



Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH

Charakterisierung von mineralisierten Tiefengrundwässern in nichtsalinaren Festgesteinen

Untersuchung von
Wechselwirkungsreaktionen
mit Abfällen bei der
immissionsneutralen
Ablagerung

-Kurzfassung-



**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

**Charakterisierung
von mineralisierten
Tiefengrundwässern
in nichtsalinaren
Festgesteinen**

Untersuchung von
Wechselwirkungsreaktionen
mit Abfällen bei der
immissionsneutralen
Ablagerung

-Kurzfassung-

Uwe Mühlenweg, Thomas Brasser,
Uwe Hertel

Februar 1997

**GRS - 144
ISBN 3-931995-04-6**

Anmerkung:

Bei vorliegendem Bericht handelt es sich um die gekürzte Fassung des Abschlußberichtes zum Vorhaben „Charakterisierung von mineralisierten Tiefengrundwässern in nichtsalinaren Festgesteinen - Untersuchung von Wechselwirkungsreaktionen mit Abfällen bei der immissionsneutralen Ablagerung“, das mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) unter den Förderkennzeichen 02 C 0173 4 und 02 C 0435 5 gefördert wurde. Im Zeitraum bis Juni 1995 wurden die Arbeiten am Institut für Tief Lagerung der GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, GmbH in Braunschweig durchgeführt, ab Juli 1995 im neugegründeten Fachbereich Endlagersicherheitsforschung der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt allein bei den Autoren. Die Autoren danken Herrn Prof. Dr. Dr. M. Bahadir und Herrn Prof. Dr. D. Zachmann (TU Braunschweig) für ihre Unterstützung. Interessierte Leser können den vollständigen Bericht mit einem umfangreichen Tabellen- und Abbildungsanhang sowie einem ausführlichen Literaturverzeichnis bei den Autoren anfordern.

Rückseite Innentitel

Deskriptoren:

Abfall, Wechselwirkung, Ablagerung, Probe, Grundwasser, Versuch, Immission, Standort, Untersuchung, Bergbau, Gestein

Inhaltsverzeichnis

1	Zusammenfassung	1
2	Problembeschreibung und Zielsetzung	7
3	Grundwässer	9
3.1	Einleitung	9
3.2	Grundwässer in Festgesteinen	10
3.2.1	Grundwässer kristalliner Grundgebirge	10
3.2.2	Grundwässer in Sandsteinen	11
3.2.3	Grundwässer in Karbonatgesteinen	12
3.3	Tiefengrund-, Mineral-, Formations- und Grubenwässer	12
3.3.1	Tiefengrundwässer	12
3.3.2	Mineralwässer	13
3.3.3	Formationswässer	14
3.3.4	Grubenwässer	15
4	Grundwässer an ausgewählten Standorten	17
4.1	Einleitung	17
4.2	Grundwässer am Standort Gorleben	17
4.3	Grubenwässer der Schachtanlage Konrad	19
4.4	Grubenwässer im Ruhrgebiet	20
4.5	Tiefenwässer der Norddeutschen Senke und des Thüringer Beckens	21
4.6	Gruben- und Grundwässer des Erzgebirges	24
5	Untertägige Hohlräume als Folge bergbaulicher Tätigkeit	27
5.1	Einleitung	27
5.2	Eisenerzbergwerke	28
5.3	NE-Erzbergwerke	28
5.4	Gipsbergwerke	30
5.5	Kalkbergwerke	30
6	Beprobte Grundwässer	31
6.1	Auswahl der Standorte	31

6.2	Charakterisierung der Wässer	31
6.2.1	Grubenwässer am Standort Freiberg.....	33
6.2.2	Grubenwässer am Standort Ehrenfriedersdorf.....	34
6.2.3	Grubenwässer am Standort Straßberg	35
6.2.4	Grubenwasser am Standort Alexisbad.....	35
6.2.5	Grubenwasser am Standort Gernrode	36
6.2.6	Grubenwasser am Standort Elbingerode	36
6.2.7	Grubenwässer am Standort Ronneburg	37
6.2.8	Grubenwässer am Standort Königstein	37
6.2.9	Grundwasser am Standort Remlingen.....	38
6.2.10	Mineralwasser am Standort Dürrenberg	38
6.2.11	Mineralwässer am Standort Liebenstein	38
6.2.12	Grundwässer am Standort Bitterfeld-Wulfen.....	39
6.2.13	Grundwässer am Standort Bad Lauchstedt	39
6.2.14	Grundwässer am Standort Profen	39
7	Abfallproben	41
7.1	Auswahl der Abfallproben.....	41
7.2	Analytische Bearbeitung	43
7.3	Röntgendiffraktometrische Untersuchungen	44
8	Wechselwirkungsuntersuchungen.....	45
8.1	Einleitung.....	45
8.2	Untersuchungsmethoden.....	45
8.2.1	Schüttelversuch	45
8.2.2	Kaskadenversuch	46
8.2.3	Umlaufsäulenversuch	47
8.3	Ergebnisse der Untersuchungen.....	48
8.3.1	Schüttelversuche	49
8.3.2	Kaskadenversuche	53
8.3.3	Säulenversuche.....	56
8.4	Geochemische Modellrechnungen an ausgewählten Löseversuchseluaten...58	
8.5	Röntgendiffraktometrische Untersuchungen	59
8.6	Zusammenfassung	62
9	Literatur	65

1 Zusammenfassung

Im vorliegenden Bericht werden Grundwässer in Deutschland charakterisiert sowie nachfolgend spezifische Wechselwirkungsuntersuchungen zwischen ausgewählten Abfallproben und relevanten Wasserproben dargestellt.

Damit sollen der wissenschaftliche Kenntnisstand erweitert sowie Hinweise zur Eignung bzw. Nichteignung von Abfallarten für eine immissionsneutrale Ablagerung im Nichtsalinar abgeleitet werden.

Grundwässer

Die Beschaffenheit von Grundwässern wird weitgehend von der Menge und Zusammensetzung der versickernden Niederschlagswässer sowie von den im Untergrund ablaufenden geochemischen Prozessen beeinflusst.

Oberflächennahe Wässer sind zumeist junge, von Niederschlägen gespeiste Wässer mit geringem Salzgehalt. Die Wässer aus tieferen Formationen weisen eine z. T. hohe bis sehr hohe Salzkonzentration auf, wobei als Anion eindeutig Chlorid dominiert. Die Verweilzeit dieser Wässer ist länger und die Beweglichkeit nimmt aufgrund der zumeist geringeren Durchlässigkeit und des geringeren Porenvolumens generell ab. Mit zunehmender Tiefe gewinnen Vorgänge der Diagenese und der Metamorphose an Einfluß. Wässer in größerer Tiefe werden als Relikt-, Infiltrations- und Ablaugungslösung sowie überprägtes, in früherer Erdgeschichte entstandenes Wasser gedeutet.

Die Auswahl und Beprobung relevanter Wässer erfolgte im Vorhaben in erster Linie unter dem Gesichtspunkt, solche Wassertypen zu identifizieren und zu charakterisieren, die in untertägige Hohlräume in nichtsalinaren Festgesteinen zutreten und bei einer Beseitigung oder Verwertung von Abfällen zu Wechselwirkungsreaktionen mit dem Abfall und nachfolgend ggf. zum Transport gelöster Schadstoffe in das umgebende Gebirge sowie letztlich in die Biosphäre führen können.

Als Ergebnis repräsentiert nur ein geringer Teil der beprobten Grundwässer den Wassertyp „Calciumhydrogenkarbonatwasser“ (Ca-HCO₃), wie er als Trinkwasser für

den menschlichen Gebrauch in großen Mengen (überwiegend aus Brunnen) gefördert wird und deshalb ein besonderes Schutzgut darstellt. Quantitativ bedeutender sind jedoch die höher mineralisierten Sulfat- sowie Chlorid-Wässer mit den Kationen Natrium, Calcium und / oder Magnesium.

Auch Säuerlinge sowie eisenhaltige Wässer wurden beprobt. Die Sulfatgehalte der Wässer sind bei der Mehrzahl der beprobten Wässer auf die Oxidation und Zersetzung von Sulfiden (Standorte im Erz) und nicht auf die Auslaugung CaSO_4 -haltiger wasserführender Formationen zurückzuführen. Die Schwermetallgehalte der Wässer schwanken, wobei hohe Schwermetallgehalte insbesondere in Wässern vererzter Formationen ermittelt worden sind.

Die beprobten Grundwässer, Grubenwässer sowie Mineralwässer liegen mit ihren pH-Werten in einem Bereich von 2,9 - 7,8. Die Leitfähigkeiten variieren mit Werten von < 1 bis zu 60 mS cm^{-1} sehr stark. Hochmineralisierte Tiefgrundwässer können dabei noch deutlich höhere Leitfähigkeiten bis hin zur Na-, Ca-, Mg-, Cl- und / oder SO_4 -Sättigung aufweisen.

Abfallproben

Im vorliegenden Vorhaben wurden exemplarisch Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüll (HMV)- und Sonderabfallverbrennungsanlagen (SAV) sowie ein Eisensulfatabfall untersucht und für spezifische Wechselwirkungsuntersuchungen mit UTD/UTV-relevanten Grundwassertypen eingesetzt.

Die Auswahl erfolgte dabei nach den Kriterien der anfallenden Abfallmenge bzw. zu erwartenden Mengenentwicklung, dem Entsorgungshinweis in der TA Abfall sowie den untertägigen Verwertungsmöglichkeiten dieser Abfälle.

Die untersuchten Abfallproben weisen neben z. T. hohen Gehalten an leicht löslichen Sulfiden und Chloriden toxische Schwermetalle, wie z. B. Zink, Cadmium, Blei und Kupfer auf.

Wechselwirkungsuntersuchungen - Zusammensetzung der Eluate

Die im Vorhaben untersuchten Wechselwirkungsreaktionen zwischen ausgewählten Abfällen und Grundwässern erfolgten als Löseversuche in Form von Schüttel-, Umlaufsäulen- und Kaskadenversuchen.

Als Ergebnis weisen alle untersuchten Abfallproben im Löseversuch einen hohen löslichen Anteil auf. Die in den Löseversuchs-Eluaten gelösten Bestandteile der jeweils eingesetzten Abfallproben sind im Vergleich mit dem in den Grundwässern bereits geogen vorhandenen Bestandteilen um ein vielfaches größer und überprägen dabei den ursprünglichen Chemismus der Grundwässer so entscheidend, daß beispielsweise alle Eluate einer Abfallprobe einen relativ einheitlichen Chemismus aufweisen und ein Einfluß der in den Versuchen eingesetzten (unterschiedlichen) Grundwassertypen nicht mehr festgestellt werden kann (Abbildung 1 u. Abbildung 12).

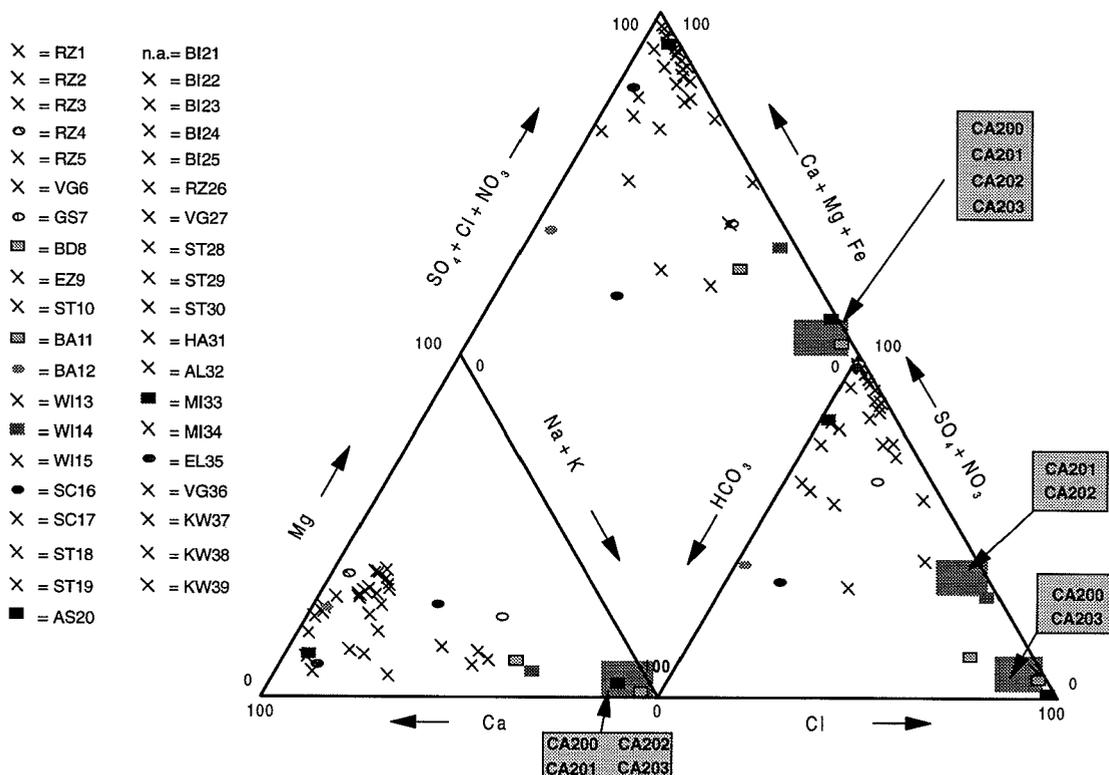


Abbildung 1: Darstellung von 38 Grundwasserproben sowie der Eluate der Löseversuche im Piper-Diagramm

Die resultierenden Eluate unterscheiden sich von den eingesetzten Grundwässern sowohl im Grad der Gesamtmineralisation als auch in der Zusammensetzung der Lösungsbestandteile. Die löslichen Bestandteile der jeweiligen Abfallproben sind insbesondere amorphe wie kristalline Phasen der Elemente Na, Ca und K, Mg sowie Cl und S bzw. SO_4 . Daneben sind Fe, Mn sowie die Schwermetalle Zn, Cd, Pb, Cu, Sn, Hg, Co, Cr und Ni mit z. T. hohen Konzentrationen in den Eluaten vertreten.

Die Konzentration an gelöstem CaSO_4 wird in einigen Eluaten durch eine vorhandene CaSO_4 -Sättigung begrenzt; beim Fe, Mn, As und den Schwermetallen wird deren Konzentration im Eluat darüber hinaus auch durch das Säure-Base-Verhältnis und Vorgänge wie Ionenaustausch, Sorption, Komplexbildung und Mitfällung bestimmt.

Ein Vergleich von Löseversuchs-Eluaten der selben Abfallprobe bei unterschiedlicher Versuchsdurchführung (Schüttel-, Kaskaden- bzw. Umlaufsäulenversuch) zeigt Konzentrationsunterschiede der Lösungsbestandteile, die in erster Linie auf das unterschiedliche Volumen- / Masseverhältnis sowie die unterschiedliche Versuchzeit (ein Tag bzw. 140 Tage) zurückzuführen sind. Langsam ablaufende Wechselwirkungsreaktionen sind auch nach einer Kontaktzeit (Abfall / Grundwasser) von 24 Stunden weiterhin wirksam, wobei insbesondere Fällungsreaktionen in den untersuchten Systemen über mehrere Tage hinweg quantitativ ablaufen, so daß eine Gleichgewichtseinstellung nach 24 Stunden in den meisten untersuchten Systemen noch nicht erreicht ist. Bestätigt wird dies auch durch exemplarisch durchgeführte Modellrechnungen (s. Kap. 8.4).

Im Kaskadenversuch gibt der Konzentrationsverlauf der Lösungsinhalte in den einzelnen Kaskadenschritten einen direkten Hinweis auf die unterschiedliche Löslichkeit der Abfallinhaltsstoffe. Abfallinhaltsstoffe mit hoher Löslichkeit zeigen dabei einen steilen Konzentrationsabfall, der mit geringerer Löslichkeit entsprechend flacher verläuft. Darüber hinaus kann anhand der Bilanzierung der gelösten wie ungelösten Bestandteile auf den Grad der Lösungsbeständigkeit vorhandener Mineralphasen geschlossen werden.

In Schüttelversuchen laufen Wechselwirkungsreaktionen nicht in gleicher Weise wie in Säulenversuchen ab. Während im Schüttelversuch Fluid und Festkörper mehr oder weniger in Suspension gehalten werden, perkoliert im Säulenversuch das Fluid durch den Festkörper. Sorptions- wie Fällungsvorgänge können je nach Wahl der

Versuchsbedingungen unterschiedlich ablaufen und insbesondere bei Elementen geringer Konzentration zu einer unterschiedlichen Lösungskonzentration in den Eluaten führen. Insgesamt können mit Säulenversuchen (Kontaktzeit Grundwasser / Abfall: mehrere Monate) die tatsächlichen Verhältnisse, wie sie in einer UTD beim Kontakt von Grundwasser und Abfall ablaufen, deutlich besser beschrieben werden als mit Schüttelversuchen (Kontaktzeit: 24 Stunden).

Bewertung der Ergebnisse in Bezug auf eine immissionsneutrale Ablagerung und Ausblick

Die im Vorhaben beispielhaft untersuchten Abfallarten erfüllen in ihrer vorliegenden Beschaffenheit die Anforderungen an eine immissionsneutrale Ablagerung - allein aufgrund der hohen Wasserlöslichkeit - in aller Regel nicht, wobei aber eine definitive Bewertung nur unter Berücksichtigung standortspezifischer Gegebenheiten erfolgen kann.

Eine Gegenüberstellung von in Löseversuchen erzielten Elementkonzentrationen und den Orientierungswerten für eingeschränkten Versatz mit immissionsneutraler Einlagerung /SCH 96/ zeigt, daß diese Orientierungswerte in den Eluaten der Schüttelversuche z. B. bei Blei, Cadmium und Zink (z. T. deutlich) überschritten werden, im Eluat der Säulenversuche bei einigen Abfallproben jedoch eingehalten werden können (Tabelle 1).

Bei der Bewertung von Abfällen hinsichtlich ihrer Eignung für eine immissionsneutrale Ablagerung müssen deshalb Wechselwirkungsuntersuchungen durchgeführt werden, die sowohl den konkreten Standort berücksichtigen als auch die Reaktionen beschreiben, die über einen längeren Zeitabschnitt in einer UTD wirksam werden können; von Bedeutung sind insbesondere die für eine Ablagerung vorgesehenen Abfälle, die zu erwartende Menge und Beschaffenheit der Grundwässer sowie ggf. weitere geochemische Randbedingungen (u. a. Redoxverhältnisse, Gasphase, Wirtsgestein und evtl. auch Beschaffenheit der Deckgebirgsschichten).

Darüber hinaus können jedoch im Rahmen der Sicherheitsbeurteilung eines für die untertägige Entsorgung (hierunter wird sowohl die Beseitigung als auch die Verwertung von Abfällen verstanden) vorgesehenen Standortes neben dem Wirtsgestein auch die angrenzenden geologischen Formationen sowie technische

Barrieren zur Erreichung des Schutzzieles mit herangezogen werden (vergleichbar dem Konzept zur Endlagerung radioaktiver Abfälle /RÖT 91/).

Tabelle 1: Vergleich von Parametern unterschiedlicher Löseversuchs-Eluate mit den Orientierungswerten für eingeschränkten Versatz mit immissionsneutraler Einlagerung

Parameter 1)	OW	Schüttelversuchs- (L) bzw. Säulenversuchs (S)-Eluate							
		CA 200		CA 201		CA 202		CA 203	
		L	S	L	S	L	S	L	S
pH-Wert	5,5-13	o	o	x	x	x	o	o	o
Leitfähigkeit in mS/cm ²)	50	o	o	x	x	o	o	o	o
Wasserlöslicher Anteil Masse %	6	x ³⁾	x	xx	xx	xx	xx	x	x
Arsen	0,5	o	o	o	o	o	o	o	o
Blei	1	xx	x	x	x	x ⁴⁾	o	x	o
Cadmium	0,1	o	o	xx	x	xx	xx	o	o
Kupfer	5	o	o	x	x	xx	xx	o	o
Nickel	1	o	o	o	o	x	xx	o	o
Quecksilber	0,02	o	o	o	o	o	o	o	o
Zink	5	x	o	xx	xx	xx	xx	o	o

OW Orientierungswert (in mg l⁻¹) für eingeschränkten Versatz mit immissionsneutraler Einlagerung /SCH 96/)

o Orientierungswert wird eingehalten

x Orientierungswert wird überschritten

xx Orientierungswert wird deutlich überschritten

1) Parameter nicht vollständig aufgeführt, für die Ionen u.a. Na⁺, Ca²⁺, Cl⁻ und SO₄²⁻ liegen keine OW vor, sie werden unter dem Summenparameter „Wasserlöslicher Anteil“ subsumiert und bewertet.

