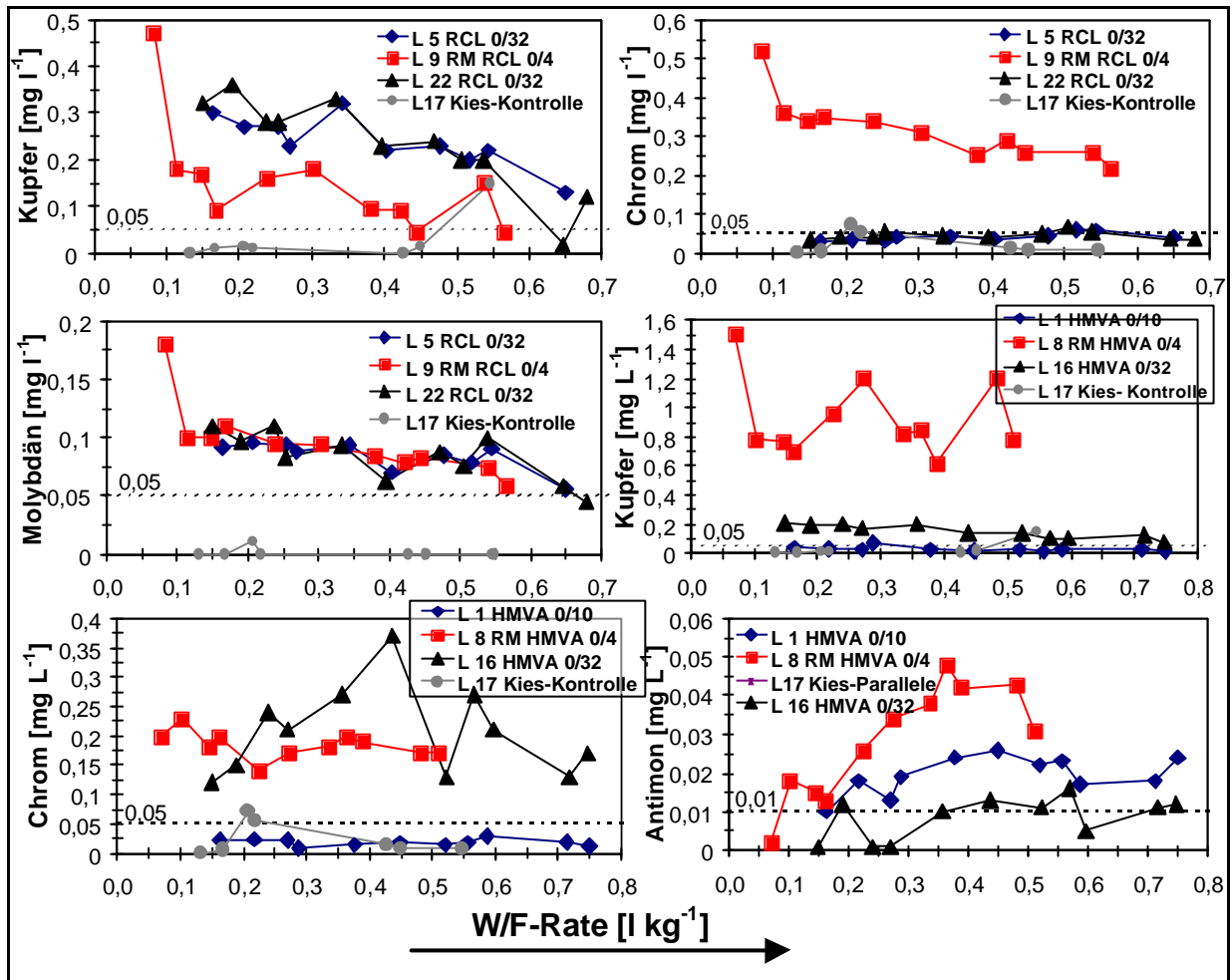


Bild 9: Zeitliche Konzentrationsverläufe verschiedener Schwermetalle im SiWa der RM und parallel untersuchter ähnlicher Materialien

