

N. BETZL¹, S. KNAPPE², D. LAZIK¹, R. MEIBNER³, H. RUPP³

Ansätze und erste Ergebnisse einer scaling up – Untersuchung an Tagebau-sedimenten

Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Theodor-Lieser-Str. 4, 06120 HALLE

¹ Sektion Hydrogeologie

² Sektion Bodenforschung

³ Sektion Bodenforschung, Forschungsstelle Falkenberg, Dorfstr. 55, 39615 FALKENBERG

Kurzfassung

Seit 1995 wird von den UFZ-Sektionen Hydrogeologie und Bodenforschung mit maßgeblicher Unterstützung der Sektion Analytik ein exemplarischer scaling up - Test an Kippensedimenten der Tagebaue Cospuden und Espenhain durchgeführt. Die südlich Leipzig gelegenen, eng benachbarten Tagebaukippen wurden im zeitlichen Abstand von etwa 30 a aus ober- und mitteloligozänem Abraum und einer quartären Deckschicht errichtet. Während der ältere Kippenstandort Espenhain rekultiviert und landwirtschaftlich bewirtschaftet wurde, liegt die relativ junge Kippe Cospuden z.Z. noch brach und ist der natürlichen Sukzession ausgesetzt. Die zeitlich versetzte Entstehungsgeschichte bildet unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Inanspruchnahme durch Mensch, Flora und Fauna den Ansatzpunkt für ein scaling up - Experiment zur Prognose der Entwicklung saurer Tagebaukippen. Im einzelnen wurden und werden Batchexperimente, unterschiedlich aufgebaute Durchlauf-säulen- und Lysimeterexperimente, sowie ein Monitoring an den Aufstandsflächen mit Hilfe eines Sickerwasser-Grundwasser-Meßsystems durchgeführt. Diese Labor- und Feldexperimente ergänzt ein Meßprogramm hinsichtlich chemischer und boden-/gesteinskundlicher Parameter. Der Artikel umreißt das Untersuchungsprogramm und stellt ausgewählte Ergebnisse vor.

Betrachtungsmaßstäbe

Bei der Untersuchung von Tagebaukippen allgemein, oder spezieller beispielsweise der Dynamik der Sickerwasserbildung in Kippen, beobachtet man Objekte auf unterschiedlichen räumlichen und zeitlichen Skalen, die über komplexe und sich gegenseitig beeinflussende Prozesse miteinander verknüpft sind. Abbildung 1 stellt anhand von Beispielen die Beziehungen zwischen verschiedenen Skalen dar, die in den für uns makroskopisch sichtbaren Befunden wie der Versauerung eines Tagebaurestsees resultieren. Die Variationsbreite der Skalenbereiche wird den Abbildungen 2a und 2b verdeutlicht: Die relevanten Objekte mit der Dimension [Länge] verteilen sich auf 11 Größenordnungen, die Prozesse mit zeitlicher Dimension umfassen 18 Dekaden.

Die kürzeste betrachtete Längenskala liegt in der Größenordnung 0.1 ... 10µm und schließt die kleinsten Anteile der Tonfraktion ein. Die für das chemische Milieu und Migrationsprozesse u.U. wichtigen Kolloide gehören ebenso in diesen Größenbereich wie eisen- und schwefeloxydierende Mikroben (z.B. *Thiobacillus ferrooxidans*, *Thiobacillus thiooxidans*) und die Mikroporen der Mineralkörner, deren Mantelflächen die spezifische Oberfläche des Substrats wesentlich bestimmen. Diese Parameter definieren Randbedingungen für chemische Reaktionen. Die Zersetzung des Pyrits (FeS_2) unter oxidierenden Bedingungen infolge der Belüftung der Substrate ist eine dominante Reaktionskette in der chemischen Entwicklung der Kippe. Über sie werden der pH-Wert und das Redoxpotential gesteuert. Sekundärreaktionen wie die Zersetzung von Silikaten und die Mobilität von Schwermetallen sind die Folge.

Abbildung 3 zeigt das extreme Milieu pyritoxydationsbeeinflusster Wässer im Vergleich zu anderen typischen Bereichen der Hydrosphäre.

Skala	
Fe-, S-Ion (nm)	<ul style="list-style-type: none"> - Ionenbindung - Komplexierung (z.B. Hydratisierung) - chemische Eigenschaften des Einzelatoms/-ions
Pyrit-Kristall Mikroporen Mikroben (µm)	<ul style="list-style-type: none"> - Adsorption (z.B. Mikroben) - reaktive Kornoberfläche - diffusiver Transport durch Adsorptionswasserfilm - Oxydation - Säureproduktion - mikrobielle Katalyse
Korn (mm)	<ul style="list-style-type: none"> - Aggregat individueller Kristalle - Einschlüsse (z.B. wäßrige Lösungen)
Kornaggregat Makroporen (cm)	<ul style="list-style-type: none"> - Porosität - Permeabilität - Dispersivität - 2-Phasenströmung (Gas-, Wasserphase) - Verfrachtung gelöster Ionen
Sedimentstruktur (dm)	<ul style="list-style-type: none"> - Diskontinuitäten in Permeabilität, z.B. Tonlinsen - Kapillarsperren - Beeinflussung der Strömung
Struktur der Absetzerkippe und der Förderbrückenkippe (m)	<ul style="list-style-type: none"> - hydraulische Heterogenität → preferential flow an Substratgrenzen - schwebende Wasserkörper - räumliche Nähe verschiedener chemischer Milieus - Wanderung oxydierter/reduzierter Fronten - Eintrag der Versauerung in Grundwasser und Restsee
Tagebau-Gesamtstruktur (km)	Interaktion Kippe – Restsee