2) Die Leitfähigkeit der Eluate BD 8 überschreitet in allen Proben die Orientierungswerte

3) Wasserlöslicher Anteil der Probe BD 8 beträgt 5,5%

4) Der OW wird von einigen Proben eingehalten, dagegen von der Probe BD 8 mit 101 mg l⁻¹ deutlich überschritten

Neben sonstigen technischen Barrieren mit unterschiedlich abdichtender Wirkung (wie z. B. Dämme, Streckenverschlüsse und Bauwerke) können dabei auch die Abfälle selbst eine Zurückhaltung vorhandener Schadstoffe aufgrund ihrer geochemischen und geomechanischen Eigenschaften bewirken. Auch die Möglichkeit der untertägigen Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschusses wird von einigen Autoren /WIL 91/, /STR 97/ in kleinräumig und lokal abgrenzbaren Bereichen des Bergwerkes als realisierbar angesehen.

2 Problembeschreibung und Zielsetzung

Spätestens mit dem Inkrafttreten der Zweiten Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz (TA Abfall) wird die Untertagedeponie (UTD) in Deutschland von staatlicher Seite als wichtiger Teil eines Gesamtkonzeptes zur Entsorgung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle angesehen. Auch in den Abfallentsorgungsplänen einzelner Bundesländer sind die Notwendigkeit und der Bedarf an untertägiger Ablagerungskapazität bereits festgeschrieben.

Neben der abfallrechtlich geregelten Ablagerung von Abfällen in UTD kommt unter bestimmten Voraussetzungen auch deren stoffliche Verwertung in Betracht, was bereits in der Vergangenheit dazu geführt hat, daß auch solche Abfälle als Versatz Verwendung gefunden haben, die in der TA Abfall bzw. der Abfallbestimmungsverordnung unter dem Begriff „besonders überwachungsbedürftig“ ausgewiesen sind.

Untertägige Hohlräume als Folge bergmännischen Abbaus von Kali- und Steinsalz, Kohle, Erz, Gips- und Kalkgesteinen sind in Deutschland sowohl oberflächennah als auch bis in Tiefen von mehr als 1000 Metern entstanden. An einigen solcher Standorte ist in der Vergangenheit ein Teil der Hohlräume bereits während der Betriebsphase mit bergwerkseigenen und ggf. auch bergwerksfremden Materialien verfüllt worden. Im Zuge der Verwahrung werden zum gegenwärtigen Zeitpunkt die meisten der noch vorhandenen Hohlräume entsprechend den bergbehördlichen Auflagen verfüllt oder aber geflutet. Dabei wird die untertägige Beseitigung bzw. Verwertung von Abfällen an einigen Standorten bereits praktiziert und ist an weiteren geplant.

Bei einer Ablagerung bzw. Verwertung von Abfällen in untertägigen Hohlräumen darf nach Wasserhaushaltsgesetz grundsätzlich keine Veränderung oder Verunreinigung des im Wirtsgestein anstehenden Grundwassers gegenüber seiner geogenen Beschaffenheit erfolgen. Da aber alle nichtsalinaren Formationen (Salinargesteine werden in diesem Vorhaben nicht behandelt) grundsätzlich wasserführend sind, müssen in Anlehnung an die TA Abfall insbesondere auch die jeweiligen geochemisch-hydrogeologischen Gegebenheiten im Rahmen der standortbezogenen Sicherheitsbeurteilung betrachtet werden.

Im vorliegenden Bericht werden deshalb auf der Grundlage einer Literaturrecherche zunächst Grundwässer in Deutschland charakterisiert sowie nachfolgend spezifische

Wechselwirkungsuntersuchungen zwischen ausgewählten Abfallproben und relevanten Grundwassertypen dargestellt.

Mit Hilfe dieser Vorgehensweise sollen einerseits der wissenschaftliche Kenntnisstand erweitert sowie andererseits Hinweise zur Eignung bzw. Nichteignung von Abfallarten für eine immissionsneutrale Ablagerung im Nichtsalinar abgeleitet werden.

3 Grundwässer

3.1 Einleitung

Die Beschaffenheit des Grundwassers hängt i. w. von der Menge und Zusammensetzung der Niederschlagswässer und von den im Untergrund ablaufenden geochemischen Prozessen ab.

Auf seinem Weg durch den geologischen Untergrund wird das Grundwasser durch Änderungen im Gehalt an gelösten Bestandteilen modifiziert. Das Ausmaß der Veränderung ist dabei u. a. abhängig von der durchfließenden Wassermenge, der Verweilzeit, der lithologischen Beschaffenheit der Gesteine, der Temperatur, sowie den Lösungseigenschaften des Grundwassers selbst. Die Wechselwirkungen zwischen Gestein und Wasser werden u. a. durch Vorgänge wie Hydrolyse, Auflösung, Ausfällung, Sorption, Ionenaustausch und Redoxprozesse bestimmt. Auch biologische Vorgänge, z. B. durch mikrobiellen Stoffumsatz, werden bis in größere Tiefen beschrieben.

Mit zunehmender Tiefe gewinnen auch Vorgänge wie Diagenese und Metamorphose an Bedeutung. Die Genese sowie der Charakter von Wässern in größerer Tiefe lassen sich oftmals auf eine Überprägung von in früherer Erdgeschichte entstandenem Wasser zurückführen.

Nach der Gesamtkonzentration an gelösten Bestandteilen lassen sich Grundwässer generell einteilen in:

Grundwasser	Konzentration
Süßwasser	< 1.000 mg l ⁻¹
Brackwasser	1.000 - 10.000 mg l ⁻¹
Salzwasser	10.000 - 100.000 mg l ⁻¹
Sole	> 100.000 mg l ⁻¹

Die Darstellung von Grundwasser-Eigenschaften erfolgt in der Literatur /MAT 90/ bevorzugt auf Grundlage der analytisch ermittelten Inhaltsstoffe, also der gelösten Haupt- und Nebenbestandteile (Anionen, Kationen, nicht ionisierte Teile, gelöste Gase) und ggf. ungelösten Bestandteile (suspendierte Substanzen) sowie der Temperatur,

der Leitfähigkeit und des pH-Wertes; darüber hinaus werden ggf. auch Daten zur Dichte, zum Redoxpotential sowie zur Konzentration bestimmter Isotope (insb. für die Altersbestimmung) herangezogen.

Zur leichteren (und z. T. normierten) Auswertung wird oftmals eine graphische Auftragung von Analysedaten in Diagrammen vorgenommen. Eine Typisierung anhand der prozentualen Verteilung der Kationen und Anionen mit bis zu sechs Angaben der Hauptionen (Na, Ca, Mg, Cl, SO₄ und HCO₃) der Lösung findet dabei bevorzugt Anwendung. Die Art der Typisierung ist einfach und anschaulich, Besonderheiten der Wässer werden dabei allerdings nicht miteerfaßt.

Möglich ist auch die Typisierung anhand des pH-Wertes (saure, neutrale und alkalische Wässer), sowie des Eh-Wertes (Normal- bzw. Reduktionstyp). Besonderheiten, wie z. B. die relativ hohe Konzentration einzelner Wasserinhaltsstoffe (u. a. Kohlensäure, Schwefel, Eisen, Jod, Arsen, Radon), dienen ebenfalls direkt einer Typisierung oder werden gesondert angegeben. Zahlreiche Fachautoren bevorzugen bei der Darstellung und Typisierung von Grundwässern den direkten Bezug zum dazugehörigen Aquifersystem (z. B. Buntsandsteinwasser, Keuperwasser). Eine Gliederung erfolgt teilweise auch nach Tiefenlage des Grundwasservorkommens sowie nach der Art der Nutzung der Grundwässer.

Nachfolgend werden die Grundwasserbeschaffenheit der in Deutschland vorkommenden Festgesteinsaquifere beschrieben sowie die in diesem Zusammenhang gebräuchlichen Termini „Tiefengrundwasser“, „Formationswasser“ und „Grubenwasser“ erläutert.

3.2 Grundwässer in Festgesteinen

3.2.1 Grundwässer kristalliner Grundgebirge

Die Beschaffenheit der Grundwässer im kristallinen Grundgebirge (Metamorphite sowie Magmatite) ist naturgemäß bei ähnlicher chemischer Beschaffenheit der Gesteine vergleichbar und als Folge der langsamen Silikatverwitterung im allgemeinen durch nur geringe Gehalte an festen gelösten Bestandteilen gekennzeichnet.

Charakteristisch sind jedoch im Vergleich zu Grundwässern anderer Formationen erhöhte SiO_2 -Gehalte. Merkliche Eisengehalte treten dann auf, wenn reduzierende Verhältnisse vorliegen. Hohe Sulfatgehalte stammen zumeist aus der Oxidation von Sulfiden, insbesondere von Pyrit. Der geringe Chlorgehalt ist durch den geringen Cl-Gehalt der Ausgangsgesteine verursacht. Werden Cl-Wässer angetroffen, so sind sie meist allochthon, also in einer anderen geologischen Formation entstanden.

Die Wässer sind allgemein sehr weich bis weich (sehr geringe Erdalkali- sowie Hydrogencarbonat-Gehalte) und aufgrund eines oftmals instabilen Kalk-Kohlensäure-Gleichgewichts aggressiv (Säuerlinge). In Bereichen von Erzlagerstätten bzw. Schwefel- oder Arsenkieslagerstätten ist der „normale“ Grundwasserchemismus u. a. durch erhöhte Schwermetallgehalte überprägt. Die Filterwirkung des Gebirges ist insgesamt gering; an Verwitterungsprodukten (Schluffe und Tone) wird jedoch bevorzugt Kalium fixiert.

3.2.2 Grundwässer in Sandsteinen

Der Lösungsinhalt der Grundwässer in Sandsteinformationen hängt in erster Linie von deren Stoffbestand, insbesondere aber auch vom vorhandenen Bindemittel ab. Die Grundwässer aus Sandsteinschichten des Oberrotliegenden und des Mesozoikums weisen beispielsweise eine sehr unterschiedliche Mineralisation auf. Sandsteine ohne leicht lösliches Bindemittel führen Grundwässer mit niedrigen Gehalten an festen Bestandteilen, wobei der CO_2 -Gehalt bei Basenarmut des Gesteins die Wässer leicht sauer einstellt. Bei Grundwässern in Sandsteinen mit löslichem Bindemittel treten dagegen beträchtliche Gehalte an SO_4 , Cl, Na, Mg und Ca auf.

In den Randgebieten der Sandsteinverbreitung sind aktive Wasseraustauschverhältnisse nachgewiesen worden, in becken tieferen Teilen herrschen dagegen erschwerte bis stagnierende Verhältnisse /MÜL 75/ vor. Allgemein nimmt zur Tiefe hin die Mineralisation der Wässer zu. So weisen z. B. die Tiefengrundwässer des Rotliegenden in Norddeutschland (vom Typ Na-Ca-Mg-Cl sowie Ca-Na-Mg-Cl) eine Salzkonzentration von bis zu 360 g l^{-1} auf.

3.2.3 Grundwässer in Karbonatgesteinen

Da Karbonate kaum eine primäre Porosität aufweisen, ist der Kontakt Wasser - Gestein im wesentlichen auf die Flächen der Trennfugen begrenzt. Der Gehalt an gelösten Bestandteilen ist daher verhältnismäßig gering. Die Wässer dichter Kalksteine sind Hydrogenkarbonatwässer mit geringen Anteilen an SO_4 - und Cl-Ionen. Bei feinkörnigen Kalksteinen erhöht sich der Anteil der leichtlöslichen Ionen (SO_4 und Cl) aufgrund der größeren vorhandenen Kontaktflächen.

Die Grundwässer in Dolomitgesteinen unterliegen ähnlichen Diagenesebedingungen wie die der Kalkgesteine. Das Äquivalentverhältnis Mg/Ca ist aufgrund der geringeren Löslichkeit des Magnesiums im Grundwasser kleiner als im Gestein.

Die Grundwässer der z. T. oberflächennahen Karbonatgesteine des Jura und der Kreide unterscheiden sich erheblich von denen aus tieferen Formationen (Plattendolomit und Zechsteinkarbonat). Allgemein nimmt auch hier die Mineralisation zur Tiefe hin zu, die Wässer zeichnen sich dann u. a. durch einen hohen Chlorid- und Sulfatanteil aus. So werden beispielsweise im Plattendolomit Mg-reiche, sehr hoch konzentrierte Salzlösungen vom Typ Mg-Ca-Na-Cl und Mg-Na-Ca-Cl mit Konzentrationen von bis zu 600 g l^{-1} angetroffen, allerdings mit äußerst geringer Ergiebigkeit. Die Schichtwässer im Staßfurtkarbonat haben im Chemismus eine größere Variationsbreite, mit Konzentrationen von $1 - 360 \text{ g l}^{-1}$. Es handelt sich dabei um salinare Reliktlösungen sowie infiltrativ beeinflusste Wässer.

3.3 Tiefengrund-, Mineral-, Formations- und Grubenwässer

3.3.1 Tiefengrundwässer

Für den Begriff "Tiefengrundwasser" gibt es in der Literatur keine eindeutige Definition /UDL 77/. Einige Autoren lassen Tiefengrundwasser (in der Tiefe) dort beginnen, wo das Grundwasser chemisch einen bestimmten, weltweit anzutreffenden Charakter annimmt. Andere sehen Tiefengrundwasser dort anstehen, wo nur eine sehr eingeschränkte Grundwasserbewegung vorhanden ist. In neueren Arbeiten wird die Abgrenzung zwischen oberflächennahem Wasser bzw. Tiefengrundwasser auch anhand des Alters der Wässer vorgenommen. Die Altersbestimmung erfolgt dabei

durch Messung der Konzentration bestimmter Isotope bzw. Isotopenkombinationen (u. a. Isotope des Wasserstoffs, des Sauerstoffs und des Kohlenstoffs).

Die nachfolgend dargestellten bzw. charakterisierten Tiefengrundwässer sollen allerdings keinen Beitrag zur oben angesprochenen Problematik darstellen. Der Begriff Tiefengrundwasser wurde im Titel des vorliegenden Vorhabens gewählt, weil davon auszugehen ist, daß die in Bergwerken bzw. potentiellen Untertagedeponien anzutreffenden Wässer - bedingt durch ein mehr oder weniger mächtiges Deckgebirge - in erster Linie tieferen Grundwasserhorizonten zuzuordnen sind. Bei einer standortunabhängigen Betrachtung der Langzeitsicherheit einer UTD sind deswegen relevante Gruben- und Formationswässer sowie allgemein Wässer aus tieferen Formationen zu berücksichtigen, wozu auch sog. Mineralwässer gehören.

3.3.2 Mineralwässer

Mineral- bzw. Heilwässer sind in der Bundesrepublik Deutschland flächendeckend gut untersucht. Sie sind in Bohrungen erschlossen, treten frei zutage oder aus Stollen aus. Die Mineralisation (Gehalt $> 1 \text{ g kg}^{-1}$ Wasser) erfolgt durch Auflösung der löslichen Gesteinsbestandteile im Untergrund. In Deutschland treten Mineralwässer insbesondere in Gebieten des Zechsteins, des Muschelkalks und des Keupers auf, ebenso im Bereich von Erzlagerstätten, Ganggesteinen oder tertiären Vulkaniten. Die Verbreitung zeigt, daß sie in allen Gesteinsarten auftreten können, sowohl in Fest- als auch in Lockergesteinen.

Die meisten in Deutschland vorkommenden und genutzten Mineralwassertypen gehören zur Gruppe der salinaren Wässer. Hierzu zählen die echt- oder vollsalinaren Wässer (Na-Cl-Wässer), sowie die mindersalinaren Sulfat-Wässer (Ca-SO₄-Wässer). Ebenfalls zu dieser Gruppe werden die Calcium-Chlorid-, Natrium-Sulfat- und Magnesium-Sulfat-Wässer gerechnet.

Der Untergrund der weit ausgedehnten Norddeutschen Senke ist von stark- bis hochkonzentrierten Salzwässern erfüllt. Die Genese der Wässer wird vorwiegend im Zusammenhang mit den Ablagerungen des Perm (Rotliegend und Zechstein) gesehen. In Mittel- und Süddeutschland enthalten insbesondere die Gebiete des Buntsandsteins sowie des Keuper-Sandsteins Natrium-Sulfat- aber auch Natrium-Chlorid-

Mineralwässer. In tieferen Bohrungen im Oberrheintalgraben werden Salzwässer angetroffen, auch in der alpinen Vortiefe sind Salzwässer nicht selten.

Die aus der Tiefe stammenden salzigen Wässer werden genetisch in zwei Gruppen eingeteilt: in durch Subrosion von Salzstöcken, Salzmergeln und Gipskörpern entstandene, sowie aus fossilen Lösungen oder Porensalzen stammende, meist streng formationsgebundene Wässer (Formationswässer). Die Wässer können diagenetisch verändert, ebenso aus ihren Bildungsräumen ausgewandert sein (allochthone Wässer).

Mineralwässer unterscheiden sich von den in Bergwerken (Grubenwässern) oder Bohrungen zulaufenden Wässern oftmals nicht im Gesamtchemismus, sondern ausschließlich in der Art der nachfolgenden Nutzung. Viele Mineralwässer stellen Mischwässer mit Einflüssen aus mehreren Formationen dar. Ihre Herkunft kann deswegen, wenn auch ein grundsätzlicher Zusammenhang mit den Gesteinen im Untergrund meist herzustellen ist, nicht in jedem Fall eindeutig geklärt werden.

Im Zusammenhang mit der Charakterisierung mineralisierter Tiefengrundwässer im vorliegenden Vorhaben kann auf ein umfangreiches Datenmaterial über Mineralwässer zurückgegriffen werden. Bei den Untersuchungen zu Wechselwirkungsreaktionen zwischen Grundwässern und Abfällen bzw. Reststoffen bei deren untertägiger Ablagerung (s. u.) können diese unter bestimmten Voraussetzungen deshalb auch mit Mineralwasserproben durchgeführt werden.

3.3.3 Formationswässer

Als Formationswässer werden Wässer bezeichnet, die - an eine definierte geologische Formation gebunden - überwiegend stagnierend sind und in einem nur sehr geringen Austausch mit Wässern anderer Formationen stehen. Derartige Wässer befinden sich weitgehend im chemischen Gleichgewicht mit dem umgebenden Gestein. Die z. T. sehr hohe Salinität der Formationswässer hat ihre Ursache in der Auflösung von Porensalzen bzw. dem Vorhandensein salzhaltiger fossiler Lösungen.

In der Literatur sind Grundwasserdaten zu Formationswässern in unterschiedlicher Qualität zu einzelnen Standorten bzw. Regionen dokumentiert. Der wechselnde Chemismus der Wässer in unterschiedlichen Formationen, aber auch in ein und

derselben Formation läßt sich sowohl auf die im Untergrund oft sehr differenziert ausgebildete Gesteinsfazies als auch auf den mehr oder weniger großen Einfluß von Niederschlagswasser bzw. hochmineralisiertem Wasser benachbarter oder auch tieferer Bereiche zurückführen.

Verallgemeinerte Angaben zum Chemismus von Formationswässern einzelner Formationen, wie z. B. Rotliegendes, Staßfurtkarbonat, Buntsandstein, Plattendolomit oder Keuper sind im direkten Datenvergleich schwierig zu bewerten. Hilfreich und in der Hydrogeologie allgemein üblich ist deshalb die graphische Darstellung von Analysedaten. Die Auftragung einer Vielzahl von Ergebnissen ermöglicht dann den direkten Vergleich einzelner Daten untereinander, das Zusammenfassen von Grundwasser-typen sowie gegebenenfalls auch allgemeine Aussagen zu Grundwässern aus geologisch vergleichbaren Formationen.

3.3.4 Grubenwässer

Grubenwässer sind Grundwässer, die einem Grubengebäude aus dem Nebengestein zufließen. Wässer mit geringer Mineralisation sind dabei in der Regel vom Niederschlagswasser bestimmte Wässer. Sie erreichen, von der Erdoberfläche kommend, mit unterschiedlicher Verweilzeit über Porenräume, Fugen, Klüfte oder Störungen das Grubengebäude. Hoch bis sehr hoch mineralisierte Wässer gelangen dagegen aufgrund eines vorhandenen hydraulischen Gefälles aus benachbarten, höher oder auch tiefer gelegenen Horizonten in das Grubengebäude, wobei die genaue Herkunft dieser Wässer z. T. kontrovers diskutiert wird.

Neben der allgemeinen Erfahrung, daß in bergbaulich erstellte Hohlräume sowohl schwach- als auch hochmineralisierte Wässer zufließen können, haben Grubenwässer an verschiedenen Standorten entsprechend der Geologie des umliegenden Gebirges einen standortspezifischen Charakter. Die Grubenwässer in der Ruhrkohle, im Uran-, Erz- oder Granitbergbau sind aufgrund der erdgeschichtlich differenzierten Entstehungsgeschichte des gesamten geologischen Umfeldes auch in der Zusammensetzung der Mineralisation qualitativ und quantitativ unterschiedlich. Die Deutung der Genese der Wässer erfolgt nur untergeordnet mittels der Hauptbestandteile, sondern vielmehr anhand der Konzentration (bzw. von

Konzentrationsverhältnissen) bestimmter Elemente, wie z. B. Lithium, Brom, Strontium, Barium, Bor und Jod.

