

# Absicherung der Sickerwasserprognose von schwach kontaminierten Materialien mit Großlysimeter

TH. PÜTZ, H. RÜTZEL und H. VERECKEN

## Abstract

A large scale lysimeter experiment has been conducted for the assessment of a possible ground water contamination by low contaminated recycling material (household waste incineration ash, PAH-contaminated soil, building rubble). Beside the recycling material, water tracers as well as di-fluorobenzoic acid and Isoproturon for description of the matter fluxes were applied. Soil solution has been taken via suction candles; leachates have been collected and in total 25 different measurements per water sample have been analyzed.

## Zusammenfassung

Zur Bewertung möglicher Grundwasserkontaminationen durch schwach kontaminierte Recyclingmaterialien (Hausmüllverbrennungasche, PAK-kontaminierter Boden, Bauschutt) wurden Großlysimeterversuche durchgeführt. Mit den Recyclingmaterialien wurden Wassertracer sowie zur Beschreibung des Stofftransportes eine Di-Fluorbenzoesäure und Isoproturon appliziert. Aus drei Tiefen wurden Bodenlösungen über Saugkerzen gewonnen, Perkolate erfasst und insgesamt 25 verschiedene Messgrößen bestimmt.

## Einleitung

Große Mengen schwach kontaminierter Recyclingmaterialien werden zur Untergrundbefestigung im Straßen- und Wegebau eingesetzt. Es ist nicht geklärt, ob diese Materialien wasserlösliche Begleitstoffe beinhalten, die mittel- bis langfristig unsere Grundwasserressourcen kontaminieren können. Aus Vorsorgeaspekten wird von Wasserversorgern bereits in der äußeren Schutzzone von Wasserschutzgebieten der Einsatz von Recyclingmaterial verboten (BEZIRKSREGIERUNG KÖLN, 1994). Da große

Mengen Recyclingmaterial sehr unterschiedlicher Herkünfte verwendet werden, stellt die Prognose des Verlagerungsverhaltens dieser anthropogenen Schadstoffeinträge eine wesentliche Aufgabe des Bodenschutzes dar. Die Ziele des BMBF-Forschungsschwerpunktes "Sickerwasserprognose" sind mögliche Grundwasserkontaminationen abzuschätzen und Testverfahren zu entwickeln bzw. zu modifizieren, die die Quellstärke grundwassergefährdender Stoffe aus Recyclingmaterial zuverlässig und schnell bestimmen. Zur Validierung dieser Untersuchungen sind realitätsnahe Daten notwendig, die alle relevanten Detailprozesse umfassen und unter Freilandbedingungen gewonnen wurden.

Die vorliegende Arbeit untersuchte im Rahmen des BMBF-geförderten Forschungsschwerpunktes "Sickerwasserprognose" das Verlagerungsverhalten von drei verschiedenen, weit verbreiteten Recyclingmaterialien in einem realitätsnahen Freilandversuch. Das Versuchsdesign ist hierbei das Lysimeter, das eine Bilanz der eingesetzten Substanzen ermöglicht (JENE, 1998).

## Material und Methoden

Die Versuche wurden mit vier wägbaren Großlysimetern (Länge: 2,5 m; Oberfläche: 2,0 m<sup>2</sup>) in einer klimatisierten, unterkellerten Anlage durchgeführt. Die Bodenlösungsgewinnung erfolgte über Borosilikatglas-Saugkerzen in dreifacher Wiederholung mit einem kontinuierlichen Unterdruck von 180 hPa in den Tiefen 0,85 m, 1,15 m und 1,85 m unter Geländeoberkante (GOK). Zusätzlich wurden in diesen Tiefen Tensiometer, TDR-Sonden und Temperaturfühler in dreifacher Wiederholung installiert. Zur Generierung kompletter Datensätze für die Modellierung wurden die Luftfeuchte, die Lufttemperatur, die Einstrahlungs-

intensität, der Niederschlag bzw. Zusatzberechnung und die Windgeschwindigkeit erfasst. Über Edelstahlintermetallplatten an den Lysimetersohlen in Kombination mit einem kontinuierlichen Unterdruck von 30 hPa wurde ein Anschluss an den Unterboden simuliert, der einen feldnahen Wasserfluss sicherstellte. Die Großlysimeter waren mit Parabraunerde-Monolithen aus Löß befüllt (*Abbildung 1*).