Die Sickerwässer der Kies-Kontrollvariante zeigen eine nur geringe Hintergrundverunreinigung durch Schwermetalle an (auch hier nicht dargestellte Metalle liegen unterhalb aktuell diskutierter GFS). Die Sickerwässer der Recyclingmaterialien zeigen zudem PW-Überschreitungen bei Nickel, Vanadium, Arsen und Antimon und die Sickerwässer der Hausmüllverbrennungsaschen bei Nickel, Arsen und Molybdän. Bei den ALB werden lediglich bei Kupfer und Molybdän die Prüfwerte nach BBodSchV für den Pfad Boden – GW erreicht. Die umfassende Analytik erlaubt ein "Monitoring" weiterer Metalle und Metalloide (z.B. Blei, Cadmium, Eisen, Aluminium, Kobalt, Thallium, Tellur). Diese Spezies wurden bisher nicht oder in geringfügigen Konzentrationen in den Sickerwässern verschiedener Materialien nachgewiesen.

Charakteristisch für das Elutionsverhalten der Metalle sind - vermutlich einbaubedingt - anfänglich stark erhöhte Konzentrationen und ein nachfolgender gleichbleibender Kon-

zentrationsgang. Die Konzentrationsganglinien der Schwermetalle in den RCL zeigen eine leicht fallende Tendenz. Es ist keine signifikante Abhängigkeit der Schwermetallkonzentrationsverläufe vom Trübe oder DOC-Verlauf ersichtlich (vgl. Bild 9 und Bild 10). Der starke Anstieg der Antimonkonzentrationen im Sickerwasser des RM HMVA korreliert mit dem pH-Anstieg. Innerhalb des Untersuchungszeitraums konnten die Schwermetallkonzentrationen nicht auf Werte unterhalb des PW-Niveaus abgereichert werden.

6.4 Organik

Bild 10 zeigt exemplarisch für die Recyclingmaterialien und Altlastenböden zeitliche Konzentrationsverläufe des DOC (3. und 5. Probenahme TOC) und der Σ 15 EPA PAK im SiWa sowie den Trübeverlauf im SiWa der Referenzmaterialien.

