

**B E R I C H T E D E R N A T U R F O R S C H E N D E N
G E S E L L S C H A F T D E R O B E R L A U S I T Z**

Band 11

Ber. Naturforsch. Ges. Oberlausitz 11: 77-88 (2004)

ISSN 0941-0627

Manuskriptannahme am 17. 2. 2004
Erschienen am 1. 9. 2004

Vortrag zur 13. Jahrestagung der Naturforschenden Gesellschaft der Oberlausitz am 1. März 2003 in Görlitz

**Verhalten von Schwermetallen, Uran und Ra-226
bei der Flutung von Tagebaurestlöchern**

Von VOLKER E N D E R

Mit 6 Abbildungen und 5 Tabellen

1. Ausgangssituation

Die Flutung von ehemaligen Tagebauen ist gängige Praxis bei der Renaturierung von Tagebaulandschaften. Zahlreiche Nutzungspotentiale lassen sich erschließen (Erholung, Sport, Naturschutz, Wasser- und Fischereiwirtschaft). Dem stehen - zumindest zwischenzeitlich - unerwünschte Folgeerscheinungen bei der Flutung gegenüber (u. a. STRAUCH & GLÄSSER 2000):

- mögliche stabile Versauerung der entstehenden Seen durch Pyrit/Markasit-Oxidation (JESERIGK et al. 1998)
- Anstieg von Fe-, Al- und Sulfat-Gehalten in anstehenden Grundwasserleitern und den Seen selbst
- Verlust von Teilen der mineralischen Basis an den Tagebauwänden (z. B. Carbonate)
- Mobilisierung von Schwermetallen (LEWANDOWSKI et al. 1997, KLAPPER & GELLER 2001)
- Eintrag von Kontaminanten in die Seen durch Elution aus überstauten, altlastenbehafteten Böden
- Mobilisierung von Radionukliden.

Systematische Untersuchungen zur radiologischen Situation bei der Flutung von Tagebauen liegen für den sächsischen Raum bisher nicht vor. Sie beschränken sich auf unveröffentlichte Berichte der SDAG WISMUT. Bei Untersuchungen im Gladegraben (Raum Naunhof, Tangente der Trinkwasserversorgung Leipzig) wurden in den neunziger Jahren erhöhte Radionuklidgehalte festgestellt. Gemessen wurden U-Gehalte bzw. Ra-226-Aktivitäten an Trinkwasserfassungen der Wasserwerke Sermuth und Podelwitz von 310 µg/l bzw. 70 mBq/l (1 Bq = 1 Becquerel = 1 Zerfall/s) und 290 µg/l bzw. 35 mBq/l (WISMUT GmbH 1990). Uranverbindungen wirken giftig, wobei sie u. a. Leber- und Nierenschäden verursachen (U.S. DEPARTMENT OF HEALTH & HUMAN SERVICES 1998). Radium wird analog Calcium in Knochen eingebaut, und insbesondere die Isotope Ra-226 und Ra-228 weisen eine hohe Radiotoxizität auf.

Als Quelle erhöhter Radioaktivität kommen Kohlelagerstätten und die damit verbundene Bergbautätigkeit in Frage. In der Erdkruste ist Uran mit ca. 4 mg/kg relativ häufig vertreten (FALBE & REGNITZ 1992, MERKEL & SPERLING 1998). Für Braunkohlen werden Uran-Durchschnittswerte von 0,5 bis 10 mg/kg genannt (zitiert von DELAKOWITZ et al. 2003), wobei in fossilen Kohlenstoffträgern auch Uran-Werte bis in den g/kg-Bereich ermittelt worden sind (3,48 g/kg für die Wetterscheider Senke bei Naumburg (TONNDORF et al. 1986); 1,6 g/kg für die Urananomalie IV/65 im Tagebau Berzdorf (TONNDORF 1989)).

Im Hinblick auf die Beurteilung der radiologischen Situation im Trinkwasser sind folgende Empfehlungen/Richtwerte/Grenzwerte zu beachten:

- Empfehlung der Strahlenschutzkommission des BMU für Trinkwässer im Bereich von Uranbergbaugebieten (BMU 1992):

| | | | |
|-------------|-----------------------|--------|-----------|
| Jahresdosis | 0,5 mSv/a * | | |
| U | 7000 mBq/l (300 µg/l) | Ra-226 | 700 mBq/l |
| Po-210 | 600 mBq/l | Pb-210 | 400 mBq/l |
- * (pro Jahr zulässige Äquivalentdosis; gibt die biologische Wirkung der Strahlung unter Berücksichtigung der Strahlungsart wieder; 1 Sv = 1 Sievert = 1 J/kg)
- Richtlinien der Weltgesundheitsorganisation (WHO-RICHTLINIEN 1996):

| | |
|---|----------|
| Gesamt- α -Aktivität (ohne Radon) | 0,1 Bq/l |
| Gesamt- β -Aktivität (ohne Tritium) | 1,0 Bq/l |
- WHO-Leitwert für Uran in Trinkwasser (zitiert von PONTIUS 2000): 2 µg/l
- Trinkwasserverordnung der BRD (TVO-BRD 2001): Tritium 100 mBq/l
Gesamtrichtdosis 0,1 mSv/a (ohne Tritium, K-40, Radon und Radonfolgeprodukte) .

Zum Vergleich: Nimmt ein Erwachsener pro Jahr 700 l Trinkwasser mit einer Konzentration von 1 Bq/l U-238 bzw. 1 Bq/l Ra-226 zu sich, ergeben sich Dosen von 0,03 mSv/a bzw. 0,2 mSv/a (bei Kleinkindern 0,12 mSv/a bzw. 1,6 mSv/a). 1 Bq/l U-238 entspricht dabei 80,6 µg/l U-238 bzw. 1 µg/l Uran_{nat} entspricht 25,1 mBq/l (zur Gesamtaktivität natürlichen Urans tragen die beiden Isotope U-234 und U-238 jeweils mit ca. der Hälfte bei; U-235 ist in erster Näherung vernachlässigbar). Das heißt, dass der Richtwert von 0,1 mSv/a leicht überschritten werden kann. Es sei bemerkt, dass die gesamte mittlere Dosis, bedingt durch die natürliche Strahlenexposition, in Deutschland 2,4 mSv/a beträgt, davon 0,3 mSv/a durch die Nahrungsaufnahme.

