

H.-M. NITZSCHE¹, H.R. GLÄSER² & M. SCHRECK³

Faseroptische Temperaturmessungen und gasisotopische Untersuchungen auf der Innenflurkippe des Tagebaurestloches Cospuden

¹ Institut für Nichtklassische Chemie an der Universität Leipzig, D-04318 Leipzig

² UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle, Sektion Hydrogeologie, D-06120 Halle

³ University of Okayama, Department of Environmental & Civil Design, Japan

Kurzfassung

Die geochemischen Prozesse in Kippengeländen des Braunkohlebergbaues werden üblicherweise über Analysen an Wasser- und Bodenproben untersucht. In Ergänzung dazu stehen Beobachtungen von in situ Reaktionen über das Temperaturfeld sowie der Zusammensetzung der Bodenluft. Insbesondere die Analysen des CO₂ in der Bodenluft sind geeignet, Aussagen zum Wirken und zeitlichen Verlauf der substratabhängigen Säurefront im Kippenkörper zu liefern. In deren Konsequenz können auch Ursachen von auftretenden Temperaturanomalien im Kippenmassiv erklärt werden.

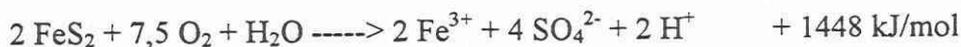
Einleitung

Die Erforschung der Prozesse in bergbaulich geprägten Grundwasserleitern ist Bestandteil eines wissenschaftlichen Verbundprojektes innerhalb des Umweltforschungszentrums Leipzig - Halle. Exemplarisch für den Leipziger Südraum erfolgen auf der Innenflurkippe des in Flutung befindlichen Tagebaues Cospuden umfangreiche Untersuchungen. Diese werden teilweise von der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG gefördert.

Im Verbund mit dem hydraulischen und hydrochemischen Untersuchungsprogramm auf der Kippe erfolgen Beobachtungen von speziellen in situ - Prozessen. Durch Probenahme der Bodengase und der nachfolgenden Erfassung isotopischer Grundmuster am Kohlenstoff wird den Mechanismen der CO₂ - Genese im Kippenkörper nachgegangen. Es ist bekannt, dass die im Kippensubstrat vorkommenden Sulfide sehr schnell unter Bildung von Schwefelsäure verwittern. Damit werden die Voraussetzungen für eine Karbonatzersetzung geschaffen. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen belegen, dass auch die Oxidation der dispersen organischen Substanz eine CO₂ - Quelle darstellt.

Sowohl die Sulfidverwitterung als auch die Kohlenstoffoxidation sind bekanntlich stark exothermer Natur. Aus diesem Grunde bieten sich Beobachtungen des Temperaturfeldes im Reaktionsraum an.

Sulfid



Organischer Kohlenstoff



Ziel dieser kombinierten Verfahrensmethodik ist es, neben der wissenschaftlichen Grundlagenforschung ein neues Untersuchungsinstrumentarium zur Bewertung von umweltrelevanten Säurereaktionen in Kippenmassiven zu erarbeiten. Am Messstandort

geschieht dies unter dem potentiellen Szenario der Wechselwirkung des Restlochsees mit der Kippe und der zeitlich verzögerten Rückwirkung des dort vorhandenen Aciditätspotentials auf den Restlochsee.

Untersuchungsgebiet

Auf der Kippe wurde im Verlaufe mehrerer Jahre ein Messfeld mit folgendem Inventar errichtet:

- 1 Multilevel-Probenahmesystem
- 1 Sicker- und Grundwasserbeobachtungssystem SGM
- 4 faseroptische Temperaturmesssysteme (Optical Time Domain Reflectometry)
- 5 Bodengas-Messstellen mit verschiedenen Probenahmeteufen

Im Umfeld befinden sich zudem vier Gütepegel (RCO 4, 12, 15 und 18), die in unterschiedlichen Teufen der Kippe verfiltert sind. Das Messfeld selbst grenzt an die Uferzone zum Restlochsee. Die auf das Untersuchungsgebiet „wirkende“ Uferlänge beträgt etwa 800 m. Aus geotechnischen Überlegungen heraus ist die Uferlinie teilweise in Buchten zergliedert worden.