Zur Applikationsvorbereitung wurden die obersten 0,80 m des Bodens aus den vier Lysimetern entnommen. Zur Beschreibung des Stofftransportes und der Wasserbewegung wurden am 08./09. April 2002 auf die Böden aller vier Lysimeter in 0,80 m Tiefe unter GOK Isoproturon und 2,6 Di-Fluorbenzoesäure sowie der Wassertracer Bromid appliziert (*Tabelle 1*).

Nach dem Abtrocknen des applizierten Bodens wurden die Referenzmaterialien "Boden", "Hausmüllverbrennungasche" (HMVA) sowie "Bauschutt" eingebaut. Im Kontrolllysimeter wurde eine 0,80 m mächtige Grobsandschicht eingefüllt. In den übrigen Lysimetern variierte die Stärke der abschließend eingebauten Grobsandschicht entsprechend der Differenz aus entnommener Bodenschicht abzüglich Mächtigkeit der eingefüllten Referenzmaterialien. Auf den Grobsand wurde als weiterer Wassertracer 65 %-iges Deuteriumoxid (D<sub>2</sub>O) appliziert und anschließend mit Millipore-Wasser beregnet (*Tabelle 1*).

Die Probenahmen erfolgten monatlich. Nach der Applikation wurde zusätzlich mit Millipore-Wasser beregnet, um die Niederschlagsmengen dem Referenzstandort München-Neuherberg entsprechend zu erhöhen. Die Regengaben von ca. 20 mm wurden mittels Tropfer (208 Stück) mit einem Raster von 10 cm x 10 cm gegeben.

**Autoren:** Dr. Thomas PÜTZ, Herbert RÜTZEL und H. VERECKEN, Institut Agrosphäre - Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG) - Forschungszentrum Jülich GmbH, Postfach 1913, D-52425 JÜLICH