Vor diesem Hintergrund ist durch das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie, Referat Natürliche Radioaktivität, ein umfangreiches Messprogramm mit dem Ziel initiiert worden, die radiologische Situation in den Braunkohlegebieten Sachsens zu kennzeichnen und gegebenenfalls Maßnahmen abzuleiten.

2. Erfassung des Ist-Zustandes

Insgesamt sind 35 Feststoffproben (Kohle, Sediment, abfiltrierbare Feststoffe bei Grundwasserproben), 84 Oberflächenwasser- und 70 Grundwasserproben in den Braunkohlefördergebieten des Großraums Leipzig, der Niederlausitz und der Oberlausitz analysiert worden. Die Messpunkte liegen GIS-gestützt mit den Gauss-Krüger-Koordinaten in digitalisierten Kartenunterlagen vor (DELAKOWITZ et al. 2003). Erfasst worden sind neben ausgewählten Schwermetallen, Uran und Ra-226 auch die Hauptkationen und -anionen sowie weitere wasserchemische Parameter wie pH-Wert, Leitfähigkeit und z. T. DOC. An dieser Stelle wird nur auf die Schwermetalle, Uran und Ra-226 eingegangen. Uran (Nachweisgrenze 2 ng/l) wurde wie die Schwermetalle mit ICP-MS nachgewiesen, Ra-226 ist α -spektrometrisch nach Überführung in ein Ba(Ra)-Sulfat-Messpräparat bestimmt worden (Nachweisgrenze 5 mBq/l). Einzelheiten zur Analytik sind ENDER (2003) und DELAKOWITZ et al. (2003) zu entnehmen. Tabelle 1 zeigt die Gehalte von Uran und ausgewählten Schwermetallen in Feststoffproben im Vergleich zu von verschiedenen Quellen angegebenen Normwerten.

Es ist erkennbar, dass bei den Schwermetallen in keinem Fall die nach HÖLTING (1996) definierten Eingreifwerte erreicht wurden. Grenzwerte für Böden wurden vereinzelt bei Proben aus dem Berzdorfer Revier für Chrom und Nickel überschritten, nicht jedoch mit den Durchschnittswerten. Die abfiltrierten Feststoffe aus den Grundwasserproben im Tagebau Berzdorf zeigen bei Chrom und Nickel Werte nahe an den Boden-Grenzwerten. Bei einer Kohle-Rückstellprobe (Kohle-alt), die aus dem Gebiet der Uran-Anomalie IV/65 stammt und vom Staatlichen Museum für Naturkunde Görlitz zur Verfügung gestellt wurde, sind die diesbezüglichen Grenzwerte überschritten.

Tab. 1 Vergleich von Grenz-, Normal-, Ziel- und Eingreifwerten mit gefundenen Werten für ausgewählte Elemente in Sediment- bzw. Kohleproben (Angaben in ppm in der Trockensubstanz; nach AUTORENKOLLEKTIV [1989], KLÄRSCHLAMMVERORDNUNG [1992], HÖLTING [1996])

| Element | | ppm | | U _{nat} | Cd | Cr | Ni | Zn |
|-------------------------|------------------|---------------------------------------|-------------------|------------------|-------------|-----------------|-------------|-----------------|
| Grenz- werte | Klär- schlamm | | | | 10 | 900 | 200 | 2500 |
| | Boden | | | | 1,5 | 100 | 50 | 200 |
| Normal- Gehalte | Pflanzen | | | | 0,05 - 0,4 | 0,1 - 1 | 0,1 - 3 | 5 - 100 |
| | Boden | | | | < 0,5 | 5 - 100 | 5 - 50 | 10 - 80 |
| Zielwerte | | | | | 0,8 | 100 | 35 | 140 |
| Eingreif- werte | | | | | 12 | 380 | 210 | 720 |
| Gefun- dene Werte | Berzdorf | Kohle, Sediment | Min ... Max | 1,29 - 6,61 | 0,06 - 0,67 | 14,2 - 155,7 | 5,6 - 105,6 | 23,9 - 169 |
| | | | Durch- schnitt | 3,52 | 0,32 | 60,8 | 29,8 | 81,8 |
| | Berzdorf | Kohle-alt | | 8,1 | 0,94 | 212 | 79,6 | 109,3 |
| | Berzdorf | Feststoff des Grund- wassers | Min ... Max | 0,5 - 1,7 | 0,07 - 0,78 | 56,7 - 287 | 26,8 - 103 | 36,7 - 151 |
| | | | Durch- schnitt | 1,13 | 0,34 | 117 | 48,6 | 76,2 |
| | Olbersdorf | Kohle, Sediment | Min ... Max | | 0,07 - 0,54 | 47,2 - 111,9 | 12,9 - 42,1 | 29,2 - 160,1 |
| | | | Durch- schnitt | | 0,22 | 81,4 | 24,5 | 54,0 |
| | Gladegraben | Sediment | Min ... Max | 1,7 - 44 | 0,4 - 2,17 | 12,7 - 64,6 | 6 - 38,7 | 97,3 - 553 |
| | | | Durch- schnitt | 13,9 | 1,23 | 37,7 | 19 | 282 |

Bei den Sedimenten des Gladegrabens liegt einzig der Zink-Gehalt mit einem Durchschnittswert von 282 ppm über dem Grenzwert von 200 ppm. Die Urangelhalte weisen keine Besonderheiten auf, auch nicht in den abfiltrierten Feststoffen oder der Kohle-Rückstellprobe. Der hohe Gehalt von 1,6 g/kg Uran (TONNDORF 1989) konnte somit nicht bestätigt werden.