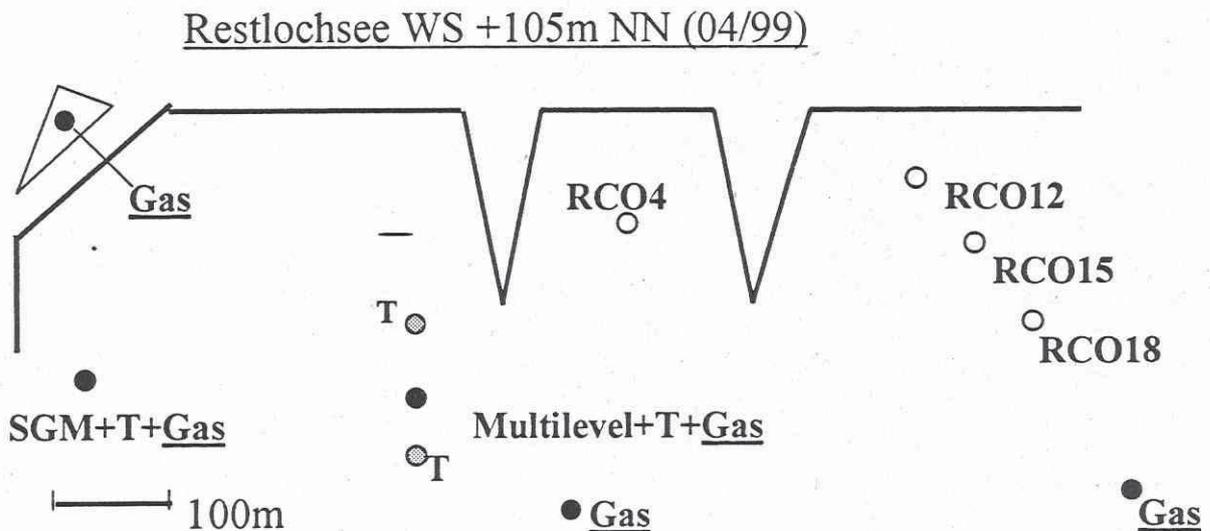


Abb. 1: Lageskizze der Messstellen

Der gegenwärtige Wasserspiegelanstieg im Restloch beläuft sich auf 1 Meter im Monat, was auf die seit Frühjahr 1998 verstärkte Zuführung von Fremdwasser aus dem Tagebau Profen zurück zu führen ist. Auch in der Kippe ist ein zügiger Wasseranstieg feststellbar. Eine der Gasmessstellen befindet sich aufgrund der Flutungssituation nunmehr in Insellage. Es ist die einzige der Gasmessstellen, die schüttungsbedingt direkt in die Fördebrückenkippe abgeteuft werden konnte. Die übrigen Gasmessstellen erreichen unterschiedliche Teufen (maximal 10 m) in der Absetzerkippe.

Gas- und Isotopenuntersuchungen

Untersuchungen am Kippensubstrat

Untersuchungen an Kippensubstraten des Rheinischen Braunkohlenreviers hatten ergeben, dass mit zunehmender Lagerungszeit die Kohlendioxidgehalte der Gasphase der Versuchsschüttungen zunahm. Aufgrund der Zusammensetzung des benutzten Kippensubstrats wurde geschlussfolgert, dass die erhöhten Kohlendioxidgehalte das Ergebnis der Zersetzung von Karbonaten mit Schwefelsäure, die sich bei der Pyritverwitterung gebildet hatte, ist (WISOTZKY, 1994). Da die durchschnittlichen Karbonat- und Sulfidgehalte in den Mitteldeutschen Revieren wesentlich höher sind, sollte auch das Bildungspotential für Kohlendioxid größer sein.

Erste Messungen an Bodenluft aus 1 m Tiefe ergaben Kohlendioxidgehalte um 8 %.

Mögliche Kohlendioxidquellen neben der Zersetzung von Karbonat sind in Abb. 2 schematisch zusammengestellt. Die Untersuchung der Kohlenstoffisotopenzusammensetzung, ausgedrückt in $\delta^{13}\text{C}$ -Werten, macht eine Unterscheidung zwischen verschiedenen Quellen möglich.