4 Grundwässer an ausgewählten Standorten

4.1 Einleitung

Für die Belange des in diesem Bericht behandelten Vorhabens sind insbesondere Grundwasserdaten aus der Erkundung der hydrogeologischen Verhältnisse im Umfeld von Tagebauen und Bergwerken von Bedeutung. Derartige Erkundungen erfolgten jedoch in erster Linie unter dem Gesichtspunkt des Nachweises der Betriebssicherheit der Gruben sowie der ordnungsgemäßen Abgabe der in den Abbauen anfallenden Wässer in die Vorfluter. Von besonderem Interesse sind deshalb die Ergebnisse hydrogeologischer Standortuntersuchungen im Zusammenhang mit der Planung und ggf. dem Bau von Untertagedeponien und Endlagern (z. B. Gorleben und Konrad).

Von den nachfolgend ebenfalls aufgeführten Standorten Ruhrgebiet und Erzgebirge liegt - z. T. aus größerer Tiefe - eine Vielzahl hydrogeologischer Daten im Zusammenhang mit der Erkundung und dem Abbau der dort vorhandenen Kohle- bzw. Erzlagerstätten vor. Darüber hinaus werden auch Tiefengrundwässer der Norddeutschen Senke und des Thüringer Beckens dargestellt.

4.2 Grundwässer am Standort Gorleben

Der Gorlebener Salzstock ist eine von zahlreichen Salzstrukturen (Salzkissen, Salzstöcke) des norddeutschen Flachlandes. Er besteht aus mächtigen Salzfolgen des Zechstein, die im Verlauf der Halokinese gehoben und intensiv verfaltet wurden, mit Randsenken im Nordosten und Südwesten. Die Abdeckung des Salzstockes besteht aus Sedimenten des Tertiär und Quartär.

Die Grundwässer über dem Salzstock von Gorleben und dessen Umgebung sind im Zusammenhang mit der Erkundung des Standortes im Hinblick auf dessen Eignung als Endlager für radioaktive Abfälle intensiv untersucht worden. Demnach bestehen die Schichtenfolgen über dem Salzstock und dessen Umgebung aus bis zu 280 m mächtigen sedimentären Grundwasserleitern mit unregelmäßig, vertikal und horizontal nicht überall zusammenhängend eingeschalteten Grundwassernichtleitern bzw. Grundwasserhemmern des Quartär und des Tertiär.

Sowohl die Gesamtversalzung als auch die räumliche Verteilung der Grundwassertypen zeigen generell eine deutliche Tiefenabhängigkeit. Im Bereich bis 50 m werden fast ausschließlich Süßwässer (Mineralisation < 1 g l⁻¹) angetroffen, vorherrschend als Ca-SO₄-Wässer. Diese werden mit zunehmender Tiefe von Ca-HCO₃-Wässern (bis 160 m Tiefe) abgelöst. Grundwässer vom Typ Na-HCO₃ haben ihre größte Verbreitung in Tiefen von 80 bis 140 m. In Tiefen von > 120 m dominieren Salzwässer (> 10 g l⁻¹) vom Typ Na-Cl (Abbildung 2).

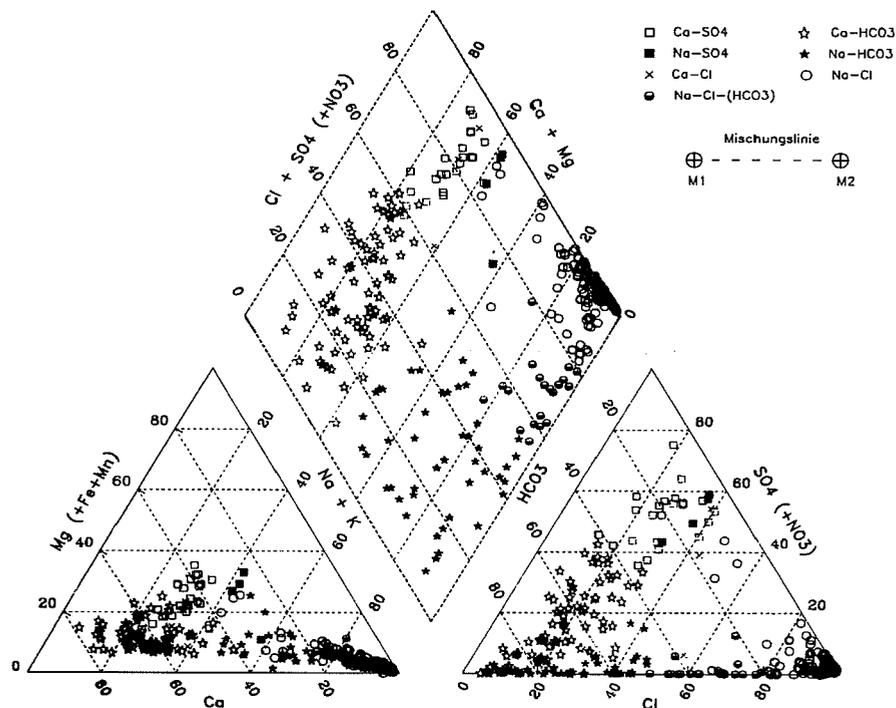


Abbildung 2: Grundwässer aus dem Deckgebirge des Salzstocks Gorleben im Piper-Diagramm /BUN 90/

Die Ca-SO₄- und Ca-HCO₃-Wässer werden vorwiegend in quartären Aquiferen angetroffen und zeigen einen deutlichen Einfluß der Wechselwirkungen mit entkalktem, aber auch karbonathaltigem Aquifermaterial.

Die Grundwässer lassen sich folgenden Wassertypen zuordnen /BUN 90/:

- Ca - SO₄- Typ
- Ca - HCO₃ - Typ
- Na-HCO₃ - Typ
- Na - Cl - Typ

Die Genese der sowohl in den tertiären wie quartären Aquiferen auftretenden Na-HCO₃-Wässer ist vor allem auf Ionenaustauschprozesse zurückzuführen. Der Chemismus der Na-Cl-Wässer wird als Mischwasser aus hochkonzentrierter Na-Cl-Lauge und schwachmineralisiertem Ca-HCO₃-Wasser gedeutet. Die Mischwässer mit relativ niedrigen Cl-Gehalten sind aufgrund der Zunahme der Natrium- und der Abnahme der Erdalkalikonzentrationen durch Ionenaustausch-Reaktionen deutlich alkalisier (Na-HCO₃-Wasser) und infolge intensiver Sulfatreduktion stark an Sulfat abgereichert. Bei höheren Cl-Gehalten sind die Wässer vor allem durch Calcium und Strontium erdalkalisiert.

4.3 Grubenwässer der Schachanlage Konrad

In der Schachanlage Konrad sind bis 1976 marin sedimentäre Eisenerze des Oberjura (Malm) abgebaut worden. Über dem Grubengebäude stehen Ton-, Mergeltonsteine sowie Sand- und Kalksteine der Kreide an. Abgedeckt werden die Gesteinsformationen durch Sedimente des Quartär und Tertiär. Das Grubengebäude steht offen; derzeit läuft ein Planfeststellungsverfahren zur Endlagerung radioaktiver Abfälle.

Die Schachanlage Konrad ist insgesamt eine relativ trockene Grube, wobei sich die Wasserzuläufe in allen Pumpensümpfen an unterschiedlichen Stellen der Grube auf insgesamt ca. 5 l min⁻¹ belaufen /GES 82/. Der Chemismus der Wässer ist relativ einheitlich vom Typ Na-Ca-Mg-Cl und in den Ionenkonzentrationsbeziehungen vergleichbar mit einem Großteil der Tiefenwässer in Norddeutschland (Tabelle 2).

Tabelle 2: Durchschnittsgehalte der im Jahre 1981 durchgeführten Analysenserie an Wässern aus Pumpensümpfen der Schachanlage Konrad /GES 82/

Element	Gehalt [mg l ⁻¹]
Natrium	77.722
Kalium	212
Lithium	1
Calcium	8.939
Magnesium	2.761
Strontium	376

Element	Gehalt [mg l ⁻¹]
Chlorid	135.556
Sulfat	832
Bromid	822
Jodid	28
Borat	84

Die Gehalte an Brom, Jod und Bor sind im Vergleich zu benachbarten Formationswässern leicht erhöht. Ein Einfluß durch oberflächennahe Wässer ist nicht zu erkennen, in der Literatur werden die Wässer als diagenetisch verändertes Meerwasser gedeutet.

4.4 Grubenwässer im Ruhrgebiet

Die Steinkohlenformationen des Ruhrkarbon sind im wesentlichen im Oberkarbon abgelagert worden. Die teils mit taubem Gestein durchsetzten Flöze sind konkordant in das Nebengestein, bestehend aus Sandstein, Sandschiefer, Schiefer, Tonschiefer oder Konglomerat, eingelagert und werden von mächtigen Deckschichten der Oberkreide (Tonmergel- und Kalksteine) diskordant überlagert.

Die in den Kohlegruben des Ruhrgebietes anfallenden Grubenwässer sind überwiegend hochmineralisierte Wässer. Grubenwässer mit geringem Salzgehalt treten im Bereich des ausstreichenden Karbon im Süden auf /PUC 64/. Der in Wässern mit hoher Salinität häufigste Bestandteil ist Natriumchlorid. Chlorid ist mit stets mehr als 90% der Anionenäquivalente mit Konzentrationen von z. T. mehr als 100 g l^{-1} , Natrium mit Gehalten von 50 g l^{-1} vertreten (Abbildung 3 und Abbildung 4).

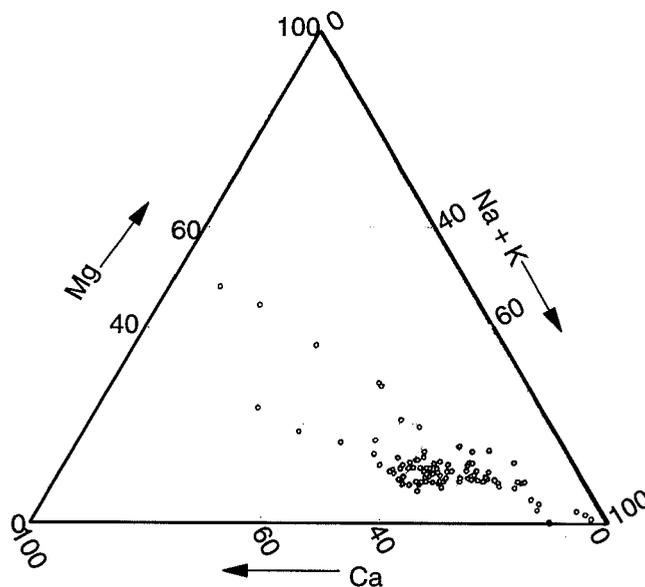


Abbildung 3: Kationenzusammensetzung von 98 Grubenwässern des Ruhrgebietes /PUC 64/

Die Wässer mit geringerem Salzgehalt enthalten als Anionen vornehmlich Sulfat und Hydrogenkarbonat, Chlorid tritt prozentual stark zurück. Bei den Kationen überwiegen hier deutlich Calcium und Magnesium. Lithium kommt in den Wässern des Ruhrgebietes in deutlichen Mengen vor, sein Gehalt wächst proportional mit dem Gesamtsalzgehalt. Die Strontiumgehalte steigen bei sulfatfreien Proben z. T. deutlich an.

Der einheitliche Chemismus der tieferen Grundwässer, also der Wässer mit keinem bzw. sehr geringem Einfluß durch oberflächennahe Wässer, legt den Schluß einer gemeinsamen geochemischen Entwicklung dieser Wässer nahe.

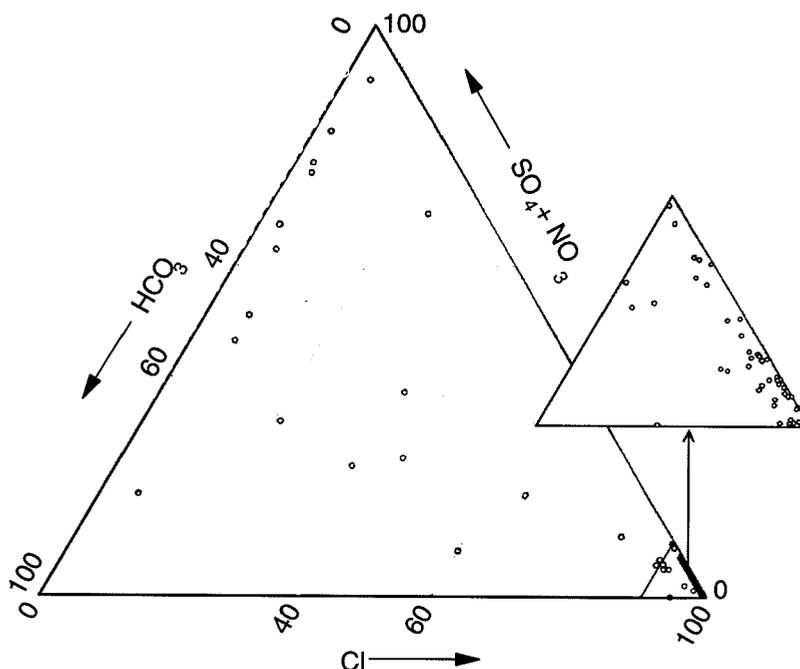


Abbildung 4: Anionenzusammensetzung von 98 Grubenwässern des Ruhrgebietes /PUC 64/

4.5 Tiefenwässer der Norddeutschen Senke und des Thüringer Beckens

Die Konzentration der Tiefenwässer in sedimentären Ablagerungen der Norddeutschen Senke und des Thüringer Beckens umfaßt ein breites Spektrum. Die Wässer sind mehr oder weniger hoch mineralisiert, mit Konzentrationen von 5 g l⁻¹ bis 600 g l⁻¹. Chlorid tritt als vorherrschendes Anion in einer Konzentration von 10 bis

350 g l⁻¹ auf. Die übrigen Anionen sind untergeordnet in folgenden Konzentrationsintervallen vorhanden /MÜL 75/:

Anion	Konzentrationsintervall [mg l ⁻¹]		
Br ⁻	10	-	5.000
J ⁻	1	-	100
SO ₄ ⁻⁻	100	-	7.000
HCO ₃ ⁻⁻	10	-	5.000

Aufgrund der vorherrschenden Kationenverhältnisse können die Wässer generell in sechs Grundwassertypen unterteilt werden:

- Na - Ca - Mg - Cl - Typ
- Ca - Na - Mg - Cl - Typ
- Mg - Ca - Na - Cl - Typ
- Mg - Na - Ca - Cl - Typ
- Na - Mg - Ca - Cl - Typ
- Ca - Mg - Na - Cl - Typ

Die Tiefenwässer der oberen Trias (Rät) und der Unterkreide gehören dem Na-Ca-Mg-Cl-Typ an, die Konzentrationen schwanken zwischen 30 und 250 g l⁻¹. Zwischen der Konzentration und der Tiefenlage besteht eine direkte Abhängigkeit. Die Buntsandsteinwässer in diesem Raum weisen Konzentrationen von 1 bis 360 g l⁻¹ auf und gehören zum Wassertyp Na-Ca-Mg-Cl. Zu beobachten ist eine Veränderung der Wässer zum Beckenrand, was mit einem aktiven Wasseraustausch im Randbereich zu erklären ist. Die im Zechstein (Plattendolomit, Staßfurtkarbonat) angetroffenen Tiefenwässer sind Wässer vom Typ Mg-Ca-Na-Cl und Mg-Na-Ca-Cl. Daneben werden weitere Wassertypen angetroffen, deren Chemismus eine große Variationsbreite mit Konzentrationen von 1 bis 360 g l⁻¹ aufweist. Die Rotliegendeschichtwässer sind hochkonzentrierte Salzlösungen mit Konzentrationen von 40 bis 360 g l⁻¹, geringere Konzentrationen treten nur im Randbereich auf. Die Wassertypen im Rotliegenden sind Na-Ca-Mg-Cl- und Ca-Na-Mg-Cl-Wässer. Stellenweise konnte auch eine Schichtung der Wässer im Rotliegenden nachgewiesen werden. In der Abbildung 5 sind die Kationenkonzentrationen von 45 Tiefenwässern in einem Piperdiagramm aufgetragen.

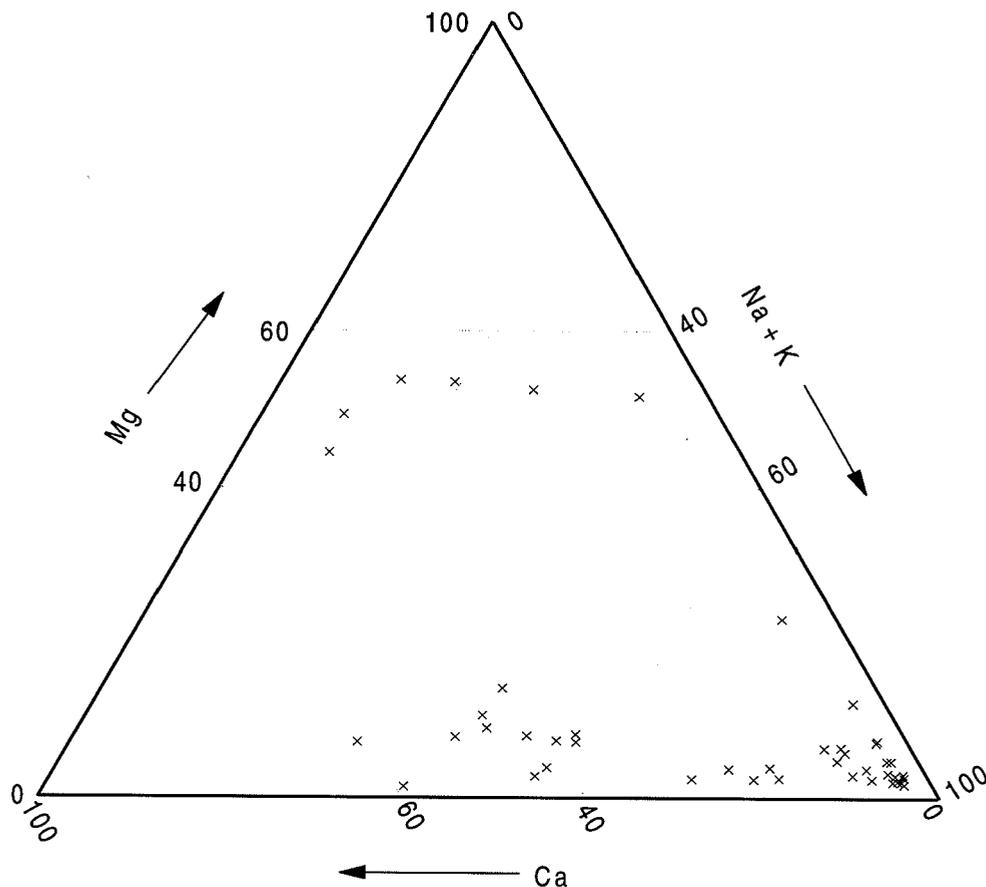


Abbildung 5: Kationen-Dreiecksdiagramm von 45 Tiefengrundwässern aus Thüringen, Sachsen-Anhalt, Brandenburg und Mecklenburg-Vorpommern /MÜL 75/

Die Entstehung der hochmineralisierten Tiefenwässer in den evaporitführenden Sedimentbecken wird unterschiedlich gedeutet. Die Wässer setzen sich aus Ablaugungslösungen, salinaren Reliktlösungen, Infiltrationslösungen und / oder diagenetisch veränderten Wässern zusammen. Die diagenetisch veränderten Wässer werden dabei aus in den Sedimenten eingeschlossenen Meerwässern abgeleitet. Ablaugungslösungen von Evaporiten sind in sämtlichen stratigraphischen Systemen vom Präperm bis zum Tertiär anzutreffen. Sie können den Chemismus der diagenetisch veränderten Schichtwässer überprägen, so daß eine geochemische Unterscheidung zwischen beiden Prozessen außerordentlich schwierig ist. Infiltrationswässer mit oberflächennahem Charakter weisen eine geringere Konzentration auf. Sie treten in Gebieten mit oberflächennahem Schichtausstreichen bei aktiv-erschwertem Wasseraustauschverhältnissen auf. Bei den Anionen dominiert eindeutig das Chlorid. Die Wässer sind hier ausschließlich als Chlorid-Typ anzusprechen.

4.6 Gruben- und Grundwässer des Erzgebirges

Das Erzgebirge ist eine von ca. 200 m bis 800 m ü. N.N. nach Süden aufsteigende, schwach wellige Hochebene kristalliner Gesteine (u. a. Gneise, Granite, Glimmerschiefer und Phyllite). Am Nordrand treten eine Vielzahl von Erzlagerstätten auf, die z. T. durch jahrhunderte alten Bergbau bis in größere Tiefen erschlossen sind.

Abgebaut wurden u. a. Kobalt-Nickel-Arsenide, Silbererze, Bleiglanz, Zinkblende, Schwerspat, Flußspat, Zinnkies und Uranerze.