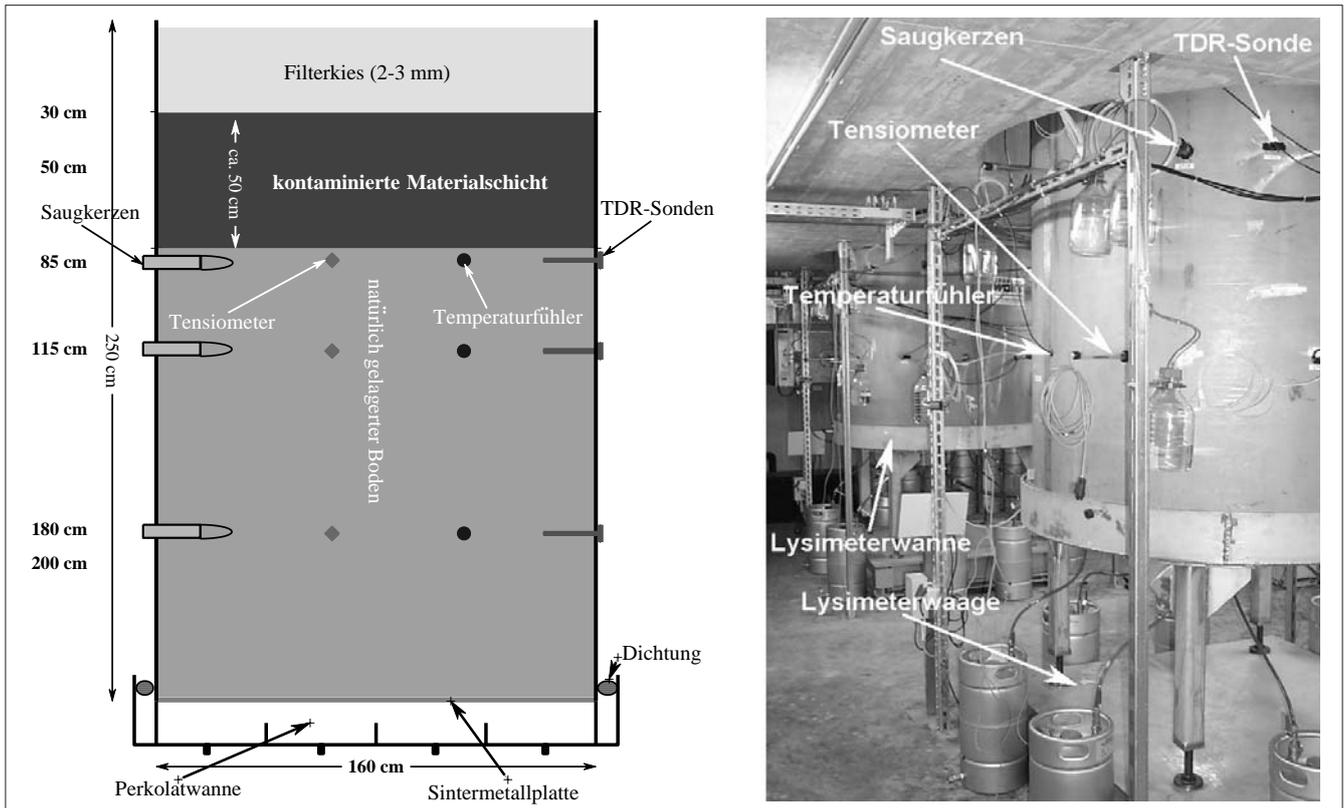


Abbildung 1: Querschnitt eines komplett befüllten und installierten Lysimeters (links) und Ansicht der Lysimeter im Lysimeterkeller (rechts).

Tabelle 1: Applikationsmengen der Wassertracer und Indikatorstoffe für alle vier Lysimeter.

Lysimeter	Kontrolle	"Boden"	"HMVA"	"Bauschutt"
Isoproturon [mL]	0,263	0,263	0,263	0,263
Bromid [g]	21,000	21,000	21,002	21,010
2,6-Di-Fluorbenzoesäure [g]	12,601	12,601	12,601	12,600
65-iges D <sub>2</sub> O [L]	2,0	2,0	2,0	2,0

## Ergebnisse

Die Versuchsdauer umfasste 34 Monate und insgesamt wurden 33 Probenahmen durchgeführt. Der Perkolatmengenanteil der einzelnen Lysimeter an den Niederschlägen und der Zusatzberechnung lag zwischen 60 und 69 %. Unter Berücksichtigung der entnommenen Bodenlösungen erhöhten sich die Anteile auf 76 - 79 %. Da die Lysimeter mit einer mindestens 30 cm mächtigen Grobsandschicht abschlossen und zu Versuchsbeginn nicht wassergesättigt waren, scheint Evaporation nur in einem geringen Umfang plausibel, so dass die Differenz durch die Aufsättigung der Referenzmaterialien und des Bodens erklärbar ist.

Insgesamt wurden 25 verschiedene Messgrößen analysiert, deshalb können im Rahmen dieser Darstellung nur beispielhaft Ergebnisse präsentiert und nur

einige summarische Aussagen zu charakteristischen Ergebnissen zusammengestellt werden.

Der Wassertracer Bromid wurde mit den Bodenlösungen und den Perkolaten mit Wiederfindungsraten von 86 - 110 % aus

Tabelle 2: Kenngrößen der Referenzmaterialien "Boden", "HMVA" und "Bauschutt".