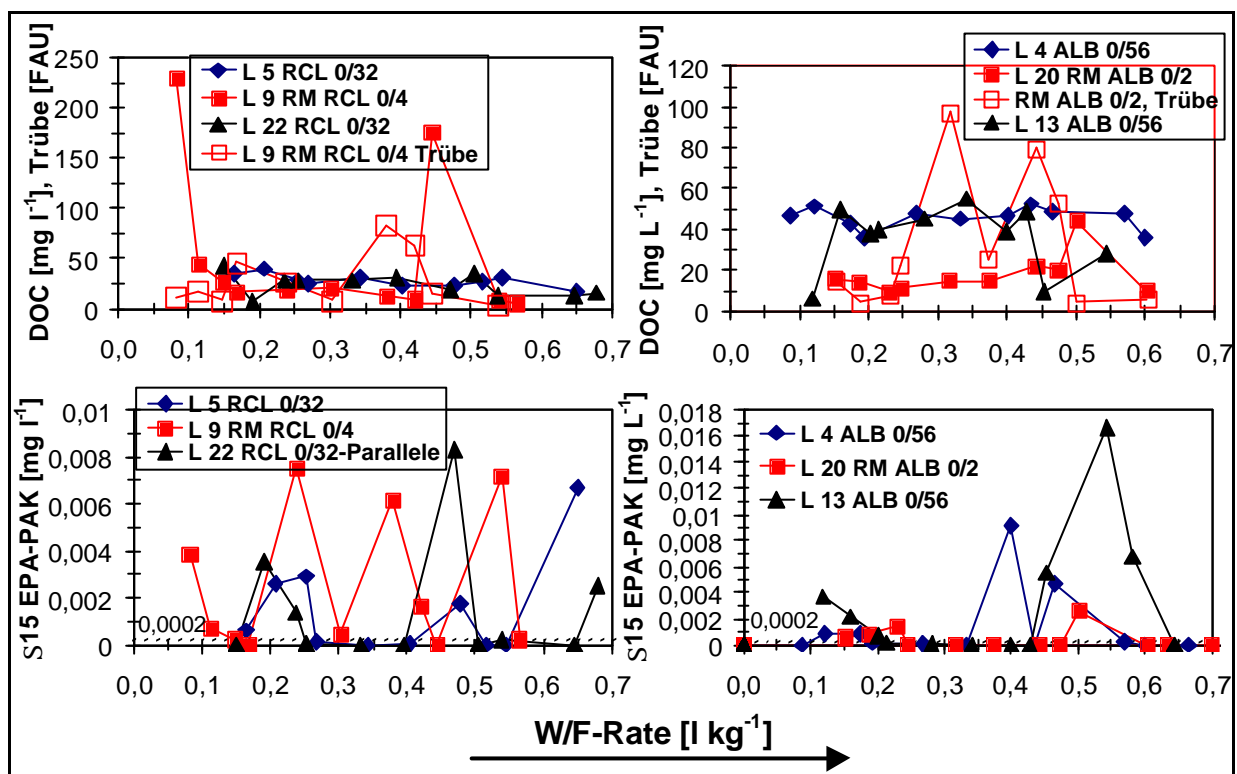


Bild 10: Zeitliche Konzentrationsverläufe von DOC (TOC) und S 15 – EPA PAK im SiWa der RM und parallel untersuchter ähnlicher Materialien des LUA

Die in den abgesetzten Monatsmischwässern gemessenen DOC/TOC-Konzentrationen liegen im Mittel unterhalb 100 mg/l, die in der dritten und sechsten Analyse ermittelten TOC-Werte entsprechen den mittleren DOC-Werten. Die Untersuchungen zum Einfluss Homogenisierung/Nichthomogenisierung des Monatsmischwassers (Abschnitt 5.2) zeigen, dass der DOC/TOC-Gehalt durch die Probenahmetechnik nicht beeinflusst wird (hingegen steigt die quantitative Trübe [FAU] durch die Homogenisierung an, vgl. Bild 5). Der Verlauf der PAK-Konzentration im Sickerwasser ist stark variabel (Schwankungen zwischen Werten < Nachweisgrenze bis zu 40-fachen PW-Überschreitungen bei RM RCL und bis zu 100-fachen PW-Überschreitungen bei RM ALB), zeigt aber keine Abhängigkeit vom Verlauf des TOC/DOC bzw. der Trübe. In den Sickerwässern der

Hausmüllverbrennungsaschen lagen die PAK-Konzentrationen im Mittel unterhalb des PW nach BBodSchV.

Partikel beeinflussen das Austragsverhalten sorbierender (hydrophober) Schadstoffe dann stark, wenn die Partikelkonzentration bei gegebenen mittleren Sorptionskoeffizienten oberhalb 1 g/L liegt [8]. Die Einschätzung von Grathwohl & Susset [8] basiert auf der theoretischen Überlegung (analytische Modelle), dass der Verteilungskoeffizient eines Stoffes zwischen Feststoff und Wasser hoch sein muss und/oder die Desorption der auf den Partikeln sitzenden Schadstoffe relativ langsam erfolgen muss (z.B. Ungleichgewicht/partielle Desorption), damit ein Effekt durch den partikelgetragenen Transport auftritt. Für eine quantitative Bewertung des partikelgetragenen Anteils an der Quellstärke organischer Schadstoffe der Untersuchungsmaterialien wären weitere Untersuchungen zur Partikelgrößenverteilung und Identifizierung anorganischer Partikel erforderlich.

Bild 11 zeigt eine Korrelation des Konzentrationsverlaufs der Σ 15 PAK im SiWa des RM RCL mit dem monatlich kumulierten SiWa-Zufluss.

