

H. DOHRMANN & K. KNÖLLER

## Auswirkungen des Tagebaubetriebes auf die Hydrochemie des Kippenkörpers

Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sektion Hydrogeologie

### Kurzfassung

*Die hydrochemische Beschaffenheitsentwicklung des Kippenwassers ist im Initialstadium der Kippe eng an technologisch bedingte und geochemisch relevante Struktureinheiten sowie an die hydraulische Entwicklung des Kippenkörpers gekoppelt.*

*Anhand von Sedimentuntersuchungen wird deutlich, daß die Kippe hinsichtlich ihrer geochemischen Beschaffenheit dem Schüttprozeß zuzuordnende endogene Strukturen aufweist. Durch die Bestimmung der elektrischen Bodenleitfähigkeit und des Boden-pH-Wertes läßt sich in den Hangendpartien der ASK eine rezente und der FBK eine konservierte (fossile), der Morphologie folgende Zone sekundärer Sulfidverwitterung nachweisen.*

*Anhand von in-situ-Untersuchungen und Laborversuchen konnten für ein begrenztes Untersuchungsgebiet unmittelbar südlich des Restsees Cospuden strukturbezogene Beschaffenheitsmuster von Kippenwässern gezeigt werden (DOHRMANN, 1999). Die Klassifikation beschreibt für den hauptsächlichen Kippenteil der FBK und ASK durch Sulfidoxidation geprägte, allerdings nichtversauerte Kippenwässer (Reaktionsraum „Kippenkörper“) und durch starke Versauerung und eine hohe Mineralisation geprägte Beschaffenheit von Kippenwässern innerhalb der Verwitterungszonen (Reaktionsraum Verwitterungszone).*

*Anhand von Bohrungen und Felduntersuchungen konnte weiterhin gezeigt werden, daß der Wasserfüllprozeß des Kippenkörpers auch in tieferen Schichten noch nicht abgeschlossen war. Die hydraulische Situation im Untersuchungsgebiet zeigte sich äußerst instabil. Nach der laborativen Bestimmung hydraulisch wesentlicher Sedimentparameter wie  $k_f$ -Wert, Sättigung und Porosität sowie der Grundwasserneubildung wurde mit Hilfe der hydrodynamischen Modellierung zur Beschreibung ungesättigter und gesättigter Zonen von Porengrundwasserleitern die Sensitivität dieser Einflußgrößen auf die Sättigungsentwicklung des Kippenkörpers untersucht (CHRISTOPH et al., 1999). Die Modellstudien zeigen, daß der Wasseranstieg in bindigen Mischbodenkippen primär durch schwerkraftgerichtetes bewegliches Porenwasser stattfindet. Erst nachdem dieser Vorgang nach mehreren Jahren abgeschlossen ist, gewinnen die Grundwasserneubildung und laterale Zuflüsse an Bedeutung. Inwieweit sich Beschaffenheitsmuster nach DOHRMANN (1999) und die spezielle hydraulische Situation nach CHRISTOPH et al. (1999) in der Kippenwasserbeschaffenheit der alten Kippe Zwenkau widerspiegeln wird im folgenden mittels in-situ-Messungen auf der alten Kippe Zwenkau dargestellt. Diese Darstellung liefert eine hydrochemische Übersicht einer typischen Tagebaukippe des Weißelsterbeckens. Anhand der Untersuchungen kann ein konzeptionelles Modell, das die Qualitätsentwicklung des Kippenwassers in der Phase des Wasserwiederanstiegs beschreibt, erarbeitet werden.*

*Dieses konzeptionelle Modell erlaubt, hydro- und isotopengeochemische Untersuchungen in Grundwassermeßstellen älterer Kippenteile zu interpretieren. Die Förderbrückenkippe zeigt im Gegensatz zur Absetzerkippe eine größere Variabilität der Menge an Pyritoxidationsprodukten und anorganischen Karbonatspezies der wässrigen Phase. Aus diesem Grund können nur für die ASK anhand von gemessenen Sulfatkonzentrationen und  $\delta^{34}\text{S}$  ( $\text{SO}_4^{2-}$ )-Werten modellmäßig effektive Sulfatreduktionsraten von 50 mg/l-a abgeleitet werden.*

## Einleitung

Angewandte Sanierungsstrategie des Bergbautreibenden im Mitteldeutschen Revier ist die Flutung des durch Massendefizit entstandenen Restloches und die folgende meist erholungsorientierte Nutzung des Areals. Im Sinne dieser Vorgehensweise sind Kippen, die im hydraulischen, geochemischen und biologischen Regime durch den intensiven Eingriff am gestörtesten zurückbleiben, als Randbedingung zu peripheren Grundwasserleitern und den entstehenden Restseen, die hydrogeologisch am schwersten abzuschätzende Einflußgröße.

Die von hydrochemischen Prozessen (Sulfidoxidation, Säurepufferreaktionen, Sulfat-reduktion) geprägte Grundwasserqualität in Tagebaukippen des Untersuchungsgebietes ist von einer Reihe anthropogener (alle bergbaulichen Einflüsse) und geogener (Mineralgehalte, Substrateigenschaften etc.) Faktoren abhängig.

Die hydrochemische Beschaffenheitsentwicklung des Kippenwassers ist im Initialstadium der Kippe eng an technologisch bedingte und geochemisch relevante Struktureinheiten sowie an die hydraulische Entwicklung des Kippenkörpers gekoppelt.

Eine Strukturaufklärung war über Boden-Lf- und -pH-Profile anhand des erbohrten Materials der Meßstellen 1, 2, 3, 4, 5 und 6 (Abb. 1) möglich. Durch die Dominanz stark verwitterter Schichten im Kippenkörper war eine erkennbare hydrochemisch relevante Zonierung des Kippenkörpers in erster Linie im Vertikalprofil zu erwarten.

Wie in Abb. 1 dargestellt ist, können anhand der erhobenen Sedimentparameter Verwitterungszonen im Hangendbereich der ASK (VWZ<sub>ASK</sub>) und FBK (VWZ<sub>FBK</sub>) nachgewiesen werden. Die übrigen Bereiche beider Kippenteile zeigen auf Sulfidoxidation zurückzuführende erhöhte Bodenleitfähigkeiten, sind allerdings nicht versauert.

Weiteren Aufschluß über hydrochemisch relevante Struktureinheiten in Kippen des Untersuchungsgebietes geben, unter der Annahme einer relativ homogenen Mischung des geogenen Ausgangsmaterials durch die Tagebaugeräte, Messungen des Sulfidschwefels der Kippen-sedimente. Im Untersuchungsgebiet wird die vertikale Zonierung durch geringe Sulfid-schwefelgehalte (0 bis 0,2 Gew.-%) im Bereich der Verwitterungszonen und höhere Werte (im Mittel: ASK 1,22 Gew.-%, FBK 1,11 Gew.-%) außerhalb der Verwitterungszonen bestätigt.

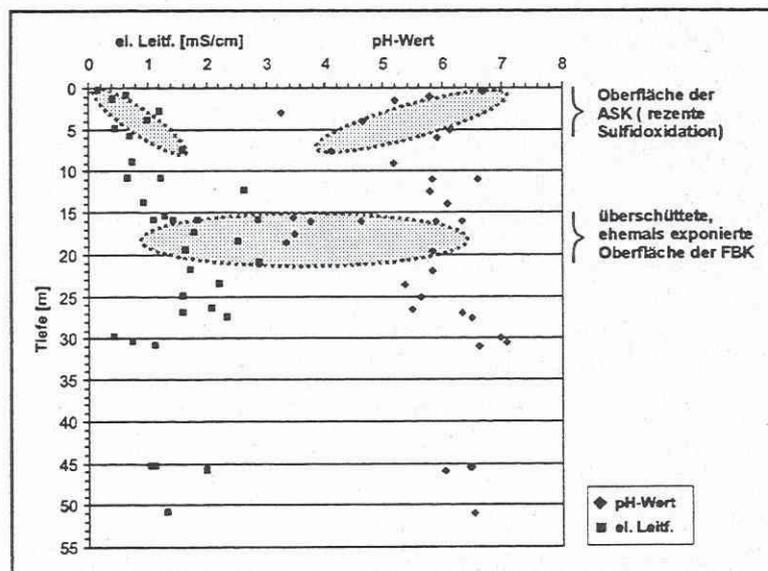


Abb. 1: pH-Werte und el. Leitfähigkeiten von Sedimenten aus 6 verschiedenen Kippenbohrungen

Aus den Sedimentuntersuchungen wird deutlich, daß die Kippe hinsichtlich ihrer geochemischen Beschaffenheit dem Schüttprozeß zuzuordnende endogene Strukturen aufweist. Durch die Bestimmung der elektrischen Bodenleitfähigkeit und des Boden-pH-Wertes läßt sich in den Hangendpartien der ASK eine rezente und der FBK eine konservierte (fossile), der Morphologie folgende Zone sekundärer Sulfidverwitterung nachweisen.