Abb. 1: Skalen und ihre Beziehung im Gesamtsystem Tagebaukippe

Spektrum der relevanten Längenskalen

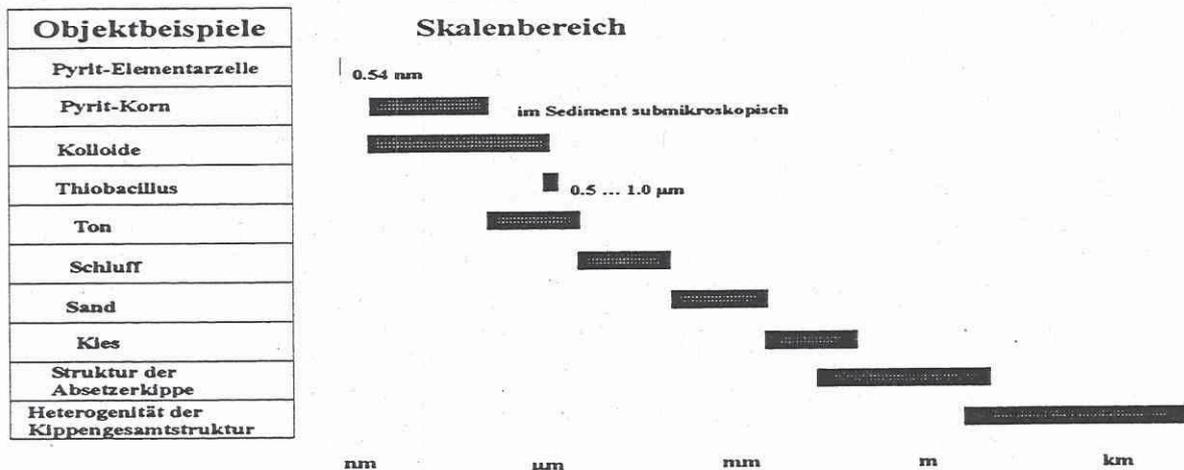


Abb. 2a: Relevante Längenskalen im System Tagebaukippe

Spektrum der relevanten Zeitskalen

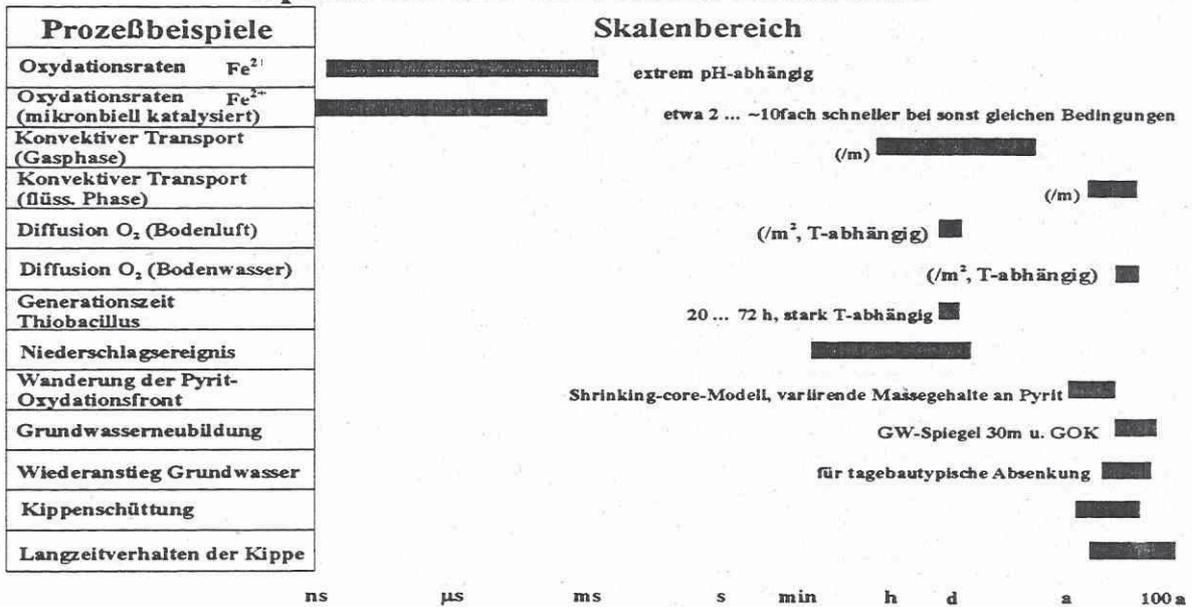


Abb. 2b: Relevante Zeitskalen im System Tagebaukippe

Die nächstgrößere Längenskala repräsentiert den Millimeter- bis Zentimeterbereich. Hier finden wir das Maximum der Kornverteilungen in den Kippen, Fein- und Mittelsande, und beschreiben auf diesem Maßstab das Korngefüge und die Makroporenraumcharakteristik eines Sediments, die dessen hydraulische Eigenschaften wie Permeabilität und Dispersivität festlegen.

Am vertrautesten ist uns aus der Alltagserfahrung der Skalenbereich des Makrokosmos der Kippe, dessen typische Längen von m bis km reichen. Diese Skala nutzen wir zur Beschreibung der sedimentären und technogenen Strukturen in den Substraten der Absetzer- und Förderbrückenkippe sowie der quartären Deckschichten. Die kürzesten Zeitskalen treten in der Kinetik der chemischen Reaktionen auf, etwa bei der Oxydation des Fe²⁺ zum Fe³⁺. Die längste Skala umfaßt das Langzeitverhalten einer errichteten Kippe, wie z.B. Setzungen und die Reaktion auf veränderten Stoffein- und -austrag infolge von Rekultivierung. Die Skalenabhängigkeit von Prozessen muß bei der Planung von Experimenten ebenso in Betracht gezogen werden wie bei der Auswertung und Interpretation von Daten.