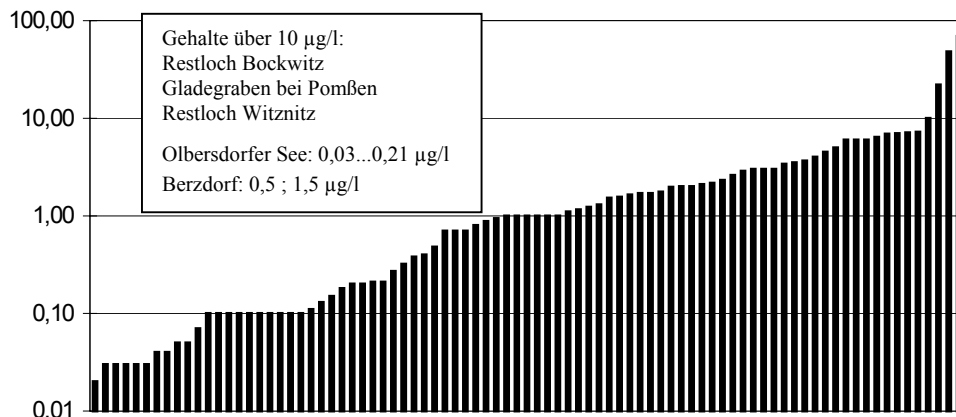


Abb. 1 Uran in Oberflächengewässern (Tagebaurestlöcher und Seen) von Braunkohlefördergebieten Mitteldeutschlands, der Nieder- und Oberlausitz (Angaben in µg/l, Zuordnung der Messpunkte in DELAKOWITZ et al. 2003)

In den Abbildungen 1 und 2 sind die Uran- und Ra-226-Gehalte in den untersuchten Oberflächenwässern nach aufsteigenden Werten dargestellt.

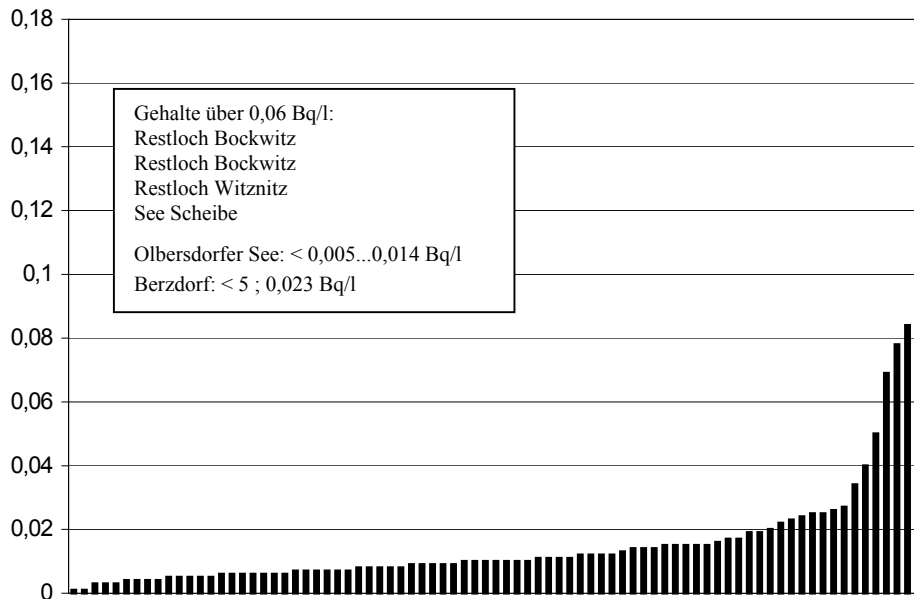


Abb. 2 Ra-226 in Oberflächengewässern (Tagebaurestlöcher und Seen) von Braunkohlenfördergebieten Mitteldeutschlands, der Nieder- und Oberlausitz (Angaben in Bq/l, Zuordnung der Messpunkte in DELAKOWITZ et al. 2003)

Erkennbar ist, dass in den Oberflächenwässern die Uran-Gehalte über mehrere Größenordnungen verteilt sind, wobei in keinem Fall 100 µg/l überschritten werden.

39 % der Proben liegen über dem Geringfügigkeitsschwellwert von 2 µg/l, der von der LAWA für Einzugsgebiete mit auffälligem geogenen Hintergrund zunächst als Vorschlag unterbreitet werden soll. Die Ra-226-Werte (höchster Wert 156 mBq/l) überschreiten bei den Oberflächenwässern nicht den vom BMU (1992) für Trinkwasser angegebenen Richtwert von 700 mBq/l. Nur fünf Werte sind höher als 50 mBq/l. Ordnet man die Werte den verschiedenen Einzugsgebieten zu, ergibt sich das in Tabelle 2 dargestellte Bild.

Uran-Konzentrationen in natürlichen Gewässern finden sich in einem Bereich von 0,01 ... 100 µg/l (MERKEL & SPERLING 1998). Der Vergleich mit den gefundenen Werten lässt sowohl bezüglich der Höhe der Werte als auch der räumlichen Verteilung mit einer Ausnahme keine Auffälligkeiten erkennen. Die Ausnahme betrifft eine Nachbeprobung (Nr. ZII170; Rechtswert 4520260, Hochwert 5679745; in Abb. 1 nicht enthalten) aus dem Tagebaurestloch Zwenkau, wo 160 µg/l Uran gemessen wurden. In Übereinstimmung mit dem erhöhten Urangehalt zeigt diese Probe auch deutlich erhöhte Werte für Sulfat (5246 mg/l), Zink (7750 µg/l), Arsen (82 µg/l), Eisen (942 mg/l) und Aluminium (239 mg/l). Die elektrolytische Leitfähigkeit ist mit 5300 µS/cm etwa zwei bis viermal höher als in den meisten anderen beprobten Oberflächenwässern. Der pH-Wert von 2,74 liegt im sauren Bereich und erklärt die erhöhten Metallionen-Gehalte. Der hohe Sulfat-Wert kann durch Pyritverwitterung gedeutet werden. Die Ra-226-Aktivität dieser Probe ist mit 19 mBq/l als eher niedrig einzustufen, was mit dem unterschiedlichen geochemischen Verhalten von Uran und Radium erklärt werden kann. Danach zeigt Radium chemisch ein dem Barium analoges Verhalten und kann in hauptsächlich anorganischer Matrix bei saurem pH als Sulfat gefällt und dadurch der Lösung entzogen werden, während Uran in diesem pH-Bereich in Lösung verbleibt.