Anhand von in-situ-Untersuchungen und Laborversuchen konnten für ein begrenztes Untersuchungsgebiet unmittelbar südlich des Restsees Cospuden strukturbezogene Beschaffenheitsmuster von Kippenwässern gezeigt werden (DOHRMANN, 1999). Die Klassifikation beschreibt für den hauptsächlich Kippenteil der FBK und ASK durch Sulfidoxidation geprägte, allerdings nichtversauerte Kippenwässer (Reaktionsraum „Kippenkörper“) und durch starke Versauerung und eine hohe Mineralisation geprägte Beschaffenheit von Kippenwässern innerhalb der Verwitterungszonen (Reaktionsraum Verwitterungszone).

Anhand von Bohrungen und Felduntersuchungen konnte weiterhin gezeigt werden, daß der Wasserfüllprozeß des Kippenkörpers auch in tieferen Schichten noch nicht abgeschlossen war. Die hydraulische Situation im Untersuchungsgebiet zeigte sich äußerst instabil. Nach der laborativen Bestimmung hydraulisch wesentlicher Sedimentparameter wie  $k_f$ -Wert, Sättigung und Porosität sowie der Grundwasserneubildung wurde mit Hilfe der hydrodynamischen Modellierung zur Beschreibung ungesättigter und gesättigter Zonen von Porengrundwasserleitern die Sensitivität dieser Einflußgrößen auf die Sättigungsentwicklung des Kippenkörpers untersucht (CHRISTOPH *et al.*, 1999). Die Modellstudien zeigen, daß der Wasseranstieg in bindigen Mischbodenkippen primär durch schwerkraftgerichtetes bewegliches Porenwasser stattfindet. Erst nachdem dieser Vorgang nach mehreren Jahren abgeschlossen ist, gewinnen die Grundwasserneubildung und laterale Zuflüsse an Bedeutung. Inwieweit sich Beschaffenheitsmuster nach DOHRMANN (1999) und die spezielle hydraulische Situation nach CHRISTOPH *et al.* (1999) in der Kippenwasserbeschaffenheit der alten Kippe Zwenkau widerspiegeln, soll im folgenden, mittels in-situ-Messungen dargestellt werden. Diese Darstellung liefert eine hydrochemische Übersicht einer typischen Tagebaukippe des Weißelsterbeckens. Anhand der Untersuchungen kann ein konzeptionelles Modell, das die Qualitätsentwicklung des Kippenwassers in der Phase des Wasserwiederanstiegs beschreibt, erarbeitet werden. Weiterhin wird untersucht, inwieweit ein Sulfatabbautrend im Kippenkörper nachweisbar ist.

In Voruntersuchungen wurde in K-GWM organoleptisch  $H_2S$ -Gas nachgewiesen, wodurch belegt ist, daß Sulfatabbauprozesse im Kippenkörper stattfinden. Es wird erwartet, daß durch die Altersabhängigkeit der Untersuchungen der dissimilatorische Sulfatabbau, durch das Angebot an organischem Kohlenstoff und den Sulfatgehalten gesteuert, in vergleichbaren Kippenabschnitten mit zunehmendem Kippenalter weiter fortschreitet, und größenordnungsmäßig beschreibbar ist. Die Untersuchungen wurden mit dem Ziel gestaltet, die Relevanz, den Entwicklungstrend und die Unterschiede der getrennt geschütteten Kippenkörper (ASK und FBK) hinsichtlich der Sulfatreduktion aufzuzeigen.

### **Untersuchungen zur Hydrochemie und altersabhängigen Beschaffenheit Zwenkauer Kippenwässer**

Im Untersuchungsgebiet (Abb. 2) ist ein einfaches Pegelmeßnetz installiert. Es besteht hauptsächlich aus 2" Mehrfachmeßstellen, wobei in der Regel in zwei Meßrohren die Bereiche der ASK und FBK verfiltert sind.

Um die Pegelmeßstellen zur Untersuchung der Grundwassergüte heranzuziehen, bedarf es sorgfältiger Prüfung des Meßstellenausbaus. Es wurden zur Gütebestimmung nur jene Meßstellen herangezogen, deren Ausbau anhand von Verzeichnissen nachvollziehbar war.

Durch diese Vorgehensweise wurde weitestgehend sichergestellt, daß die Kippenwässer der ASK und der FBK getrennt betrachtet werden konnten. Ein weiteres Selektionskriterium zur Sicherung der Repräsentanz der Grundwasserproben war die Erneuerung des Standwasservolumens. In der Regel erfolgte eine dreimaliger Austausch des Standrohrvolumens, bei gringerer Schüttung der Meßstelle wurde mindestens 3 x das Filtervolumenequivalent ausgetauscht.

Das Schüttungsalter der Kippenteile am Ort der Probenahme ist aus Tagebaurissen bekannt. Die Niederbringung der Meßstellen erfolgte in der Regel 2 Jahre nach Abschluß der Absetzerkippenerschüttung. Abb. 2 zeigt die Lage der Meßstellen mit Angaben zum Schüttungsalter der jeweiligen Kippenteile (FBK und ASK).

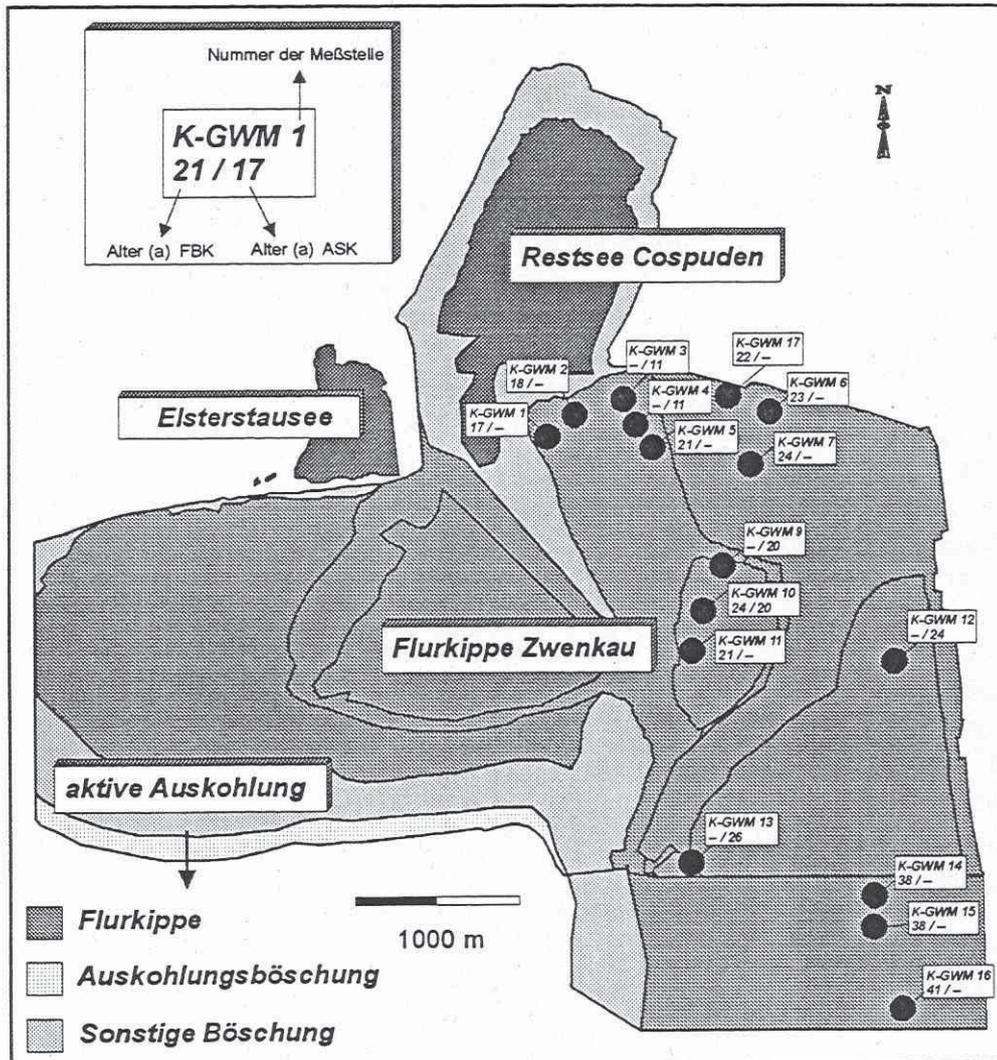


Abb. 2: Lage der Meßstellen und Altersangabe der Kippenteile (FBK und ASK) zur Zeit der Messungen (Frühjahr bis Sommer, 1997)