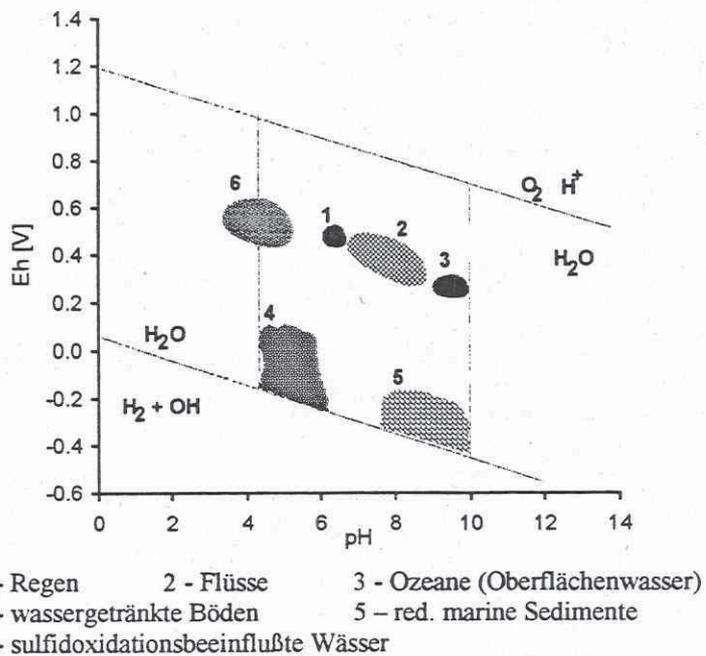


Abb. 3: Charakteristische Eh-pH-Bedingungen von Bereichen der Hydrosphäre, nach O'NEILL (1993)]

Die Skalenabhängigkeit von Prozessen muß bei der Planung von Experimenten ebenso in Betracht gezogen werden wie bei der Auswertung und Interpretation von Daten.

Experimentelle Ansätze

Die Basis des scaling up - Projektes bilden aufeinander abgestimmte Feld- und Laborexperimente und ein Langzeitmonitoring. Arbeitsgebiete sind die Kippenfläche Zwenkau und Espenhain. An beiden Flächen wurden Lysimeter von 1m^2 Querschnittsfläche entnommen, die entstandenen Aufschlüsse detailliert bodenkundlich bzw. geologisch aufgenommen und Proben für kleinräumige Versuche gewonnen. Abbildung 4 zeigt die Aufnahme eines solchen Wandaufschlusses. Darin wird die kleinräumige Heterogenität der Substrate der Absetzerkippe deutlich. Die im Wandaufschluß vorgefundenen Strukturen sind deshalb nur sehr bedingt für das in ca. 1m Abstand gewonnene Lysimeter repräsentativ. Hauptsächlich besteht die Substrate aus feinkörnigen, schluffigen Sanden, deren Kohlegehalt sehr stark und auf kleinem Raum schwankt. Außerdem sind Ton-, Schluff- und Kohlebrocken eingelagert. Grenzflächen zwischen einzelnen Sedimenttypen verlaufen versturztechnologisch bedingt geneigt im Raum. Nur die quartären Deckschichten - ein Regosol aus Kipp-Sandlehm über Fein-/Mittelsand - wirken relativ homogen und sind etwa horizontal gelagert.

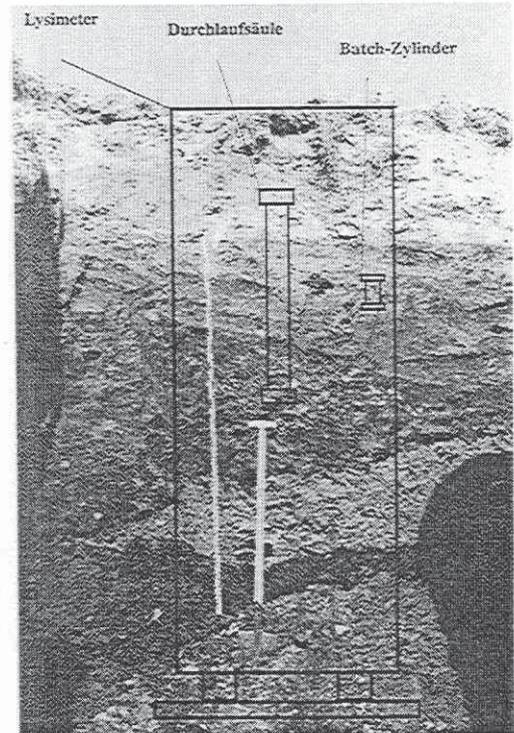
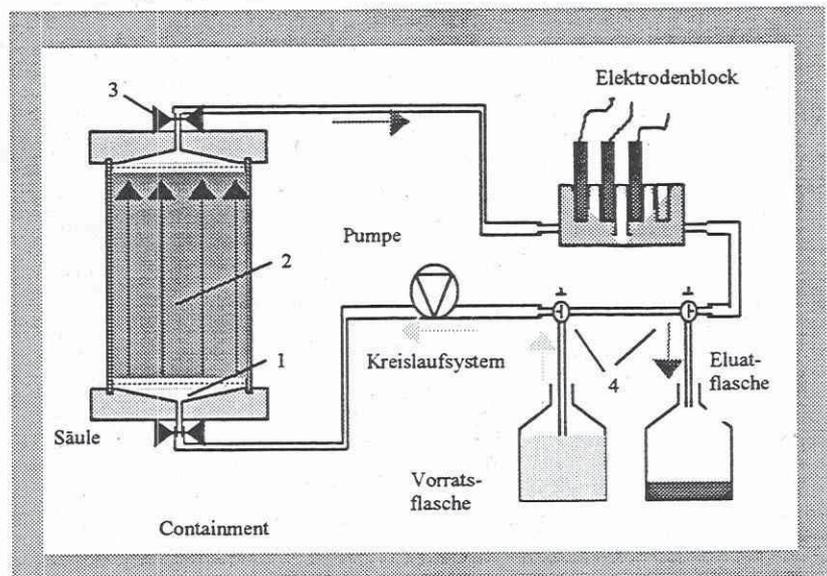


