

# Untersuchung des Wasser- und Nitrattransportes in agrarisch genutzten, rekultivierten Kippenböden mittels Multitracer-Einsatz in Lysimetern

R. RUSSOW, S. KNAPPE und W. RICHTER

## Abstract

Für die Untersuchung der Wasser- und Stoffbewegung in agrarisch genutzten, rekultivierten, von hoher Heterogenität gekennzeichneten und gleichzeitig extrem sauren Kippenböden wurden stabilisotope ( $D_2O$ , [ $^{15}N$ ]Nitrat) und konservative (Br) Tracer eingesetzt. Als Versuchsobjekte standen zwei  $1\text{ m}^2$  große,  $3\text{ m}$  tiefe, monolithisch gewonnene, wägbare Lysimeter (12/1; 12/3) und ein  $1\text{ m}^2$  großes,  $1,75\text{ m}$  tiefes, wägbares, aber geschüttetes Lysimeter (12/4) mit Boden von der Kippe Espenhain zur Verfügung. Voruntersuchungen hatten gezeigt, dass die Sickerwassermengen und deren zeitliche Verteilung für das Lysimeter 12/1 und 12/3 nahezu gleich waren und das geschüttete Lysimeter 12/4 sich analog dazu verhielt. Die Ergebnisse des Idealtracers  $D_2O$  zum Studium des Wassertransportes zeigen jedoch deutliche Unterschiede zwischen den Lysimetern 12/1 und 12/3. Während im Lysimeter 12/1 ein Durchbruchvolumen von  $105\text{ l}$  Sickerwasser registriert wurde, erfolgte im Lysimeter 12/3 erst nach  $280\text{ l}$  Sickerwasserbildung der  $D_2O$ -Durchbruch. Mit dem früheren  $D_2O$ -Durchbruch im Lysimeter 12/1 war nach 20 Monaten Versuchsdauer bei einem Gesamtsickerwasseranfall von  $460\text{ l}$  ein Austrag von  $28\%$  des verabreichten Tracers verbunden. Im Lysimeter 12/3 lagen die entsprechenden Werte mit  $410\text{ l}$  Gesamtsickerwassermenge nur bei  $8\%$  der verabreichten  $D_2O$ -Menge. Diese Ergebnisse lassen den Schluss zu, dass im Lysimeter 12/1 Bahnen bevorzugter Leitfähigkeit einen schnellen Abtransport von Sickerwasser bedingen. Für das Lysimeter 12/3 kann demgegenüber vorwiegend piston-flow angenommen werden. Für die Verlagerung der Anionen Bromid und Nitrat konnte im Lysimeter 12/3 der bekannte

Anionenausschluss erneut nachgewiesen werden, d.h. die Br- und Nitrat-Front eilt der  $D_2O$ -Front leicht voraus. Der Gesamtaustrag nach 20 Wochen ist jedoch mit  $8\%$  für  $D_2O$  und Br gleich. Beim Nitrat werden auf Grund der ablaufenden Umsetzungen im Boden und der Pflanzenaufnahme nur  $0,6\%$  der applizierten  $^{15}N$ -Menge direkt ausgetragen. Ein abweichendes Ergebnis wurde im Lysimeter 12/1 ermittelt. Hier decken sich das Durchbruchvolumen von Deuterium und Nitrat ( $105\text{ l}$ ). Bromid wird aber erst nach  $140\text{ l}$  festgestellt. Dieser Effekt könnte durch die im Bodenwasser festgestellten niedrigen pH-Werte um  $2,0$ , verbunden mit extrem hohen Sulfatgehalten bedingt sein. Unter diesen Bedingungen scheint es zu vorübergehender Chemisorption von Bromid zu kommen. Andererseits wird mit dem im Lysimeter 12/1 gemessenen relativ hohen Austrag an Bromid und vor allem Nitrat von  $20$  bzw.  $4\%$  bei einem  $D_2O$ -Durchlauf von  $28\%$  erneut der schnelle, auf gut leitenden, wenig Umsetzungen bewirkenden, sandigen bzw. kiesigen Bahnen beschränkte Transport von Wasser und Stoffen bestätigt.