Die Förderung der Grundwässer erfolgt mit der Unterwassermotorpumpe GRUNDFOS® MP1. Das Abpumpen wurde durch online gemessene Milieuparameter (Redoxpotential, pH-Wert, elektrische Leitfähigkeit, Temperatur und Sauerstoffgehalt) kontrolliert. Der optimale Probenahmezeitpunkt wurde entsprechend dem Austauschvolumen bei Parameterkonstanz ermittelt. Untersucht wurden je Meßstelle, neben den o.g. Milieuparametern:

- **Kationen:** K, Na, Ca, Mg, Fe (stets: gesamt Fe, teilweise:  $\text{Fe}^{2+/3+}$ ), Mn;
- **Anionen:** Sulfat, Chlorid, Nitrat, Bromid, Fluorid
- **Spurenelemente/Schwermetalle:** Al, As, B, Ba, Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Mn und Ni
- **Isotopenzusammensetzungen:**  $\delta^{34}\text{S}(\text{SO}_4^{2-})$

Die Beprobung fand im Zeitraum März bis Juni 1997 statt. Insgesamt wurden 17 Grundwasserproben gefördert, davon 6 ASK-Proben und 11 FBK-Proben.

Vertikal repräsentative Untersuchungen zur Zonierung in den einzelnen Kippenteilen waren aufgrund der Ausbauspezifika der Meßstellen nicht möglich. Wie bereits erwähnt, war anhand des gegebenen Ausbaus der Meßstellen eine Zuordnung der Wässer zu den Kippenbereichen ASK und FBK möglich. Für die untersuchten Wässer konnte eine maximale Liegezeit der FBK zum Zeitpunkt der Untersuchungen von 41 Jahren und der ASK von 26 Jahren ermittelt werden. Die jüngsten untersuchten Kippenabschnitte lagen 11 Jahre (ASK) bzw. 18 Jahre (FBK).

Trotz der erwarteten Heterogenität der ASK wurden in diesem Kippenteil im Gegensatz zur FBK mit zunehmendem Kippenalter abnehmende Inhaltsstoffkonzentrationen der Porenwässer nachgewiesen. Neben einem abnehmenden Trend in der ASK wird mit zunehmender Liegezeit der FBK deutlich, daß die Sulfatkonzentration stärker streut. Zeitlich abnehmende Konzentrationen sind in der ASK für die Ionen K, Na, Mg, Ca, Sulfat und Bor zu verzeichnen.

Ein einheitlicher zeitlicher Trend kann an Wässern der FBK nicht nachgewiesen werden. So wurde z.B. an dem Kippenwasser der Meßstelle 16, Liegezeit der FBK 41 Jahre, die höchste Mineralisation und einer der geringsten pH-Werte aller Kippenwasserproben nachgewiesen.

Im folgenden wird gezeigt, daß die Kippenwässer durch ein vergleichbares hydrochemisches Milieu geprägt sind, wobei die Sulfat-, Eisen- und Hydrogenkarbonatkonzentrationen der FBK mit zunehmendem Kippenalter größeren Streuungen unterliegen.

### Hydrochemische Parameter und Sättigungsberechnungen

Vergleiche mit Grundwässern tertiärer Grundwasserleiter aus dem Tagebauvorfeld Cospuden, die nicht durch Sulfidoxidation infolge der Grundwasserabsenkung beeinflusst sind, ergeben, daß sämtliche analysierten Ionenkonzentrationen in Kippengrundwässern höhere Werte aufweisen.

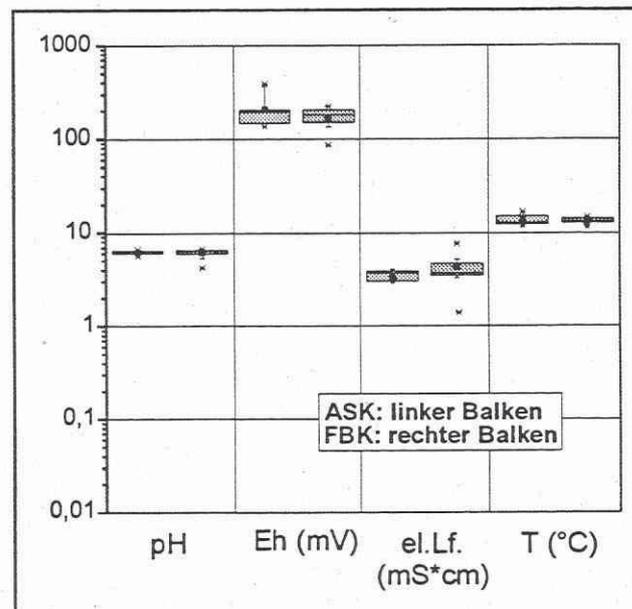


Abb. 3: Spannweiten der Milieuparameter der ASK und FBK

Am deutlichsten sind die Erhöhungen der Eisen-, Sulfat-, Kalzium-, Magnesium-, Natrium-, Chlorid- und Kaliumkonzentrationen (in aufgeführter Reihenfolge).

Die Kippengrundwässer der ASK und der FBK befinden sich ausnahmslos im anoxischen Zustand, bei positiven Redoxpotentialen (Eh-Wert) von 167 bis 206 mV. Die Grundwässer der einzelnen Kippenteile (ASK, FBK) sind gegenüber tertiären Grundwasserleitern des Tagebauvorfeldes mit pH-Werten im schwach sauren Bereich erniedrigt bzw. mit elektrischen Leitfähigkeiten von durchschnittlich 3,26 bis 4,23 erhöht (Tab. 1). Die Kippenwässer sind demnach durch eine erhöhte Mineralisation gekennzeichnet, die aufgrund der spezifischen Lösungsinhalte (Tab. 1) auf vorausgegangene Oxidation von Sulfiden zurückzuführen ist. Die größere Variabilität der elektrischen Leitfähigkeit der FBK wird in einem Spannweitendiagramm (Abb. 3) deutlich. Aufgrund der graphischen Auswertung der erhobenen Daten in Spannweitendiagrammen werden im folgenden durch Wertetabellen nur Minimum und Maximum und Mittelwert der Meßwerte angezeigt.

Tabelle 1: Spannweiten von Stoffkonzentrationen der ASK und FBK \*(n: ASK/FBK)

C [mg/l]	ASK			FBK		
	MIN	MAX	MW	MIN	MAX	MW
<i>Milieuparameter</i>						
pH	5,63	6,66	6,21	4,21	6,65	6,11
el. Lf. (mS/cm)	1,42	4,02	3,26	3,26	7,58	4,23
Eh (mV)	135	383	207	85	220	167
T (°C)	11,5	16,4	13,2	11,2	14,6	12,9
<i>Hauptanionen</i>						
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (6/11)*	798,15	2169,30	1597,31	575,97	12630	3057,96
Cl <sup>-</sup> (6/11)*	59,19	112,40	77,10	24,80	193,81	71,52
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (6/11)*	79,35	793,52	595,14	164,80	885,08	659,84
<i>Hauptkationen</i>						
K <sup>+</sup> (6/11)*	8,53	15,16	11,92	1,00	25,38	13,71
Na <sup>+</sup> (6/11)*	18,70	106,00	54,17	20,30	156,00	49,49
Ca <sup>++</sup> (6/11)*	185,50	760,00	563,25	376,00	661,00	559,89
Mg <sup>++</sup> (6/11)*	49,75	244,90	158,18	133,50	443,00	232,19
Fe (ges.) (6/11)*	1,14	109,00	47,90	3,56	914,00	223,03
<i>Schwermetalle, Spurenelemente und DOC</i>						
DOC (4/7)*	3,80	26,50	10,92	3,49	19,60	8,29
Mn (6/10)*	1,28	23,03	6,64	1,71	11,51	5,58
Zn (5/8)*	0,04	0,17	0,07	0,02	0,51	0,12
Ba (5/10)*	0,01	0,03	0,02	0,01	0,03	0,02
B (6/10)*	0,06	0,80	0,39	0,06	0,56	0,27
Ni (2/5)*	0,08	0,24		0,10	0,89	0,26
P (6/9)*	0,27	0,52	0,39	0,27	2,69	0,89
Al (1/2)*		0,27		0,88	3,10	

Die Variation der Konzentration der Hauptanionen ist in Abb. 4 verdeutlicht. Wie bereits anhand der el. Leitfähigkeit als Summenparameter der Lösungskonzentration festzustellen ist, sind die mittleren Sulfatgehalte der FBK im Gegensatz zur ASK höher und variieren stärker. Starken Schwankungen unterworfen ist auch die Konzentration des Gesamteisen der FBK im Gegensatz zur ASK. Diese beiden Inhaltsstoffe stehen im direkten Zusammenhang mit der Sulfidverwitterung. Da die FBK generell eine längere Liegedauer als die ASK aufweist, und sie von der im Mittel 15 m mächtigen ASK abgedeckt wird, können die höheren Werte an

Sulfat und Eisen in der FBK keinesfalls durch eine rezente Oxidation von Eisensulfiden erklärt werden.