Tab. 2 Vergleich von Richtwerten (DVWK 1993 und LAWA 1997/98) mit gefundenen Werten für Oberflächenwässer verschiedener Einzugsgebiete

| Element/ Ion | DVWK (EG-Richt- linie Trinkw.- Gewinnung) | LAWA (Trink- wasser- nutzung) | Niederlausitz | | Mitteldeutschland | | Gladegraben | | Berzdorf | Olbersdorf | |
|-------------------|---|--|---------------|------------------|-------------------|------------------|---------------|------------------|------------------|---------------|------------------|
| | | | Min ... Max | Durch schnitt | Min ... Max | Durch schnitt | Min ... Max | Durch schnitt | 2 Proben | Min ... Max | Durch schnitt |
| U (µg/l) | | | 0,1 ... 4,7 | 1,4 | 0,2 ... 160 | 15,3 | 0,5 ... 18,3 | 7,8 | 1,56; 0,5 | 0,03 ... 0,21 | 0,08 |
| Ra-226 (mBq/l) | | | 7 ... 28 | 15,86 | < 5 ... 42 | 10,6 | < 5 ... 136 | 29 | 23; < 5 | < 5 ... 14 | 8,9 |
| Nitrat (mg/l) | | 2,5 | 2,6 ... 72 | 15,41 | 3,1 ... 23,6 | 7,91 | 0 ... 14,3 | 6,66 | k. A.; 31,9 | k. A. | k. A. |
| Nitrit (mg/l) | | 0,1 | 0 ... 0,8 | 0,11 | < 0,05 .. 0,11 | 0,008 | 0,1 ... 2,5 | 1,17 | k. A.; < 0,05 | k. A. | k. A. |
| Pb (µg/l) | 50 | 50 | 0,2 ... 14,2 | 5,83 | 0,6 ... 10,4 | 3,18 | 1,2 ... 12,5 | 6,44 | 4,1; 1,3 | 0,6 ... 6,3 | 2 |
| Cd (µg/l) | 5 | 1 | 0,01 ... 1,1 | 0,45 | 0,03 ... 23 | 2,09 | 0,03 ... 0,73 | 0,26 | 0,14; 0,09 | 0,06 ... 0,20 | 1,88 |
| Cr (µg/l) | 50 | 50 | 0,9 ... 3,9 | 1,99 | 0,3 ... 300 | 30,6 | 0,5 ... 4,5 | 1,55 | 1,6; 1,8 | < 0,5 ... 6,9 | 2,9 |
| Cu (µg/l) | 20 | 20 | 0,7 ... 17,7 | 5,21 | 0,9 ... 150 | 22,2 | 1,5 ... 19,4 | 6,54 | 4,1; 4,7 | 1,0 ... 3,7 | 1,86 |
| Ni (µg/l) | | 50 | 3,5 ... 238,7 | 91,6 | 3,7 ... 1280 | 167 | 4 ... 21,3 | 9,38 | 10,2; 4,5 | 4,9 ... 13,2 | 9,2 |
| Zn (µg/l) | 500 | 500 | 3,1 ... 496 | 216 | 4,9 ... 7750 | 929,2 | 8,9 ... 101,5 | 45,24 | 26,4; 6,2 | 14,3 ... 45,3 | 28,7 |

Die Abbildungen 3 und 4 zeigen in Analogie zu Abb. 1 und 2 die Uran- und Ra-226-Gehalte für Grundwässer.

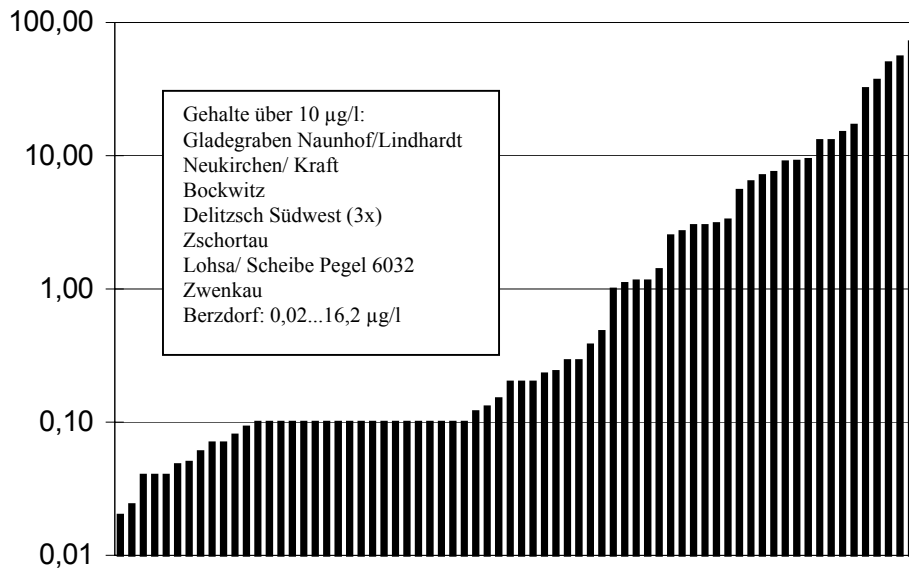


Abb. 3 Uran im Grundwasser von Braunkohlefördergebieten Mitteldeutschlands, der Nieder- und Oberlausitz (Angaben in µg/l, Zuordnung der Messpunkte in DELAKOWITZ et al. 2003)