## Investigation of water and nitrate transport within agricultural soils from recultivated open mining fields by multitracer application in lysimeters

Stable isotopes ( $D_2O$ , [ $^{15}N$ ]nitrate) and conservative (Br) tracers were used to study the movement of water and other substances in very heterogeneous, extremely acidic soils from recultivated open mining fields now used for agriculture. The experiments were carried out on soil taken from an open mining field at

Espenhain in three weighable lysimeters with a cross-section of  $1\text{ m}^2$  each. The first two (lysimeter 12/1 and 12/3) contained monolithically obtained soil cores and were  $3\text{ m}$  deep; soil of the third (12/4) was poured into the lysimeter, which was  $1,75\text{ m}$  deep. According to preliminary investigations, the quantities of seepage and its temporal distribution were very similar for lysimeters 12/1 and 12/3, with analogous results being obtained for the poured lysimeter 12/4.

However, using the ideal tracer  $D_2O$  to study water transport revealed significant differences between the breakthrough volumes of seepage in lysimeters 12/1 ( $105\text{ L}$ ) and 12/3 ( $280\text{ L}$ ). By the time the experiment had been on the way for 20 months, the total seepage accrual of lysimeter 12/1 was  $460\text{ L}$ , and  $28\%$  of the  $D_2O$  administered had been discharged. This far exceeded the figure of  $8\%$  of  $D_2O$  administered for lysimeter 12/3, which had a total seepage volume of  $410\text{ l}$ , and where the breakthrough of  $D_2O$  occurred much later. These results indicate that pathways of preferred conductivity existed in lysimeter 12/1 facilitating the rapid removal of seepage, whereas mainly piston-flow can be assumed for lysimeter 12/3. The known anion exclusion can again be verified in lysimeter 12/3, i.e. the breakthrough of the anions bromide and nitrate occur significantly in advance of that of  $D_2O$ , but the total discharge after 20 weeks for  $D_2O$  and Br is the same, viz.  $8\%$ . Moreover, only  $0,6\%$  of the nitrate applied is directly discharged owing to the microbiological conversions taking place in the soil. The results were different in lysimeter 12/1, where the breakthrough volumes of deuterium and nitrate were the same ( $105\text{ L}$ ), and where bromide was only detected after  $140\text{ L}$ . This effect could be at-

**Autoren:** Dr. Rolf RUSSOW, Dr. S. KNAPPE, Sektion Bodenforschung, Dr. W. RICHTER, Sektion Geohydrologie, UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle, Theodor-Lieser-Straße 4, D-06120 HALLE

tributed to the low pH of about 2,0 recorded in the soil water in relation with the extremely high sulphate levels. These conditions seem to cause a temporary chemisorption of bromide. On the other hand, the relatively high discharge of bromide (20 %) and above all nitrate (4 %) with a deuterium water discharge of 28 % in lysimeter 12/1 confirms again the rapid transport of water and other substances via well conducting sandy or gravely pathways.

## 1. Problemstellung

Die Braunkohlegewinnung im Mitteldeutschen Braunkohlenrevier südlich Leipzigs erfolgt seit 1920 in Großtagebauen. Im Ergebnis des Braunkohlentagebaus werden hier rund 170 km<sup>2</sup> Kippenlandfläche sowie 70 km<sup>2</sup> Seefläche hinterlassen (HILDMANN, 1993). Auf Grund der Wechselwirkungen zwischen rekultivierter Bodenschicht, Kippe, See und Grundwasser ergeben sich dabei spezifische Probleme zur Stoff- und Wasserbewegung in der ungesättigten Zone unter den rekultivierten Bergbaufolgefächern. Diese werden verursacht durch die physikalischen und chemischen Eigenschaften der aufgetragenen Schicht aus Oberboden und den darunterliegenden, verkippten und damit extrem heterogenen Substraten. Es handelt sich dabei um die Bodenform eines Regosols aus Kipp-Sandlehm, der als schwach karbonathaltig, über tiefen Fein- und Mittelsand, schwach schluffig, schwach bis stark kohlehaltig angesprochen wurde (KA4, 1994; WEISE, 1996). Untersuchungen im Rahmen eines scaling up für den Wasserhaushalt von drei monolithischen Lysimetern mit dieser Bodenform ergaben trotz großer Heterogenität der Bodenprofile bei Sickerwasserbildung, Evapotranspiration und Bodenwasservorratsänderung nahezu identische Werte. Demgegenüber spiegelte der Stoffhaushalt in Abhängigkeit von Substrat und damit verbundenem pH-Wert deutlich die zu erwartende Heterogenität wider (KNAPPE et al., 1999 a, b). Zur Untersuchung dieser komplexen Zusammenhänge hat sich die Stabilisotopen-Tracertechnik bewährt (BOWMAN, 1984; BEHRENS, 1986; BUCHTER et al., 1995; RUSSOW et al., 1995, 1996). Davon ausgehend sollte mit Hil-