Die Konzentrationsspannweiten sind in Tab. 1 dargestellt. Es wird deutlich, daß die Kalzium-, Magnesium-, Chlorid- und Hydrogenkarbonationenkonzentration und nahezu alle Schwermetalle und Spurenelement in beiden Kippenteilen in vergleichbar hohem Bereich liegen. Als Ausnahme: gelöstes Zink ist in der FBK im Mittel etwa zehnfach höher als in der ASK. Die gelösten Konzentrationen der Elemente Ni und Al sind in der FBK ebenfalls erhöht. Die Ionenkonzentrationen der Kippenwässer bestätigen insgesamt die analogen hydrochemischen Verhältnisse beider Kippenteile.

Die durchschnittlichen Gehalte an gelöstem organischen Kohlenstoff (DOC) der Kippenwässer (Tab. 1) bewegen sich größenordnungsmäßig im von SIGG & STUMM (1994) angeführten Bereich eutropher Seen und deuten damit einen hohen Anteil an gelöstem organischen Kohlenstoff (DOC) in Kippenwässern an. Im Zuge der Bodenbildung ist bekannt, daß DOC-Konzentrationen kontinuierlich mit der Sickerwasserpassage abnehmen. So geben CRONAN & AIKEN (1985) für Porenwässer in oberen, belebten Bodenhorizonten 10-30 mg/l und in weniger oder nicht bodenbildungsbeeinflussten Horizonten 2-5 mg/l DOC-Konzentrationen an.

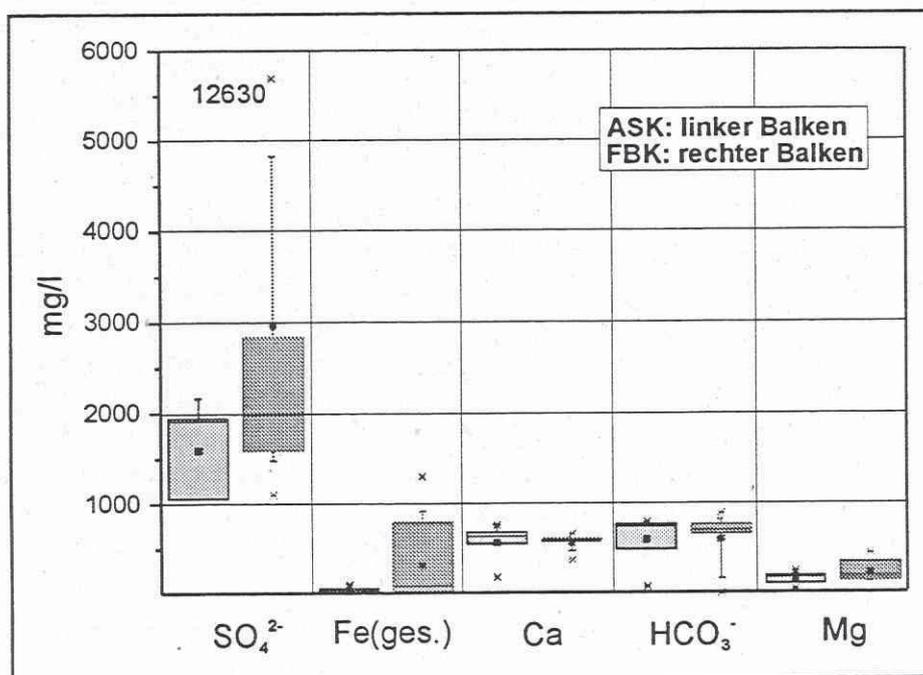


Abb. 4: Spannweiten der Konzentrationen der Hauptionen (ASK und FBK)

THURMAN (1985) findet im Grundwasser schließlich 0,1-2 mg/l DOC. Die DOC-Gehalte der Kippenwässer sind damit für Grundwässer recht hoch, im Einflußbereich von Kohleflözen aber nicht ungewöhnlich. Die leicht erhöhte DOC-Konzentration in der ASK ist auf den größeren Anteil minderwertiger Verschnittkohle zurückzuführen. Eine weitere Differenzierung des DOC wurde nicht vorgenommen, so daß keine Aussagen zur Herkunft bzw. zur biochemischen Verfügbarkeit getroffen werden können.

Anhand hydrochemischer Untersuchungen zeigt sich generell, daß die aufgrund der gemessenen bodenphysikalischen Parameter vorausgesetzte höhere Homogenität der FBK gegenüber der ASK durch hydrochemische Messungen nicht nachvollzogen werden kann. In nahezu allen im Zusammenhang mit der Sulfidoxidation stehenden Größen, variieren die Werte in der FBK stärker. Angesichts der besseren Materialmischung, die innerhalb der FBK eine bessere Parameterstreuung, also insgesamt homogenere hydraulische Kennwerte er-

kennbar werden lassen (KAUBISCH, 1986; DOHRMANN 1999) als in der ASK, sind die Ergebnisse der hydrochemischen Messungen nicht ohne weiteres aus den Ergebnissen über hydraulische Parameter abzuleiten.

#### Abhängigkeiten hydrochemischer Parameter und Sättigungsberechnungen

Die Sättigungsberechnungen wurden mit dem geochemischen Gleichgewichtsprogramm PHREEQC (PARKHURST, 1995) durchgeführt.

In den Kippenwässern des Untersuchungsgebietes wird der Einfluß von Reaktionsprodukten der Sulfidverwitterung dadurch deutlich, daß mit abnehmendem pH-Wert die Sulfat-, Eisen-, Magnesium-, Mangan- und Zinkkonzentrationen steigen, während die Konzentrationen der Kalzium- und Hydrogenkarbonationen sinken. Daß insbesondere durch die freigesetzte Säure mineralisationsfördernde Folgereaktionen ausgelöst werden, führt zur Erhebung des pH-Wertes als Ordnungskriterium für Bergbauwässer.

CO<sub>2</sub>-Partialdrücke bis zu 25%, die einerseits in den Hangendpartien der Kippen aus der säurebedingten Karbonatlösung, andererseits in tieferen, gesättigten Kippenbereichen, aus dem dissimilatorischen Sulfatabbau stammen, bestimmen den pH-Wert der Kippenwässer und damit die wesentliche milieubestimmende Komponente. Der überwiegende Teil der Kippenwässer wird durch eine pH-Wert Regulierung im Bereich von 6,4 durch die Gleichgewichtseinstellung, entsprechend der Reaktionsgleichung 5-6 bestimmt. Der pH-Wert ist die Folge des hohen CO<sub>2</sub>-Partialdruckes im Kippenkörper, der einerseits zur Lösung geogener Karbonate (Kalzit bzw. Dolomit) über pH 6,4 und zum erhöhten HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> Speziesanteil bei Säureeintrag unter pH 6,4 führt.