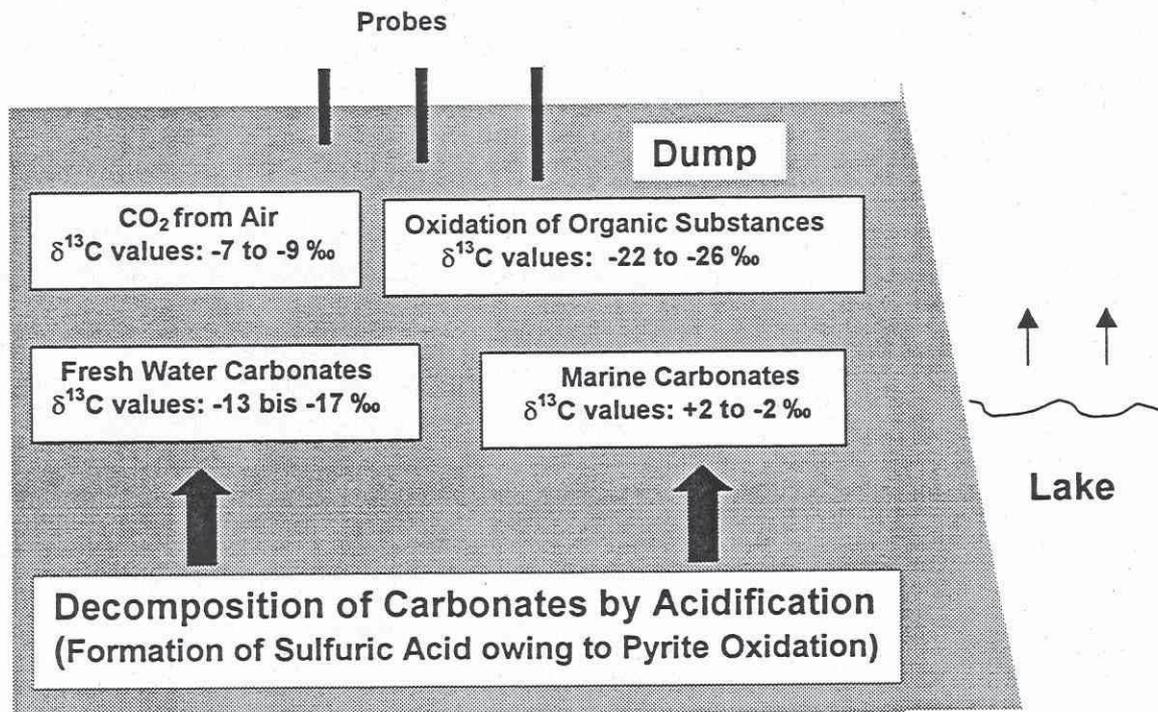


Abb. 2: Potentielle Kohlendioxidquellen in Braunkohletagebaukippen

Nach BELLMANN u.a. (1977) ist bekannt, dass im Untersuchungsgebiet neben den typischerweise marinen Karbonaten auch Karbonatkonkretionen, die sich infolge Auflösen mariner Karbonate durch CO_2 -reiche meteorische Wässer und anschließender Wiederausfällung gebildet haben, auftreten. Solche Bildungen stellen lokale Besonderheiten dar. Um herauszufinden, ob solche Karbonate für das Untersuchungsgebiet typisch sind, wurde der Kern der Bohrung RCO15 systematisch beprobt, und die Gehalte an organischem und karbonatischem Kohlenstoff sowie deren isotopische Zusammensetzung bestimmt. Für den mittleren Gehalt an organischem Kohlenstoff wurde ein Wert von 3,7 % und für Karbonat von 4,5 % gefunden. Diese Zahlen belegen das große CO_2 -Bildungspotential einer Kippe. Die Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen sind in Abb. 3 dargestellt.