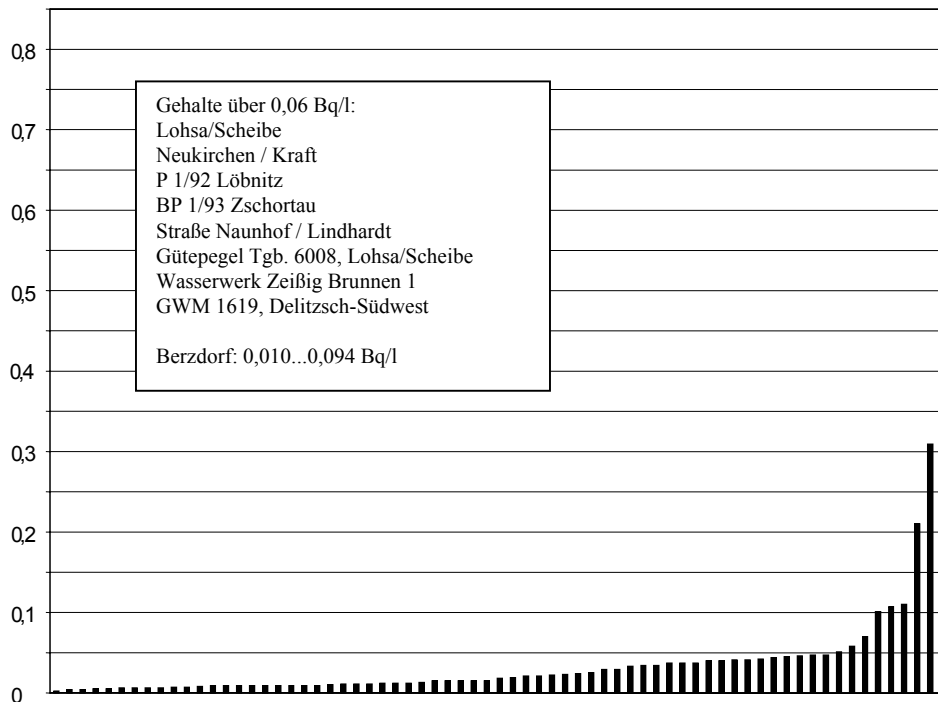


Abb. 4 Ra-226 im Grundwasser von Braunkohlefördergebieten Mitteldeutschlands, der Nieder- und Oberlausitz (Angaben in Bq/l, Zuordnung der Messpunkte in DELAKOWITZ et al. 2003)

Bei den Grundwässern ergab sich bezüglich der Uran-Werte eine ähnliche Verteilung wie bei den Oberflächenwässern. 34 % der Grundwasserproben liegen über dem von der WHO angegebenen Leitwert von 2 µg/l. Der höchste Wert wurde mit 72 µg/l im Tagebau Zwenkau festgestellt. Mit Ausnahme von Lohsa/Scheibe (Niederlausitz) stammen alle Proben mit höheren Werten aus dem mitteldeutschen Raum. Bei Ra-226 sind sechs Proben mit mehr als 100 mBq/l ermittelt worden. Besonders auffällig war eine Probe von Lohsa/Scheibe (GWM 6023; Rechtswert 5470579,6; Hochwert 5692409,1) mit 778 mBq/l, die damit auch den vom BMU (1992) empfohlenen Höchstwert von 700 mBq/l überschreitet. Es sei bemerkt, dass der Durchschnittsgehalt von Ra-226 in Mineralwässern bei 25 mBq/l (Bereich von 2 bis 500 mBq/l) liegt (SIEHL 1996, BMU 2000).

Insgesamt kann eingeschätzt werden, dass die untersuchten Kompartimente radiologisch gering belastet sind. Einzelproben weisen eine um z. T. mehrere Größenordnungen höhere Konzentration/Aktivität auf. Die von in der WISMUT GmbH (1990) und TONNDORF (1989) angegebenen Werte konnten jedoch nicht wiedergefunden werden.

3. Mobilisierung von Schwermetallen und Radionukliden

Experimentell wurde in Modellversuchen die Eluierbarkeit von ausgewählten Schwermetallen aus Boden/Kohle-Proben des Tagebaus Olbersdorf sowie die Eluierbarkeit von Uran, Ra-226 und ausgewählten Schwermetallen aus Sedimenten des Gladegrabens auf der Basis der DIN 38414 (S4) (1984) untersucht. Für den Tagebau Olbersdorf ist außerdem der reale Verlauf der Konzentrationen der Schwermetalle seit Beginn der Flutung (20.08.1996) verfolgt worden.

Die Tabellen 3 und 4 geben den Einfluss unterschiedlicher Anfangs-pH-Werte pH_A auf die Elution von Schwermetallen aus einer basischen (Probe Z3) und einer sauren Feststoffprobe (Probe Z11) wieder (ENDER 2003). Die basisch reagierende Probe besitzt einen Gleichgewichts-

pH-Wert von $pH_{GG} = 7,8$; die sauer reagierende einen pH_{GG} von 4,0. Der pH_{GG} ist derjenige pH-Wert, den ein Boden einer Lösung letztendlich aufzwingt, wenn ihre Pufferkapazität erschöpft ist.

Tab. 3 Elutionsgrad $Q_{E,i}$ in % (obere Zeile) und Eluatkonzentration $c_{E,i}$ in $\mu\text{g/l}$ (untere Zeile) bei der Elution von Probe Z3 mit H_2O bei Variation des pH_A -Wertes (Mittelwerte aus zwei Parallelversuchen; pH_E = End-pH-Wert)

| pH_A | pH_E | Zn | Cd | Cr | Ni |
|--------|--------|------|---------------------------|------|------|
| 2,0 | 6,90 | 0,3 | < NWG | 0,02 | 0,25 |
| | | 12,4 | (<0,048 $\mu\text{g/l}$) | 2,0 | 5,9 |
| 4,0 | 7,27 | 0,09 | < NWG | 0,03 | 0,15 |
| | | 3,8 | | 3,1 | 3,4 |
| 5,6 | 7,68 | 0,07 | < NWG | 0,03 | 0,14 |
| | | 3,4 | | 3,3 | 2,4 |
| 7,5 | 7,70 | 0,04 | < NWG | 0,04 | 0,14 |
| | | 3,0 | | 3,9 | 2,9 |
| 9,5 | 7,71 | 0,05 | < NWG | 0,03 | 0,08 |
| | | 2,4 | | 3,6 | 2,1 |

Tab. 4 Elutionsgrad $Q_{E,i}$ in % (obere Zeile) und Eluatkonzentration $c_{E,i}$ in $\mu\text{g/l}$ (untere Zeile) bei der Elution von Probe Z11 mit H_2O bei Variation des pH_A -Wertes (Mittelwerte aus zwei Parallelversuchen; pH_E = End-pH-Wert)

| pH_A | pH_E | Zn | Cd | Cr | Ni |
|--------|--------|------|------|------|------|
| 2,0 | 3,25 | 29,3 | 30,0 | 1,0 | 21,9 |
| | | 1745 | 7,06 | 97,9 | 700 |
| 4,0 | 4,03 | 12,3 | 6,0 | 0,1 | 6,5 |
| | | 712 | 1,36 | 10,5 | 194 |
| 5,6 | 4,03 | 12,2 | 6,0 | 0,1 | 5,9 |
| | | 723 | 1,39 | 10,1 | 180 |
| 7,5 | 4,04 | 12,0 | 6,0 | 0,1 | 6,7 |
| | | 707 | 1,39 | 10,3 | 207 |
| 9,5 | 4,03 | 12,0 | 6,0 | 0,1 | 6,1 |
| | | 712 | 1,40 | 10,5 | 189 |

Bei dem vorgegebenen Bodenmasse/Lösungsvolumen-Verhältnis von 1 : 10 sind die Bodenproben auch unabhängig vom pH_A -Wert der Lösung in der Lage, dieser ihren pH_{GG} -Wert aufzuzwingen. pH_E und pH_{GG} sind dann nahezu identisch. Der pH_{GG} -Wert bestimmt das Elutionsverhalten, wobei saure Bodenproben generell eine höhere Mobilisierung als basisch reagierende Böden bedingen. Chrom ist im Vergleich zu Zink, Cadmium und Nickel nur in geringem Maße mobilisierbar, selbst bei $pH_A = 2,0$ geht nur 1 % in Lösung.