Abb. 4: Wandaufschluß im Tgb. Espenhain

Die Lysimeter befinden sich heute in den beiden Lysimeterstationen Brandis (Sächsisches Landesamt für Geologie) und Falkenberg (UFZ). In unmittelbarer Nähe zu den Lysimeteraufstandsflächen befinden sich mehrere Pegelbohrungen, von denen zwei mit Sickerwasser- Grundwasser-Meßsystemen ausgerüstet sind. Die während der Bohrung gewonnenen Liner werden in einer Säulenversuchsanlage hinsichtlich ihres Elutionsverhaltens untersucht.

Eine röntgenografische Analyse der Proben der einzelnen Sedimenttypen dient zur Beurteilung des Mineralinventars. In Abb.4 wird der Unterschied in Größe und Integration zwischen Lysimeter, Durchlaufsäule und Batch-Zylinder deutlich. Während der Batch-Zylinder in einem definierten Sediment-Typ gestochen wurde und daher makroskopisch



- 1 - Ein-/Auslaufverteiler
- 2 - zwischen Stützplatten und 0.04 mm Sieb eingebautes Probenmaterial
- 3 - selbstschließende Kupplungen
- 4 - Ventile für Öffnen und Schließen des Kreislaufsystems

Abb. 5: Prinzipskizze Umlaufsäulenanlage (NITSCHKE, 1999)

homogen erscheint, umfaßt die Füllung der Durchlaufsäulen und erst recht der Lysimeter ein Gemisch aus verschiedenen Sedimenttypen mit ihren Substratgrenzen, die einen Einfluß auf das hydraulische und chemische Verhalten des Gesamtsystems nehmen können. Die Batch- und Lysimeter-Experimente werden in den folgenden Abschnitten näher erläutert.

Batch-Experimente

Abb. 5 zeigt den prinzipiellen Aufbau der für die Untersuchungen genutzten Batch-anlage nach NITSCHKE (1991). Die Sedimentprobe befindet sich in einem Zylinder von 8 cm Durchmesser und 10 cm Länge. Das Sediment wird mit synthetisch hergestelltem Regenwasser entsprechend den klimatischen Gegebenheiten des Probenahmeortes aufgesättigt und das Eluat im Kreislauf geführt, bis sich an den Sensoren für pH-Wert, elektrische Leitfähigkeit und Redoxpotential ein stationärer Zustand eingestellt hat. Dann wird Eluat in die Eluatflasche abgezogen und analysiert sowie das volumetrische Lösungsdefizit aus der Vorratsflasche ausgeglichen. Dieser Elutionszyklus wiederholt sich. Da das Batch-Experiment nicht von der Zeit abhängt, liegt der Diskussion und Übertragbarkeit der Ergebnisse die Zahl der Porenwasserwechsel zugrunde, über die das thermodynamische System untersucht wurde. Die Anlage ist in einem Klimaschrank untergebracht, um definierte Temperaturen einhalten zu können. Über einen Zeitraum von eineinhalb Jahren wurden an fünf Sedimenttypen von der Kippe Espenhain Batch-Experimente durchgeführt.

Ausgewählte qualitative Ergebnisse:

Es zeigen sich wesentliche Unterschiede zwischen den verschiedenen Sedimenttypen, von denen hier exemplarisch nur die Typen 2 (brauner kohlehaltiger Sand) und 3 (Bodenkrume) vorgestellt werden. Das Eluat des braunen Sandes weist sehr saure pH-Werte auf, die sich

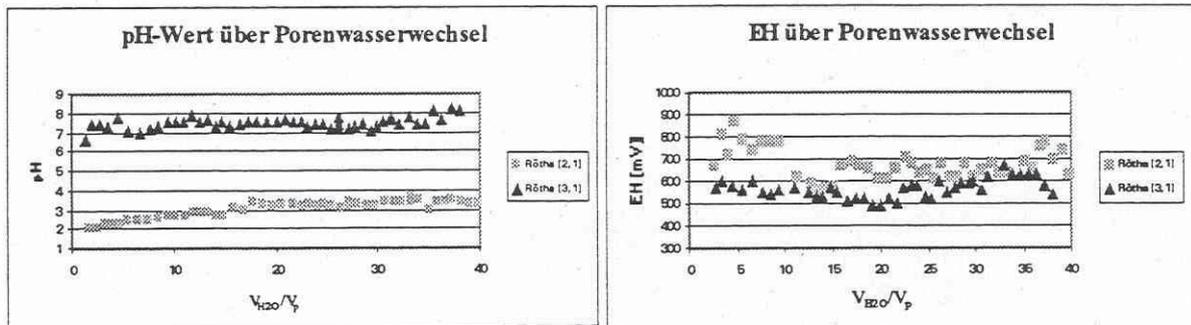


Abb. 6: pH und EH über Porenwasserwechsel der Sedimente 2 und 3

nach ca. 15 Porenwasserwechseln bei etwa 3.5 einpegeln (Abb. 6). Etwa am gleichen Punkt fällt das Redoxpotential auf Werte zwischen 600 und 700 mV. Generell läßt sich für Sediment 3 eine gute Korrelation zwischen den Konzentrationen an $\text{Fe}_{(\text{ges})}$ und SO_4^{2-} und dem pH-Wert des Eluats konstatieren (Abb. 7).