Die Lösung von Sulfidoxidationsprodukten im Porenwasser und die ständige CO<sub>2</sub>-Produktion in tieferen Kippenbereichen führt einerseits zur Lösung der geogenen Mineralphase Kalzit (Korrelation Ca<sup>++</sup> und HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> mit r = 0,83), andererseits, bei Überschreitung des Löslichkeitsproduktes zur Ausfällung der Sekundärmineralphase Gips. Wird die Sulfatkonzentration in Abhängigkeit der Gipssättigung betrachtet, ergibt sich für Sulfatgehalte ab etwa 1750 mg/l permanente Gipssättigung. Kalzit-Sättigungs-Berechnungen zeigen bei einem pH-Wert über 6,4 Kalzitübersättigung, unter einem pH von 6,4 nimmt die berechnete Kalzituntersättigung zu. Die Kalziumkonzentration wird unterhalb von etwa 600 mg/l durch die Gleichgewichtseinstellung zur Mineralphase Gips kontrolliert. Im Konzentrationsbereich um 600 mg/l Ca<sup>++</sup>-Ionen sind sowohl Kalzit als auch Gips rechnerisch gesättigt

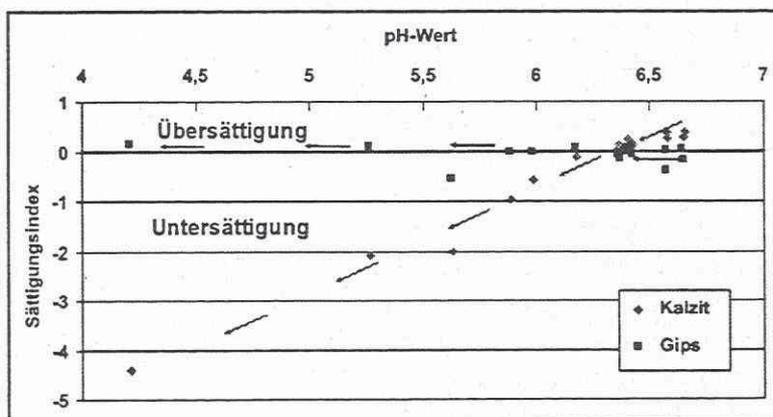


Abb. 5: Sättigungsindizes für Kalzit und Gips in Abhängigkeit vom pH-Wert

Infolge des über lange Zeit nicht abgeschlossenen Wasserfüllprozesses in den Kippenteilen, ist davon auszugehen, daß permanente Veränderungen der Ionenfracht Gleichgewichtsbedingungen entgegenwirken. Kalzium und Sulfatkonzentrationen können die errechnete

Sättigungsgrenze für Gips und Kalzit um ein vielfaches übersteigen, wodurch belegt wird, daß hydro- und geochemische Wechselwirkungen nicht im Gleichgewicht stehen und die Aussage von Gleichgewichtsprogrammen ohne konkrete Berücksichtigung der hydraulischen Situation und der betrachteten Zeiträume relativiert werden muß. Die Ergebnisse, die mit Gleichgewichtsprogrammen erzielt werden, sind daher sehr begrenzt und bieten als Minimalaussage die Erkenntnis, daß die Kippenwässer nicht im hydrogeochemischen Gleichgewicht stehen. Da dies auf das älteste untersuchte Kippenwasser zutrifft (K-GWM 16), ist davon auszugehen, daß mindestens über einen Zeitraum von 41 Jahren, in Abhängigkeit von dem Wasserfüllprozeß eine im hydrogeochemischen Gleichgewicht stehende Hydrochemie, zumindest partiell nicht zu erwarten ist.

### Modellvorstellungen zur hydrochemischen Beschaffenheitsentwicklung im Gesamtsystem „Tagebaukippe“

Ausgehend von den gezeigten Messungen, aber auch anhand von Erkenntnissen aus Laborversuchen (DOHRMANN, 1999) zur Grundwasserqualität im Untersuchungsgebiet soll eine Modellvorstellung entwickelt werden, die den Kippenaufbau (Tagebautechnologie) und wesentliche Erkenntnisse aus der hydraulischen Modellstudie (CHRISTOPH *et al.* [1999]) berücksichtigt.

Tagebautechnologisch wird zuerst durch die Förderbrücke etwa zwei Drittel der Gesamtkippe im Untersuchungsgebiet in Form der FBK aus vorwiegend bindigen tertiären Sedimenten zum Teil auch aus quartären Sanden und Kiesen geschüttet.

Infolge des hohen Pyritgehaltes der marinen tertiären Sedimente und der relativ langen Expositionszeit bis zur Schüttung der ASK bildet sich in der Hangendpartie der FBK eine sekundäre Verwitterungszone (VWZ<sub>FBK</sub>) heraus. Bereits nach kurzer Zeit (12 Monate) besitzt diese Verwitterungszone mindestens 2 m Mächtigkeit.

Gleichzeitig erfolgt, wie in Kapitel 3 beschrieben, ein initialer Wasseranstieg durch schwerkraftgetriebenes, bewegliches Porenwasser. Dieser Prozeß erfolgt unabhängig von lateralen Zuflüssen und bevorzugt in hydraulisch gut leitenden Drainageschichten. Bereiche der FBK bleiben längere Zeit ungesättigt.

Im Kippenkörper wird der durch den Schüttungsprozeß eingeschlossene Luftsauerstoff infolge der primären Sulfidoxidation verbraucht. Aufgrund der begrenzten Sauerstoffnachlieferung in tiefe Kippenbereiche ist die Mineralisation des Porenwassers relativ gering. Freigesetzte Säure wird durch karbonatische Festphasen unter initialer CO<sub>2</sub>-Freisetzung gepuffert.

Bereits kurz nach dem Kippenaufbau setzen an der Oberfläche der FBK Erosions-, Kolmations- und Verkrustungsvorgänge ein, die einer GWN entgegenwirken. Es bildet sich eine Kolmationsschicht heraus, die durch geringere  $k_f$ -Werte als der Kippenkörper gekennzeichnet ist. Diese Kolmationsschicht kann sowohl die GWN als auch, in Abhängigkeit des Wassergehaltes, die Nachlieferung von Luftsauerstoff einschränken.

Aufgrund der dunklen Färbung der FBK-Sedimente ist eine höhere Absorption der kurzwelligeren Strahlung zu erwarten, wodurch die Evaporation verstärkt wird. Die eher begrenzte GWN in der FBK führt zur Anreicherung von verwitterungsbedingten Sekundärmineralen, vor allem Gips und Jarosit in der Hangendpartie der FBK.

Der eigentliche wasserqualitätsprägende Prozeß in der FBK findet dadurch statt, daß das nach der Absetzerschüttung an der Kippenbasis der ASK akkumulierte Porenwasser geringer Mineralisation unter Elution der VWZ<sub>FBK</sub> in ungesättigte Bereiche der FBK drängt. Dieser Vorgang ist einerseits von bevorzugten Fließwegen in der ASK, andererseits von der Durchlässigkeit der Kolmationsschicht abhängig. Die durch diesen Prozeß stattfindende Aufmineralisation des Porenwassers in Abhängigkeit von der  $k_f$ -Verteilung der Kolmationsschicht erklärt auch die größere Streuung der Hydrochemie und die scheinbar

zeitunabhängigen Mineralisationszustände in der FBK. Das pH-Puffervermögen der FBK-Sedimente, abhängig von der Verteilung und Konzentration geogener Karbonate (Korpusverteilung des Muschelschills) und anderer puffernd wirkender Sedimentbestandteile sowie der Lösungsspezies, entscheidet über den sich einstellenden pH-Wert und damit über die Löslichkeit von Schwermetallen.

In gesättigten Bereichen der FBK bilden sich nach Verbrauch des während der Verkipfung eingetragenen Luftsauerstoffs sulfatreduzierende Bereiche aus, die zur weiteren Erhöhung des  $\text{CO}_2$ -Partialdrucks im Kippenkörper führen.

Während des initialen Wasseranstiegs in der ASK bildet sich in der Hangendpartie eine rezente Verwitterungszone aus. Die freigesetzten Verwitterungsprodukte werden mit dem neugebildeten Grundwasser unter Aufsättigung des Kippenkörpers in tiefere Bereiche eingetragen. Hier erfolgt eine Mischung höher mineralisierten Sickerwassers (sekundäre Sulfidoxidation) mit Porenwässern (beeinflusst durch primäre Sulfidoxidation).

Die Aufmineralisation des Sickerwassers in der ASK ist davon abhängig, wieviel Sulfidoxidaionsprodukte durch die sekundäre Verwitterung entstehen und durch die Grundwasserneubildung in die Tiefe transportiert werden können.

An Säulenversuchen mit ungestörtem Kippenmaterial des ersten Meters unter der Deckschicht aus Lehm wurden unter anaerober Durchströmung mit künstlichem Niederschlagswasser abnehmende Sulfatkonzentrationen des Sickerwassers beobachtet (DOHRMANN, 1999). Die initialen Sulfatkonzentrationen lagen im Bereich um 2500 mg/l. Es ist davon auszugehen, daß dieser Wert der Aufmineralisation des Niederschlagswassers bei Durchströmung der sekundären Verwitterungszone entspricht.