Die Altbergbaue sind ohne Ausnahme wasserführend, mit Zuflüssen von bis zu mehreren tausend m³ pro Tag. Die zufließenden Grubenwässer sind zumeist von Niederschlägen gespeiste Grundwässer mit relativ geringen Verweilzeiten im Deckgebirge. Die vorwiegend auf Fugen und Klüften transportierten Wässer sind entsprechend dem geringen Lösungsangebot kristalliner Gesteine zumeist gering mineralisiert, aber z. T. deutlich lagerstättenüberprägt. So weisen einige Wässer u. a. sehr hohe Gehalte an Eisen, Mangan, Zink, Cadmium, Kupfer, Nickel, Kobalt und / oder Arsen auf.

Angetroffen werden i. w. Sulfat- sowie Hydrogenkarbonatwässer, wobei in der Mehrzahl der Wässer der Sulfatanteil als Folge der Sulfatation (Oxidation der Sulfide, insbesondere von Pyrit) überwiegt (Abbildung 6 und Abbildung 7, Analysendaten aus /LEU 62/).

Die Mehrzahl der Grubenwässer im Erzgebirge läßt sich folgenden Wassertypen zuordnen:

Ca - SO₄ - Typ

Ca - HCO₃ - Typ

Ca - Mg SO₄ - Typ

Ca - Mg - HCO₃ SO₄ - Typ

Na - Ca - HCO₃ - Typ

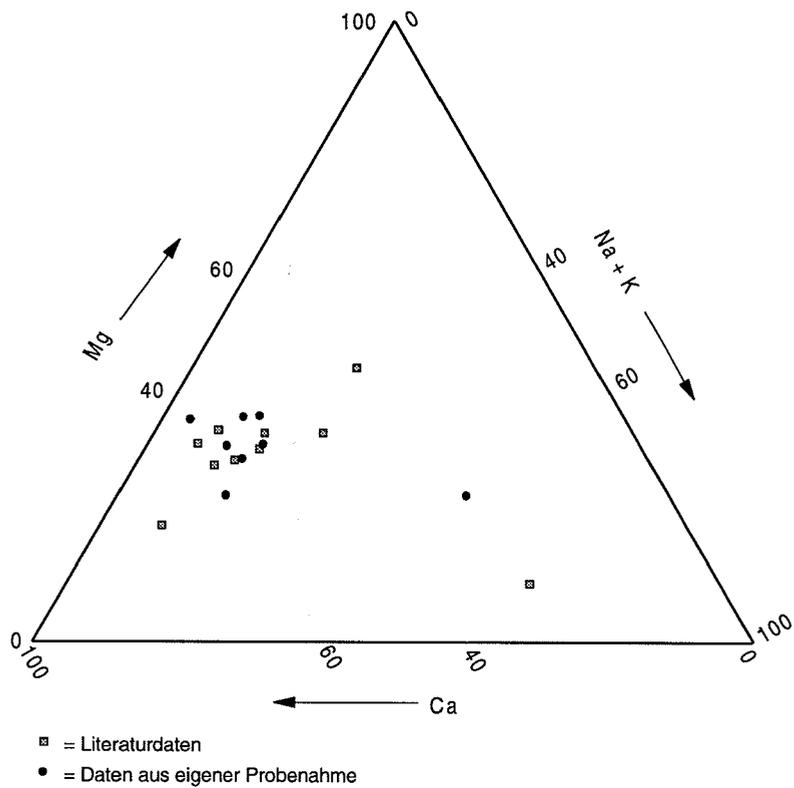


Abbildung 6: Kationen-Dreiecksdiagramm von Grundwässern des Erzgebirges

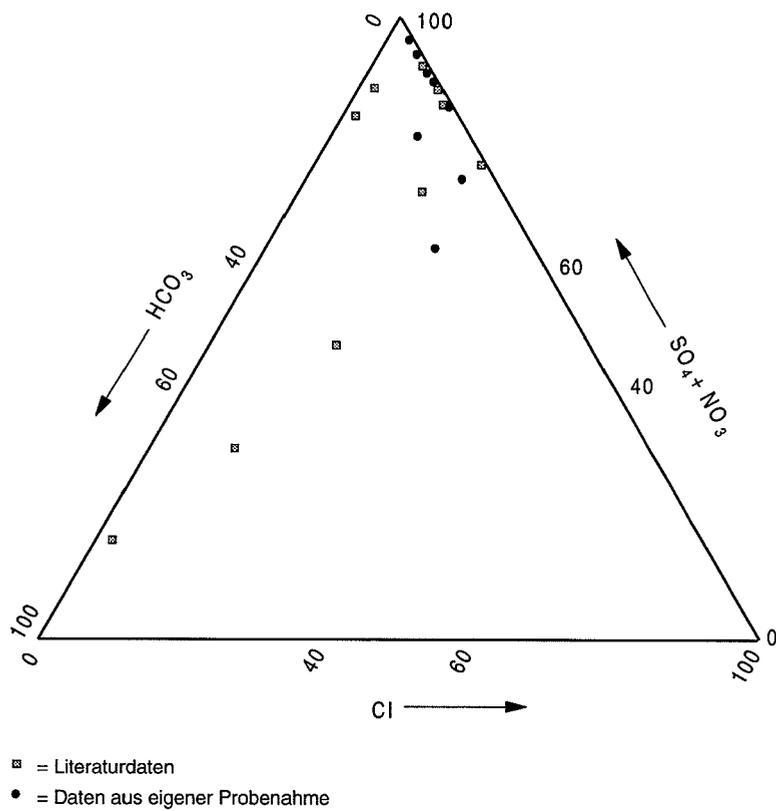


Abbildung 7: Anionen-Dreiecksdiagramm von Grundwässern des Erzgebirges

5 Untertägige Hohlräume als Folge bergbaulicher Tätigkeit

5.1 Einleitung

In Deutschland gibt es als Folge des bergmännischen Abbaus von Kali- und Steinsalz, Kohle, Erz, Gips- und Kalkgesteinen eine Vielzahl von untertägigen Hohlräumen.

Bundesweit stehen Hohlräume in einer Größenordnung von ca. 300 Mio. m³ offen (Tabelle 3). Aufgrund des knapper werdenden Deponieraumes und des verstärkten Umweltbewußtseins ist dabei in den letzten Jahren vermehrt (an einigen Standorten auch schon praktiziert) die Nutzung dieser Hohlräume für eine Verbringung (Beseitigung und / oder Verwertung) von Abfällen in Betracht gezogen worden.

Tabelle 3: Offene untertägige Hohlräume in Deutschland sowie die davon für Verbringungszwecke nutzbaren Volumina nach /KEL 92/

Bergwerke	Hohlraumvolumina [Mio. m ³]		Formations-Anteil
	insgesamt	nutzbar	
Salzbergwerke	202 - 307	102	75 %
Steinsalzbergwerke	70 - 90	30	
Kalisalzbergwerke	132 - 217	72	
Kohlebergwerke	4	0	0 %
Steinkohlebergwerke	4	0	
Erzbergwerke	21	21	15 %
Eisenerzbergwerke	6	6	
NE - Erzbergwerke	15	15	
Gipsbergwerke	7 - 10	3	2 %
Kalkbergwerke	15 - 20	11	8 %
Summe	248 - 362	137	100 %

Da ein Teil der Hohlräume für eine Abfall-Verbringung aus konzeptionellen oder bergrechtlichen Gründen nicht (oder nicht mehr) zur Verfügung steht, ist mittelfristig von einem grundsätzlich nutzbaren untertägigen Hohlraumvolumen in der Größenordnung von ca. 140 Mio. m³ auszugehen /KEL 92/. Rund 75% dieser Hohlräume stehen dabei in Salzformationen, 15% in Erz- und 10% in Gips- und Kalkbergwerken an. In der Kohle gibt es zwar aufgrund der Abbauverfahren

(Bruchbau) generell kaum offene Hohlräume, jedoch wird im Zuge von Versatzmaßnahmen im Bereich der Abbaue derzeit im Pumpversatz die Verbringung von Reststoffen (im unmittelbaren Anschluß an die Rohstoffgewinnung) in beträchtlichem Umfang praktiziert /WIL 91/. Nachfolgend werden deshalb nur die in Deutschland offenen Hohlräume in Erz- sowie Gips- und Kalkbergwerken beschrieben (Tabelle 4).

5.2 Eisenerzbergwerke

Der Erzbergbau hat in Deutschland eine lange Tradition. Es gab eine Vielzahl von kleineren Stollen und Tiefbaubetrieben, z. B. im Lahn-Dill-Gebiet, der Oberpfalz und im Harz. Mit abnehmender Bedeutung des heimischen Erzbergbaus aufgrund niedriger Weltmarktpreise ging auch die Zahl der Bergwerke deutlich zurück. So gibt es in Deutschland derzeit nur noch ein förderndes Eisenerzbergwerk (Grube Wohlverwahrt-Nammen).

Insgesamt stehen in Deutschland noch ca. 6 Mio. m³ Hohlraumvolumen im Erzbergbau offen. Mit der Verfüllung bzw. mit Versatzmaßnahmen ist aber bereits begonnen worden. Auch sind Hohlräume, die nicht verfüllt werden, z. T. bereits geflutet bzw. vollgelaufen.

5.3 NE-Erzbergwerke

In Deutschland wurden insbesondere in den klassischen Abbaugebieten im Erzgebirge, Harz, Schwarzwald und der Eifel hauptsächlich Blei- und Zinkerze, Uran, Schwefel- und Magnetkiese, aber auch Kupfer und Zinnerze sowie Edelmetalle abgebaut. Dieser Erzabbau ist in der Zwischenzeit völlig eingestellt worden.

Unabhängig von der Art der Erze, der Lagerstätte und dem Abbaufahren, wurden Bergwerke bevorzugt in Gängen angelegt. Abgebaut wurde i. d. R. in Teufen zwischen 100 und 800 m, überwiegend im Teilsohlenbruchbau. Das umgebende Gestein war meist standfest und wasserführend. Die offenen Hohlräume haben sich, wenn keine Nachsorge betrieben worden ist, schnell mit Wasser gefüllt, ein anderer Teil ist kontrolliert geflutet worden.

Tabelle 4: Übersicht der deutschen Grubenstandorte mit untertägigem Verbringungspotential (ohne Kali- und Steinsalzbergwerke), modifiziert nach /KEL 92/

Lfd. Nr.	Bergwerk	Bundesland	Bemerk.
1	Gipsbergwerk Obrigheim	Baden - Württemberg	A.B.
2	Flußspatgrube Käfersteige	Baden - Württemberg	R.P.
3	Schwer- u. Flußspatgrube Wolfach	Baden - Württemberg	R.P.
4	Braunkohlenbergwerk Hirschberg	Hessen	R.B.
5	Gipsbergwerk Lamerden	Hessen	R.
6	Kalkbergwerk Malerpertus	Hessen	H.
7	Steinkohlenbergwerk Lohberg	Nordrhein - Westfalen	A.B.
8	Steinkohlenbergwerk Haus Aden	Nordrhein - Westfalen	R.B.
9	Eisenerzbergwerk Wohlverwahrt-Nammen	Nordrhein - Westfalen	R.B.
10	Schwerspatgrube Dreislar	Nordrhein - Westfalen	R.B.
11	Steinkohlenbergwerk Consolidation	Nordrhein - Westfalen	R.P.
12	Steinkohlenbergwerk Walsum	Nordrhein - Westfalen	R.P.
13	Steinkohlenbergwerk Monopol	Nordrhein - Westfalen	R.P.
14	Schieferbergwerk, verschiedene	Nordrhein - Westfalen	R.
15	Gipsbergwerk bei Bielefeld	Nordrhein - Westfalen	R.
16	Schieferbergwerk Magog	Nordrhein - Westfalen	H.
17	Kalkbergwerk Gersheim	Saarland	R.B.
18	Kalkbergwerk Auersmacher	Saarland	R.
19	Kalkbergwerk Längefeld	Sachsen	H.
20	Kalkbergwerk Hermsdorf/Oberscheida	Sachsen	H.
21	Uranerzbergwerk Agatz	Sachsen	H.
22	Uranerzbergwerk Aue/Pöla	Sachsen	H.
23	Zinnerzbergwerk Altenberg	Sachsen	H.
24	Uranerzbergwerk Drosen/Beerwalde	Thüringen	R.B.
25	Uranerzbergwerk Schmirchau/Paitzdorf	Thüringen	R.B.
26	Schwefelkiesbergwerk Elbingerode	Thüringen	R.B.
27	Spatbergwerk Trusental bei Erfurt	Thüringen	H.
28	Gipsbergwerk Dörlau	Bayern	R.
29	Anhydritbergwerk Salzheim	Bayern	H.
30	Anhydritbergwerk Hüttenheim 4	Bayern	H.
31	Uranuntersuchungsbergwerke Oberpfalz	Bayern	H.
32	Tonbergwerk Monika	Bayern	H.
33	Kalkbergwerk Wellen	Rheinland-Pfalz	R.
34	Gipsbergwerk Babara	Rheinland-Pfalz	R.
35	Basaltlavabergwerk Mendig	Rheinland-Pfalz	R.
36	Gipsbergwerk Engel	Rheinland-Pfalz	H.
37	Gipsbergwerke, verschiedene	Rheinland-Pfalz	H.
38	Kalkbergwerk bei Bad Waldesheim	Rheinland-Pfalz	H.
39	Schieferbergwerk Magareta	Rheinland-Pfalz	H.
40	Bleizinkbergwerk Rammelsberg	Niedersachsen	H.

A.B. = Abfallentsorgungsanlage in Betrieb, bzw. demnächst in Betrieb

R.B. = Reststoffverbringungsanlage in Betrieb

R.P. = Reststoffverbringungsanlage Probebetrieb

R. = Reststoffverbringungsanlage geplant

H. = Hohlraumpotential

Nur ein Teil der einst geschaffenen Hohlräume ist heute noch offen (ca. 15 Mio. m³) und dürfte ohne entsprechende Nachsorge auch nur noch mittelfristig für eine Ablagerung von Abfällen (bzw. für Versatzzwecke) zur Verfügung stehen.

5.4 Gipsbergwerke

Gipslager werden in Deutschland aus dem Muschelkalk und dem Zechstein bergmännisch abgebaut. Weit verbreitet sind Pfeilerörter- und Kammerfestenbau mit Zugang über Schrägstollen. Gipsbergwerke sind meist völlig trocken, da sie sich i. d. R. oberhalb des Grundwasserhorizontes befinden.

Bundesweit gibt es ca. 20 stillgelegte Tiefbaue auf Gips, in Betrieb befinden sich (ausschließlich in den alten Bundesländern) z. Z. noch 9 Gips- und Anhydritbergwerke. Dabei dürften Hohlräume in Gipsbergwerken noch in einer Größenordnung von 7 bis 10 Mio. m³ offen stehen. Die Oberflächennähe sowie die leichte Auslaugbarkeit der Lagerstätte stehen einer Nutzung zur Ablagerung gefährlicher Abfälle aber einschränkend entgegen. Die Deponierung von Kraftwerksreststoffen wird derzeit aber (z. B. in Obrigheim) durchaus praktiziert.

5.5 Kalkbergwerke

Der untertägige Kalkbergbau ist dem Gipsbergbau bergmännisch verwandt. In Deutschland erfolgt der Abbau oberflächennah in kammerartigen Abbauen. Häufig haben sich Kalkbergbaue als Stollenbetrieb auch aus einem Tagebaubetrieb entwickelt.

Bundesweit werden noch einige Kalkbergwerke betrieben, mehr als 20 Kalk-, Dolomit- und Marmorbetriebe wurden dagegen bereits stillgelegt. Verfügbare Hohlräume befinden sich vorwiegend im Saarland und in Rheinland-Pfalz. Die offenen Hohlraumvolumina im Kalkbergbau liegen bei ca. 15 bis 20 Mio. m³. Für einige dieser Bergwerke werden Versatzmaßnahmen diskutiert.

6 Beprobte Grundwässer

6.1 Auswahl der Standorte

Die Auswahl der einzelnen Standorte erfolgte unter den Gesichtspunkten

- der Verfügbarkeit bzw. Begehrbarkeit entsprechender Bohrungen und Bergwerke,
- der grundsätzlichen Möglichkeit einer Probenahme,
- der unter UTD-Aspekten relevanten Teufenlage der Probenahme sowie
- des Grundwassertyps.

Die Standortauswahl beschränkte sich dabei mit Ausnahme des Standortes Remlingen (Asse) in Niedersachsen auf die Bundesländer Sachsen-Anhalt, Sachsen und Thüringen, in denen sich untertägige Hohlräume als Folge bergbaulicher Tätigkeit befinden. Neben Standorten im Erzgebirge und Harz (altes Rumpfgebirge) wurden im Bereich des Thüringer Beckens und in der Umgebung von Halle-Leipzig auch Grundwässer in mesozoischen Schichten sowie in jüngeren geologischen Formationen beprobt.

Die Festlegung der Probenahmepunkte an einem Standort erfolgte dabei i. w. unter dem Gesichtspunkt, Wasserproben unterschiedlicher Zusammensetzung bzw. aus unterschiedlichen Formationen zu erhalten.

In Abbildung 8 sind die einzelnen Standorte dargestellt, wobei die beprobten Wässer eine Auswahl der wichtigsten, bei Wechselwirkungsuntersuchungen im Zusammenhang mit der Ablagerung von Abfällen im Nichtsalinar zu berücksichtigenden Wassertypen darstellen.

6.2 Charakterisierung der Wässer

Grundwässer mit ihren gelösten Inhaltsstoffen sind Teil des geochemischen Stoffkreislaufes, wobei die Zusammensetzung der Inhaltsstoffe sowie deren Konzentration in den Wässern Ausdruck des unterschiedlichen Verhaltens der Elemente (Elemente mit unterschiedlicher Löslichkeit und Beweglichkeit) sowie des Stoffbestandsangebotes der zugehörigen Wirtsgesteine ist. Ein Gleichgewicht

zwischen Grundwasser und Gestein wird auch bei längeren Verweilzeiten nicht immer vollständig erreicht.



Abbildung 8: Standorte der durchgeführten Beprobungen

Elemente mit hoher Beweglichkeit (der Grad der Beweglichkeit ist definiert als das Verhältnis der Konzentration eines Elementes im Wasser zur Konzentration im durchflossenen Gestein /MAT 90/) sind u. a. die Anionen Chlorid und Sulfat, mit mittlerer Beweglichkeit die Kationen Calcium, Magnesium und Natrium. Elemente mit geringer Beweglichkeit sind u. a. Eisen (III), Chrom und Blei.

Nachfolgend werden die an 14 Standorten beprobten Wässer (s. Abbildung 8) anhand der ermittelten Wasseranalysendaten und unter Hinzuziehung aller verfügbaren geologischen Standortinformationen charakterisiert sowie die einzelnen resultierenden Wassertypen in Tabelle 5 zusammengefaßt.

Tabelle 5: Wassertypen der beprobten Standorte

Wassertypen der beprobten Standorte
Ca-SO ₄ -Typ
Ca-Mg-SO ₄ -Typ
Ca-Na-SO ₄ -Typ
eisenhaltiger Ca-SO ₄ -Typ
eisenhaltiger Ca-Mg-SO ₄ -Typ
Na-Ca-SO ₄ -Typ
Ca-SO ₄ -HCO ₃ -Typ
Ca-Na-SO ₄ -HCO ₃ -Typ
Ca-SO ₄ -Cl-Typ
Na-Cl-Typ
eisenhaltiger Na-Cl-Typ (Sole)
Na-Ca-Cl-Typ
eisenhaltiger Na-Ca-Cl-Säuerling
Na-Ca-Cl-SO ₄ -Typ
eisenhaltiger Na-Ca-Cl-SO ₄ -Typ
Ca-Na-Mg-HCO ₃ -SO ₄ -Typ
eisenhaltiger Ca-Mg-HCO ₃ -SO ₄ -Säuerling
Ca-Na-HCO ₃ -Cl-Typ

6.2.1 Grubenwässer am Standort Freiberg

Alle beprobten Grubenwässer an fünf Entnahmestellen am Standort Freiberg sind Wässer vom Ca-Mg-SO₄-Typ. Die nach relativ kurzer Verweilzeit über ein Kluftsystem - charakterisiert durch weitspannige WNW-ESE ausgerichtete Großfalten der Kristallisationsschieferung - in das Grubengebäude gelangenden Wässer weisen

eine Konzentration gelöster Inhaltsstoffe von 290 - 1150 mg l⁻¹ auf. Dies ist weniger auf die am Standort anstehenden Gneise zurückzuführen (die gelösten Bestandteile bei Grundwässern in Gneisen und ähnlichen Gesteinen liegen meist erheblich unter 300 mg l⁻¹), der Lösungseintrag erfolgt hier vielmehr insbesondere durch die im Grubengebäude nicht vollständig abgebauten sowie auch im Hangenden noch vorhandenen Erzgänge. Auf die Vererzung sind dabei nicht nur die erhöhten Konzentrationen der Hauptbestandteile Ca, Mg und SO₄, sondern ebenso die hohen Konzentrationen der relativ beweglichen Schwermetalle, wie beispielsweise Zn und Cd zurückzuführen.