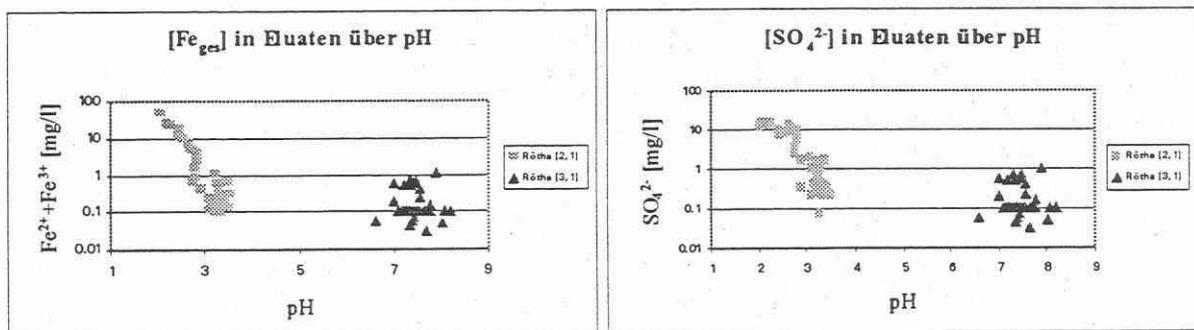


Abb. 7: $\text{Fe}_{(\text{ges})}$ - u. SO_4^{2-} -Gehalte der Eluate der Sedimenttypen 2 u. 3 über Porenwasserwechsel

Abbildung 8 zeigt die Konzentrationen der wesentlichen Wasserinhaltsstoffe im Eluat in Relation zum Porenwasserwechsel.

In einer ersten Phase über etwa 10 ... 15 Porenwasserwechsel stellt sich im Eluat des braunen Sandes eine etwa konstante (Ca^{2+} , SO_4^{2-}) bzw. schwach fallende Konzentration der Hauptin-

haltsstoffe ein. Danach kommt es zu einem exponentiellen Konzentrationsabfall (in der halblogarithmischen Darstellung linear). Mit steigender Zahl der Porenwasserwechsel mündet die Kurve in ein stabiles Plateau.

Die Probe aus der Bodenkrume zeigt ein völlig anderes Verhalten. Der pH-Wert des Eluats liegt stabil im neutralen Bereich und das Redoxpotential hat die für Bodenbildungen typischen Werte zwischen 500 und 600 mV. Die Konzentrationen aller betrachteten Ionen bewegen sich über alle Porenwasserwechsel - abgesehen von Streuungen - auf etwa konstanten Niveaus. Stellt sich trotz Eluataustausch immer wieder eine etwa gleiche Ionenkonzentration

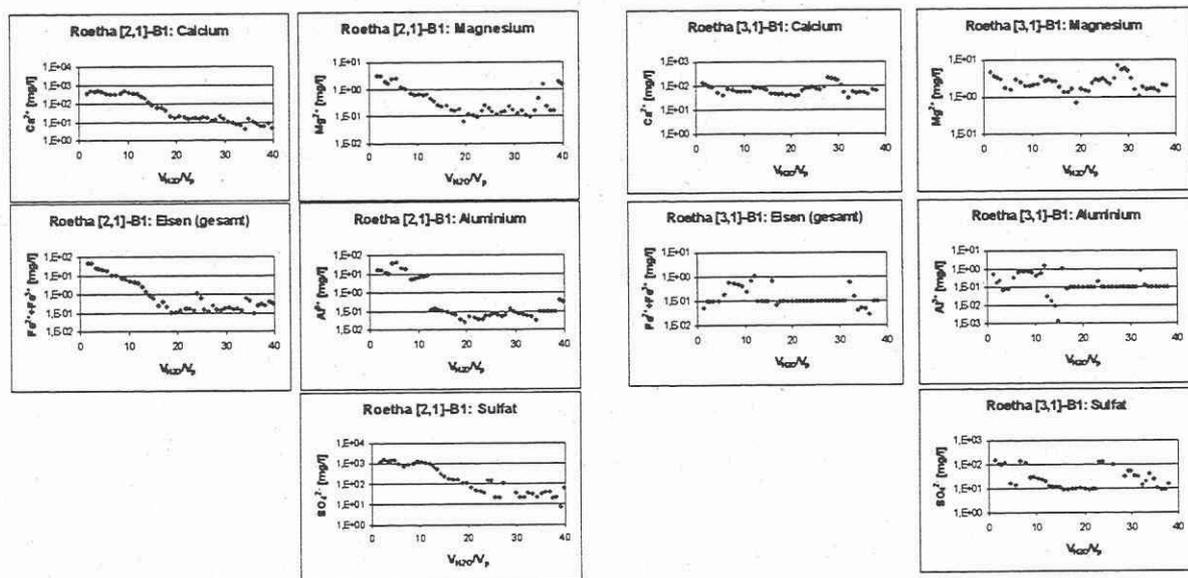


Abb. 8: Ionenkonzentrationen für Sedimenttypen 2 und 3 über dem Porenwasserwechsel