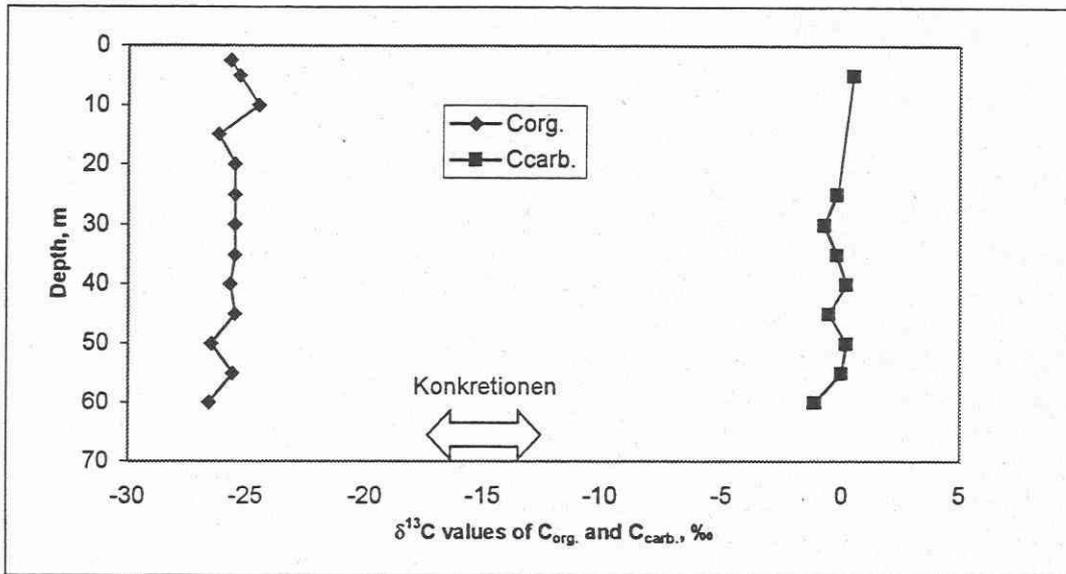


Abb. 3: $\delta^{13}\text{C}$ Werte des organischen und karbonatischen Kohlenstoffs

Sowohl die $\delta^{13}\text{C}$ -Werte des organischen Kohlenstoffs als auch des Karbonats liegen in den für diese Substanzgruppen typischen Bereichen. Hinweise auf Karbonatkonkretionen konnten im untersuchten Material nicht gefunden werden.

Probenahme

Die stationären Gassonden aus Edelstahl wurden in unterschiedlichen Tiefen (2, 5 und 10 m) installiert. Vor jeder Gasentnahme wurde mit Bodenluft gespült. Um dabei das Ansaugen von atmosphärischer Luft zu verhindern, wurde bei der Sondenkonstruktion auf möglichst geringes Totvolumen geachtet. Mobile Sonden, die nur zur Bodenluftentnahme in den Boden eingeschlagen wurden, hatten ein noch geringeres Totvolumen. Die entnommenen Gasproben wurden gaschromatographisch untersucht. Für die Bestimmung der Isotopenzusammensetzung wurde das Kohlendioxid (und in wenigen Fällen auch das Methan) gaschromatographisch abgetrennt und für die massenspektrometrische Messung aufbereitet.

Ergebnisse

Tabelle 1: Untersuchungsergebnisse von Gasen aus stationären Sonden

Tiefe, m	Probenzahl	Zusammensetzung, Vol.-% ± Streuung				$\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$, ‰
		Ar + O ₂	N ₂	CO ₂	CH ₄	
SGM						
1	6	2.60 ± 0.70	87.79 ± 0.95	9.60 ± 1.23	Sp.	-24.2 ± 0.6
2	4	4.80 ± 1.00	84.35 ± 1.79	10.83 ± 2.15	Sp.	-24.0 ± 1.4
5	4	2.36 ± 1.00	80.96 ± 1.03	16.70 ± 2.00	Sp.	-24.6 ± 0.7
10	4	1.38 ± 0.08	76.78 ± 0.82	21.83 ± 0.70	Sp.	-24.3 ± 0.3
Multilevel						
8	2	3.93 ± 2.17	84.60 ± 1.46	11.20 ± 0.44	Sp.	-23.8 ± 1.0
Sonde "Z"						
10	3	3.81 ± 2.47	82.51 ± 2.63	13.68 ± 0.18	Sp.	-22,7 ± 0.3
Sonde "I"						
10	3	5.20 ± 2.81	84.85 ± 2.65	9.95 ± 0.80	Sp.	-11.1 ± 0.3

In den Gasen der Sonden am SGM nimmt im Prinzip mit zunehmender Entnahmetiefe der CO₂ - Gehalt zu und der N₂ - Gehalt ab. Im Gegensatz dazu sind die $\delta^{13}\text{C}$ -Werte einheitlich. Darüber hinaus muss aus ihrer Größe geschlussfolgert werden, dass das Kohlendioxid nicht aus der Zersetzung von Karbonaten stammt, sondern seinen Ursprung in der Oxidation der organischen Substanz hat. Gleiches gilt auch für das Kohlendioxid aus dem **Multilevel** und der Sonde "Z".