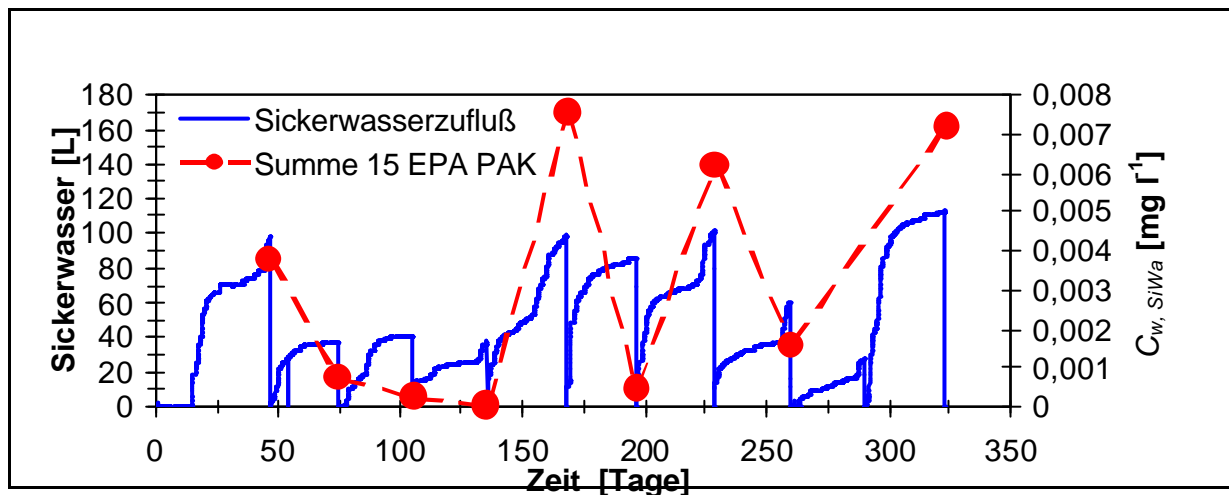


Bild 11: Zeitlicher Konzentrationsverlauf der Σ 15 – EPA PAK im SiWa des RM Recyclingbauschutt versus monatlich kumuliertem Sickerwasserszufluß

Die PAK-Konzentrationen im Sickerwasser der Recyclingmaterialien und der Altlastenböden waren vor allem dann hoch, wenn am Monatsende, also kurz vor der Probenahme nach längeren Trockenphasen hohe Sickerwassermengen anfielen. Dies könnte damit erklärt werden, dass Sickerwasser, das während einer Trockenphase im Gegensatz zu kontinuierlich und schneller abfließendem Sickerwasser länger im Material verbleibt, infolge der höheren Kontaktzeiten mit dem Feststoff eine maximale Gleichgewichtskonzentration erzielt und dann (kurz vor Monatsende) rasch ausgewaschen wird. Nicht auszuschließen ist jedoch auch eine Ergebnisverfälschung durch Bioabbau in der Sickerwasserwanne. Sickerwasser, das kurz vor der Probenahme ins Fass ausgewaschen wird, würde dann höhere Konzentrationen liefern, da keine Zeit für den Bioabbau zur Verfügung stand. In einem Sonderuntersuchungsprogramm wird derzeit untersucht ob Bioabbau in der Wanne identifiziert und quantifiziert werden kann.

Stieber et al. [9] stellen ein ähnlich variables Elutionsverhalten von PAK bei der Untersuchung der Referenzmaterialien in Kleinsäulenversuchen zur Quantifizierung des Einflusses mikrobieller Abbauprozesse auf das Transportverhalten organischer Schadstoffe fest. Die Verbundprojektteilnehmer weisen Bioabbauprozesse schon innerhalb der Quelle nach. Bei raschem Wechsel der Fließgeschwindigkeit stiegen die PAK-Konzentrationen im Säuleneluat stark an. Stieber et al. [9] führen dies auf einen "trägen Anpassungsprozess" der Biomasse in der Quelle an die veränderte Nährstoffsituation zurück.

In der Konsequenz führen die genannten Prozesse zu einer stark variablen Quellstärke hydrophober organischer Schadstoffe.