fe von Tracermethoden ein Beitrag zur Aufklärung des Wasser- und Stofftransportes unter den besonderen Bedingungen stark heterogener und versauerter Kippenböden in Lysimetern erbracht werden. Die konkreten Aufgaben in der vorliegenden Studie bestanden daher in:

- ❶ Messung der Wasserbewegung und -verweilzeit mittels D<sub>2</sub>O-Impulsmarkierung.
- ❷ Untersuchung der Nitratverlagerung sowie der Festlegung im Boden und der Pflanzenaufnahme durch [<sup>15</sup>N]Nitrat-Impulsmarkierung.
- ❸ Nutzung von Bromid als konservativer Tracer und Vergleich mit D<sub>2</sub>O (idealer Wassertracer) und [<sup>15</sup>N]Nitrat.

## 2. Material und Methoden

### 2.1. Lysimeterböden

Die Untersuchungen wurden an Böden der rekultivierten Braunkohlentagebaupippe Espenhain, Nähe Rötha durchgeführt. Es wurden drei monolithische Bodenkerne mit einer Oberfläche von 1 m<sup>2</sup> und einer Tiefe von 3 m gewonnen und in der Lysimeterstation Brandis (Niederschlag im Beobachtungszeitraum 931 mm) in Brandis installiert. Zwei dieser Lysimeter (Lysimeter 12/1 und 12/3) wurden aufgrund von Voruntersuchungen für die Tracerversuche ausgewählt. Zusätzlich stand in der Lysimeterstation Falkenberg (Niederschlag 772 mm) ein geschüttetes Lysimeter (L124) zur Verfügung, das schichtweise mit Boden aus dem beschriebenen Rekultivierungsgebiet gefüllt worden war. Die Abmessungen dieses Lysimeters betragen 1 m<sup>2</sup> Oberfläche und 1,75 m Tiefe.

### 2.2. Durchführung der Multitracer-Versuche

Die Abschätzung der erforderlichen Tracer-Menge erfolgte auf Grund der bereits vorliegenden Erfahrungen aus tracergestützten Lysimeterversuchen.

Vor der Applikation wurden folgende Tracer-Mengen der einzelnen Tracer in 100 ml dest. Wasser gelöst (Markierungslösung):

7,3 g [<sup>15</sup>N] Kaliumnitrat pro Lysimeter (1 m<sup>2</sup>), entsprechend 1 g N/m<sup>2</sup>, Anreicherung ca. 95 At.-%,

25 g Kaliumbromid pro Lysimeter (1 m<sup>2</sup>), entsprechend ca. 15 g Br/m<sup>2</sup>.

Das Aufbringen der Tracer muss möglichst gleichmäßig erfolgen. Dazu wurden die 100 ml Markierungslösung in einer kleinen Gießkanne mit 150 ml D<sub>2</sub>O (Anreicherung ca. 90 At.-%) vermischt und mit 750 ml Wasser verdünnt (Gesamtvolumen 1000 ml) und gleichmäßig auf dem entsprechenden Lysimeter verteilt. Anschließend Nachgießen mit 2 l Leitungswasser. Die insgesamt aufgebrauchte Wassermenge betrug somit 3,0 l, entsprechend 3 mm Niederschlag. Die Markierung erfolgte am 13.11.1998.

Proben wurden bisher vom Perkolat und vom Erntegut in den Jahren 1999 (Wintergerste) und 2000 (Erbsen) genommen. Beim Perkolat geschah das bis zum Tracerdurchbruch wöchentlich einmal und danach in Abhängigkeit vom Sickerwasseranfall, aber zumindest einmal pro Monat.

Auf eine Beschreibung der <sup>15</sup>N-Analytik der Proben muss hier aus Platzgründen verzichtet werden. Es sei dazu auf die ausführliche Darstellung in RUSSOW et al., 1996, verwiesen.