Alle genannten Sonden befinden sich in der trockenen Absetzerkippe. Dem gegenüber befindet sich die Sonde "I" auf einem Teil der Förderbrückenkippe, der kurz vor der Überflutung steht. Die Isotopenzusammensetzung des Kohlendioxids in den dort entnommenen Gasen zeigt deutlich die Zumischung von "isotopisch schwerem" CO₂, welches bei der Zersetzung der marinen Karbonate entsteht. Neben der Tatsache, dass das Material der Förderbrückenkippe höhere Karbonatgehalte besitzt, ist offensichtlich auch der Säuretransport durch das Wasser von Bedeutung. Darauf weisen auch die Ergebnisse des Profils 1 in Tabelle 2 hin.

Tabelle 2: Untersuchungsergebnisse von Gasen entlang von Uferprofilen

	Zusammensetzung, Vol.-%				$\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}, \text{‰}$	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}, \text{‰}$
	Ar + O ₂	N ₂	CO ₂	CH ₄		
Profil 1						
5m	1.45	78.36	20.18	Sp.	-17.1	
10 m	5.29	81.09	13.61	Sp.	-17.1	
Profil 2						
10 m	9.94	76.58	13.35	0.12	-23.8	
20 m	3.14	69.67	26.92	0.26	-23.7	
30 m	0.86	44.97	50.76	3.40	-23.5	-50.0
40 m	1.34	66.38	29.98	2.29	-19.6	-44.5
50 m	1.96	47.69	46.15	4.19	-21.7	-53.1
60 m	7.66	71.94	19,90	0.49	-21.7	

Die Profile wurden entlang der abgeschrägten Absetzerkippe, beginnend am Seespiegel, gelegt. Die $\delta^{13}\text{C}$ -Werte belegen in Wasserspiegelnähe wieder eine Zumischung von Karbonat - CO₂. Im Profil 2 werden im Bereich 40 - 60 m ebenfalls weniger negative $\delta^{13}\text{C}$ -Werte im Kohlendioxid gefunden. Hier ist die Ursache jedoch nicht die Zersetzung von Karbonaten, sondern die Einstellung reduzierender Bedingungen, wie die Bildung von Methan belegt. Für die Zuordnung von Bildungsmechanismen ist die Kombination von Stoff- und Isotopenuntersuchungen unerlässlich.

Ergebnisse faseroptischer Temperaturmessungen

Das Funktionsprinzip faseroptischer Messungen (Profilierung mit laserinduziertem Ramanstreulicht) ist in SCHRECK u.a. (1998) beschrieben.

Die ersten Temperaturuntersuchungen starteten auf der Kippe Cospuden im Februar 1995 an der Messstelle SGM. Sie dauerten bis zur Beschädigung des Messsystemes über 15 Monate an. Das Interesse galt zunächst vorrangig dem Nachweis des exothermen Vorganges der Sulfidoxidation. Weitergehende Untersuchungen am Kernmaterial der Bohrungen und die oben vorgestellten Bodenluftuntersuchungen korrigierten diese Vorstellungen um den stark Einfluss nehmenden Effekt der ebenfalls exotherm verlaufenden Oxidation von organischem Kohlenstoff.

Im Messfeld Cospuden sind 1998 drei faseroptische Messeinrichtungen im Ersatz für das unbrauchbar gewordene Sicker- und Grundwasserbeobachtungssystem SGM in Betrieb gegangen. Zwei der drei neuen Temperaturmessstellen wurden mittels Drucksondertechnologie errichtet und erreichen ebenfalls die Kippenbasis. Die Installationsvariante des Glasfaserkabels am Messsystem C-ML (Cospuden Multilevel) ähnelt der des SGM. Die 1998 am Multilevel gewonnenen Temperaturkurven unterscheiden sich deutlich von den früheren Registrierungen am SGM.

Das Fehlen einer zum SGM vergleichbaren Temperaturanomalie im Bereich der mittleren Teufenlage der Absetzerkippe (10 - 14 m) kann durch den hier vergleichsweise geringen C_{org} -Gehalt erklärt werden. Die unterhalb 20 m gegenüber dem SGM ansteigenden Temperaturen sind womöglich (bisher nur ein Analysenwert aus diesem Teufenbereich) an wiederum steigenden Kohlenstoffgehalt gebunden (Tabelle 3).