6. Schlussfolgerungen

Zur Ermittlung "naturnaher" Quellstärken von Materialien die für Fragestellungen der Sickerwasserprognose relevant sind wurden 12 verschiedene mineralische Abfälle und Böden, die sich in der Korngrößenverteilung oder in stofflicher Hinsicht unterscheiden in wasserdurchlässigen Bauweisen (einheitlich dünne Schichtdicken von 0,5 m) in 22 Lysimeter eingebaut. Monatliche Sickerwasserproben werden auf ein breites Schadstoffspektrum analysiert. Die Qualität der Analytik und die Probenahmetechnik werden im Rahmen von Qualitätskontrollen regelmäßig überprüft. Die Ergebnisse aus dem ersten Sickerwasserjahr bestätigen bisher folgende Arbeitshypothesen:

- Der Austrag leicht löslicher Salze wird durch einen lösungslimitierten Freisetzungsprozess dominiert. Charakteristisch ist ein rascher exponentieller Konzentrationsrückgang infolge der Abreicherung des "Schadstoffreservoirs" nach einer kurzen Gleichgewichtsphase (Plateau). Die Dauer von einem Jahr reichte bei Materialien mit anfänglichen Sickerwasserkonzentrationen oberhalb der GFS bei gegenüber realen Verwertungsszenarien höherem Wasserdurchsatz und z.T. geringeren Schichtmächtigkeiten, nicht zur Abreicherung der Salze auf Werte < GFS aus.
- Die Löslichkeit und Mobilität der Schwermetalle (SM) wird durch Adsorptions-Desorptionsprozesse, Komplexbildungsreaktionen, sowie Lösungs- und Fällungsreaktionen (sowie Mitfällung) beeinflusst. Der pH-Wert ist die wichtigste Steuergröße der SM-Mobilität. Bei den Recyclingmaterialien zeigen die dominanten Schwermetalle Kupfer, Molybdän und Chrom ein leichtes Abklingverhalten bei zugleich konstant hohem pH-Niveau zwischen 9 und 10. Bei den Hausmüllverbrennungsaschen bleiben die Schwermetallkonzentrationen konstant bei gleichbleibend alkalischen Sickerwässern der Materialien aus NRW und zunehmend alkalischen Sickerwässern des Referenzmaterials. Die Antimonkonzentrationen im Sickerwasser des Referenzmaterials HMVA zeigen dagegen einen starken Konzentrationsanstieg mit ansteigenden pH- Werten. In keinem Fall konnte eine Abhängigkeit der Konzentrationsverläufe vom Trübe oder DOC-Verlauf festgestellt werden. Insgesamt zeigt sich ein komplexes Elutionsverhalten. Mit einer raschen Abreicherung der SM ist nicht zu rechnen.

- Die Quellstärke organischer Schadstoffe wird bei den hier relevanten gering kontaminierten grobstückigen Verwertungsmaterialien, in welchen organische Schadstoffe i.d.R. weder mobil noch als residual verteilte Phase, sondern an der Bodenmatrix sorbiert vorliegen maßgeblich durch diffusionslimitierte Desorptionsprozesse gesteuert. Ob und über welchen Zeitraum im Lysimeter Gleichgewichtsbedingungen (es stellt sich eine Maximalkonzentration im Sickerwasser oder Eluat ein) herrschen, hängt maßgeblich von den Kontaktzeiten des Sickerwassers mit der kontaminierten Zone ab [10]. Unter dieser Annahme kann der bei allen untersuchten Sickerwässern festgestellte stark variable Konzentrationsverlauf organischer Schadstoffe wie folgt interpretiert werden .

Bei den Lysimeterversuchen im Freiland (keine künstliche Zusatzberegnung) stellen sich unterschiedliche Sättigungszustände und variable Fließbedingungen ein. Sickerwasser, das relativ lang im Lysimeter verweilt (z.B. über längere Zeiträume während Trockenperioden bei Feldkapazität "gespeichertes" Wasser) steht im Gleichgewicht mit dem kontaminierten Material. Schnell fließendes Wasser z.B. nach Starkregenereignissen oder in präferentiellen Fließwegen befindet sich dagegen eher im Ungleichgewicht mit dem immobilen Wasser und dem Feststoff. Das komplizierte instationäre Fließsystem führt folglich zur "Störung" des Sorptionsgleichgewichts und zu stark variablen Sickerwasserkonzentrationen.