Die hohen Gehalte an Mangan resultieren aus der hohen Löslichkeit der Manganoxide bei niedrigen pH-Werten. Die gegenüber Mangan festgestellten geringeren Eisengehalte können mit dem noch vorhandenen Restsauerstoff in den Wässern erklärt werden, der die Beweglichkeit des Eisens stark einschränkt. Das Verhältnis der Erdalkali-Elemente (Ca, Mg, Sr und Ba) zueinander schwankt, ein Hinweis darauf, daß die Wässer lokal überprägt sind. Das Magnesium stammt zu einem erheblichen Teil aus zersetzten Karbonaten der Erzgänge, Barium und Strontium wohl ebenso sehr auch aus dem Abbau der Silikate, besonders der Glimmer und Feldspäte des Freiburger Gneises. Die erhöhten Sulfatgehalte sind auf die Oxidation und Zersetzung der sulfidischen Erze bei gleichzeitigem Absinken des pH-Wertes zurückzuführen.

Die hohen Nitratgehalte sind dagegen auf anthropogene Einflüsse zurückzuführen. Die gemessenen Konzentrationen an Hydrogencarbonat sind gering bzw. unter der Nachweisgrenze. In Wässern mit pH-Werten von < 6 ist das gelöste Kohlendioxid vorherrschend stabil (Karbonat - Kohlendioxid - Wasser - Gleichgewicht).

6.2.2 Grubenwässer am Standort Ehrenfriedersdorf

Am Standort Ehrenfriedersdorf sind die Grubenwässer vom Sauberg-Schacht sowie des Greifensteinstollens beprobt worden. Die Grubenwässer sind insgesamt schwach mineralisiert und vom Ca-Mg-SO₄-Typ bzw. Na-Ca-SO₄-Typ. Die gelösten Bestandteile beim Sauberg-Schacht-Grubenwasser betragen 263 mg l⁻¹, die vom Greifensteinstollen 70 mg l⁻¹. Die Wässer sind durch die Zersetzung der sulfidischen Erze deutlich weniger überprägt als die analysierten Wässer im Freiburger Revier. Die Konzentration des Natrium liegt bei beiden Wässern in gleicher Größenordnung. Neben Ca und SO₄ sind

ebenso die Schwermetallkonzentrationen im Wasser vom Greifensteinstollen erheblich niedriger als im Grubenwasser aus dem Sauberg-Schacht. In geringen Mengen liegt in beiden Wässern Hydrogenkarbonat vor. Bei pH-Werten > 6 ist speziell von einer verminderten Löslichkeit der Schwermetalle auszugehen, dennoch ist im Grundwasser Sauberg-Schacht eine Zinkkonzentration von $4,1 \text{ mg l}^{-1}$ ermittelt worden. Die Arsengehalte sind insbesondere beim Wasser aus dem Greifensteinstollen mit $0,1 \text{ mg l}^{-1}$ erhöht, was auf die vorhandene Arsenkiesvererzung zurückzuführen ist.

6.2.3 Grubenwässer am Standort Straßberg

Die beprobten Grubenwässer am Standort Straßberg stellen eisenhaltige Ca-Mg-SO₄-Wässer dar. Neben hohen Eisenkonzentrationen Fe(II) sind hohe Mangangehalte ermittelt worden. Die Wässer sind insgesamt deutlich lagerstättenüberprägt. Wie bereits bei den oben aufgeführten Standorten sind die erhöhten Sulfatgehalte auf die Oxidation und Zersetzung der Sulfide zurückzuführen.

Die Grubenwässer im Hauptschacht sowie im Überhau Brachmannsberg weisen erhöhte Zinkkonzentrationen auf; erhöhte Arsenwerte sind insbesondere im Überhau Brachmannsberg ermittelt worden. Die erhöhten Co-Gehalte korrespondieren mit erhöhten Mangangehalten. Kobalt wird bevorzugt von kolloidalen Eisen- und Mangan-Hydroxiden sorbiert, daneben neigt Kobalt zur Bildung von zahlreichen Komplexionen, welche die Löslichkeit erhöhen. Die Konzentrationen von Chlorid und Hydrogenkarbonat liegen in vergleichbarer Größenordnung, wobei das Grubenwasser im Anionenteil vom Sulfat bestimmt wird.

6.2.4 Grubenwasser am Standort Alexisbad

Das am Stollenmund beprobte Grubenwasser in Alexisbad ist dem Grubenwasser am Standort Straßberg vergleichbar. Die Ca-SO₄-Gehalte sowie die Eisen- und Mangangehalte sind jedoch deutlich geringer. Der Anteil der aus den Erzgängen gelösten Bestandteile im Grubenwasser hat aufgrund der bereits um 1850 erfolgten Stilllegung des Bergbaubetriebes deutlich abgenommen. Auch der Gehalt an Arsen ist unter die Nachweisgrenze gesunken.

6.2.5 Grubenwasser am Standort Gernrode

Das am Hagenstollenmundloch beprobte Grubenwasser ist ein Mischwasser vom Typ Na-Ca-Cl. Die erhöhten NaCl-Gehalte sind keinesfalls auf die anstehende Tanner Grauwacke oder den Ramberg Granit zurückzuführen, vielmehr ist der Einfluß allochthoner mineralisierter Tiefenwässer (ggf. aus dem Harzvorland) erkennbar. Ein Beleg dafür ist auch der Li-Gehalt von $0,45 \text{ mg l}^{-1}$. Bei mineralisierten Tiefengrundwässern ist allgemein eine Anreicherung von Lithium festzustellen.

Ein Vergleich der Verhältnisse der Erdalkali-Elemente (Ca, Mg, Sr und Ba) zueinander mit Wässern vom benachbarten Standort Straßberg (Wirtsgestein ist dort ebenfalls Tanner Grauwacke) zeigt insbesondere eine Anreicherung des Strontiums. Dies kann (mit Einschränkungen) auch als ein weiterer Beleg für den Einfluß mineralisierter Tiefengrundwässer angesehen werden.

6.2.6 Grubenwasser am Standort Elbingerode

Das Grubenwasser des ehemaligen Eisenerz-Bergwerkes ist ein Wasser des eisenhaltigen Ca-SO₄-Typs. Die Konzentration des Eisens ist mit 345 mg l^{-1} sehr hoch, so daß dieses Element neben Calcium, welches in gleicher Größenordnung vorliegt, einen Hauptbestandteil des Wassers darstellt. Der Sulfatgehalt von $1,8 \text{ mg l}^{-1}$ resultiert aus der Oxidation der Sulfide.

Mit dem Auffahren und dem Abbau einer Schwefelkies- bzw. Pyrit-Lagerstätte, wie im hier vorliegenden Fall, kommt es durch den in der Grubenluft vorhandenen Sauerstoff zu Oxidationsvorgängen, wobei Eisen und Schwefel bei gleichzeitigem Anstieg der H-Ionenkonzentration oxidiert werden.

Der pH-Wert des Grubenwassers ist mit 2,9 sauer, die Eisen (II)-Löslichkeit kann dann in Verbindung mit leicht reduzierenden Verhältnissen Werte annehmen, wie im vorliegenden Grubenwasser ermittelt. Bei carbonatfreien Gesteinen mit geringer Pufferkapazität bleibt der pH-Wert dann auch über lange Zeiträume stabil.

Die Mn-Gehalte sind mit 15 mg l^{-1} hoch, vergleichbar den Werten von Grubenwässern aus anderen Eisenerzlagerstätten. Die Schwermetallgehalte zeigen keine Auffälligkeiten, der Arsengehalt liegt unter der Nachweisgrenze.

6.2.7 Grubenwässer am Standort Ronneburg

Die aus drei unterschiedlichen Teufen beprobten Grubenwässer am Standort Ronneburg sind als eisenhaltiger Ca-SO₄-Typ bzw. eisenhaltiger Na-Ca-Cl-SO₄-Typ anzusprechen, mit einer erhöhten Mineralisation von 2,1 bis 5,6 g l⁻¹.

Der Sulfatgehalt ist, wenn auch nicht ausschließlich, zu einem überwiegenden Anteil aus der Oxidation vorhandener Sulfide abzuleiten, wobei ein Eintrag auch aus den obertägig angelegten Bergwerkshalden durch versickernde Niederschlagswässer denkbar ist. Für eine Überprägung der Wässer durch die vorhandenen Erze sprechen auch die Schwermetallgehalte sowie die gemessenen Arsenkonzentrationen. Ebenso sind die Borgehalte leicht erhöht. Erhöhte Borgehalte treten normalerweise in marinen Evaporiten (Salztonen) auf, können aber auch anthropogen verursacht sein. Die NaCl-Gehalte, insbesondere in den Wässern vom Typ Na-Ca-Cl-SO₄, sind aus den im Hangenden anstehenden Buntsandstein- sowie Zechsteinformationen herzuleiten. Unterstrichen wird dies durch die Tatsache, daß das Verhältnis der Erdalkali-Elemente (Ca, Mg, Sr und Ba) in vergleichbarer Größenordnung liegt, mit Ausnahme des in den Na-Ca-Cl-SO₄ Wässern erhöhten Gehaltes an Magnesium.

Der pH-Wert der Wässer liegt zwischen 7,0 und 7,2; der mit der Oxidation der Sulfide verbundene Anstieg der H-Ionenkonzentration wird durch die vor Ort vorhandenen Carbonate abgepuffert.

6.2.8 Grubenwässer am Standort Königstein

Die am Standort Königstein beprobten Grubenwässer sind Wässer vom Typ Ca-Na-HCO₃-Cl und Ca-Na-SO₄-HCO₃. Die Wässer sind schwach mineralisiert mit einem pH-Wert von 6,5 bis 7,4. Mit dem Anstieg der H-Ionenkonzentration korreliert der Anstieg der Sulfationen, ein Hinweis auf den Grad der lagerstättenbedingten Überprägung (Pyrit-Oxidation).

Die Schwermetall-Gehalte der beprobten Wässer sind vergleichsweise niedrig, ebenso die des Eisens und des Mangans. Es besteht ein, wie auch bei anderen Grubenwässern aus Erzbergwerken zu beobachtendes, direktes Verhältnis zwischen den Konzentrationen an Eisen und Sulfat.

6.2.9 Grundwasser am Standort Remlingen

Das am Standort Remlingen aus der Bohrung H 18a aus einer Tiefe von 76 m beprobte Grundwasser ist ein Mischwasser aus Na-Cl-Wasser des Zechsteins und schwach mineralisiertem Grundwasser des anstehenden Deckgebirges (Buntsandstein). Die Konzentration des Lithium ist mit $4,1 \text{ mg l}^{-1}$ relativ hoch, bei Mischwässern in dieser Zusammensetzung allerdings nicht ungewöhnlich. Das Lithium entstammt dem Na-Cl-Wasser, da Lithium insbesondere in Evaporiten angereichert ist. Eine Abreicherung durch Sorptions- sowie Ionenaustauschvorgänge, auch im Verlauf der Vermischung, ist beim Lithium nicht zu erwarten.

6.2.10 Mineralwasser am Standort Dürrenberg

Das Mineralwasser am Standort Dürrenberg ist eine CaSO_4 -gesättigte Na-Cl-Sole mit $41,4 \text{ g l}^{-1}$ Natrium und $64,8 \text{ g l}^{-1}$ Chlorid; es entstammt dem unter Tertiär und Buntsandstein anstehenden Zechstein-Gips. Von den untersuchten Wässern ist das Mineralwasser am Standort Dürrenberg das mit der höchsten Mineralisation. Neben hohen Werten an Natrium, Calcium, Chlorid und Sulfat sind erhöhte Werte an Magnesium und Kalium sowie an Brom (45 mg l^{-1}), Strontium (30 mg l^{-1}), Bor ($2,6 \text{ mg l}^{-1}$), Lithium ($2,3 \text{ mg l}^{-1}$) und Eisen ($13,4 \text{ mg l}^{-1}$) vorhanden. Die Gehalte an Mangan und Schwermetallen sind insgesamt gering.

6.2.11 Mineralwässer am Standort Liebenstein

Die Mineralwässer am Standort Bad Liebenstein sind vom Typ eisenhaltiger Na-Ca-Cl-Säuerling (Bohrung 1951) und eisenhaltiger Ca-Mg- HCO_3 - SO_4 -Säuerling (Bohrung 1979). Die hohen CO_2 -Konzentrationen entstammen einem dem Rhön-System zugehörigen periferen Herd, sind also ursächlich mit ausgedehntem Vulkanismus in Verbindung zu bringen. Die Eisen- und Mangangehalte sind deutlich erhöht, die der Schwermetalle Kupfer und Zink leicht erhöht. Die Mineralquelle (Bohrung 1951) ist im Oberrotliegenden gefaßt und zeigt einen deutlichen Einfluß des nur wenige Kilometer entfernten Zechsteinsalinars. Das Mineralwasser der Bohrung 1979 ist mit NaCl-Gehalten von $< 50 \text{ mg l}^{-1}$ geringer mineralisiert, das Wasser wird durch Calcium und Magnesium sowie durch Hydrogenkarbonat und Sulfat charakterisiert.

6.2.12 Grundwässer am Standort Bitterfeld-Wulfen

Die beprobten Grundwässer am Standort Bitterfeld-Wulfen aus Teufen von 18 bis 30 m sind vom Typ Ca-Na-SO_4 , $\text{Ca-SO}_4\text{-Cl}$ und $\text{Ca-SO}_4\text{-HCO}_3$. Insbesondere das Grundwasser der Grundwassermeßstelle 19/91 in einem Industriegelände weist anthropogene Belastungen an Chlorkohlenwasserstoffen (wie Trichlormethan mit einem Gehalt von 30 mg l^{-1}) sowie erhöhte Gehalte an Zink und Cadmium auf.

Mit Ausnahme des Grundwassers der GWM-Stelle 19/91 ist das Cl/Na -Verhältnis der Grundwässer > 2 . Entweder hat ein Kationenaustausch (Ca gegen Na) stattgefunden oder aber es liegt ein zusätzlicher Chlorideintrag vor, der als Folge des mikrobiellen Abbaus der vorhandenen organischen Chlorverbindungen im Grundwasserleiter denkbar ist.

6.2.13 Grundwässer am Standort Bad Lauchstedt

Die beprobten Grundwässer am Standort Bad Lauchstedt sind vom Wassertyp $\text{Ca-Na-Mg-HCO}_3\text{-SO}_4$ bzw. Ca-Mg-SO_4 . Die Natrium-Gehalte sind leicht erhöht, bei einem Cl/Na -Verhältnis von 0,78 bzw. 0,68. Die Eisengehalte sind erhöht. Die Schwermetallgehalte liegen im Konzentrationsbereich von Grundwässern mit geogen bedingter Belastung.

6.2.14 Grundwässer am Standort Profen

Die im Braunkohlentagebau aus ca. 100 m voneinander entfernten Grundwasserzuläufen beprobten Grundwässer vom Typ Ca-SO_4 stimmen in der Wasseranalyse weitgehend überein, entstammen also demselben Aquifer. Das Grundwasser weist geringe Gehalte an Eisen und Mangan sowie an Schwermetallen auf. Der Sulfatgehalt entstammt hier, anders als an den Standorten im Erz, aus Lösungsvorgängen einer unterhalb der Lagerstätte vorhandenen Ca-SO_4 -haltigen wasserführenden Formation. Grundwässer - beispielsweise in Gipsmergelsteinen des Keuper - weisen vergleichbare Analysenergebnisse auf. Von einer Lagerstättenüberprägung des Grundwassers ist hier nicht auszugehen.

7 Abfallproben

7.1 Auswahl der Abfallproben

Im Rahmen des Vorhabens sind insgesamt fünf Abfallproben (Tabelle 6) zunächst analytisch sowie mineralogisch untersucht und anschließend zur Untersuchung von Wechselwirkungsreaktionen mit den oben beschriebenen und typisierten Grundwässern bzw. Grubenwässern in Schüttelversuchen, Umlaufsäulenversuchen und Kaskadenversuchen eingesetzt worden.

Tabelle 6: Art und Herkunft des untersuchten Probenmaterials

Probenbezeichnung	Abfallschlüssel	Abfallbezeichnung	Herkunft
CA 200	31309	Filterstäube aus Abfallverbrennungsanlagen	HMV
CA 201	31313	Feste Reaktionsprodukte aus der Abgasreinigung von Sonderabfallverbrennungsanlagen	SAV
CA 202	31311	Filterstäube aus Sonderabfallverbrennungsanlagen	SAV
CA 203	31312	Feste Reaktionsprodukte aus der Abgasreinigung von Abfallverbrennungsanlagen	HMV
CA 204	51520	Grünsalz	CPB

SAV: Verbrennungsanlage für besonders überwachungsbedürftige Abfälle

HMV: Hausmüllverbrennungsanlage

CPB: Chemisch/physikalische, biologische Behandlung

Die Auswahl der Abfallproben erfolgte dabei nach folgenden Kriterien:

- anfallende Abfallmenge bzw. zu erwartende Mengenentwicklung,
- Entsorgungshinweis TA Abfall,
- Verwertungsmöglichkeit,

wobei alle durchgeführten und nachfolgend dargestellten Untersuchungen einen rein exemplarischen Charakter aufweisen.

Das Abfallmengenauftreten der o. g. Abfallschlüssel ist laut eigener sowie Erhebungen der Statistischen Landesämter deutlich höher als 500.000 t a^{-1} . Mit der

Umsetzung der TA Siedlungsabfall ist darüber hinaus insbesondere ein deutlicher Mengenanstieg der Abfälle mit den Abfallschlüsselnummern 31309 und 31312 (Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Abfallverbrennungsanlagen) zu erwarten.

Abfälle mit dem Abfallschlüssel 31312 und 31313 sind im Anhang C der TA Abfall mit dem Entsorgungshinweis „Untertagedeponie im Salzgestein“ (Präferenzklasse 1) bzw. Monodeponie versehen, Abfälle mit dem Abfallschlüssel 31311 für die Sonderabfalldeponie (SAD), mit Präferenzklasse 2 aber ebenso für die UTD im Salzgestein vorgesehen. Abfälle mit dem Abfallschlüssel 31309 haben den Entsorgungshinweis Hausmülldeponie, Sonderabfalldeponie bzw. Monodeponie, weisen aber in weiten Bereichen einen dem Abfallschlüssel 31311 ähnlichen Chemismus auf und werden bereits untertägig verwertet. Abfälle mit dem Abfallschlüssel 51520 schließlich sind prioritär mit dem Entsorgungshinweis „UTD im Salzgestein“ und mit Präferenzklasse 2 „Sonderabfalldeponie“ versehen.

Neben der Ablagerung von Filterstäuben und Rauchgasreinigungsrückständen aus Hausmüll- und Sonderabfallverbrennungsanlagen in UTD im Salzgestein wird - bezugnehmend auf die Rahmenrichtlinie von NRW - auch deren untertägige Verbringung in Steinkohlebergwerken in der Fachliteratur diskutiert, z. B. /WIL 91/.

Die Verwertung von Abfällen aus der Hausmüllverbrennung erfolgt insbesondere als Zuschlagstoff für eine Abdämmung oder Verfüllung von Grubenbauen; es ist dabei der Nachweis zu erbringen, daß keine Beeinträchtigung der Umwelt zu erwarten ist. Eine derartige Verbringung von Reststoffen unterlag - zumindest in der Vergangenheit - nicht dem AbfG, sondern in vollem Umfang dem Bergrecht.

Die Zulässigkeit der Verwertungsmaßnahme wurde dann von der Bergbehörde bei der Betriebsplanzulassung nach Maßgabe des §55 BBergG geprüft. Ist ein vollständiger Einschluß dabei nicht möglich gewesen, mußte der Nachweis erbracht werden, daß die Einlagerung der Stoffe entsprechend dem Prinzip der immissionsneutralen Ablagerung erfolgt ist.

7.2 Analytische Bearbeitung

Die Abfallproben wurden nach dem Homogenisieren für die anorganische Analytik bis zu einer Korngröße von < 0,1 mm gemahlen und mit dem Königswasseraufschluß nach DIN 38414 Teil 7 aufgeschlossen.

Die Bestimmung der Elementgehalte erfolgte mittels ICP-AES. In der nachfolgenden Tabelle 7 sind die Analysenergebnisse zusammengestellt.

Tabelle 7: Elementgehalte der untersuchten Abfallproben (in mg kg⁻¹)

Element	CA 200	CA 201	CA 202	CA 203	CA 204
Al	13417	1591	6067	37529	208
As	8,6	18,8	274	14,8	<3
B	48,9	930	426	112	45,4
Ba	115	25,9	53,9	54,6	15,5
Ca	404895	4062	60071	211605	1032
Cd	79,8	193	43620	145	60
Co	5,7	42,4	87,9	15,2	15,3
Cr	35,0	106	431	73,6	46,5
Cu	314	2184	4144	432	2,4
Fe	4517	6692	20709	21738	326873
Hg	<3	59,1	<3	24,8	<3
K	13902	18040	569301	17887	53
Mg	5306	762	3563	11762	196
Mn	266	118	1422	812	888
Mo	6,3	91,2	143	14,7	5,2
Na	9938	311648	80570	11015	96,4
Ni	15,0	61,1	933	39,5	57,7
P	2179	3034	23656	5117	27,6
Pb	1863	5173	14526	2169	36,9
S	16258	54405	77105	31642	169154
Sn	213	759	689	381	<3
Sr	182	26,9	3608	347	2,3
Ti	1313	2121	482	3301	24
V	14,4	19,6	55,5	52,5	15,5
Zn	5102	23711	25130	5274	29,5

7.3 Röntgendiffraktometrische Untersuchungen

Der Phasenbestand der untersuchten Abfallproben ist mit einem Röntgendiffraktometer bestimmt worden und in der nachfolgenden Tabelle 8 abfallspezifisch zusammengestellt.