Da die verkippten Sedimente auch in den oberen Metern noch bedeutende Mengen an Sulfiden enthalten (Kippen-GWM 1 = 0,4 Gew-% in 1-2 m Teufe), führt die sekundäre Verwitterung so lange zu einer Aufmineralisation des Sickerwassers, bis sich ein einheitlicher Grundwasserspiegel (GWS) bis zu pyritfreien Sedimenten eingestellt hat oder die Oxidationsfront den GWS erreicht.

In tieferen Zonen der ASK finden unter Abwesenheit von Oxidanzien ( $\text{O}_2$ ,  $\text{NO}_3^-$ ), vorwiegend in gesättigten Bereichen, Sulfatreduktionsprozesse statt.

Die hydrochemisch prägenden Prozesse in der ASK, d.h. Verwitterungs- und GWN-Rate sowie zunehmende Sulfatreduktionszonen, sollten über die gesamte Kippe betrachtet relativ einheitlich sein. Aus diesem Grund können sich in der ASK aus hydrochemischer Sicht homogenere Bedingungen abbilden.

In Abb. 6 sind schematisch die wichtigsten, im Initialstadium der Kippe die Grundwasserqualität beeinflussenden Prozesse in bindigen Mischbodenkippen des Untersuchungsgebietes dargestellt.

Die Prägung der Grundwasserchemie beider Kippenteile findet nach dem beschriebenen Schema (Abb. 6) solange statt, bis die Aufsättigung beider Kippenteile abgeschlossen ist oder ein hydraulisches Druckpotential in der Peripherie der Kippe, zum Beispiel durch eine schnelle Seeflutung, die Strömungsverhältnisse verändert. Bis zur vollständigen Aufsättigung des gesamten Kippenkörpers kann die Hydrochemie des Kippenwassers durch eine Auslenkung des hydro-geochemischen Gleichgewichtes geprägt sein.

Die beschriebene Entwicklung der hydrochemischen Beschaffenheit im Initialstadium der Kippe ist hauptsächlich davon abhängig, in welchem Maße die  $\text{VWZ}_{\text{FBK}}$  durchströmt, d.h. eluiert wird. In diesem Zusammenhang muß für eine Prognose der Beschaffenheitsentwicklung die Durchlässigkeit der Kolmationszone umfassender untersucht werden. Zur weitgehenden Verhinderung der Elution der  $\text{VWZ}_{\text{FBK}}$  ist bei noch offenliegenden FBK, vor der ASK-Schüttung eine Abdichtung der FBK, beispielsweise durch eine Montanwachsauflage, zu untersuchen.

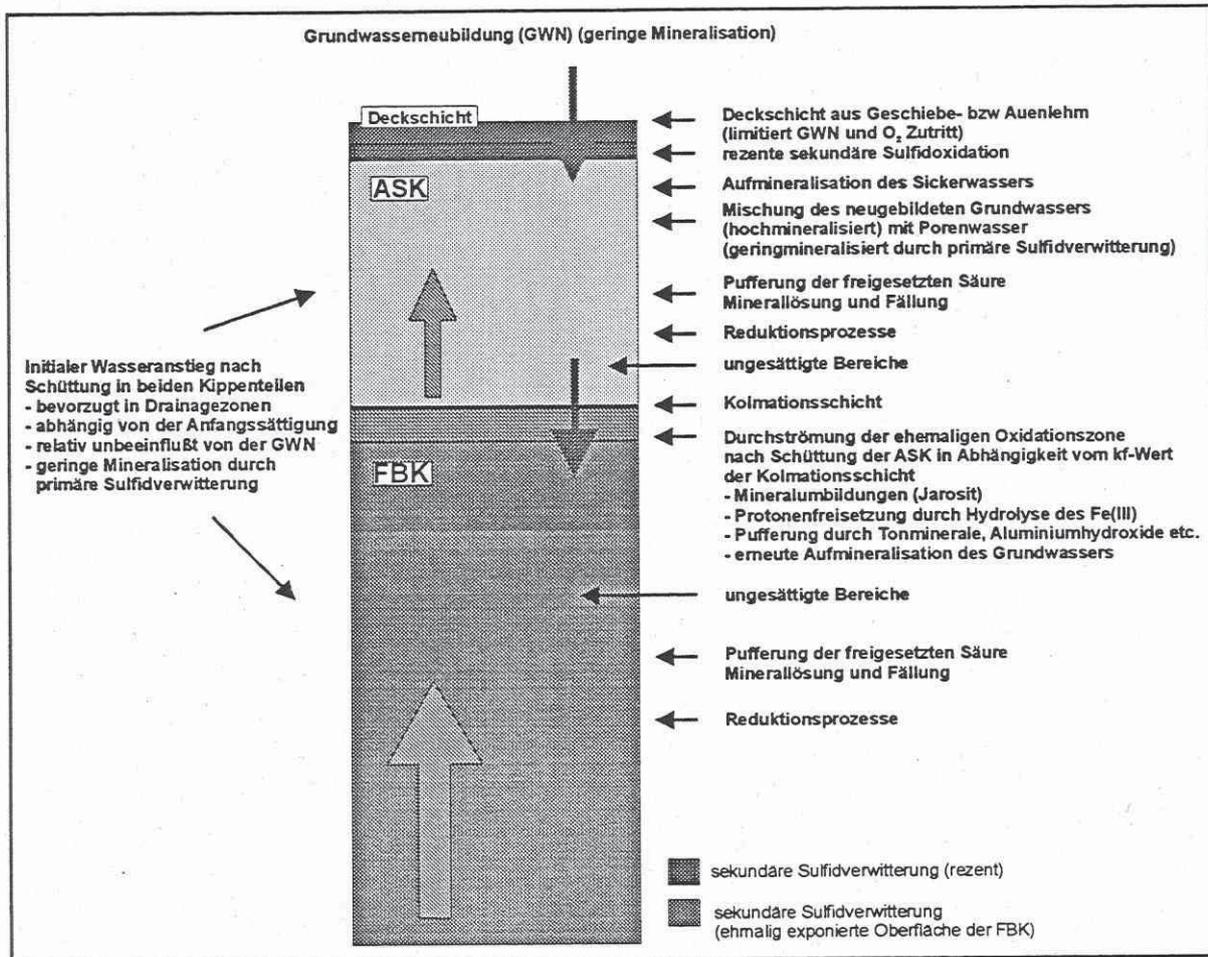


Abb. 6: Übersicht über die wichtigsten beschaffenheitsprägenden Prozesse in Kippenwässern des Untersuchungsgebietes

### Untersuchungen zur Sulfatreduktion im Kippenkörper

Sulfatreduktionsprozesse, die die maßgebende Rolle im Sulfatabbau und damit für die natürliche Regeneration der Kippenwässer spielen, lassen sich mittels Schwefelisotopenuntersuchungen in geeigneter Weise charakterisieren. Deshalb wurden sowohl  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte als auch  $\text{SO}_4$ -Gehalte herangezogen, um herauszufinden,

- 1) welche Relevanz die Sulfatreduktion im Kippenwasser besitzt,
- 2) ob sich ein zeitlicher Entwicklungstrend feststellen läßt und
- 3) ob und welche Unterschiede zwischen Absetzer- und Förderbrückenkippe bestehen.

Zunächst wurde versucht, eine modellhafte Konzeption zur erstellen, mit der sich die Sulfatabbauprozesse in der Kippe hinreichend beschreiben lassen.