tration in der Lösung ein, wird ein im Überschuss vorrätiges Mineral infolge der Verringerung der Lösungskonzentration durch Frischwasserzusatz unter den aktuellen pH/Eh - Bedingungen sukzessive gelöst, bis jeweils wieder das Lösungsgleichgewicht erreicht ist. Ist die Mineralsubstanz aufgebraucht, bewirkt der Porenwasserwechsel eine dauerhafte Absenkung der Konzentrationen, die als exponentiell fallende Kurve in den Diagrammen der Abbildung 8 zu erkennen ist. Mündet die Kurve in ein neues stabiles Plateau findet entweder die Auflösung eines weiteren Minerals statt oder das mineralogische Inventar des eluierten Sediments steht im Gleichgewicht zur Zusammensetzung des zusetzenden Regenwassers im aktuellen Milieu.

Lysimeter-Experimente

Drei Lysimeter von der Kippe Espenhain wurden mit einer Schicht Filterkies an der Basis versehen und als wägbare, monolithische Lysimeter in der Station Brandis installiert (Abb. 9). Zu ihrer Gewinnung wurde ein Zylinder (GFK) von 1 m^2 Querschnittsfläche und 3 m Länge in Schritten von 25 cm in den Boden geschlagen und jeweils vor dem nächsten Tiefenschritt seitlich freigelegt. Die Lysimeter weisen je nach Substratzusammensetzung und Wassergehalt ein Gewicht von 7 bis 9 t auf. Die Meßgenauigkeit der Waagen liegt bei 100 g, das entspricht einer Niederschlagsmenge von 0.1 mm/m^2 . In drei Meßebenen sind jeweils Tensiometer, Saugkerzen, Bodenluftplanzen und TDR-Sonden eingebaut. Durch die Filterkiesschicht an der

Basis erfolgt der Sickerwasseraustritt. Täglich 7.00 Uhr wird der Sickerwasserauslaß geöffnet und die rein gravitativ ausfließende Menge per Wägung bestimmt. Über ein Zwischengefaß von 80 ml Volumen zieht ein automatisch arbeitendes Meß- und Analysesystem nach LAZIK ET.AL. (1997) einen Teil des Sickerwassers ab und führt ohne weiteren Luftkontakt eine Sofortanalyse u.a. auf pH-Wert, Redoxpotential und Leitfähigkeit durch. Von dem durch die Saugkerzen aufgenommenen Bodenwasser wird eine monatliche Sammelprobe von 70 ml für jede Ebene erstellt. Die Meßwerterfassung von TDR und Tensiometern erfolgt stündlich über einen Datenlogger.

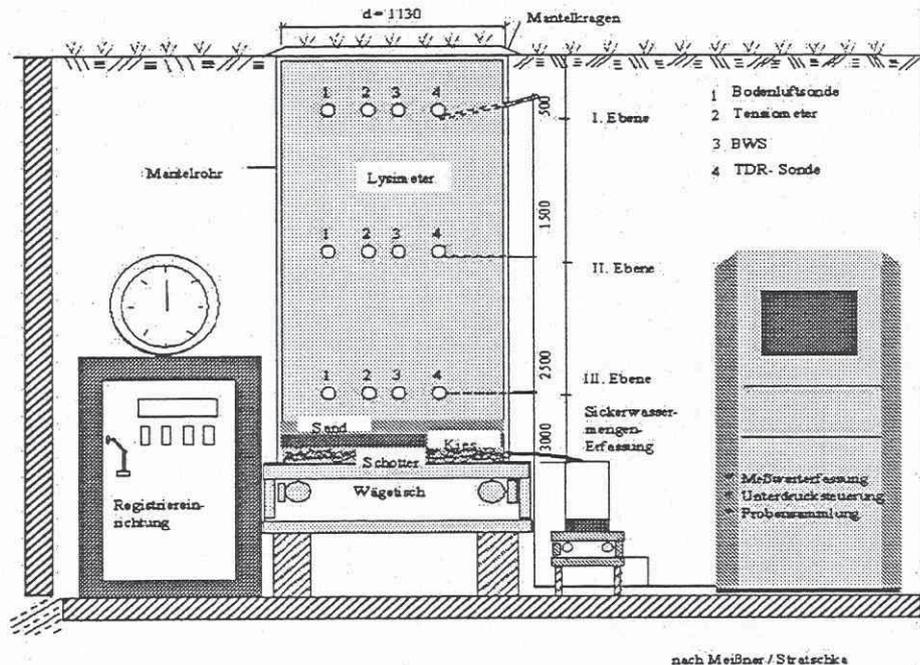


Abb. 9: Prinzipskizze der wägbaren Lysimeter in der Station Brandis

In Falkenberg befinden sich je zwei Lysimeter von den Tagebauflächen Espenhain und Zwenkau. Hier wurden die Sedimenttypen schichtweise abgegraben, in sich homogenisiert, in Big-Bags gefüllt und in der Lysimeterstation Falkenberg als gestörte, nichtwägbare Lysimeter mit horizontaler Schichtung aufgebaut. Die Falkenberger Lysimetergefäße sind durchgehend aus Polyethylen gefertigt und haben die gleiche Querschnittsfläche von 1m^2 bei einer Tiefe von 1.75 m.

Zusätzlich verfügen alle Lysimeter über einen externen Wassertank. Dessen variable Position ermöglicht die Einstellung eines definierten hydraulischen Potentials und wird nach Abschluß momentan laufender Tracerexperimente zur Simulation des Grundwasserwiederanstiegs dienen.