Kenngrößen	"Boden"	"Bauschutt"	"HMVA"
eingefüllte Mengen [kg]	1510,0	1660,0	1544,2
Schichtdicke [m]	0,47	0,46	0,45
Acenaphthen [mg kg <sup>-1</sup> ]	10-50	1-5	-
Anthracen [mg kg <sup>-1</sup> ]	1-5	1-5	-
Fluoren [mg kg <sup>-1</sup> ]	10-50	1-5	-
Phenanthren [mg kg <sup>-1</sup> ]	10-50	5-10	-
As [mg kg <sup>-1</sup> ]	n.d.	1-5	5-10
Pb [mg kg <sup>-1</sup> ]	5-10	10-50	500-1000
Cu [mg kg <sup>-1</sup> ]	10-50	10-50	1000-2000
Zn [mg kg <sup>-1</sup> ]	10-50	50-100	2000-3000
Ca [g kg <sup>-1</sup> ]	10-50	10-50	50-100

- = nicht bestimmt, n.d. = nicht detektierbar

den Lysimetern ausgetragen (Abbildung 2). Die Lysimeter zeigen ein sehr ähnliches Bromidverlagerungsverhalten, wobei das Kontrolllysimeter einen tendenziell schnelleren Durchbruch aufweist, der durch die höchste Perkolatmenge erklärt werden kann. Die deutliche Peakverbreiterung und die Abflachung des Kurvenverlaufes sind typisch für eine Tiefenverlagerung. Der Wassertracer D<sub>2</sub>O, der zum Abschluss der Applikation auf den Grobsand appliziert und eingeregnet wurde, weist dem Bromid vergleichbare Kurvenverläufe auf.

Tabelle 3: Niederschlag, Zusatzberegung und Perkolatmenge als Summenwerte der vier Lysimeter.

	Niederschlag	Zusatzberegung	Kontrolle [mm]	Perkolat		
	[mm]	[mm]		„Boden“ [mm]	„HMVA“ [mm]	„Bauschutt“ [mm]
Summe	1809,4	644,8	1683,9	1638,6	1546,9	1477,9
% Regen und Beregung (Bodenlösung & Perkolat)				78,4	77,3	75,5
% von Regen und Beregung (nur Perkolat)				68,5	66,7	60,4