## 3. Ergebnisse

Beide Lysimeter zeigen nach 18 Monaten im Verlauf der Sickerwasserbildung und im Sickerwasservolumen von 460 l bzw. 408 l, wie bereits in früheren Untersuchungen (s. Problemstellung), ein sehr ähnliches Verhalten. Inwieweit der Wasserfluss und damit auch der Stofftransport in den Bodenkernen durch die aufgezeigten Heterogenitäten beeinflusst wird, ist aus den Austragskurven der verschiedenen, eingesetzten Tracer (*Abbildung 1*) ableitbar.

Allein der visuelle Vergleich der Kurvenverläufe zeigt im Gegensatz zur nahezu gleichlaufenden Sickerwasserbildung der beiden Lysimeter erhebliche Unterschiede zwischen den beiden monolithischen Bodenkernen (*Abbildung 1 a und b*) auf.

Sehr nachteilig für eine weiterführende Auswertung (z. B. Verweilzeitanalyse für Wasser und Anionen) wirkt sich der bisher erst vorliegende kurze Auswertzeitraum von 11/1998 bis 05/2000 aus (der Vortrag berücksichtigt bereits einen Zeitraum bis 12/2000). Sowohl beim

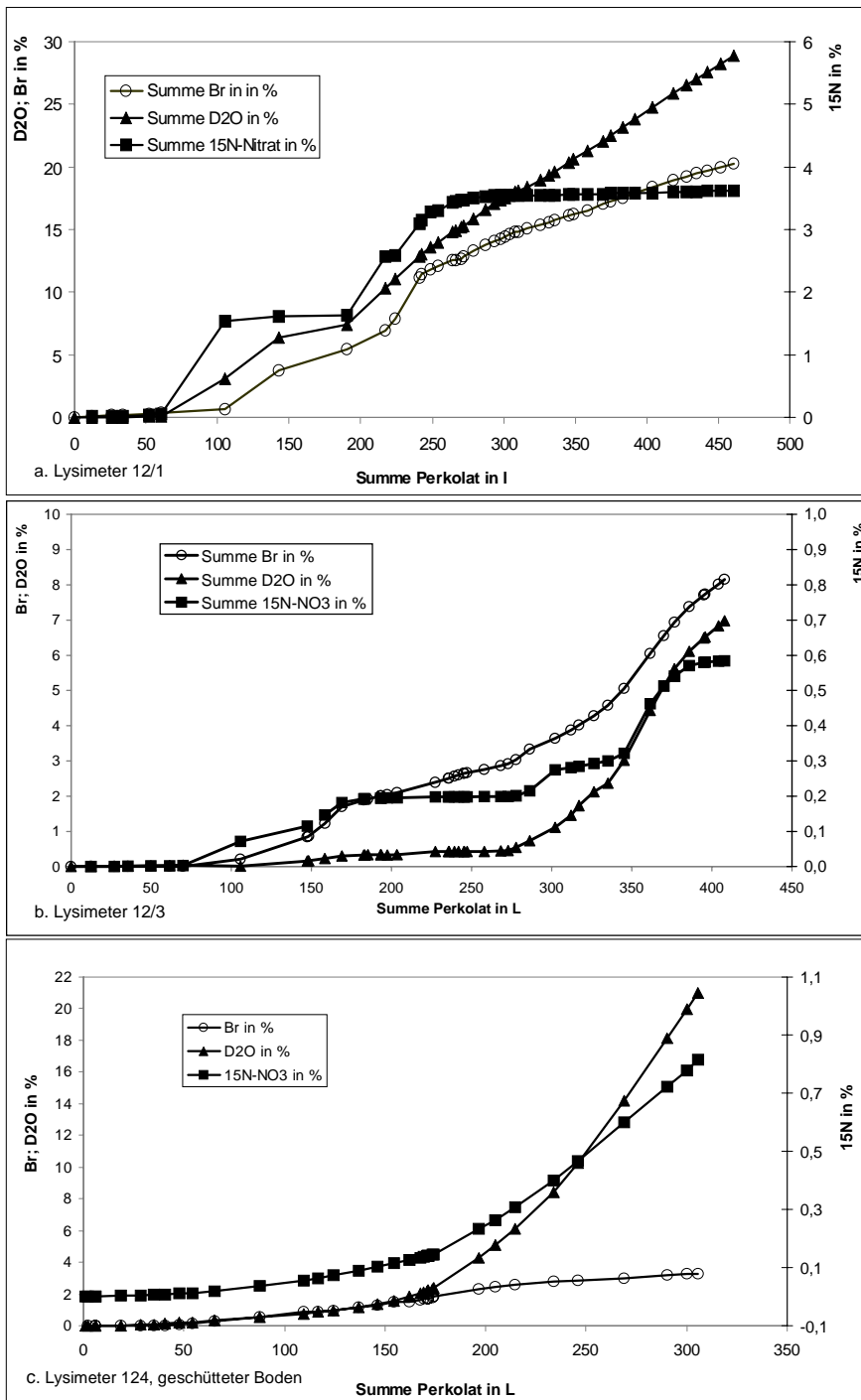


Abbildung 1: Kumulativer Austrag an Bromid, <sup>15</sup>N-Nitrat und D<sub>2</sub>O in Abhängigkeit von der Sickerwassermenge für die untersuchten Lysimeter

Deuteriumwasser als auch beim Bromid befindet sich die kumulative Ausstragskurve noch in einer steilen Anstiegsphase, was eine Berechnung oder auch Abschätzung der zu erwartenden mittleren Verweilzeit für Wasser und Bromid unmöglich macht. Um bereits zum gegenwärtigen Zeitpunkt trotzdem einen quantitativen Vergleich zu ermöglichen, werden folgende charakteristische Kennwerte herangezogen:

- Durchbruchvolumen (DBV) in l, das ist das Sickerwasservolumen, in dem die Tracerkonzentration erstmalig signifikant über dem Untergrund lag.
- Traceraustrag AT300, das ist die mit 300 l Sickerwasser ausgetragene Tracermenge

Die definierten Werte können den Ausstragskurven in *Abbildung 1* entnommen werden und sind in der *Tabelle 1* zusammengefasst.

mengestellt. Diese Zahlen belegen deutlich die Unterschiede in der Art des Wasser- und Stofftransportes zwischen den beiden Bodenmonolithen.