Die Identifizierung der Phasen erfolgte dabei durch Vergleich der gemessenen Spektren mit bekannten Mineralspektren der vorhandenen JCPDS-Datei sowie hauseigenen Standards.

Tabelle 8: Röntgendiffraktometrisch ermittelter Mineralbestand der Abfallproben CA 200, CA 201, CA 202 und CA 203

Abfallprobe CA 200	
Portlandit	Ca(OH)_2
Anhydrit	CaSO_4
Sylvin	KCl
Kalium-Natriumsulfat	NaKSO_4
Kaolinit	$\text{Al}(\text{Si}_4\text{O}_{10})(\text{OH})_8$
Kaliumsilikat	$\text{K}_2\text{Si}_2\text{O}_5$

Abfallprobe CA 201	
Halit	NaCl
Quarz	SiO_2
Bariumsulfid	BaS

Abfallprobe CA 202	
Barium-Eisenoxid	BaFeO_3
Barium-Kadmium	BaCd
Kuranakhit	PbMnTeO_6
Chlorit	$\text{FeAl}_2\text{SiO}_5(\text{OH})_2$
Halit	NaCl
Eisen-Zink-Titanoxid	TiZnFeO_4

Abfallprobe CA 203	
Natriumsulfat	Na_2SO_4
Sylvin	KCl
Halit	NaCl
K-Ca-Phosphat	$\text{Ca}_9\text{K}_{51}\text{P}_{23}\text{O}_{92}$
Kupfersulfid	Cu_2S
Nickel-Titan	NiTi
Titan-Zink	TiZn_5
Kobaltchloride	CoCl_2
Natriumnitrat	NaNO_3
Natriumsiliciumfluorid	Na_2SiF_6

8 Wechselwirkungsuntersuchungen

8.1 Einleitung

Bei der Ablagerung von Abfällen in Untertagedeponien bzw. bei deren Verwertung als Versatz kann es insbesondere dann zu Wechselwirkungen zwischen abgelagerten Abfällen und der umgebenden geologischen Formation (Wirtsgestein) kommen, wenn Fluide in den Deponiekörper gelangen /BRA 91/, /MÜH 90/. Fluide dieser Art können Wasser bzw. Lösungen, wie beispielsweise die Restfeuchte im Abfall, Grundwasservorkommen im Wirtsgestein sowie Wasserzutritte aus über- / unterlagernden Formationen sein. Zur Bewertung von Ereignisabläufen im Gesamtsystem müssen deshalb potentielle Wechselwirkungen zwischen Abfall und Lösung sowie zwischen Lösung und Wirtsgestein betrachtet werden.

Die im vorliegenden Vorhaben durchgeführten Untersuchungen zu Wechselwirkungsreaktionen zwischen Abfall und Grundwasser erfolgten als Schüttel-, Umlaufsäulen- und Kaskadenversuche unter Verwendung der in Kap. 6 bzw. 7 beschriebenen Grundwassertypen und Abfallproben. Mangels anderer standardisierter Untersuchungsverfahren sind zu Vergleichszwecken in Anlehnung an das Deutsche Einheitsverfahren zur Eluierbarkeit von Schlämmen und Sedimenten (DEV S4) auch entsprechende Untersuchungen mit H₂O (dest.) durchgeführt worden.

8.2 Untersuchungsmethoden

8.2.1 Schüttelversuch

100 g (Trockenmasse) Abfallprobe werden mit 1000 ml H₂O bzw. Grundwasser in einer 2 Liter PE-Flasche bei 20 °C 24 Stunden hintereinander über Kopf bewegt (1 U min⁻¹). Das System wird anschließend mit einem Einwegfilter der Porengröße 0,8 µm filtriert, das Eluat auf Haupt- und Nebenbestandteile analysiert sowie der Rückstand bei 35 °C getrocknet und röntgenographisch untersucht (Abbildung 9).

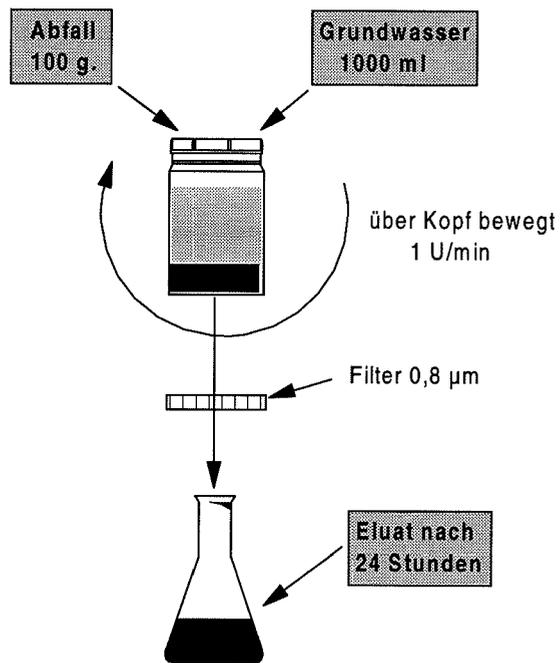


Abbildung 9: Prinzipskizze Schüttelversuch

8.2.2 Kaskadenversuch

Die Durchführung eines Kaskadenversuches (Abbildung 10) erfolgt zunächst in einer PE-Flasche mit 100 g Abfallprobe (Trockenmasse) und 1000 ml Grundwasser bei

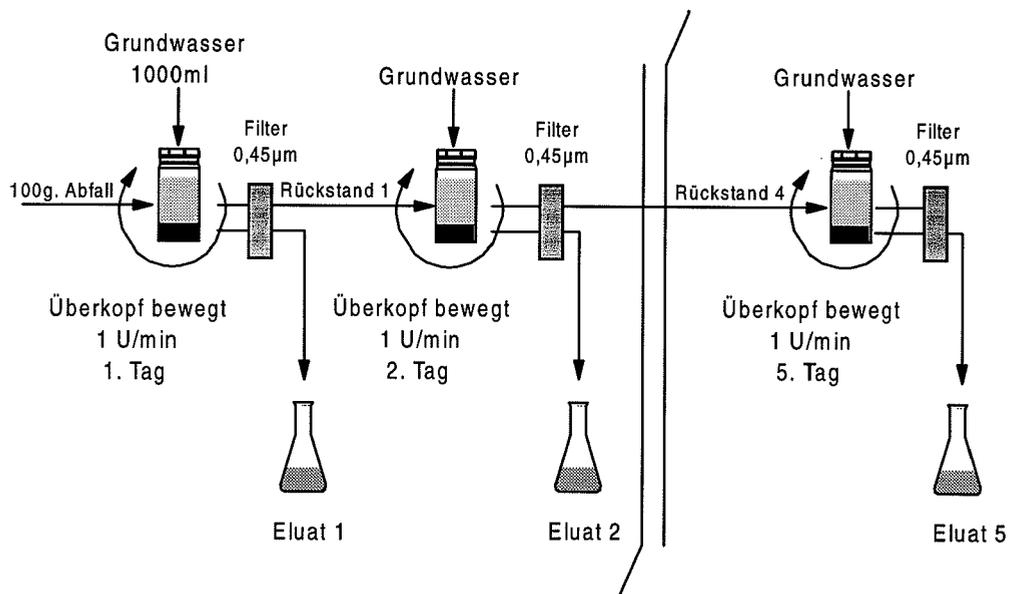


Abbildung 10: Prinzipskizze Kaskadenversuch

20 °C. Die PE-Flasche wird 24 Stunden hintereinander über Kopf bewegt (1 U min⁻¹) und das System anschließend mit Druckfiltration (Porengröße 0,45 µm) gefiltert. Für die nachfolgende Kaskade wird dann der Filtrationsrückstand in die PE-Flasche zurückgegeben sowie die abfiltrierte Menge Eluat durch neues Grundwasser ersetzt (Ermittlung der maximalen Auslaugung).

Derartige Versuche erfolgten im Rahmen der durchgeführten Untersuchungen in Form einer mehrstufigen Kaskade mit insgesamt fünf Elutionsstufen.

8.2.3 Umlaufsäulenversuch

In Umlaufsäulenversuchen (Abbildung 11) werden 120 bis 240 g Trockenmasse Abfallprobe durch Zugabe des jeweiligen Grundwassers zu einer einbaufähigen Konsistenz angesetzt und in einen Acrylglaszylinder mit einem Durchmesser von 5 cm und einer Länge von 6 cm eingebracht, an dessen oberem und unterem Ende sich mit einem Nylongewebenetz (Netzweite 30 µm) belegte Siebplatten befinden.

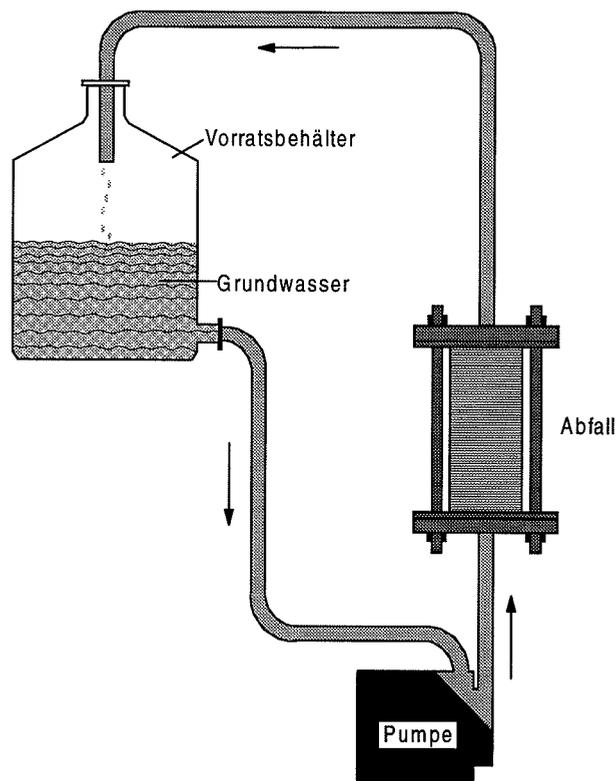


Abbildung 11: Prinzipskizze Umlaufsäulenversuch

Eine Kreiselpumpe fördert bei gleichbleibender Druckvorgabe und einem je nach Abfallprobe unterschiedlichen Durchfluß das Grundwasser von unten durch die Abfallprobe. Das Volumen-Masseverhältnis von eingesetztem Grundwasser zu Abfallprobe beträgt dabei 10:1. Die Umlaufsäulenversuche wurden über einen Zeitraum von 140 Tagen bei einer Temperatur von ca. 20 °C durchgeführt.

8.3 Ergebnisse der Untersuchungen

Die in den Untersuchungen eingesetzten Wassertypen mit einer Zuordnung der jeweiligen Entnahmestellen sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Tabelle 9: Entnahmestellen und zugehörige Wassertypen

Entnahmestellen	Wassertyp
MI33, MI34	Ca-SO ₄ -Typ
RZ1 bis RZ5, RZ26, VG6, VG27, VG36, EZ9	Ca-Mg-SO ₄ -Typ
BI23	Ca-Na-SO ₄ -Typ
EL35, WI13	eisenhaltiger Ca-SO ₄ -Typ
ST10, ST18, ST19, ST28, ST29, ST30, AL32, SC17	eisenhaltiger Ca-Mg-SO ₄ -Typ
GS7	Na-Ca-SO ₄ -Typ
BI25	Ca-SO ₄ -HCO ₃ -Typ
KW38, KW39	Ca-Na-SO ₄ -HCO ₃ -Typ
BI22, BI24	Ca-SO ₄ -Cl-Typ
AS20	Na-Cl-Typ
BD8	eisenhaltiger Na-Cl-Typ (Sole)
HA31	Na-Ca-Cl-Typ
BA11	eisenhaltiger Na-Ca-Cl-Säuerling
WI15	Na-Ca-Cl-SO ₄ -Typ
WI14	eisenhaltiger Na-Ca-Cl-SO ₄ -Typ
SC16	Ca-Na-Mg-HCO ₃ -SO ₄ -Typ
BA12	eisenhaltiger Ca-Mg-HCO ₃ -SO ₄ -Säuerling
KW37	Ca-Na-HCO ₃ -Cl-Typ

Generell weisen die in den unterschiedlichen Löseversuchen mit fünf verschiedenen Abfallproben gewonnenen Eluate aufgrund der Wasserlöslichkeit der Abfallinhaltsstoffe gegenüber den in den Untersuchungen eingesetzten Grundwässern einen deutlich veränderten Chemismus auf, so daß ein Einfluß der in den Versuchen eingesetzten (unterschiedlichen) Grundwassertypen in den resultierenden Eluaten nicht mehr festgestellt werden kann.

8.3.1 Schüttelversuche

Die in den Eluaten ermittelten pH-Werte (Abbildung 12), Leitfähigkeiten sowie Konzentrationen an Haupt- und Nebenbestandteilen bewegen sich - trotz unterschiedlicher eingesetzter Wassertypen - bei gleichem Abfall grundsätzlich in vergleichbarer Größenordnung, wobei einige Wässer Besonderheiten aufweisen.

Die im Schüttelversuch gelösten Anteile der Abfallprobe CA 200 (Filterstaub HMV) betragen je nach eingesetztem Grundwasser 13 bis 18 % (mit Ausnahme der NaCl-Sole BD 8 mit 5,5 %). Der ermittelte lösliche Anteil der Abfallprobe CA 202 (Filterstaub SAV) ist demgegenüber mit 42 bis 57 % deutlich größer.

Die löslichen Anteile der Abfallprobe CA 203 (Rauchgasreinigungsrückstand HMV) betragen 15 bis 21 %, die der Abfallprobe CA 201 (Rauchgasreinigungsrückstand SAV) - wiederum mit Ausnahme der NaCl-Sole DB 8 mit 56 % - sogar 80 bis 91 %, das Grünsalz (CA 204) ist fast vollständig in Lösung gegangen.

Abfallprobe CA 200

Die pH-Werte der Eluate der Abfallprobe CA 200 (Filterstäube aus einer Abfallverbrennungsanlage) liegen in einem engen alkalischen Bereich von 12,2 bis 12,7; die Leitfähigkeiten (mit Ausnahme der NaCl-Sole BD 8 + CA 200) liegen im Bereich von 25 bis 32 mS cm⁻¹.

Hauptbestandteile der Eluate sind Calcium und Chlorid, gefolgt von deutlich geringeren Konzentrationen an Kalium, Natrium und Sulfat. Bei der NaCl-Sole BD 8 + CA 200 bleibt NaCl mit 110 g l⁻¹ im Eluat Hauptkomponente.

Die Arsengehalte liegen in den Eluaten unter der Nachweisgrenze (mit Ausnahme der Abfallprobe CA 200 mit 8,61 mg kg⁻¹), bei den Schwermetallen weist Blei hohe Konzentrationen von bis zu 87 mg l⁻¹ auf. Die Zinkgehalte in den Eluaten sind gering (nur bis zu 5 % der ursprünglich in der Probe enthaltenen Zinkgehalte gehen in Lösung), die Gehalte an Cadmium, Chrom, Kobalt und Nickel sind gering und liegen bei einigen Eluaten unter der Nachweisgrenze. Die Gehalte an Kupfer sind insgesamt gering.

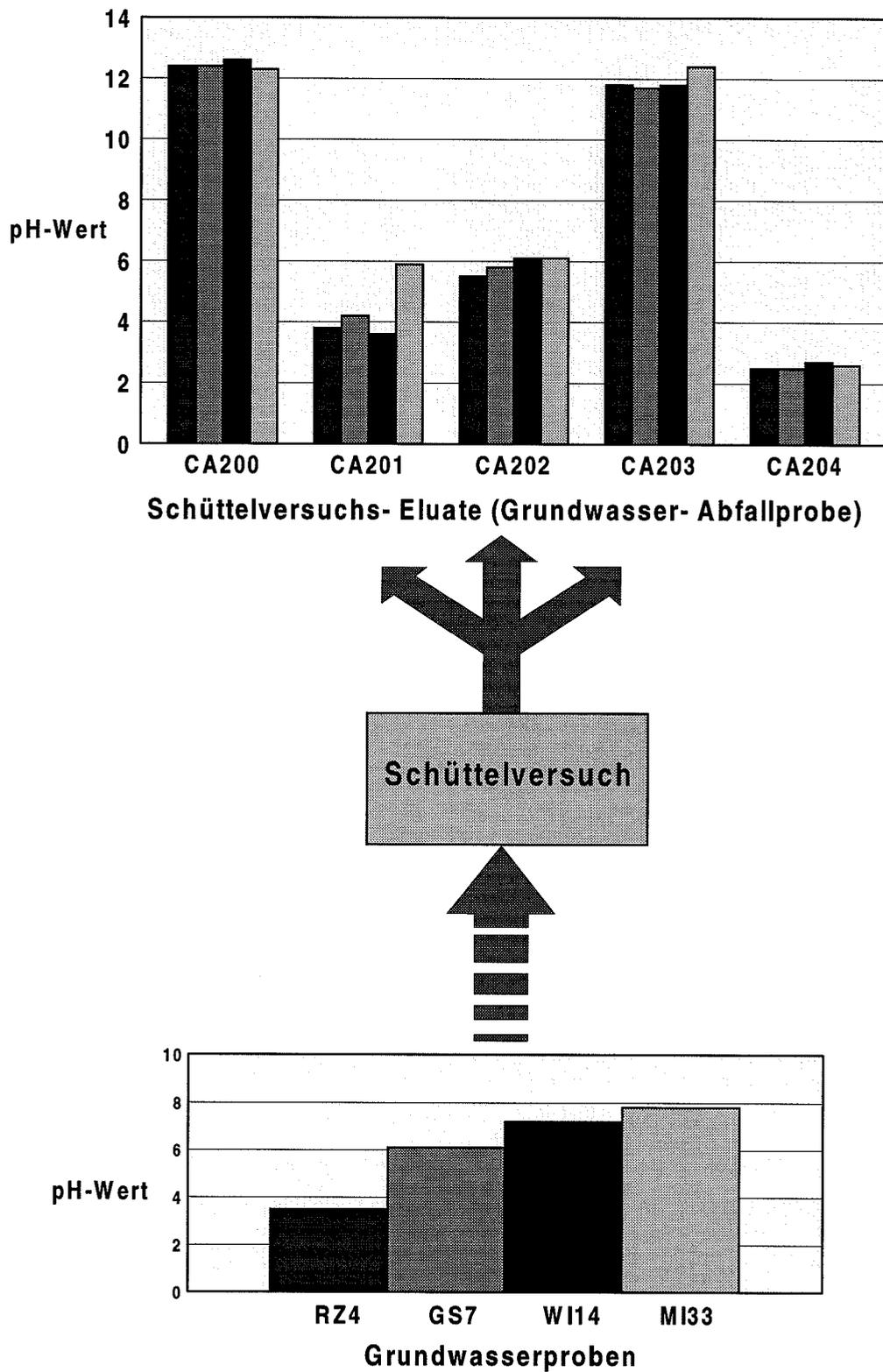


Abbildung 12: pH-Werte ausgewählter Grundwässer sowie pH-Werte der Eluate

Abfallprobe CA 201

Die pH-Werte der Eluate der Abfallprobe CA 201 (feste Reaktionsprodukte aus der Abgasreinigung einer Sonderabfallverbrennungsanlage) liegen in einem Bereich von 3,6 bis 6,0 die Leitfähigkeiten zwischen 81 bis 94 mS cm⁻¹. Das Eluat BD 8 + CA 201 macht auch hier mit 155 mS cm⁻¹ eine Ausnahme. Die Hauptkomponenten der Eluate sind Natrium und Chlorid bei gleichzeitig erhöhten Sulfatwerten. Die Gehalte an Kalium, Calcium und Magnesium sind deutlich geringer. Die Gehalte an Arsen, Chrom und Quecksilber liegen im Eluat unterhalb der Nachweisgrenze, obwohl die feste Abfallprobe hohe Gehalte an Quecksilber aufweist (59 mg kg⁻¹). Die Gehalte an Zink und Cadmium sind hoch, leicht erhöht die von Blei und Kupfer

Abfallprobe CA 202

Die pH-Werte der Eluate der Abfallprobe CA 202 (Filterstäube aus einer Sonderabfallverbrennungsanlage) liegen im schwach sauren Bereich zwischen 5,4 und 6,4 bei Leitfähigkeiten von 34 bis 41 mS cm⁻¹. Die Hauptkomponenten sind Natrium und Sulfat, deutlich geringer sind die Gehalte an Calcium und Magnesium. Die Chloridgehalte liegen in einer Größenordnung von 5 g l⁻¹, mit Ausnahme des Eluates BD 8 + Ca 202 mit 67,34 g l⁻¹. Ebenso weicht der Bleigehalt bei dem zuvor genannten Eluat mit 102 g l⁻¹ von denen der anderen Eluate (in der Mehrzahl < 2 mg l⁻¹) deutlich ab. Die Gehalte an Arsen, Chrom und Quecksilber liegen unter der Nachweisgrenze. Die Gehalte an Zink, insbesondere aber an Cadmium sind sehr hoch. Deutlich erhöhte Werte in den Eluaten liegen ebenso bei Kupfer, Kobalt und Nickel vor.