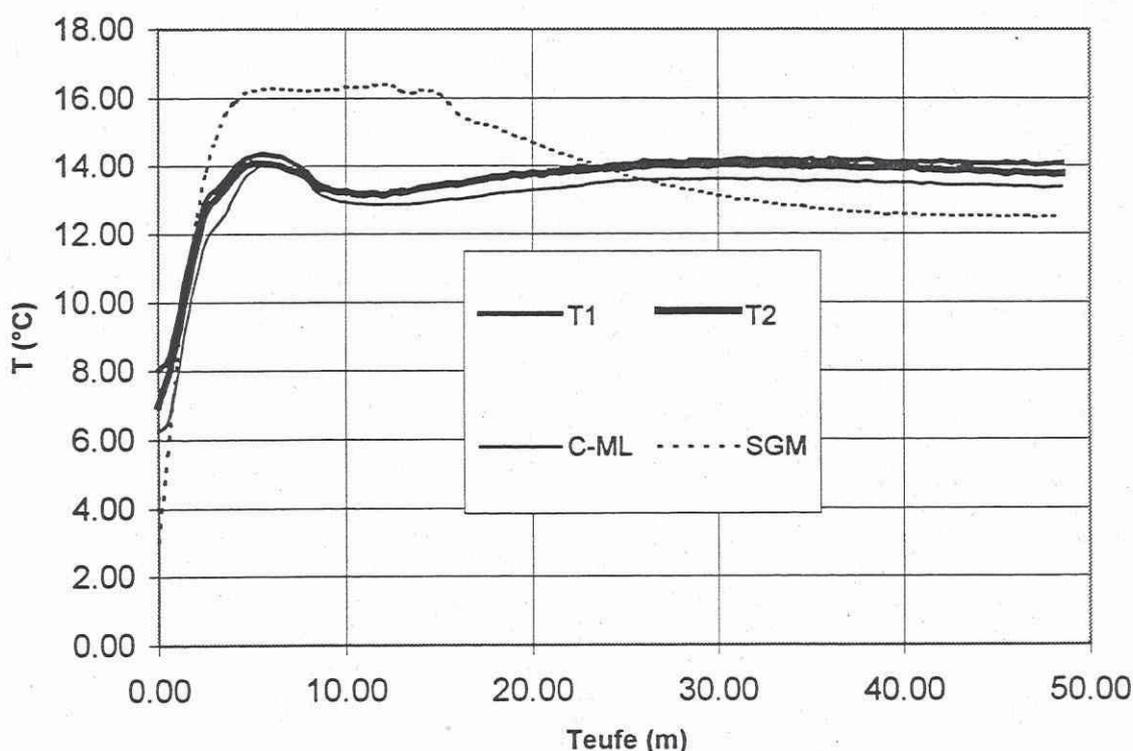


Abb. 4: Temperaturvergleich SGM (11/95), Multilevel (11/98)

Dass das Ausbleiben von exothermen Reaktionen im Absetzerkippenbereich am Standort C-ML nicht auf das Fehlen von Sauerstoff, sondern tatsächlich auf den Mangel an entsprechend thermisch wirksamen Reaktanden zurückzuführen ist, zeigte folgendes Experiment. An der Messstelle C-ML waren auf Teufe 8 m ca. 2000 Liter Pressluft binnen 30 Minuten in die Kippe geleitet worden. Die 5 Tage später aufgezeichnete Temperaturreaktion war nur schwach ausgebildet. Sie betrug etwa +0.6 K.

Tabelle 3: Gehalte an Sulfiden und organischen Kohlenstoff in Sedimentproben

Teufe (m)	Sulfid - S (Masse-%)	C _{org} (Masse-%)	C _{org} (Masse-%)
	SGM	SGM	CML
2	0.5	9.2	
4			
6	0.1	2.3	
8			
10			9.1
12	0.5	8.7	
14		14.7	0.7
16	0.6	12.9	
18	0.2	1.0	5.1
20	0.4	0.9	10.8
22			
24		0.8	
26			
28	0.7	0.8	