Der dissimilatorische Abbau von Sulfat ist ein mikrobiell gesteuerter Prozeß, der von einer Fraktionierung der Schwefelisotope begleitet wird. Dabei kommt es mit fortschreitender Reduktion zu einer zunehmenden Anreicherung von  $^{34}\text{S}$  im verbleibenden Sulfat. Die Entwicklung der  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte verläuft nach dem Gesetz der Rayleigh-Fraktionierung. Der sich nach einer bestimmten Zeit einstellende  $\delta^{34}\text{S}$ -Wert läßt sich demzufolge mit einer modifizierten Rayleigh-Gleichung (Gl. 1) berechnen.

$$\delta^{34}\text{S}_t = \left[ (\delta^{34}\text{S}_0 + 1000) f_t^{(1-\alpha)} \right] - 1000 \quad \text{Gl. 1}$$

- $\delta^{34}\text{S}_t$ : Schwefelisotopenwert zum Zeitpunkt t  
 $\delta^{34}\text{S}_0$ : initialer Schwefelisotopenwert  
 $f_t$ : Fraktion des verbleibenden Sulfats zum Zeitpunkt t  
 $\alpha$ :  $\alpha(\text{SO}_4\text{-H}_2\text{S})$ , Fraktionierungsfaktor zwischen Sulfat und Schwefelwasserstoff

Da sowohl in der Absetzer- als auch in der Förderbrückenkippe eine ständige Nachlieferung von Sulfat aus den Verwitterungszonen erfolgt, setzt sich die Fraktion des verbleibenden Sulfats aus dem Residualsulfat der Sulfatreduktion und dem Sulfateintrag aus der Verwitterungszone zusammen. Die durch Grundwasserneubildung eingetragene atmosphärische Sulfatkomponente kann aufgrund ihrer relativen Geringfügigkeit vernachlässigt werden. Die verbleibende Sulfatfraktion läßt sich mittels Gleichung 2 bestimmen.

$$f_t = 1 - \frac{C_A}{C_0} t \quad \text{Gl. 2}$$

- $C_0$ : initiale Sulfatkonzentration  
 $C_A$ : effektive jährliche Sulfatabbaurrate  
t: Dauer der Sulfatreduktion in Jahren

Die effektive Abbaurrate wird einerseits durch die Absolutgröße des dissimilatorischen Sulfatabbaus, andererseits durch die Menge des aus den Verwitterungszonen eingetragenen Sulfats bestimmt. Die durch diesen Eintrag verursachte Sulfatkonzentrationsänderung im Kippenwasser wird mit fortschreitender Liegezeit der Kippe abnehmen, weil sich das Verhältnis von Kippenwasservolumen zu Volumen der jährlichen Zuflußmenge aus den Verwitterungszonen ständig vergrößert. Dies geschieht unter der Voraussetzung, daß die Zuflußkomponente weit größer ist als die Abflußkomponente. Angesichts des fortschreitenden Aufsättigungsprozesses der Kippe, der nicht zuletzt durch ständig steigende Pegelstände ausgedrückt wird, scheint diese Voraussetzung erfüllt.

In der Modellberechnung wird aber die zeitliche Änderung der Inputgröße nicht berücksichtigt, da sich die absoluten Volumina der Bilanzglieder nicht erfassen lassen. Als wesentliche Annahme des Modells ergibt sich demzufolge eine konstante jährliche effektive Sulfatabbaurrate.

Weiterhin wird angenommen, daß die isotopische Fraktionierung des Schwefels beim Sulfatabbau eine räumliche und zeitliche Konstanz im Kippenkörper besitzt. Die Größe des Fraktionierungsfaktors  $\alpha(\text{SO}_4\text{-H}_2\text{S})$  kann in Abhängigkeit vom hydrogeochemischen Umfeld sehr variabel sein und Werte von 1.006 bis 1.072 einnehmen (z.B. ASMUSSEN & STRAUCH, 1998; CLARK & FRITZ, 1997; SAKAI, 1968; THODE, 1991). Messungen der  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte der sulfidischen und sulfatischen Komponente in Durchlaufsäulenexperimenten ergaben einen Fraktionierungsfaktor von 1.015. Aufgrund der relativen Konstanz des für die Sulfatreduktion relevanten hydrogeochemischen Umfelds in der Kippe (hohes Sulfatangebot, einheitliche DOC-Gehalte) wird dieser Fraktionierungsfaktor auf den gesamten Kippenkörper bezogen.

#### Sulfatreduktion in der Absetzerkippe

Die Korrelation und zeitliche Entwicklung der Sulfatgehalte und der  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte in Wässern der ASK sind in den Abbildungen 7 und 8 dargestellt. In allen drei Diagrammen läßt sich ein ausgeprägter Trend der korrelierten Parameter erkennen. Die Sulfatgehalte nehmen mit zunehmendem Kippenalter ab, während die  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte steigen. Im Plot  $\delta^{34}\text{S}$  gegen  $\lg(\text{SO}_4)$  (Abb. 7) zeigt sich der für die bakterielle Reduktion von Sulfat typische negativ lineare Zusammenhang.

Aufgrund der ausgeprägten Korrelation kann für die Absetzerkippe mit Hilfe des Modells eine effektive Sulfatabbaurrate ermittelt werden. Als initiale Konzentration wird ein einheitlicher Wert von 2500mg/l vorausgesetzt. Der durch Sedimentuntersuchungen bestimmte mittlere  $\delta^{34}\text{S}$ -Wert der pyritischen Ausgangssubstanz beträgt -16‰ (CDT). Da bei der Oxidation von Pyrit keine Fraktionierung der Schwefelisotope erfolgt, kann dieser Wert als initialer  $\delta^{34}\text{S}$ -Wert des Kippenwassers und als  $\delta^{34}\text{S}$ -Wert der Zuflußkomponente angenommen werden. Entsprechend dem Modell ergibt sich für das Sulfat in der Absetzerkippe in der Kippe Zwenkau/Cospuden eine effektive Abbaurrate von 50mg/(l\*a).

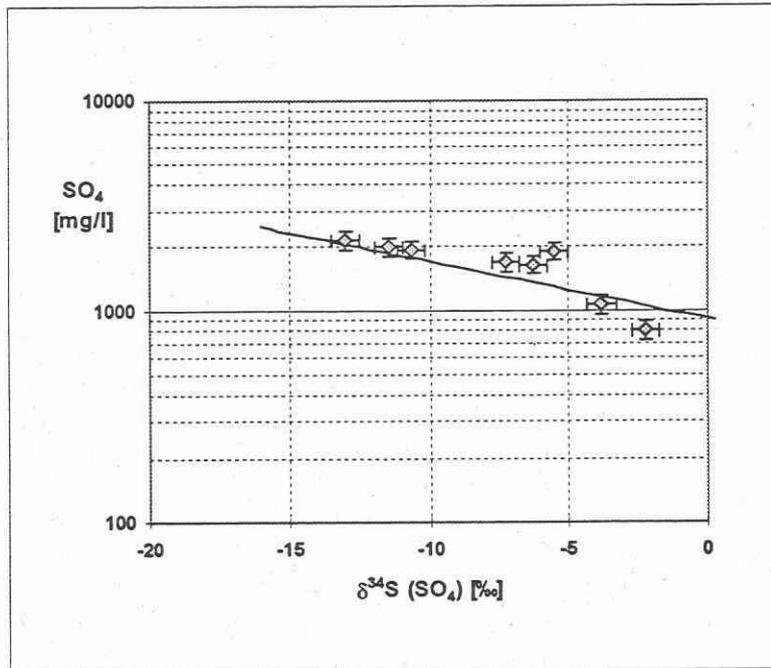


Abb. 7: Meßwerte und errechnete Korrelation zwischen  $\delta^{34}\text{S}$ -Werten und korrespondierenden Sulfatgehalten in Kippenwässern der Absetzerkippe. Die Berechnung erfolgte anhand der im Text erläuterten Annahmen.

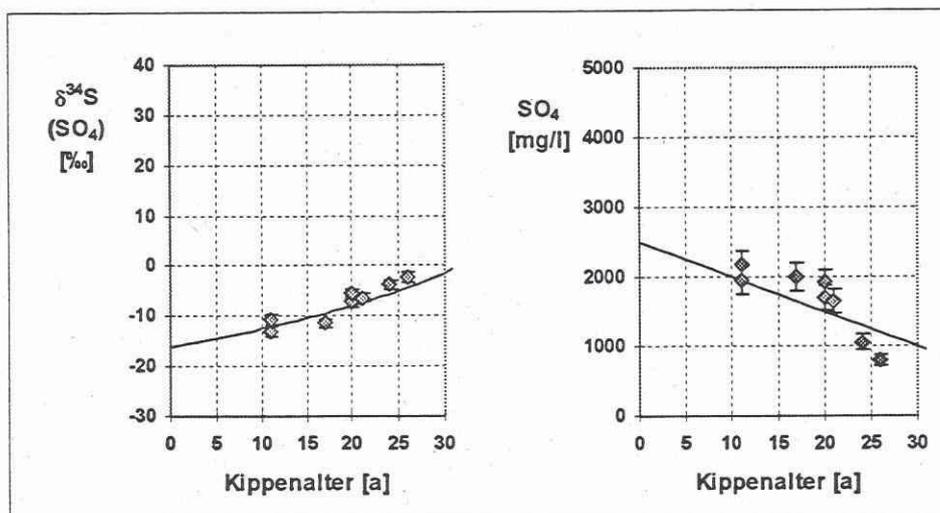


Abb. 8: Meßwerte und berechnete zeitliche Entwicklung der Sulfatgehalten und der  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte des gelösten Sulfats in Kippenwässern der Absetzerkippe. Die Berechnung erfolgte anhand der im Text erläuterten Annahmen.