Abfallprobe CA 203

Die pH-Werte der Eluate der Abfallprobe CA 203 (feste Reaktionsprodukte aus der Abgasreinigung einer Abfallverbrennungsanlage) liegen ebenfalls im alkalischen Bereich (pH 11,0 bis 12,4); mit Ausnahme der Probe BD 8 + CA 203 betragen die Leitfähigkeiten 23 bis 35 mS cm⁻¹. Hauptbestandteil der Eluate sind auch hier Calcium und Chlorid, mit Anteilen von Kalium und Natrium. Der NaCl-Gehalt im Eluat BD 8 + CA 203 beträgt 115 g l⁻¹, Hauptkomponenten sind auch hier Natrium und Chlorid. Die Arsengehalte liegen unter der Nachweisgrenze. Die Bleigehalte sind relativ hoch mit Gehalten von 1 bis 37 mg l⁻¹. Die Gehalte an Cadmium, Chrom, Kobalt, Nickel und

Kupfer sind in den Eluaten der Abfallprobe CA 203 - wie in denen der Abfallprobe CA 200 - verhältnismäßig gering.

Abfallprobe CA 204

Die Eluate der Abfallprobe CA 204 (Grünsalz) weisen pH-Werte von 2,1 bis 2,8 auf; die Leitfähigkeiten betragen 18 bis 25 mS cm⁻¹ (BD 8 + CA 204 entsprechend 115 mS cm⁻¹). Hauptkomponenten der Eluate sind Eisen und Sulfat, wobei das Eisen weitgehend als Fe(II) vorliegt (entsprechend den Eh-pH-Stabilitätsfeldern für Fe(II) und Fe(III)). Die Gehalte an Natrium, Calcium und Magnesium liegen in der gleichen Größenordnung, wie bei den im Versuch eingesetzten Wässern vor. Die Kaliumgehalte liegen (mit Ausnahme des Eluats BD 8 + CA 204) unter der Nachweisgrenze. Unter der Nachweisgrenze liegen ebenso Arsen, Quecksilber, Lithium sowie bei der Mehrzahl der Eluate Blei. Die Gehalte der Schwermetalle Zink, Cadmium, Kobalt und Chrom sind aufgrund des geringen Schwermetallgehaltes der Abfallprobe CA 204 im Eluat ebenfalls gering.

Eine vergleichende Zusammenstellung der wesentlichen Analysenergebnisse ist in Tabelle 10 erfolgt.

Tabelle 10: Analysenergebnisse der Schüttelversuchseluate der untersuchten Abfall-Grundwasser - Systeme

Abfallprobe	pH-Wert	Leitfähigkeit [mS cm ⁻¹]	Hauptkomponenten	Bemerkungen
CA 200	12,2 - 12,7	25 -32 (131) ¹⁾	Calcium, Chlorid (Natrium) ¹⁾	hohe Konzentrationen an Blei
CA 201	3,5 - 6,0	81 - 94 (155) ¹⁾	Natrium, Chlorid erhöhte Sulfatwerte	hohe Konzentrationen an Zink und Cadmium
CA 202	5,4 - 6,4	34 - 41 (130) ¹⁾	Natrium, Sulfat (Chlorid) ¹⁾	hohe Konzentrationen an Zink und Cadmium (Blei) ¹⁾
CA 203	11,0 - 12,4	23 - 35 (122) ¹⁾	Calcium, Chlorid (Natrium) ¹⁾	hohe Konzentrationen an Blei
CA 204	2,1 - 2,8	18 - 25 (115) ¹⁾	Eisen, Sulfat	

1) Analysenergebnisse in Klammern: Systeme Grundwasser BD 8 und Abfallproben CA 200 bis CA 204

8.3.2 Kaskadenversuche

Für die Bewertung des Elutionsverhaltens von Abfällen sind insbesondere Löseversuche in Form von Kaskadenversuchen geeignet. Dabei werden die Konzentrationsverläufe der gelösten Bestandteile in den einzelnen Kaskaden und je nach Versuchsdurchführung die maximalen Konzentrationen gelöster Bestandteile im Eluat oder die maximale Auslaugung der Abfallproben - wie im Vorhaben - ermittelt. Die Leitfähigkeit erreicht bei allen durchgeführten Untersuchungsreihen bereits in den Eluaten der ersten Kaskade ihr Maximum (die Konzentrationsverläufe lassen sich indirekt anhand der ermittelten Leitfähigkeiten darstellen). Die Leitfähigkeiten der nachfolgenden Kaskaden 2 bis 5 sind dann abfallend und gegenüber der ersten Kaskade deutlich geringer. Bei den Abfallproben CA 201 und CA 202 werden in den Eluaten der fünften Kaskade die Leitfähigkeiten der jeweils eingesetzten Grundwässer weitgehend erreicht. Die Wechselwirkungsreaktionen dieser Systeme sind dann auch quantitativ weitgehend abgeschlossen.

In den Kaskadenversuchen mit der Abfallprobe CA 200 fällt die Abnahme der Leitfähigkeiten demgegenüber deutlich geringer aus. Daraus kann gefolgert werden, daß hier die Lösungsvorgänge auch nach fünf Kaskaden noch nicht abgeschlossen sind (Abbildung 13).

Der Leitfähigkeitsverlauf von Kaskade zu Kaskade ist generell auf die unterschiedliche Löslichkeit der Hauptelemente bzw. Mineralphasen in den Abfallproben zurückzuführen. So weisen Inhaltsstoffe mit hoher Löslichkeit im Verlauf der einzelnen aufeinanderfolgenden Kaskaden einen steilen Konzentrationsabfall auf, während bei Inhaltsstoffen mit geringer Löslichkeit der Konzentrationsabfall entsprechend geringer ist. In der ersten Kaskade geht beispielsweise das im untersuchten System vorhandene Chlorid fast vollständig in Lösung. Sulfat zeigt in den Kaskaden einen ebenso steilen Konzentrationsabfall, wobei die Konzentration allerdings in einigen Eluaten durch vorhandene CaSO_4 -Sättigung begrenzt wird.

Das im System vorhandene Calcium ist weniger leicht löslich; deshalb ist der Konzentrationsabfall im Verlauf der Kaskaden hier abgeflacht und die Gesamtkonzentration teilweise auch durch eine vorhandene Sättigung begrenzt.

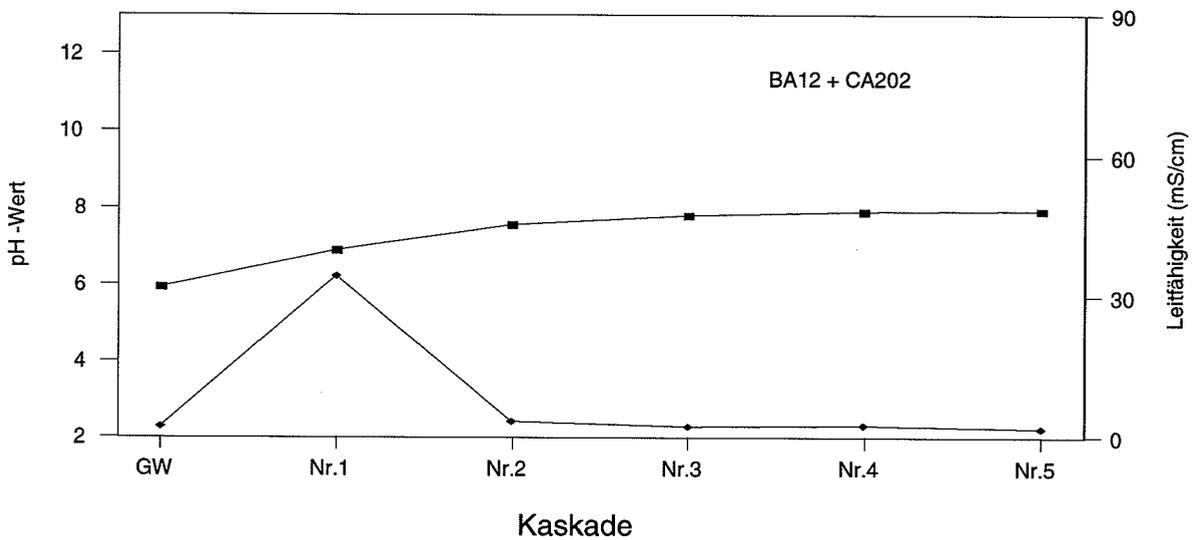
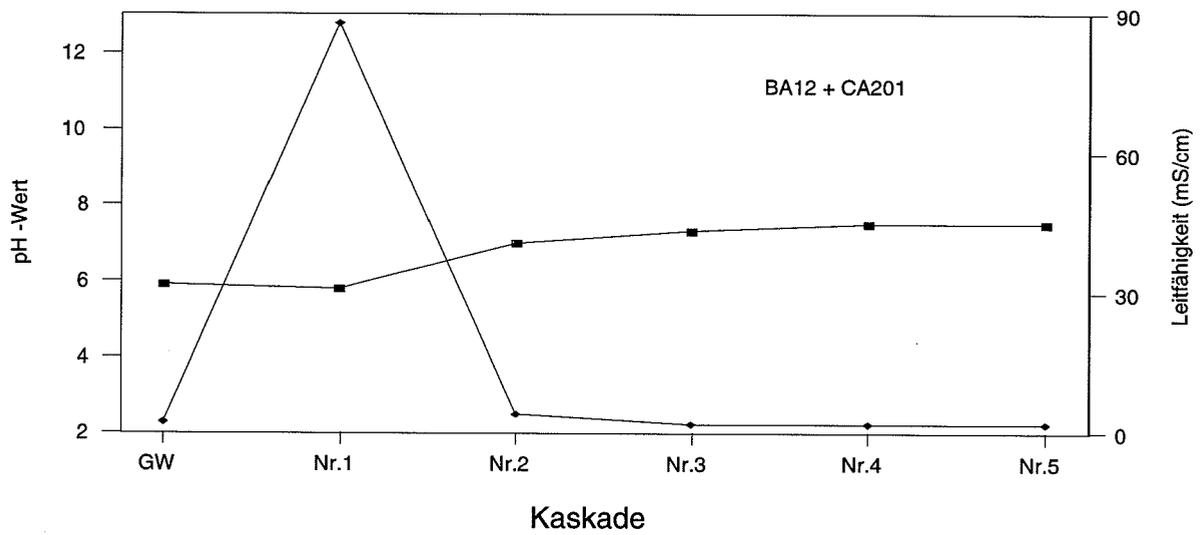
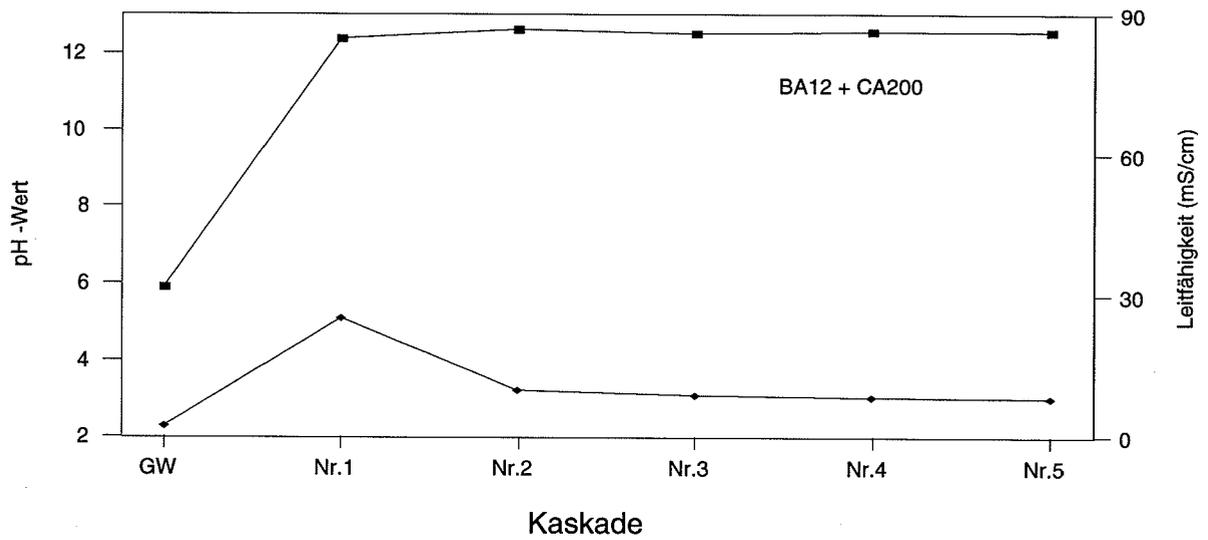


Abbildung 13: pH- und Leitfähigkeitsverlauf im Kaskadenversuch der Systeme Grundwasser BA 12 und Abfallproben CA 200, CA 201 und CA 202 (als Beispiel)

■ = pH-Wert, ◆ = Leitfähigkeit

Magnesium verhält sich sehr pH-Wert abhängig; im sauren und neutralen Bereich ist ein abflachender bis stetiger Konzentrationsverlauf zu erkennen, während bei pH-Werten von > 11 Magnesium aufgrund der Bildung des schwerlöslichen Magnesiumhydroxids im Eluat kaum noch nachzuweisen ist.

Bei den Nebenbestandteilen wird die Löslichkeit bzw. der Konzentrationsverlauf der untersuchten Elemente in den einzelnen Kaskaden neben dem Säure-Base-Verhältnis u. a. durch Vorgänge wie Ionenaustausch, Sorption, Komplexbildung und Mitfällung bestimmt. Diese Effekte treten - je geringer die Elementkonzentration im Gesamtsystem vorhanden ist - um so deutlicher hervor.

Zink, Cadmium und Kupfer weisen in den Untersuchungen eine hohe Löslichkeit auf. Der Konzentrationsabfall in den Kaskaden zeigt dementsprechend einen steilen Verlauf. Der gelöste Anteil kann allerdings auch deutlich zurückgehen, wie beim Eluat der Abfallprobe CA 200 im pH-Wert-Bereich von 12,0 bis 12,7. Der Konzentrationsverlauf in den Kaskaden ist beim Zink hier leicht abfallend und Kupfer in den Eluaten nur in geringen Konzentrationen nachweisbar; gelöstes Cadmium liegt unter der Nachweisgrenze. Deutlich erhöht sind dagegen in Eluaten der Abfallprobe CA 200 die Konzentrationen an Blei sowie an Chrom, mit einem schwach abfallenden Konzentrationsverlauf in den nachfolgenden Kaskaden.

Die Konzentrationen an Arsen und Quecksilber in den Eluaten der drei Abfallproben CA 200, CA 201 und CA 202 liegen unterhalb der Nachweisgrenze. Nickel und Kobalt treten in geringer Konzentration überwiegend in den Eluaten der ersten Kaskade auf.

Die pH-Werte der in den Kaskadenversuchen eingesetzten Grundwässer liegen in einem pH-Wert-Bereich von 2,9 - 9,7. Insbesondere in der ersten Kaskade werden die pH-Werte durch den Lösungseintrag stark verändert. So liegen die pH-Werte der Eluate der ersten Kaskade bei der Abfallprobe CA 200 in einem pH-Wert-Bereich von 12,0 - 12,4 (der Abfall reagiert basisch), bei der Abfallprobe CA 201 bei 4,0 - 5,8 sowie bei CA 202 bei 5,5 - 6,9.

Im System Grundwasser (GW) + CA 200 treten in den nachfolgenden Kaskadenschritten nur geringfügige Veränderungen in den pH-Werten auf. Das System wird hier durch das quantitativ vorhandene Calciumhydroxyd abgepuffert (s. Abbildung 13)

8.3.3 Säulenversuche

Die Eluate der durchgeführten Säulenversuche weisen gegenüber den aus Schüttelversuchen resultierenden Eluaten bei den Haupt- sowie Nebenbestandteilen deutliche Veränderungen auf. Die Ursachen hierfür sind dabei insbesondere auf die unterschiedlichen Elutionszeiten sowie die jeweilige Art der Versuchsdurchführung selbst zurückzuführen.

Die Chloridkonzentrationen der aus Säulen- wie auch Schüttelversuchen gewonnenen Eluate sind generell hoch bis sehr hoch, also i. w. unabhängig von der Kontaktzeit zwischen Grundwasser und Abfallprobe wie auch von der Versuchsdurchführung. Die Natriumkonzentrationen der Säulenversuchs-Eluate - insbesondere mit den Abfallproben CA 200 und CA 203 - sind dagegen, bei gleichzeitiger Konzentrationsabnahme des Calcium, als Folge eines Austausches von Calcium für Natrium deutlich höher. Das Verhalten von Kalium ist dem Natrium vergleichbar. Die in allen Eluaten allgemein geringen Magnesiumkonzentrationen sind speziell bei den Säulenversuchen (mit Ausnahme der alkalischen Eluate mit CA 200) leicht erhöht.

Die Sulfatkonzentrationen der Säulenversuchs-Eluate (Abfallproben CA 201 und CA 202) mit pH-Werten von 3,6 - 6,3 sind im Schüttel- wie auch Säulenversuch generell hoch und in vergleichbarer Größenordnung. Die Eluate der mit den Proben CA 200 sowie CA 203 gewonnenen Eluate mit pH-Werten > 11 weisen eine geringe Sulfatkonzentration auf; im Säulenversuch ist hier eine verstärkte Konzentrationsabnahme festzustellen, da es aufgrund der längeren Versuchszeit im Säulenversuch zur Fällung von Sulfat in der zuvor übersättigten Lösung kommt.

Die Schwermetalle Blei und Kupfer weisen in den Säulenversuchen - von einzelnen Beispielen (bei neutralem pH-Wert) abgesehen - eine deutliche Konzentrationsverringerung auf. Hierfür sind möglicherweise Sorptionsvorgänge an der Abfallprobe sowie Fällungs- und Mitfällungsprozesse verantwortlich. Keine Ausnahme macht hierbei auch das zumeist relativ lösliche Schwermetall Zink; insbesondere in den alkalischen Systemen GW + Abfallprobe sind die Zinkkonzentrationen im Säulenversuch deutlich niedriger als im Schüttel- und Kaskadenversuch, dies trifft abgeschwächt ebenso für Chrom, Nickel und Kobalt zu. Die Konzentrationen an Arsen und Quecksilber liegen bei allen untersuchten Eluaten unter der Nachweisgrenze.