Die träge Anpassung des Biomassegehalts an veränderliche Nährstoffsituation führen zu unterschiedlich effektivem Bioabbau in der Quelle und damit zu stark variablen, vom Sickerwasserzuflussverhalten abhängigen Sickerwasserkonzentrationen.

Präferentielle Fließwege und partikelgetragener Transport können die genannten Prozesse verstärken.

In der Konsequenz ist bei hydrophoben sorptiven organischen Stoffen nicht mit einem kontinuierlichen Elutionsverhalten unter Freilandbedingungen zu rechnen zudem verhindern langsame Desorptionsprozesse im organischen Material eine rasche Abreicherung organischer Quellen. Hinsichtlich der Bewertung des zeitlich variablen Austragsverhaltens hydrophober organischer Schadstoffe im Rahmen einer Sickerwasserprognose besteht weiterer Klärungsbedarf.

Literatur

- [1] **BBodSchV** Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung vom 12. Juli 1999. Bundesgesetzblatt Teil I Nr.36, ausgegeben am 16. Juli 1999, S. 1554-1582, 1999.
- [2] **LAWA** Grundsätze des vorsorgenden Grundwasserschutzes bei Abfallverwertung und Produkteinsatz. - www.lawa.de, 2000.

- [3] **Böhme, M.
Leuchs, W.** Grundsätze des vorbeugenden Grundwasserschutzes – Strategiepapier der LAWA für die Abfallverwertung und den Produkteinsatz.- Bodenschutz 4, S. 126 – 129, 2002.
- [4] **LAGA** Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Reststoffen/Abfällen – Technische Regeln.- Mitteilungen der Länderarbeitsgemeinschaft Abfall (LAGA) Nr. 20, 1997.
- [5] **Leuchs, W.
Delschen, T.
Bertram, H.-U.
Koch, D.
Zerbe, H.-D.
Bannick, C.G.** Ableitung von Eluatwerten für die Verwertung von Bodenmaterial als Schüttgut - Konzept und Vorschläge für Zuordnungswerte, Bodenschutz, 39.Lfg. XII/03, 3750, S.1-38, 2003
- [6] **LUA NRW** Lysimeterversuche zum Verhalten persistenter organischer Schadstoffe im System Boden/Pflanze, Materialien zur Ermittlung und Sanierung von Altlasten. Band 13, Essen, 1996
- [7] **Bielert, U.
Heinrichs, H.
Becker, K.-W.** Validierung von Boden-Eluatgehalten zur Prognose von Inhaltsstoffen des Boden-Sickerwassers für das untergesetzliche Regelwerk / BBodSchV, Forschungsbericht am UBA, Texte 86/99, 118 S., 1999
- [8] **Grathwohl, P.
Susset, B.** Sickerwasserprognose für organische Schadstoffe Grundlagen und Stand der Forschung .- atlas-spektrum, 6/2001, S. 285-293, 2001
- [9] **Stieber, M.; Brost, I.,
Thiem, Andreas** Bedeutung des mikrobiellen Abbaus für den Transport persistenter organischer Schadstoffe in der ungesättigten Zone.- unveröffentlichter 2. Zwischenbericht zum Teilprojekt des TZW Karlsruhe im F&E-Verbundvorhaben "SiWa", vorgelegt beim PtWT+E am Forschungszentrum Karlsruhe, 2003
- [10] **Susset, B.** Materialuntersuchungen und Modellierungen zur Unterscheidung Ungleichgewicht/Gleichgewicht in Säulenversuchen zur Sickerwasserprognose für organische Schadstoffe, Tübinger Geowissenschaftliche Arbeiten TGA 74, 2004, (im Druck)

Anschrift des Verfassers:

Dipl.-Geol. B. Susset
Wallneyerstraße 6,
451333 Essen

bernd.susset@lua.nrw.de