### Sulfatreduktion in der Förderbrückenkippe

Bergtechnologisch bedingt ist die Materialverteilung der Förderbrückenkippe wesentlich homogener als die der ASK. Dies ließe zunächst den Schluß zu, daß hydrogeochemische Entwicklungsprozesse in der FBK gleichmäßiger verlaufen und einem einheitlichen Trend folgen. Die Abbildungen 9 und 10 zeigen, daß zumindest für die Sulfatreduktion kein Trend über den gesamten Bereich der FBK feststellbar ist.

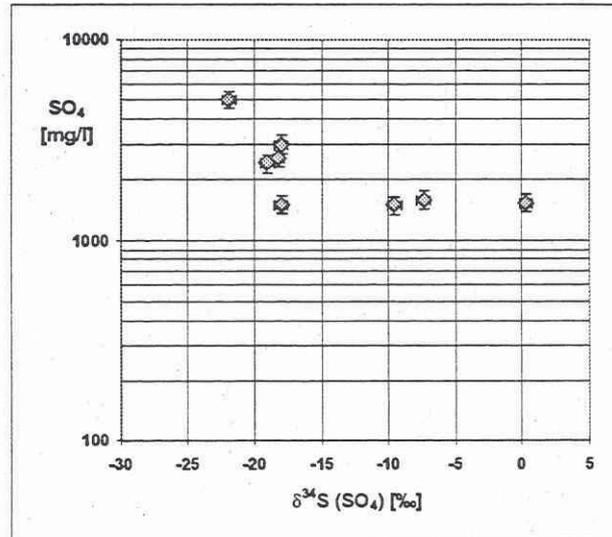


Abb. 9:  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte und Sulfatgehalte in Wässern der Förderbrückenkippe

Der  $\delta^{34}\text{S}$ -Wert der pyritischen Komponente in den Sedimenten der FBK und damit der initiale Kippenwasserwert ist wenig variabel und liegt bei  $-25\text{‰}$ (CDT). Da alle  $\delta^{34}\text{S}$ -Meßwerte höher als der initiale Wert sind, muß man davon ausgehen, daß Sulfatreduktion auch in der FBK eine entscheidende Rolle spielt. Die Ursache für das Fehlen eines einheitlichen Trends sind in der erhöhten Variabilität der Zuflußkomponente in den einzelnen Bereichen der FBK zu vermuten. Diese Variabilität umfaßt einerseits Menge bzw. Stofffracht der Zuflußkomponente, die maßgeblich durch die Fließdynamik an der Grenze FBK-ASK bestimmt wird, andererseits kann auch der Eintrag isotopisch differenten Sulfats aus der aufliegenden Absetzerkippe die initiale Signatur und damit den Reduktionstrend überlagern.

Aufgrund der fehlenden Korrelation zwischen Sulfatgehalt und  $\delta^{34}\text{S}$ -Werten kann die modellhafte Bestimmung einer effektiven Sulfatabbaurrate für Wässern der FBK nicht erfolgen.

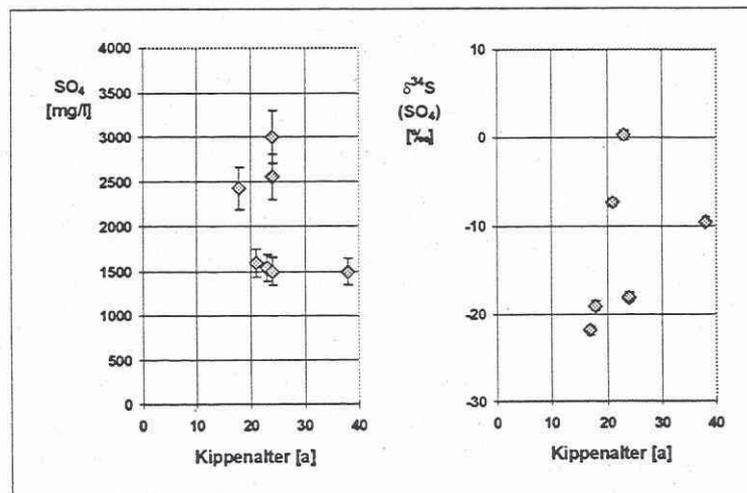


Abb. 10: Zeitliche Entwicklung der Sulfatgehalte und  $\delta^{34}\text{S}$ -Werte in Wässern der FBK

## Schlußfolgerungen

Verwitterungszonen, die jeweils im Hangendbereich der Förderbrückenkippe und in der Absetzerkippe ausgebildet sind, bestimmen in der Phase der Aufsättigung des Kippenkörpers die Hydrochemie der Kippenwässer. Die hydrochemische Entwicklung der Wässer in der Förderbrückenkippe wird während des Aufsättigungsprozesses stark durch die Intensität der Durchströmung der Verwitterungszone (FBK) bestimmt. Aus diesem Grund unterliegen die mit der Sulfidverwitterung im Zusammenhang stehenden Wasserinhaltsstoffe in der FBK, bis zu einem Zeitraum von mindestens 41 Jahren, größeren Schwankungen als die Lösungskonzentrationen in der ASK. In diesem Zusammenhang bilden sich in der ASK hydrochemisch homogenere Verhältnisse als in der FBK ab, wodurch für diesen Kippenteil modellmäßig eine Sulfatabbaurrate von rund 50 mg/l\*a beschreibbar ist. Generell sind die Kippenwässer beider Kippenteile vergleichbar, wobei die Sulfatkonzentration durch die Gleichgewichtseinstellung zur Mineralphase Gips kontrolliert wird.

## Dank

Die Untersuchungen wurden von der Deutschen Forschungsgemeinschaft im Rahmen des SPP „Geochemische Prozesse mit Langzeitfolgen im anthropogen beeinflussten Sicker- und Grundwasser“ und dem Sächsischen Ministerium für Wissenschaft und Kunst gefördert. Wir möchten uns für die gute Zusammenarbeit bei der LMBV bedanken.

## Literatur

- ASMUSSEN, G. & G. STRAUCH (1998): Sulfate reduction in a lake and the groundwater of a former lignite mining area studied by stable sulfur and carbon isotopes. - RMZ-Materials and Geoenvironment, Vol 45, No. 1-2, S.217.
- CHRISTOPH, G.; DOHRMANN, H. & W. GLÄBER (1999): Modellstudien zum Aufsättigungsprozeß von Braunkohlentagebaukippen im Südraum Leipzig.- Eingereicht in „Grundwasser“, Springer-Verlag Berlin
- CLARK, I.D. & P. FRITZ (1997): Environmental Isotopes in Hydrogeology. - 1.Auflage, Lewis Publishers, New York, 328 S.
- CRONAN, C. S. & G. R. AIKEN (1985): Chemistry and transport of soluble humic substances in forested watersheds of the Adirondack Park.- Geochim Cosmochim Acta 49, S. 1697-1705
- DOHRMANN, H. (1999): Untersuchungen zu hydraulischen und hydrochemischen Prozessen im Initialstadium bindiger Mischbodenkippen des Mitteldeutschen Braunkohlenreviers; Beispiel Flurkippe Cospuden/Zwenkau.- Inauguraldissertation, eingereicht an der Univ.-Leipzig, Inst. für Physik und Geowissenschaften
- KAUBISCH (1986): Zur indirekten Ermittlung hydrogeologischer Kennwerte von Kippenkomplexen, dargestellt am Beispiel des Braunkohlenbergbaus. TU-Bergakademie Freiberg, unveröffentlicht
- SAKAI, H. (1968): Isotopic properties of sulphur compounds in hydrothermal processes. - Geochemical Journal 2, S. 29-49.
- SIGG, L. & W.STUMM (1996): Aquatische Chemie. 4. durchgesehene Auflage, 498 S., Hochschulverlag Zürich
- THODE, H.G. (1991): Sulphur Isotopes in Nature and the Environment: An Overview. - In: Krouse, H.R. & Grinenko, V.A. (Hrsg.), Stable Isotopes: Natural and Anthropogenic Sulphur in the Environment. SCOPE 43, John Wiley & Sons, Chichester, S.1 - 26.
- TURMANN, E. M. (1985): Organic geochemistry of natural waters. Publishers: Nijhoff / Junk, Dordrecht Boston Lancaster, 497 S.

Beiträge zum Workshop

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

am 3. und 4. Juni 1999

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