Ergebnisse (Brandis)

Trotz der Heterogenität der Kippensubstrate zeigen die drei Brandiser Lysimeter hinsichtlich ihrer Reaktion auf Niederschlagsereignisse sowie der gebildeten Sickerwassermenge ein nahezu identisches Verhalten (Abb. 10); ihr chemisches Regime differiert dagegen wesentlich. (Abb. 11). Unter den Anionen dominiert in allen Ebenen und Lysimetern das Sulfat. Chlorid spielt eine untergeordnete Rolle, in der obersten Ebene tritt zusätzlich Nitrat infolge landwirtschaftlicher Nutzung der Oberfläche auf. Allerdings variieren die Gehalte an Sulfat

zwischen den einzelnen Lysimetern und auch mit der Tiefe. Die Kationen bieten ein differenzierteres Bild. In der obersten Meßebene weist die Lösung nur Calcium in nennenswerten Konzentrationen auf, etwa einheitlich für alle drei Lysimeter. Diese Gehalte erhöhen sich leicht bis zur zweiten Meßebene und bleiben dann mit der Tiefe konstant. In 1.50 m Tiefe sind die Gehalte an Magnesium für alle Lysimeter signifikant, lediglich in 12-3 erhöht sich diese Konzentration merklich an den unteren Ebenen. Fe und Al werden in Lysimeter 12-1 und 12-2 mit der Tiefe dominanter, spielen aber in 12-3 nahezu keine Rolle.

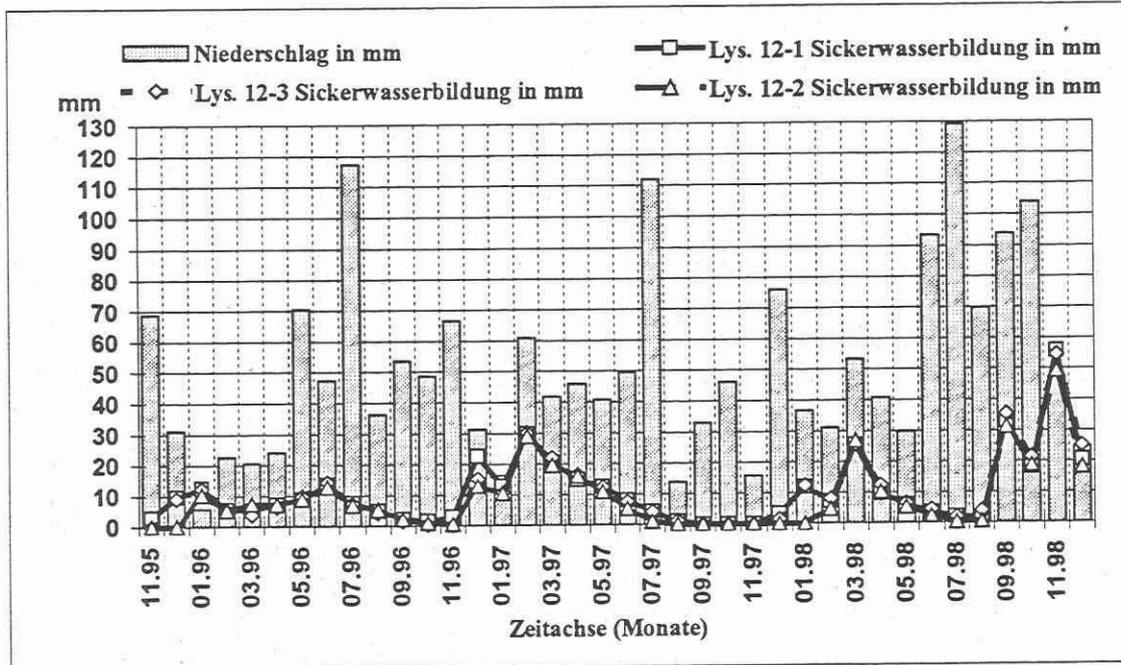


Abb. 10: Niederschlagshöhe und Sickerwassermengen der Lysimeter Brandis 12-1 bis 12-3

Die Eluate der Lysimeter 12-1 und 12-2 zeigen ab der zweiten Meßebene stets deutlich höhere Gesamtkonzentrationen gelöster Inhaltsstoffe gegenüber 12-3. Dies korrespondiert mit den Protonenkonzentrationen, die hier stellvertretend für die pH-Werte angegeben sind. Lysimeter 12-3 verzeichnet – wahrscheinlich aufgrund mergeliger Einlagerungen – die niedrigsten Protonenkonzentrationen, die mit niedrigeren Eisen- und Sulfat-, aber höheren Magnesium-Konzentrationen korrelieren.