Bei den anderen Elementen werden unter diesen Bedingungen Elutionsgrade von 25 ... 30 % erreicht. Das bedeutet, dass bei sauren Böden und lediglich aufsteigendem Grundwasser als Flutungswasser mit erhöhten Gehalten an Schwermetallen gerechnet werden muss (vgl. hierzu die Werte im Wasser des Tagebaurestloches Zwenkau mit z. B. 7750 $\mu\text{g/l}$ Zn oder 300 $\mu\text{g/l}$ Cr). Günstig ist daher die Einbeziehung von nahezu neutral reagierendem Fremdwasser, wie dies beim Tagebau Olbersdorf mit der Einleitung des Grundbaches realisiert werden konnte. Dadurch ergaben sich für die Schwermetalle Cr, Cd und Ni Werte, die Trinkwasserqualität entsprechen. Zn lag leicht über dem Grenzwert für Trinkwasser, aber bei höchstens 30 % des von der EG empfohlenen Wertes für Oberflächenwasser (Abb. 5).

Ausschlaggebend ist letztlich der sich im Mischwasser des Sees einstellende pH-Wert. Abbildung 6 zeigt für die Probenahmestelle „Südsee“ des Olbersdorfer Sees, die in der Anfangsphase der Flutung noch nicht mit Fremdwasser erfasst wurde, wesentlich höhere Schwermetallgehalte, bedingt durch pH-Werte um 3.

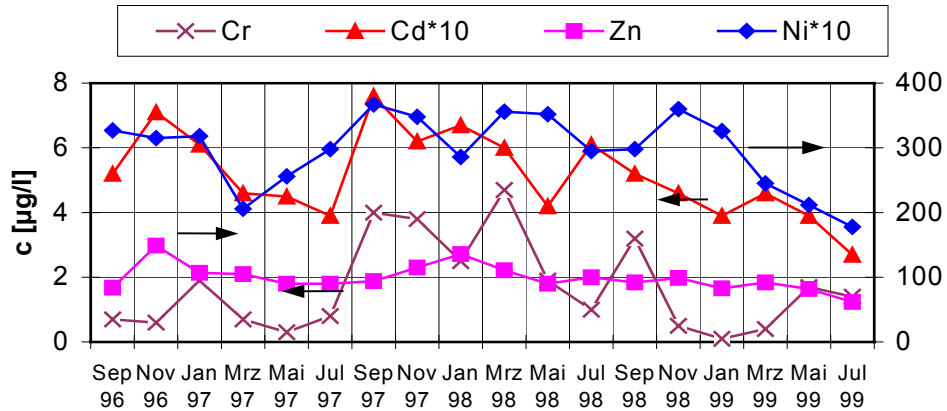


Abb. 5 Zeitlicher Verlauf der Konzentration von Cr, Cd, Zn und Ni seit Beginn der Flutung des Tagebaus Olbersdorf (Mischwasser)

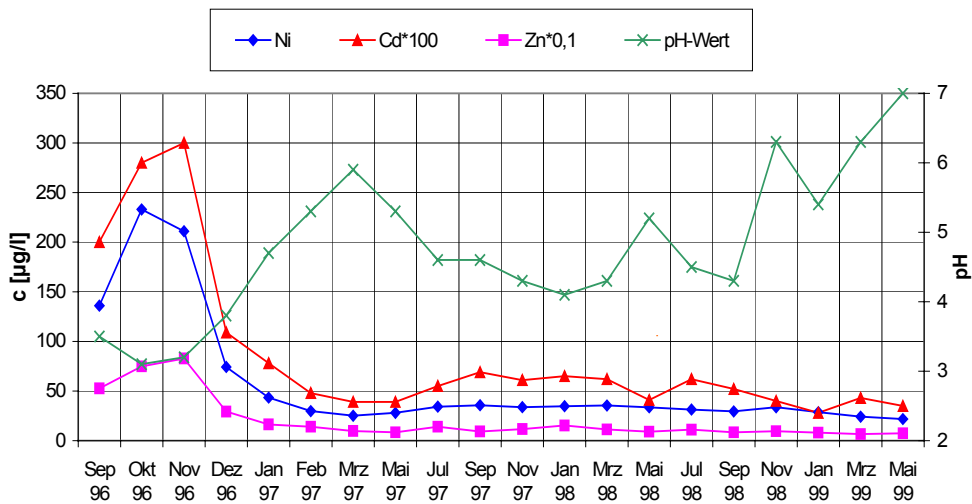


Abb. 6 Zeitlicher Verlauf der Konzentrationen von Ni, Cd und Zn sowie des pH-Wertes seit Beginn der Flutung des Tagebaus Olbersdorf (Probenahme „Südsee“)

Erst nachdem dieser Bereich mit Fremdwasser überstaut wurde, stellten sich auch dort die für den übrigen See charakteristischen Verhältnisse ein. Während unter den Bodenmasse/Lösungsvolumen-Verhältnissen des Elutionsversuches von 1: 10 immer der Boden der Lösung den pH-Wert aufzwingt, können im praktischen Fall der Flutung durch ein genügend hohes Angebot an annähernd neutralem Fremdfutungswasser auch sauer reagierende Böden/Kohlen kompensiert werden.

Die Elutionsversuche zur Ermittlung der Mobilisierbarkeit von Uran und Ra-226 als Komponenten natürlicher Umwelt-Radioaktivität sind mit drei Sedimenten des Gladegrabens bei Verwendung unterschiedlicher Elutionsmittel ausgeführt worden. Die Gleichgewichts-pH-Werte der Sedimente betragen 5,6; 6,2 und 6,4. Bei ähnlichen Ergebnissen für alle Proben seien exemplarisch die Werte für das Sediment G5 mitgeteilt (Tab. 5).