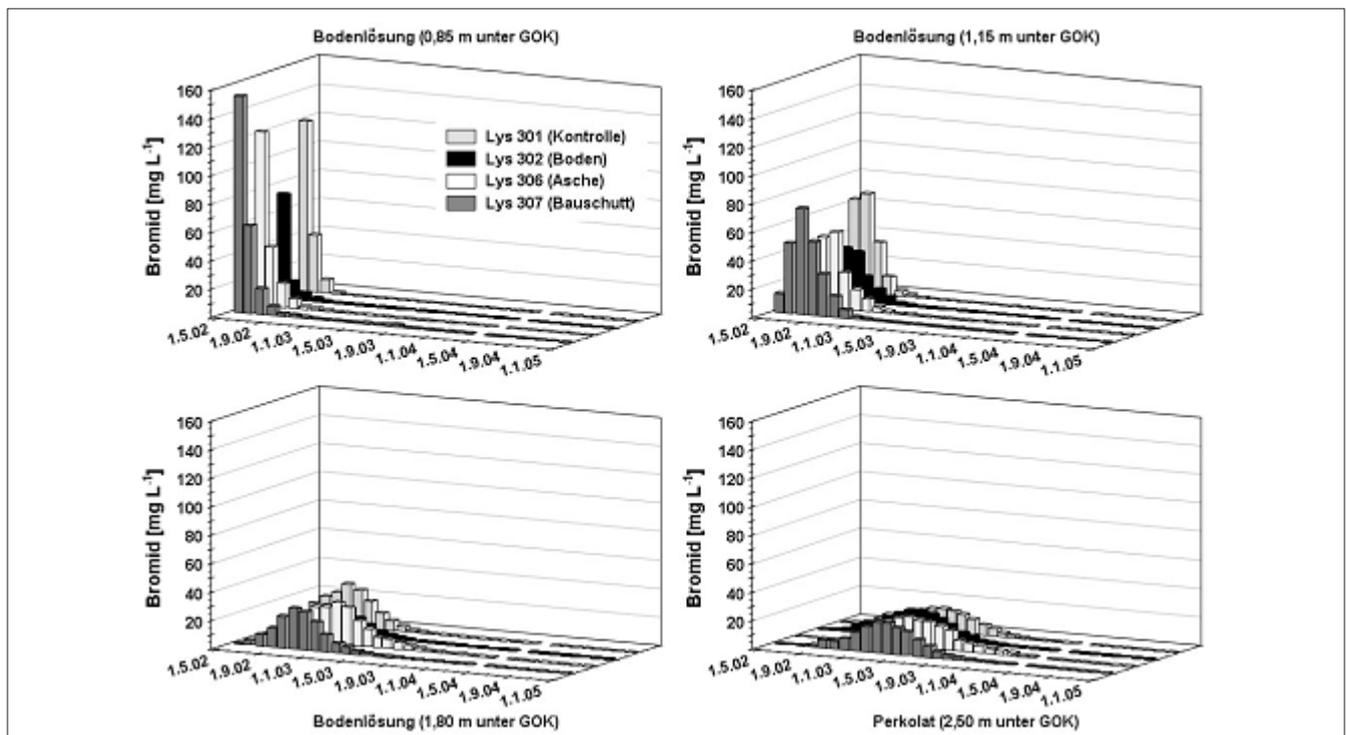


Abbildung 2: Bromid-Durchbruchkurven in den Bodenlösungen und in den Perkolaten der Lysimeter.