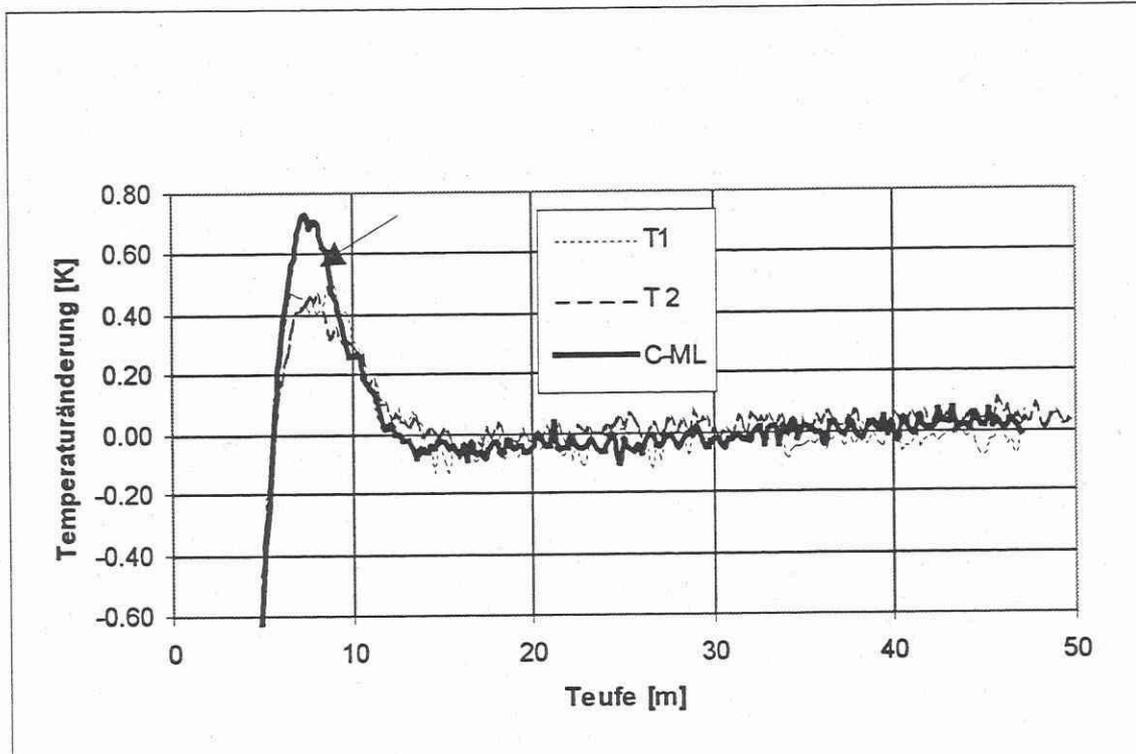


Abb. 5: Temperaturdifferenzen zwischen Meßstellen C-ML (Preßluft eingeblasen) und den Meßstellen T1 und T2.

Zusammenfassung

Sowohl Bodenluftuntersuchungen als auch Temperaturmessungen sind zunächst völlig eigenständige Untersuchungsmethoden. Im Testfeld Cospuden wurden diese miteinander kombiniert, um geochemische Prozesse im Kippenkörper erfassen und beschreiben zu

können. So konnten beispielsweise anomale Temperaturindikationen, die anfänglich auf die Sulfidoxidation zurückgeführt worden waren, durch Gas- u. Isotopenuntersuchungen der ebenfalls exotherm verlaufenden Kohlenstoffoxidation zugeordnet werden. Das infolge der Restlochflutung in die Kippe eindringende Wasser führt zur örtlichen Verlagerung von Säurefronten im Kippenmassiv. Deren Intensität und zeitliche Entwicklung sind in vom karbonatischen Puffervermögen des Substrates abhängig. In Abhängigkeit von der Zielstellung - lokale Langzeitbeobachtungen oder Screening - können stationäre oder mobile Probenahmen ausgeführt werden.

Literatur

- BELLMANN, H.-J., PILOT, J. & RÖSLER, H.J. (1977): Untersuchungen zur Petrographie und Genese von Karbonatkonkretionen im braunkohlenführenden Oligozän der Leipziger Bucht. *Z. angew. Geol.* **23**, 334 - 341.
- SCHRECK, M., NISHIGAKI, M., GLÄSER, H. R., CHRISTOPH, G., GROßWIG, S., HURTIG, E., KASCH, M., KÜHN, K. (1998): Determination of Heat Production Zones at Open-Cast Mine Dump. *ASCE JOURNAL OF Environmental Engineering*, Vol. 124, No 7.
- WISOTZKY, F. (1994): Untersuchungen zur Pyritoxidation in Sedimenten des Rheinischen Braunkohlenreviers und deren Auswirkungen auf die Chemie des Grundwassers. Besondere Mitteilungen zum Deutschen Gewässerkundlichen Jahrbuch Nr. 58, hrsg. vom Landesumweltamt NRW, Essen.

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