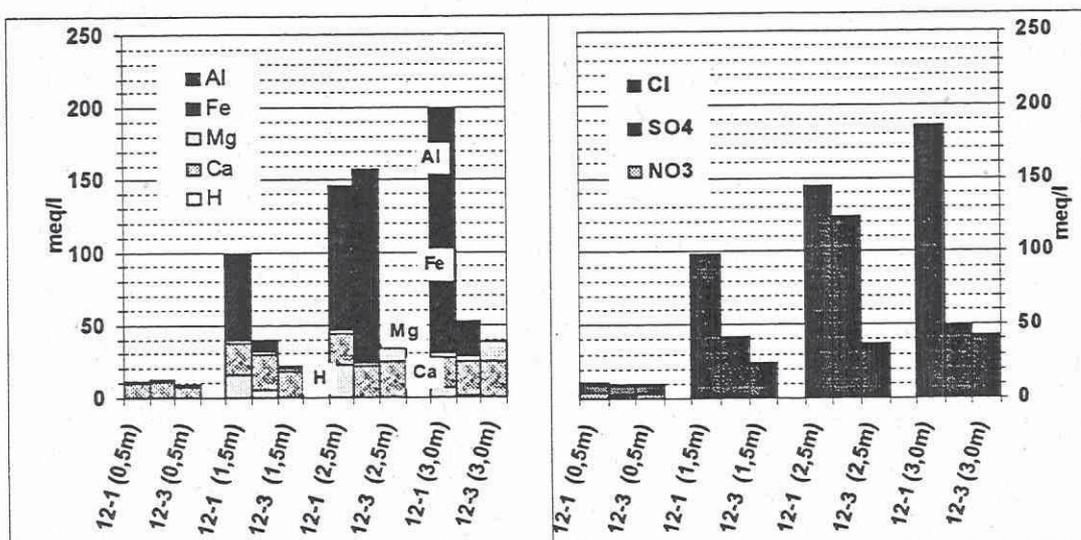


Abb. 11: Ionenäquivalentkonzentrationen der Meßebenen Lysimeter Brandis 12-1 bis 12-3

Die oben beschriebene Parallelität im Verhalten der drei Lysimeter hinsichtlich gebildeter Sickerwassermenge und Evapotranspiration auf der einen, das differierende chemische Verhalten auf der anderen Seite gaben zu folgender Schlußfolgerung Anlaß: Sickerwasserbildung und Evapotranspiration werden von den quartären Deckschichten und der Bepflanzung gesteuert, während die stark heterogenen Absetzerkippensubstrate die unterschiedliche chemische Zusammensetzung der Eluate bedingen. Letzteres wird durch die Ergebnisse der Batch-Experimente unteretzt.

Ausblick

Zur Skalierung der über die Wasserinhaltsstoffe ableitbaren Prozesse soll die beschriebene experimentell gewonnene Datenbasis zunächst durch Tracer-Experimente an Durchlaufsäulen ergänzt werden, um Informationen über hydraulische Parameter der Sedimente und die Transportprozesse zu erhalten. Das wird die Grundlage für erste hydraulische 1D-Modellierungen bilden. Parallel dazu werden mit dem Programm PHREEQC (PH-REDOX-EQUILI-BRIUM-C - CODE) die geochemischen Abläufe anhand der Eluatanalysen und der mineralogischen Charakterisierung der Sedimenttypen rechnerisch nachvollzogen. Basis hierfür bilden die Batch-Experimente.

Ein weiterer Schritt unserer Arbeiten wird sich mit dem Verhalten der Kippensedimente unter wassergesättigten und wasserungesättigten Verhältnissen beschäftigen. Dazu wird an den Lysimetern über ein externes hydraulisches Potential ein Grundwassereinstau simuliert.

Wie im ersten Abschnitt bereits angedeutet besteht bei der Korrelation der Ergebnisse aus Experimenten von unterschiedlichen Skalen meist ein Maßstabsproblem. Die gemessenen Parameter, ihre funktionalen Verknüpfungen und die für den jeweiligen Betrachtungsmaßstab angepaßten Modelle sind nur in Ausnahmefällen skaleninvariant. Für die Teilsysteme Hydraulik/Geochemie müssen deshalb systembeschreibende Zustands- und Prozeßparameter an unterschiedlichskaligen Experimenten bestimmt und deren Skalierungsverhalten untersucht werden. Auf dieser Grundlage soll ein maßstabsübergreifendes konsistentes Modell ausgewählter Prozesse in Kippen entstehen, welches als Entscheidungshilfe bei Fragen der Kultivierung und Nutzung von Kippenflächen dienen kann.

Literatur

- KABAT, P.; HUTJES, R. W. A.; FEDDES, R. A.: The scaling characteristics of soil parameters: From plot scale heterogeneity to subgrid parametrization. *Journal of Hydrology* Vol. 190, 1997, p. 363 – 396.
- KNAPPE, S.; HAFERKORN, U.; MATTUSCH, J.; WENNRICH, R.: Wasser- und Stoffflüsse in rekultivierten, langjährig landwirtschaftlich genutzten Kippenböden im Südraum Leipzig. Unveröffentlicht.
- LAZIK, D.; MORGENEYER, B.; RIEDEL, W.; KARGUT, R.; SANDER, M.; SCHNEIDER, T.; SEIFERT, E.: Modulares Vierkanalprobenahme- und Meßsystem zur automatischen Langzeitanalyse von Fluiden für hydrogeochemische Feld- und Laborversuche. Anmeldung: DPA München, 22. 12. 1997.
- LUCKNER, L., SCHESTAKOW, W.: Migrationsprozesse im Boden und Grundwasserbereich. 1. Auflage, Dt. Verl. F. Grundstoffind., Leipzig, 1986.
- NITSCHKE, C.: Verfügbare Neuentwicklungen zur Untergrunderkundung und Überwachung. 1. Dresdner Grundwasserforschungstage 1991, TU Dresden. 17 – 33.
- O'NEILL, P.: *Environmental Chemistry*. 2nd ed. Chapman & Hall, London, 1993
- SCHLEGEL, H. G.: *Allgemeine Mikrobiologie*. 7. Auflage, Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1992.

Beiträge zum Workshop

**Prozesse und Stoffströme in
Kippensedimenten – Tagebaue
Zwenkau, Cospuden und Espenhain**

am 3. und 4. Juni 1999

Walter Gläßer, Gerhard Strauch, Peter Schreck und Elke Bozau
Sektion Hydrogeologie