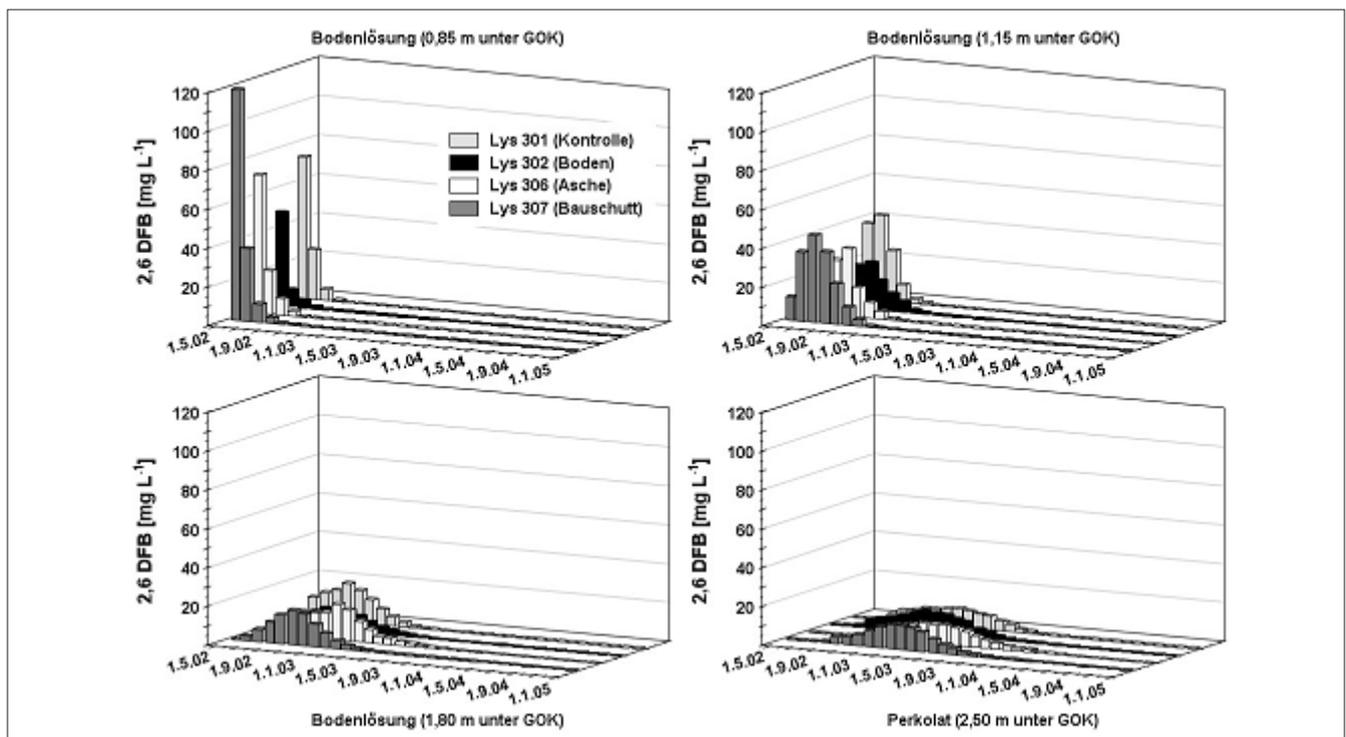


Abbildung 3: 2,6-DFB-Durchbruchkurven in den Bodenlösungen und in den Perkolaten der Lysimeter.