Der Bodenkern 12/1 zeigt gegenüber 12/3 bei D<sub>2</sub>O und Nitrat deutlich kleinere Durchbruchvolumina und wesentlich größere transportierte Tracermengen bezogen auf 300 l Sickerwasser (AT 300). Der durch die starke Heterogenität dieser rekultivierten Bergbaufolgeböden bedingte unterschiedliche Transportmechanismus, wie er bei konventionellen Untersuchungen an diesen Lysimetern bereits vermutet wurde, kann bereits nach diesem Auswertestand der Traceruntersuchungen eindeutig bestätigt werden. So weisen kurze Durchbruchzeiten (niedrige Durchbruchvolumina) und hohe Tracerausträge mit 300 l Sickerwasser im Lysimeter 12/1 auf den vorwiegenden Transport über bevorzugte Fließwege hin. Hohe Durchbruchvolumina verbunden mit niedrigen Tracerausträgen im Lysimeter 12/3 repräsentieren dagegen eher den Typ einer Pfropfenströmung (Pisten Flow) und/oder den Einfluss von Stauschichten.

Im Vergleich dazu verhält sich der geschüttete Boden gleicher Herkunft in der Lysimeterstation Falkenberg widersprüchlich. Die Durchbruchvolumina sind aufgrund der kürzeren Bodensäule (1,75 m statt 3 m) erwartungsgemäß kleiner. Der Traceraustrag mit 300 l Sickerwasser ist bei D<sub>2</sub>O mit 21 % relativ hoch und vergleichbar mit dem Lysimeter 12/1. Im Gegensatz dazu ist der Br-Austrag mit einem AT300-Wert von 2,3 % sehr klein und ähnlich dem Lysimeter 12/3. Das bedeutet, dass in dem geschütteten Boden der Br-Austrag im Vergleich zur Wasserbewegung behindert ist. Das wiederum widerspricht Untersuchungen an natürlichen, landwirtschaftlich genutzten Böden (RUSSOW et al., 1996, RUSSOW und KNAPPE, 1999). Auf Grund des Anionenausschlusseffektes (Ton-Humus-Komplexe natürlicher Böden haben negative Oberflächenladungen) eilt das Anion Bromid der markierten Wasserfront leicht voraus (DBV Br < D<sub>2</sub>O). Die Sickerwässer aus Kippenböden sind infolge der Pyritoxidation in den tertiären Substraten, wie einleitend dargestellt, teilweise extrem sauer. Ob daraus zusätzliche Wechselwirkungen mit dem Bro-