Folgende Aussagen können getroffen werden:

- Uran kann von keinem der eingesetzten Elutionsmittel zu mehr als 0,59 % mobilisiert werden.
- Radium-226 wird von den Elutionsmitteln H₂O, Lösung mit pH = 2 und Lösung mit pH = 3 bis maximal 1,08 % eluiert. Mit NH₄NO₃ gelingt dagegen eine Elution bis 29,4 %.
- Für die meisten der untersuchten Schwermetalle ergeben sich maximale Elutionsgrade bis ca. 2 %, wobei eine Abstufung zwischen den Elutionsmitteln in der Reihenfolge H₂O ≈ (Lösung mit pH = 3) < (Lösung mit pH = 2) ≈ NH₄NO₃ festzustellen ist.
- Für die Elemente Mg, Ca, Mn, K werden unabhängig vom Elutionsmittel höhere Elutionsgrade erreicht, z. B. bis zu 49,45 % für Ca bei NH₄NO₃. Cd ist durch pH = 2 oder NH₄NO₃ zu ca. 10 % eluierbar, Ba durch NH₄NO₃ zu 11 %.

Tab. 5 Prozentuale Elutionsgrade verschiedener Elemente in Abhängigkeit vom Elutionsmittel (Sediment G5; pH_{GG} = 5,5)

| Probenbezeichnung | Sediment G5 | Eluat zu Sediment G5 | Elutionsgrad% | Eluat zu Sediment G5 | Elutionsgrad% | Eluat zu Sediment G5 | Elutionsgrad% | Eluat zu Sediment G5 | Elutionsgrad% |
|--|---|----------------------|---------------|--|---------------|--|---------------|---|---------------|
| Eluatherstellung | 24h Überkopfschütteln der Sedimentproben mit Lösungsmittel im Verhältnis 1:10 | | | | | | | | |
| Lösungsmittel | | H ₂ O | | H ₂ O | | H ₂ O | | 1 mol/l NH ₄ NO ₃ | |
| Anfangs-pH-Wert | | 5,6 | | 2,98 (mit HNO ₃ eingestellt) | | 2,02 (mit HNO ₃ eingestellt) | | 5 | |
| Anfangsleitfähigkeit (mit KCl auf Wert des Gladegrabens eingestellt) | | 453µS/cm | | 454µS/cm | | 441µS/cm | | 95,2 mS/cm | |
| End-pH-Wert | | 6,11 | | 6,57 | | 5,05 | | 6,05 | |
| Endleitfähigkeit | | 883 µS/cm | | 965 µS/cm | | 1940 µS/cm | | 101,2 mS/cm | |
| Radionuklide | | | | | | | | | |
| Uran (nat.) (µg/g) | 23,4 | 0,035 | 0,15 | 0,043 | 0,18 | 0,137 | 0,59 | 0,114 | 0,49 |
| Radium 226 (mBq/g) | 74,9±3% | 0,18 | 0,24 | 0,19 | 0,25 | 0,81 | 1,08 | 22,0 | 29,40 |
| Elemente | | | | | | | | | |
| Cr (µg/g) | 38,4 | 0,04 | 0,1 | 0,04 | 0,10 | 0,05 | 0,13 | 0,05 | 0,13 |
| Ni (µg/g) | 22 | 0,2 | 0,9 | 0,22 | 1,00 | 1,1 | 5,00 | 0,56 | 2,55 |
| Cu (µg/g) | 38,8 | 0,2 | 0,52 | 0,28 | 0,72 | 0,37 | 0,95 | 0,42 | 1,08 |
| Zn (µg/g) | 287 | 1,1 | 0,38 | 1,28 | 0,45 | 20,2 | 7,04 | 7,6 | 2,65 |
| As (µg/g) | 11 | 0,13 | 1,18 | 0,15 | 1,36 | 0,17 | 1,55 | 0,08 | 0,73 |
| Cd (µg/g) | 1,55 | 0,013 | 0,84 | 0,014 | 0,90 | 0,17 | 10,97 | 0,13 | 8,39 |
| Pb (µg/g) | 52,6 | 0,04 | 0,08 | 0,05 | 0,09 | 0,07 | 0,13 | 0,1 | 0,19 |
| Ba (µg/g) | 459 | 1,3 | 0,28 | 1,8 | 0,39 | 5,1 | 1,11 | 49,9 | 10,87 |
| Fe (µg/g) | 23400 | 1,53 | 0,006 | 1,4 | 0,01 | 18,7 | 0,08 | 23,3 | 0,1 |
| Al (µg/g) | 17000 | 1,02 | 0,006 | 3,1 | 0,02 | 32,3 | 0,19 | 27,5 | 0,16 |
| K (µg/g) | 16600 | 866 | 5,22 | 374 | 2,25 | 922 | 5,55 | 316 | 1,9 |
| Mg (µg/g) | 3600 | 115 | 3,19 | 97 | 2,69 | 334 | 9,28 | 362 | 10,05 |
| Na (µg/g) | 7900 | 77,2 | 0,98 | 66,6 | 0,84 | 83 | 1,05 | 90,7 | 1,15 |
| Ca (µg/g) | 5500 | 684 | 12,4 | 649 | 11,8 | 1920 | 34,91 | 2720 | 49,45 |
| Mn (µg/g) | 451 | 22,3 | 4,94 | 33,9 | 7,52 | 117 | 25,94 | 104 | 23,06 |
| B (µg/g) | 57 | 1 | 1,75 | 1,2 | 2,11 | 1,4 | 2,46 | 1 | 1,75 |

Insgesamt wird eingeschätzt, dass die unter den gegebenen Versuchsbedingungen erzielten Elutionsgrade mit Werten $< 1\%$ für Uran und Ra-226 als sehr gering angesehen werden können. Eine Ausnahme ergab sich für Ra-226 mit bis zu 30% , wenn mit NH_4NO_3 gearbeitet wurde, wobei eine Flutung unter praktischen Bedingungen mit $1\text{ M NH}_4\text{NO}_3$ nicht vorstellbar ist. Dieses Elutionsmittel wird speziell zur Erfassung von mobilisierbaren Elementen benutzt (DIN 19730). Radium liegt damit in der gleichen Größenordnung wie die Makroelemente Mg und Ca, die als gut mobilisierbar gelten. Radium unterscheidet sich bei diesem Elutionsmittel vom Uran, das sich eher wie die anderen Schwermetalle verhält. Während sich jedoch Mg und Ca auch von anderen Elutionsmitteln mobilisieren lassen, gelingt dies bei Radium nicht.