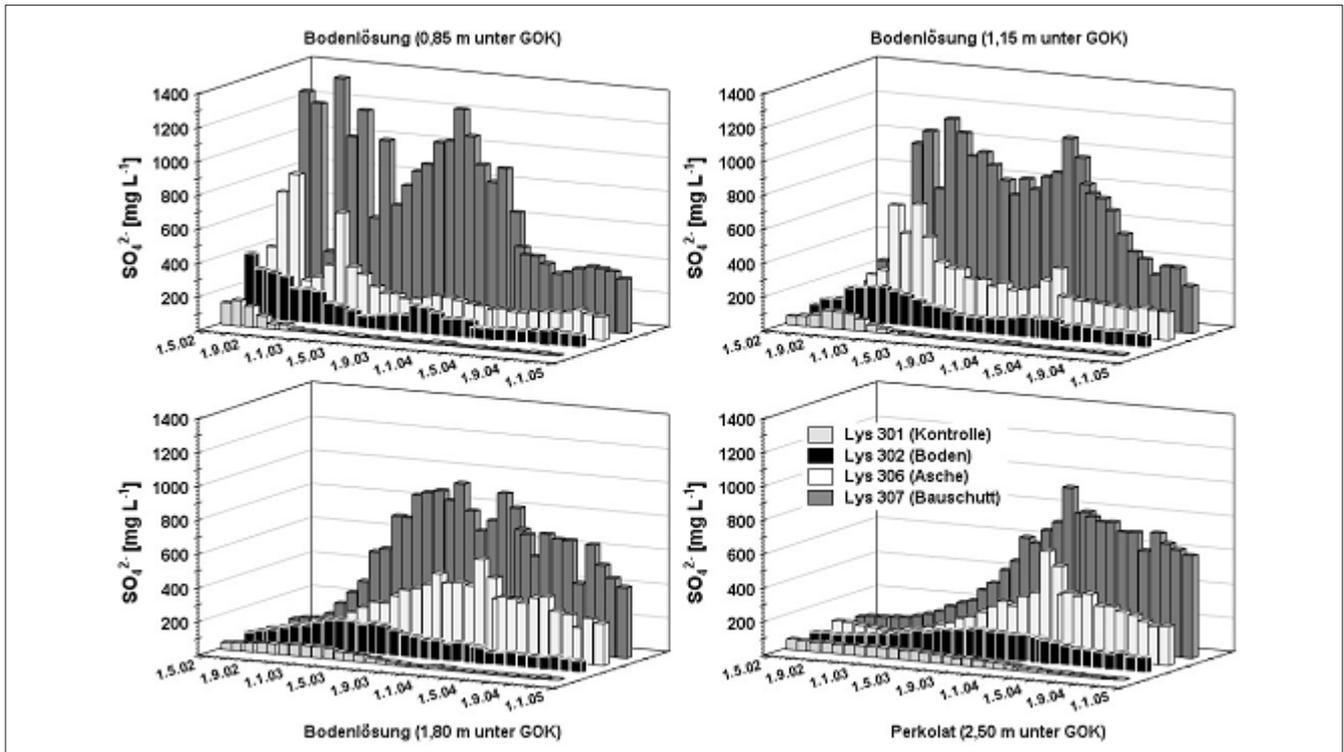


Abbildung 4: Sulfat-Durchbruchskurven in den Bodenlösungen und in den Perkolaten der Lysimeter.

Zur Beschreibung des Stofftransportes in den Lysimetern wurden 2,6-Di-Fluorbenzoesäure (DFB) und Isoproturon (IPU) als so genannte Indikatorstoffe appliziert. Über diese Stoffe war aus Vorversuchen (DFB: DRESSEL, 2004) bzw. aus der Literatur (IPU: BEULKE et al., 2002) eine gewisse Mobilität in strukturierten Böden bekannt. Die DFB wurde mit den Bodenlösungen und den Perkolaten mit Wiederfindungsraten von 92 - 96 % aus den Lysimetern ausgetragen. In allen Lysimetern erfolgte auch ein kompletter DFB-Durchbruch (Abbildung 3). Das DFB-Verlagerungsverhalten wird durch die organische Substanz des Bodens nachhaltig beeinflusst (DRESSEL, 2004). Da aber die Applikationsfläche 0,80 m unter GOK lag und die  $C_{\text{org}}$ -Gehalte in dieser Tiefe äußerst gering waren ( $C_{\text{org}} < 0,1 \%$ ), wies DFB ein dem Wassertracer Bromid vergleichbares Verlagerungsverhalten auf (vgl. Abbildung 2 und Abbildung 3). Die Referenzsubstanz IPU wurde zu Versuchsbeginn zeitgleich in allen Beprobungstiefen gemessen, wobei eine deutliche Konzentrationsabnahme mit der Tiefe beobachtet wurde. Mit Ausnahme des Lysimeters 301 (Kontrolle) wurde kein IPU zu späteren Probenahmeterminen nachgewiesen.

Von den eingebrachten PAKs waren aufgrund der aufgetragenen Mengen nur Anthracen, Acenaphthen, Phenanthren und Fluoren in den Bodenlösungen bzw. in den Perkolaten zu erwarten. Alle vier Substanzen wurden bei den ersten Probenahmen in der ersten Saugkerzenebene nachgewiesen. Nur in Lysimeter 302 "Boden" wurde Phenanthren in deutlich erhöhten Konzentrationen in der ersten Saugkerzenebene detektiert. In den übrigen Proben wurde Phenanthren entsprechend dem Background bestimmt.

Als Vertreter der Ionen in den Bodenlösungen und in den Perkolaten wurden  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  und  $\text{Cl}^-$  bestimmt. Aufgrund der Referenzmaterialien wurden in den Lysimetern 306 "Asche" und 307 "Bauschutt" erhöhte Gehalte gemessen. Mit Ausnahme von  $\text{K}^+$  entsprachen die Konzentrationsverläufe Durchbruchskurven, wobei dies für alle Beprobungstiefen beobachtet wurde. Je nach Beprobungsebene und Ion waren die Konzentrationen in den Bodenlösungen der ersten Beprobungsebene bis zu einem Faktor 1200 höher als die Konzentrationen des Kontrolllysimeters (Abbildung 4). Aber auch für die Perkolate wurden noch um den Faktor 500 höhere Konzentrationen gemessen.