**Tabelle 1: Charakteristische Werte zum Vergleich der untersuchten Lysimeterböden**

Lysimeter	Bauart	Durchbruchsvolumen in L			Austrag nach 300 L in %		
		Br	D <sub>2</sub> O	<sup>15</sup> NNitrat	Br	D <sub>2</sub> O	<sup>15</sup> NNitrat
L 12/1	monolithisch	120	82	60	14,4	17,5	3,5
L 12/3	monolithisch	105	147	70	3,6	1,1	0,28
L 124	geschüttet	48	30	38	2,3	20,0	0,78

mid resultieren, die zu der beobachteten Br-Retardation führen, ist bisher nicht bekannt. Es wird u. a. vermutet, dass die Substratoberfläche bei den gemessenen pH-Werten protoniert wird und es so zu Chemisorption von Br-Anionen kommen kann. Darüber hinaus sind auch Reaktionen mit der OBS unter diesen Bedingungen nicht auszuschließen. Zur Beantwortung dieser Frage werden neben der Weiterführung der angelegten Tracerversuche vor allem Bach- und Säulenversuche mit den Ausgangssubstraten für notwendig erachtet.

## Literatur

BEHRENS, H. (1986): Water tracer chemistry-A factor determining performance and analytics

of tracers. Proc. 5<sup>th</sup> Int. Symp. Underground Water Tracing, Athens, pp. 121-133

BOWMAN, R. S. (1984): Evaluation of some new tracers for soil water studies. Soil Sci. Soc. Am. J. **48**, S. 987-993

BUCHTER, B., C. HINZ, M. FLURY, H. FLÜHLER (1995): Heterogeneous flow and solute transport in an unsaturated stony monolith. Soil Sci. Soc. Am. J. **59**, S. 14-21

HILDMANN, E. (1993): Braunkohlenbergbau und Landschaftseingriffe - neue Orientierung für die Folgelandschaft. Ber. Z. Dt. Landeskunde, Trier 1, 55-56

KA4 (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung. Dt. Bodenk. Ges., 4. Aufl., Hannover, S. 392

KNAPPE, S., U. HAFERKORN, J. MATTUSCH, R. WENNRICH (1999): Wasser- und Stoffflüsse in rekultivierten, langjährig landwirtschaftlich genutzten Kippenböden im Südraum Leipzig. Bericht über die 8. Lysimetertagung. Stoffflüsse und ihre regionale Bedeutung für die

Landwirtschaft. BAL Gumpenstein, 49-52 (ISBN 3-901980-37-7)

KNAPPE, S., U. HAFERKORN, R. RUSSOW, J. MATTUSCH, R. WENNRICH (1999): Lysimeteruntersuchungen zum Wasser- und Stoffhaushalt eines langjährig landwirtschaftlich genutzten Regosols von der Kippe des Braunkohlentagebaues Espenhain im Südraum Leipzig. Mitt. Deutsche Bodenkundl. Gesellsch. 91/2, 803-806 (ISSN-0343-1071)

RUSSOW, R., S. KNAPE, H. FÖRSTEL, R. MEISSNER (1995a): Doppeltracer-Studie zur Wasser- und Nitratbewegung in tiefengestaffelten Lysimetern. 5. Gumpensteiner Lysimetertagung, BAL Gumpenstein/Österreich, 25.-26.04.95

RUSSOW, R., H.-J. SEGSCHNEIDER, H. FÖRSTEL (1996): Vergleich der Wasser- und Anionenbewegung in agrarisch genutzten Sandlöß- und Löß-Schwarzerde-Böden an Hand von Multitracer-Untersuchungen. Arch. Acker- Pfl. Bodenk. 40, 453-471

RUSSOW, R., S. KNAPE (1999): Bromid als Tracer zur Untersuchung der Wasserbewegung und der Nitratverlagerung in Böden: Vergleich mit stabilisotopen Tracern. GSF-Berichte 1/99, ISSN 0721-1694, S. 79-83

WEISE, E. (1996): Dokumentation der Lysimetersäulenentnahmestellen auf der Innenkippe im Braunkohlentagebau Espenhain. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Bereich Boden und Geologie, Freiberg/Sachs