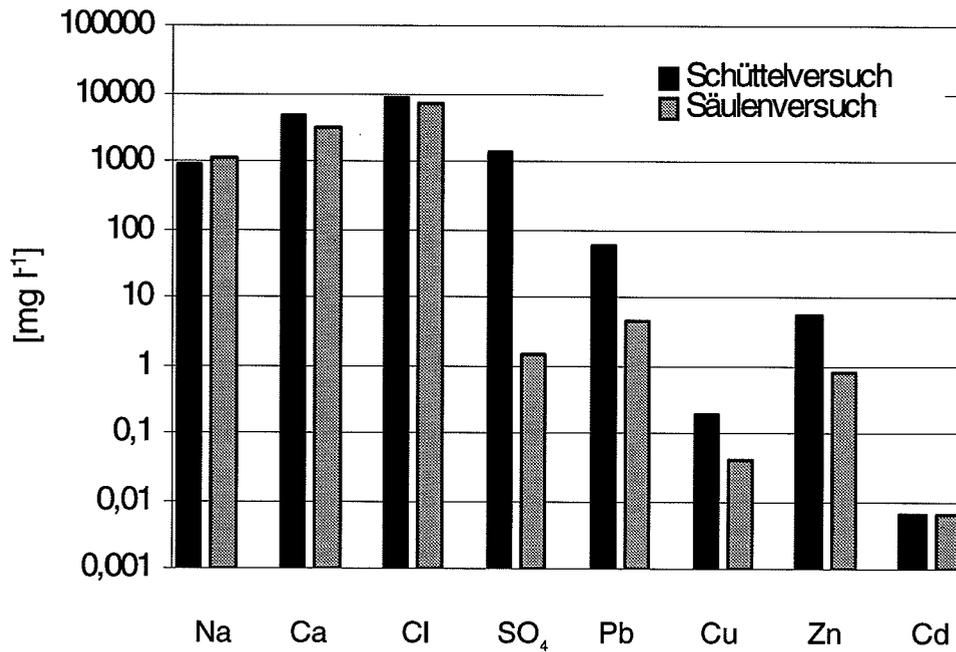


Abbildung 14: Elementkonzentrationen (Na, Ca, Cl, SO₄, Pb, Cu, Zn und Cd) der Eluate im Schüttelversuch (24 Stunden) sowie im Säulenversuch (140 Tage) des Systems BA 12 + CA 200 (als Beispiel)

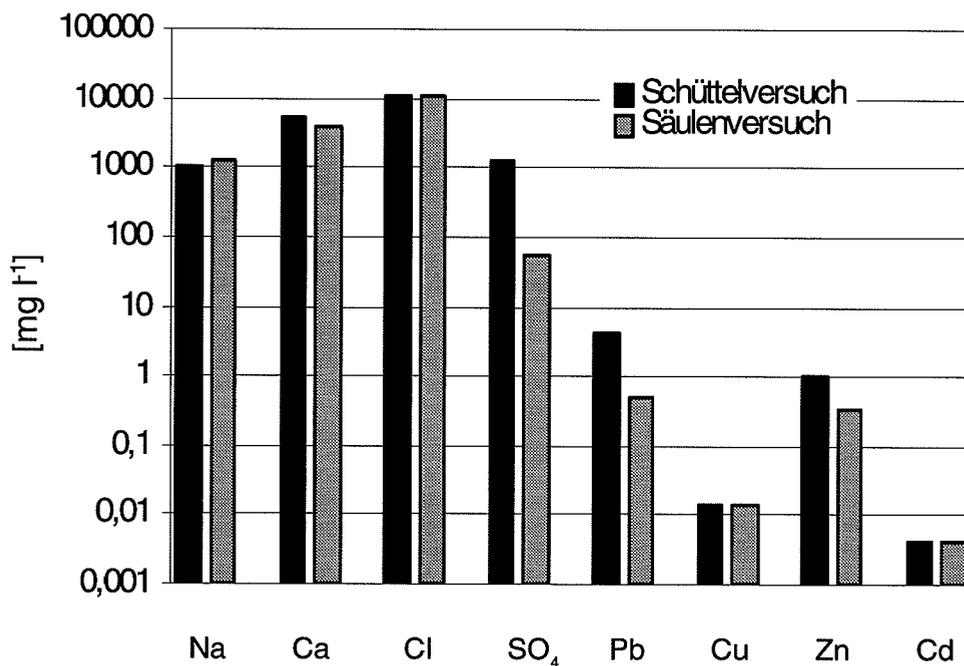


Abbildung 15: Elementkonzentrationen (Na, Ca, Cl, SO₄, Pb, Cu, Zn und Cd) der Eluate im Schüttelversuch (24 Stunden) sowie im Säulenversuch (140 Tage) des Systems BA 12 + CA 203 (als Beispiel)

8.4 Geochemische Modellrechnungen an ausgewählten Löseversuchs- eluat

Seit einigen Jahren sind Computerprogramme verfügbar, mit denen Zustände und Prozesse aquatischer Systeme auf Grundlage der Gleichgewichts-Thermodynamik modelliert und interpretiert werden können. Mit den in der Literatur verfügbaren Rechenprogrammen PHREEQC /PAR 95/ und WATEQ4F /BAL 87/ sind deshalb an ausgewählten Eluat

Zunächst sind die Eluate der untersuchten Systeme mit den Abfallproben CA 200, CA 201, CA 202 und CA 203 sowie den Grundwässern RZ 4 und AS 20 mit dem Rechenprogramm WATEQ4F hinsichtlich vorhandener übersättigter Mineralphasen überprüft worden. Diesen Gleichgewichtsberechnungen sind die analytisch ermittelten Elementkonzentrationen der Eluate sowie die pH-Werte der Schüttelversuchseluate (L) (1 Tag Kontaktzeit) und Umlaufsäulenversuchseluate (S) (140 Tage Kontaktzeit) zugrundegelegt worden. Der Eh-Wert ist mit 400 mV abgeschätzt worden. Die Gleichgewichtsberechnungen erfolgten für eine Temperatur von 20 °C, eine Dichte von 1 g ml⁻¹ und einen CO₂-Partialdruck von pCO₂ = 0. Die Mineralphasen mit einem Sättigungsindex > 0 sind in Tabelle 11 dargestellt.

Die Gleichgewichtsberechnungen zu den angegebenen Schüttelversuchseluat

Ergänzende Modellrechnungen sind auch mit PHREEQC durchgeführt worden. Dabei wurde ein möglicher Einfluß des CO₂-Partialdruckes auf die untersuchten Systeme überprüft. Für den gewählten CO₂-Partialdruck pCO₂ = 10 - 9,9 sind auch übersättigte karbonatische Phasen (u. a. Calcit und Aragonit) in den alkalischen Systemen CA 200 - RZ 4, CA 203 - RZ 4 bzw. CA 200 - AS 20 und CA 203 - AS 20 ermittelt worden.

Tabelle 11: Wechselwirkungsuntersuchungen im System Abfall-Grundwasser - Mit dem Programm WATEQ4F berechnete Übersättigungen in den resultierenden Eluaten

Abfallprobe	CA 200	CA 201	CA 202	CA 203
Grundwasser RZ 4				
Schüttelversuch (L)	Anhydrit, Gips, Tenorite (CuO), ZnO, Zinkit, Pb(OH) ₂	keine Übersättigungen	Anhydrit, Gips, Tenorite (CuO), Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ , Cu ₄ (OH) ₆ SO ₄ , Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ · 1H ₂ O	Anhydrit, Gips, ZnO, Zinkit, Pb(OH) ₂ , Pb ₂ (OH) ₃ Cl
Säulenversuch (S)	Pb(OH) ₂		Anhydrit, Gips, Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ , Cu ₄ (OH) ₆ SO ₄ , Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ · 1H ₂ O	
Grundwasser AS 20				
Schüttelversuch (L)	Anhydrit Gips, Tenorite (CuO), ZnO, Pb(OH) ₂		Anhydrit, Gips, Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ , Cu ₄ (OH) ₆ SO ₄ , Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ · 1H ₂ O	Anhydrit, Gips, ZnO, Zinkit, Pb(OH) ₂ , Pb ₂ (OH) ₃ Cl
Säulenversuch (S)	Pb(OH) ₂		Anhydrit, Gips, Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ , Cu ₄ (OH) ₆ SO ₄ , Cu ₃ (OH) ₄ SO ₄ · 1H ₂ O	ZnO, Zinkit,

Ein Vergleich der aus den Gleichgewichtsberechnungen resultierenden übersättigten Phasen mit denen der röntgenographisch ermittelten Mineralphasen der Ausfällungen in den Säulenversuchen (Tabelle 12 bis Tabelle 15) zeigt wesentliche Übereinstimmungen in den Mineralphasen der Hauptelemente. Die Ergebnisse der Berechnungen bestätigen darüber hinaus, daß mit Säulenversuchen (mit Kontaktzeiten Grundwasser / Abfall von mehreren Monaten) die wahren Verhältnisse, wie sie in einer UTD beim Kontakt von Grundwasser und Abfall ablaufen, deutlich besser beschrieben werden können als mit Schüttelversuchen (Kontaktzeit 24 Stunden).

8.5 Röntgendiffraktometrische Untersuchungen

Neben der röntgenographischen Untersuchung der Abfallproben im Originalzustand sind auch die Mineralphasen der sich aus den Kaskadenversuchen ergebenden Rückstände sowie der Ablagerungsprodukte im Vorratsbehälter der Säulenversuche bestimmt worden (Tabelle 12 bis Tabelle 15). Der Vergleich der in der jeweiligen Originalsubstanz identifizierten Mineralphasen, im Rückstand (Kaskadenversuch)

sowie in den Ablagerungsprodukten (Umlaufsäule) zeigt, daß Mineralphasen quantitativ gelöst, andere dagegen neu gebildet worden sind. Eine gelöste Mineralphase stellt u. a. Halit dar, neu gebildete Mineralphasen sind u. a. Calcit, Magnesit, Vaterit, Gips, Chlorapatit, Natriumkarbonat, Nantokit, Polyhalit, Blödit und Ankerit. Daneben sind im Rückstand (Kaskadenversuch) bzw. in den Ablagerungen (Vorratsbehälter der Säule) auch Mineralphasen identifiziert worden, die entsprechend den Bildungsbedingungen bereits in der Originalsubstanz vorhanden gewesen sein müssen, aber aufgrund der Peakhöhen der Basissubstanzen (z. B. Halit) im Röntgenspektrum der Originalsubstanz nicht identifiziert werden konnten (u. a. Wuestit, Allophan, Graphit, Quarz, und Rutil).

Tabelle 12: Ermittelte Mineralbestand der Probe CA 200 sowie der Rückstände und Ablagerungen der Löseversuche mit den Grundwässern RZ4, GS7, BD8, BA11, BA12, WI14, SC16, AS20, MI33, EL35 und Aqua dest.

Abfallprobe (Originalsubstanz)	Rückstand (Kaskadenversuch)	Ablagerungen (Säulenversuch)
Portlandit - Ca(OH)_2 Anhydrit - CaSO_4 Sylvin - KCl Kalium-Natriumsulfat - NaKSO_4 Kaolinit - $\text{Al(Si}_4\text{O}_{10}\text{)(OH)}_8$ Kaliumsilikat - $\text{K}_2\text{Si}_2\text{O}_5$	Portlandit - Ca(OH)_2 Anhydrit - CaSO_4 Kaliumsulfat - K_2SO_4 Calcit - CaCO_3 Gips - $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ Quarz - SiO_2	Calcit - CaCO_3 Magnesit - MgCO_3 Gips - $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ Vaterit - CaCO_3 Lime - CaO NaFeSulfitHydrat - $\text{Na}_5\text{FeS}_4\text{H}_4\text{O}_{14}$ Wuestit - FeO Kainit - $\text{KMg(SO}_4\text{)Cl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ CaSilikatHydrat - $\text{Ca}_{1,5}\text{SiO}_{3,5} \cdot \text{xH}_2\text{O}$ Bomit - Cu_5FeS_4 Bunsenit - NiO Sjogrenit - $\text{Mg}_5\text{Fe}_2\text{CO}_3(\text{OH})_{16} \cdot \text{x4H}_2\text{O}$ Bariumsulfid - BaS Brucit - Mg(OH)_2 Graphit - C

Tabelle 13: Ermittelter Mineralbestand der Probe CA 201 sowie der Rückstände und Ablagerungen der Löseversuche mit den Grundwässern RZ4, GS7, BD8, BA11, BA12, WI14, SC16, AS20, MI33, EL35 und Aqua dest.

Abfallprobe (Originalsubstanz)	Rückstand (Kaskadenversuch)	Ablagerungen (Säulenversuch)
Halit - NaCl Quarz - SiO ₂ Bariumsulfid - BaS	Fränklinit - Fe ₂ ZnO ₃ Bariumsulfid - BaS Quarz - SiO ₂ Calcit - CaCO ₃ Rutil - TiO ₂ Quarz - SiO ₂ Graphit - C Gips - CaSO ₄ x2H ₂ O	keine Ablagerungen

Tabelle 14: Ermittelter Mineralbestand der Probe CA 202 sowie der Rückstände und Ablagerungen der Löseversuche mit den Grundwässern RZ4, GS7, BD8, BA11, BA12, WI14, SC16, AS20, MI33, EL35 und Aqua dest.

Abfallprobe (Originalsubstanz)	Rückstand (Kaskadenversuch)	Ablagerungen (Säulenversuch)
Barium-Eisenoxid - BaFeO ₃ Barium-Kadmium - BaCd Kuranakhit - PbMnTeO ₆ Chlorit - FeAl ₂ SiO ₅ (OH) ₂ Halit - NaCl Eisen-Zink-Titanoxid - TiZnFeO ₄	Halit - NaCl Gips - CaSO ₄ x2H ₂ O Quarz - SiO ₂ Ankerit - (CaMg)(CO ₃) ₂ KAlSilicatHydrat - K Al Si H ₃ O _{5,5} Natriumkarbonat - Na ₂ CO ₃ Allophane - Al ₂ (SiO ₂) ₂ (OH) ₆ Graphit - C Anhydrit - CaSO ₄ Bariumsulfid - BaS Blödit - Na ₂ Mg(SO ₄) ₂ x4H ₂ O Hawleylte - CdS Magnesit - MgCO ₃ Nantokit - CuCl Hämatit - Fe ₂ O ₃ Aluminiumsilikat - AlSi _{0,5} O _{2,5}	Gips - CaSO ₄ x2H ₂ O Kainit - KMg(SO ₄)ClxH ₂ O Polyhalit - K ₂ Ca ₂ Mg(SO ₄) ₄ x2H ₂ O Ankerit - (CaMg)(CO ₃) ₂

Tabelle 15: Ermittelter Mineralbestand der Probe CA 203 sowie der Rückstände und Ablagerungen der Löseversuche mit den Grundwässern RZ4, GS7, BD8, BA11, BA12, WI14, SC16, AS20, MI33, EL35 und Aqua dest.

Abfallprobe (Originalsubstanz)	Rückstand (Kaskadenversuch)	Ablagerungen (Säulenversuch)
Natriumsulfat - Na_2SO_4 Sylvin - KCl Halit - NaCl K-Ca-Phosphat - $\text{Ca}_9\text{K}_{51}\text{P}_{23}\text{O}_{92}$ Kupfersulfid - Cu_2S Nickel-Titan - NiTi Titan-Zink - TiZn_5 Cobaltchlorid - CoCl_2 Natriumnitrat - NaNO_3 Natriumsiliciumfluoride - Na_2SiF_6	Calcit - CaCO_3 Anhydrit - CaSO_4 Quarz - SiO_2 Gips - $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ Graphit - C Chlorapatit - $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}$ Marshit - CuJ KFeSulfidHydrat - $\text{Na}_5\text{FeS}_4\text{H}_4\text{O}_{14}$ Magnesit - MgCO_3 Ettringit - $\text{Ca}_6\text{Al}_2\text{S}_3$	Calcit - CaCO_3 Wuestit - FeO Magnesit - MgCO_3 Allophan - $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{H}_6\text{O}_{10}$

8.6 Zusammenfassung

Die Untersuchungen von Wechselwirkungsreaktionen zwischen ausgewählten Abfällen und beprobten Grundwässern erfolgten als Löseversuche in Form von Schüttel-, Umlaufsäulen- und Kaskadenversuchen.

Alle im Vorhaben einbezogenen Abfallproben weisen demnach einen hohen löslichen Anteil auf. Lösliche Abfallbestandteile sind insbesondere amorphe wie kristalline Phasen der Elemente Na, Ca und K, Mg sowie Cl und S bzw. SO_4 . Daneben sind Fe, Mn sowie die Schwermetalle Zn, Cd, Pb, Cu, Co, Cr und Ni mit z. T. hohen Konzentrationen in den Eluaten vertreten.

Die löslichen Abfallbestandteile überprägen dabei den ursprünglichen Chemismus der Grundwässer so entscheidend, daß beispielsweise alle Eluate einer Abfallprobe einen relativ einheitlichen Chemismus aufweisen und ein Einfluß der in den Versuchen eingesetzten (unterschiedlichen) Grundwassertypen nicht mehr festgestellt werden kann, wobei das System mit der Salzsole BD 8 im Vergleich zu den übrigen Eluaten immer eine deutlich höhere NaCl-Konzentration aufweist (Abbildung 12).

Ein Vergleich von Löseversuchs-Eluaten derselben Abfallprobe bei verschiedenartiger Versuchsdurchführung (Schüttel-, Kaskaden- bzw. Umlaufsäulenversuch) zeigt

Konzentrationsunterschiede der Lösungsbestandteile, die in erster Linie auf das ungleiche Volumen- / Masseverhältnis sowie die unterschiedliche Versuchzeit (ein Tag bzw. 140 Tage) zurückzuführen sind. So sind die gelösten Konzentrationen der Elemente Blei, Kupfer, Cadmium, aber auch Zink, in der Mehrzahl der Umlaufsäulen-Eluate (Kontaktzeit 140 Tage) geringer als in den entsprechenden Schüttelversuchs-Eluaten (Kontaktzeit 1 Tag). Ursache hierfür sind langsam ablaufende Wechselwirkungsreaktionen, die nach einer Kontaktzeit (Abfall / Grundwasser) von 24 Stunden noch nach wie vor wirksam sind. Fällungsreaktionen an den untersuchten Systemen laufen auch noch nach mehreren Tagen quantitativ ab.

Gleichgewichtsberechnungen zu den Löseversuchseluaten bestätigen, daß nach 24 Stunden Kontaktzeit im Schüttelversuch kein, in den Säulenversuchen (Kontaktzeit 140 Tage) dagegen annähernd chemisches Gleichgewicht erreicht worden ist.

Ein Vergleich der aus den Gleichgewichtsberechnungen resultierenden übersättigten Phasen mit denen der röntgenographisch ermittelten Mineralphasen der Ausfällungen in den Säulenversuchen zeigt eine wesentliche Übereinstimmungen in den Mineralphasen der Hauptelemente.

Die Ergebnisse lassen darüber hinaus den Schluß zu, daß mit Langzeit-Säulenversuchen die wahren Verhältnisse, wie sie in einer UTD beim Kontakt von Grundwasser und Abfall ablaufen, deutlich besser beschrieben werden können als mit Kurzzeit-Schüttelversuchen.

9 Literatur

- /BAL87/ Ball, J.W., Nordstrom, D.K. & Zachmann, D.W.
WATEQ4F - A Personal Computer FORTRAN Translation of the
Geochemical Model WATEQ2 with Revised Data Base
U.S. Geological Survey, Open-File Report 87-50; Menlo Park, California,
1987
- /BRA 91/ Brassler, Th., Brewitz, W., Gläß, F., Jakob, G., Kallmerten, W., Meyer, Th.,
Mühlenweg, U., Pitterich, H., Starke, Ch.
Aspekte der untertägigen Ablagerung von Abfällen
Erich Schmidt Verlag, 1991
- /BUN 90/ Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe
Übertägige geowissenschaftliche Erkundung des Standortes Gorleben
Zusammenfassender Bericht, Hannover, 1990
- /GES 82/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH
Eignungsprüfung der Schachtanlage Konrad für die Endlagerung
radioaktiver Abfälle
Abschlußbericht, GSF - T 136, München, 1982
- /KEL 92/ Kelm, U., Möller, H.
Studie zur untertägigen Entsorgung und Verwertung bergbaufremder Stoffe
in der Bundesrepublik Deutschland
Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 5094, Karlsruhe, 1992
- /LEU 62/ Leutwein, F., Weise, L.
Hydrogeochemische Untersuchungen an Erzgebirgischen Gruben- und
Oberflächenwässern
Geochimica et Cosmochimica Acta, Bd. 26, S.1333 - 1348, 1962
- /MAT 90/ Mattheß, G.
Die Beschaffenheit des Grundwassers
Gebrüder Borntraeger Berlin Stuttgart, 1990
- /MÜH 90/ Mühlenweg, U.
Untersuchung der Wechselwirkungen Abfall - Wirtsgestein bei der
untertägigen Ablagerung von Sonderabfällen in Salzgesteinen
Z. dt. geol. Ges., Bd. 141, 248-254, Hannover, 1990
- /MÜL 75/ Müller, E. P., Papendieck, G.
Zur Verteilung, Genese und Dynamik von Tiefenwässern unter besonderer
Berücksichtigung des Zechsteins
Z. geol. Wiss., Bd. 3, S. 167-196, Berlin, 1975

- /PAR 95/ Parkhurst, D.L.
User's Guide to PHREEQC - A Computer Program for Speciation,
Reaction-Path, Advective-Transport and Inverse Geochemical Calculations
U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report, 95-4227;
Lakewood, Colorado, 1995
- /PUC 64/ Puchelt, H.
Zur Geochemie der Grubenwässer im Ruhrgebiet
Z. dt. geol. Ges., Bd. 116, S. 167-203, Hannover, 1964
- /RÖT 91/ Röthemeyer, H.
Endlagerung radioaktiver Abfälle
VCH, Weinheim New York Basel Cambridge, 1991
- /SCH 96/ Schade, H.
Anforderungen und Technische Regeln für die Stoffliche Verwertung von
Reststoffen/Abfällen
Glückauf 132, Bd. 7, S. 371-378, Essen, 1996
- /STR 97/ Striegel, K.-H.
Die untertägige Verwertung von Reststoffen in der Bundesrepublik
Deutschland
Müllhandbuch, Lfg. 4/97, Kennziffer 8196, 1997
- /UDL 77/ Udluft, P.
Nutzung von Tiefengrundwasser zur Trinkwasserversorgung
Z. dt. geol. Ges., Bd 128, 451-459, Hannover, 1977
- /UMW 96/ Umweltministerium
Abgrenzung von Verwertung und Beseitigung bei der Einbringung von
Abfällen in bergbauliche Hohlräume nach Untertage (Versatz)
RdErl. d. MU v. 7. 6. 1996 - 503-62812/60/4, Nds. Mbl. Nr 29, 1996
- /WIL 91/ Wilke, F. L.
Untertageverbringung von Sonderabfällen in Stein- und
Braunkohleformationen
Rat von Sachverständigen für Umweltfragen (Hrsg.), Materialien zur
Umweltforschung, Metzler-Poeschel Stuttgart, 1991

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln
Telefon +49 221 2068-0
Telefax +49 221 2068-888

Forschungsinstitute
85748 Garching b. München
Telefon +49 89 32004-0
Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200
10719 Berlin
Telefon +49 30 88589-0
Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4
38122 Braunschweig
Telefon +49 531 8012-0
Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de