Für die Vertreter der Schwermetalle wurden Kupfer, Cadmium, Blei, Nickel, Chrom und Zink analysiert. Cadmium und Blei wurde in allen Bodenlösungen im Ultraspurenbereich kleiner  $0,5 \mu\text{g L}^{-1}$  detektiert, lediglich im Lysimeter 306 "Asche" wurden Cadmium-Konzentrationen in den Bodenlösungen aus der ersten Beprobungsebene bis  $2,0 \mu\text{g L}^{-1}$  beobachtet. Für die übrigen untersuchten Schwermetalle lagen die gefundenen Konzentrationen in den Bodenlösungen bis zu  $200 \mu\text{g L}^{-1}$  (für Chrom, Zink und Nickel) in der obersten Beprobungsebene, bis  $140 \mu\text{g L}^{-1}$  (Zink) in der mittleren Beprobungsebene und bis  $60 \mu\text{g L}^{-1}$  (Zink) in der untersten Beprobungsebene. Die Schwermetallkonzentrationen in den Perkolaten lagen um ein Vielfaches über den Bodenlösungskonzentrationen. Wahrscheinlich wurden hier produktionsstechnische Rückstände aus den Edelstahlintermetallplatten ausgespült, denn in allen Lysimeter wurden vergleichbare Konzentrationen gemessen. Folglich ist ein Austrag mit den Perkolaten aus den Referenzsubstanzen nicht zu beantworten, da es sich hier um einen systemimmanenten Fehler handelt.

## Schlussfolgerung

Die Verlagerungssituation in den Großlysimetern entsprach einem "worst case"-Scenario, da aufgrund der intensiven zusätzlichen Beregnung und der bewuchsfreien Lysimeteroberfläche ein rascher abwärtsgerichteter Transport beobachtet wurde. Dies wurde durch die Wassertracer Bromid sowie D<sub>2</sub>O und dem Indikatorstoff DFB exakt erfasst.

Für die in der Gruppe der Ionen untersuchten Beispiele wurde die aus der Pflanzenernährung bekannten Mobilitäten beobachtet, wobei die Frachten von der Applikationsmenge abhängig waren (MARSCHNER, 1995). Für die untersuchten Schwermetalle, die sich nur im Spurenbereich weit unterhalb der Grenzwerte der Trinkwasserschutzverordnung bewegten, kann man eine grobe Klassi-

fizierung in die Gruppen "immobil", "wenig mobil" und "mobil" vornehmen. In die Gruppe "immobil" wird Blei, in die Gruppe "wenig mobil" werden Kupfer, Nickel sowie Zink und in die Gruppe "mobil" werden Cadmium sowie Chrom eingestuft. Die untersuchten PAKs wiesen für den Beobachtungszeitraum keinerlei grundwassergefährdende Verlagerungstendenzen auf. Diese vorsichtigen Bewertungen basieren natürlich auf einem relativ kurzen Beobachtungszeitraum und bedürfen der weiteren Validierung.

## Literatur

BEZIRKSREGIERUNG KÖLN, 1994: Ordnungsbehördliche Verordnung zur Festsetzung des Wasserschutzgebietes für die Gewässer im Einzugsgebiet der Wiehltalsperre des Aggerverbandes. - Wasserschutzgebiet Verordnung Wiehltalsperre vom 20. Juni 1994, Sonderbeilage zum Amtsblatt Nr. 28 für den Regierungsbezirk Köln.

BEULKE, S., C.D. BROWN, C.K. Fryer and A. WALKER, 2002: Lysimeter Study to Investigate the Effect of Rainfall Patterns on Leaching of Isoproturon. *Pest Management Science* 58/1, 45-53.

DRESSEL, J., 2004: Transport von Ethidimuron, Methabenzthiazuron und Wassertracern in einer Pa-rabraunerde. - Dissertation Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn.

MARSCHNER, H., 1995: Mineral Nutrition of Higher Plants. - Academic Press, London, p. 889.

JENE, B., 1998: Transport of Bromide and Benazolin in Lysimeters and a Field Plot with Grid Suction Bases in a Sandy Soil. - Verlag Ulrich E. Grauer, Stuttgart, p. 171.

Danksagung

## Danksagung

Wir bedanken uns beim BMBF für die finanzielle Unterstützung dieses Forschungsprojektes.