Die mögliche Mobilisierung der in der Festphase fixierten Radionuklide durch eine Flutung wird vor allem vom sich einstellenden pH-Wert des Wassers bestimmt. Dabei sind beim Uran gegenläufige Effekte durch den pH-Einfluss möglich, weil an NOM (natural organic matter) gebundenes Uran prinzipiell mit zu berücksichtigen ist (FRANKE et al. 2000). Während anorganisch gebundenes Uran bei sinkendem pH-Wert besser mobilisiert wird (Frühphase der Flutung), sind die an NOM gebundenen Uranspezies durch steigenden pH-Wert stärker zu mobilisieren (Nachflutungsphase). Das Verhältnis beider sollte standortspezifisch sein. Jedoch ist dem anorganisch gebundenen Uran größere Bedeutung beizumessen.

Radium liegt hauptsächlich anorganisch vor. Chemisch verhält es sich ähnlich wie das Barium. So ist zum Beispiel eine Ausfällung als Ba/Ra-Sulfat bei entsprechenden Gehalten, deren Höhe durch den pH-Wert beeinflusst wird, möglich. Der Einfluss des pH-Wertes auf die Löslichkeit selbst ist gering.

4. Schlussfolgerungen

Entscheidenden Einfluss auf die Elution von Schwermetallen, Uran und Ra-226 bei der Flutung von Tagebauen hat der sich im Gleichgewicht einstellende pH-Wert des Mischwassers. Dieser ergibt sich als summarischer Effekt aus dem Gleichgewichts-pH-Wert der überstauten Bodenmassen, dem pH-Wert des aufsteigenden Grundwassers, dem pH-Wert der Kippenwässer, die in den entstehenden See entwässern, sowie dem pH-Wert des eventuell zur Verfügung stehenden Fremdwassers. Das effektive Bodenmasse/Lösungsvolumen-Verhältnis ist dabei von ausschlaggebender Bedeutung.

Die radiologische Belastung der untersuchten sächsischen Braunkohletagebaue wird insgesamt als gering eingeschätzt. Erhöhte Gehalte an Uran_{nat} und Ra-226 waren nur an vereinzelten Standorten festzustellen. Bei diesen sollten weiterführende Untersuchungen zur Abklärung durchgeführt werden.

Als Schlussfolgerung für eine angestrebte Verhinderung der Mobilisierung relevanter Radionuklide und Schwermetalle ergibt sich die Forderung, die pH-Werte der in Frage kommenden Elutionsmittel (Fließgewässer, Flutungswässer) nicht unter $\text{pH} = 5$ sinken zu lassen. Da der sich einstellende pH-Wert im System Boden/Kohle/Sediment-Lösung wesentlich von den Eigenschaften der festen Phase (pH_{GG} -Wert) bestimmt wird, ist bei Auftreten saurer Festphasen eine Abdeckung mit neutral bis leicht basisch reagierenden Erdmassen zu empfehlen.

5. Danksagung

Vorliegende Arbeiten wurden freundlicherweise vom Sächsischen Staatsministerium für Umwelt und Landesentwicklung, vertreten durch das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie, Referat Natürliche Radioaktivität, unter dem AZ 13.8802.3528/47 gefördert. An der Bearbeitung waren folgende Institutionen beteiligt: Hochschule Zittau/Görlitz (B. Delakowitz (Leiter des Projektes), V. Ender, H.-C. Mehner), Hydroisotop-Piewak GmbH Chemnitz (Frau P. Schneider, L. Neitzel) und Institut für Interdisziplinäre Isotopenforschung Leipzig (H. Kupsch, K. Franke). Den genannten KollegInnen danke ich für die Möglichkeit, ihre Beiträge zum Projekt für die vorliegende Arbeit nutzen zu können.

6. Literatur

- AUTORENKOLLEKTIV (1989): Beurteilung von Schwermetallkontaminationen im Boden. Expertengespräch 21./22.1.1988 Oberursel. - Dechema, Frankfurt/Main 1989
- BMU (1992): Strahlenschutzkriterien für die Nutzung von möglicherweise durch den Uranbergbau beeinflussten Wässern als Trinkwasser. – Empfehlung der Strahlenschutzkommission vom 10.12.1992, Bundesanzeiger Nr. 94 vom 22. Mai 1993, Bonn
- (2000): Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung. – Jahresberichte 1997, Bonn
- DELAKOWITZ, B., V. ENDER, H.-C. MEHNER, P. SCHNEIDER, L. NEITZEL, H. KUPSCH & K. FRANKE (2003): Verhalten von Radionukliden bei der Flutung von Braunkohletagebauen. – Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Referat Natürliche Radioaktivität, AZ 13.8802.3528/47, Abschlussbericht, 31.03.2003, ined.
- DIN 38414 (S4) (1984): Bestimmung der Eluierbarkeit mit Wasser. - Verlag Chemie, Weinheim und Beuth Verlag, Berlin
- DVWK (1993) – Deutscher Verband für Wasserwirtschaft und Kulturbau e.V.: Merkblätter zur Wasserwirtschaft 227/1993, Teil 1: Allgemeine Kenngrößen, Nährstoffe, Spurenstoffe und anorganische Schadstoffe, Biologische Kenngrößen. - Verlag Paul Parey, Hamburg und Berlin
- ENDER, V. (2003): Zur Mobilisierung ausgewählter Schwermetalle bei der Flutung des Tagebaus Olbersdorf. – Abh. Ber. Naturkundemus. Görlitz **74**, 2: 193-205
- FALBE, J. & M. REGNITZ (1992): Römpf Chemie-Lexikon. – Georg Thieme Verlag, Stuttgart und New York
- FRANKE, K., D. RÖSSLER, U. GOTTSCHALCH & H. KUPSCH: (2000) Mobilization and retardation of uranium DOC species at three mine piles in Schlema/Alberoda, Saxony, Germany. - *Isotopes Environ. Health Stud.* **36**, 223-239
- HÖLTING, B. (1996): Hydrogeologie: Einführung in die Allgemeine und Angewandte Hydrogeologie. - Enke-Verlag, Stuttgart, 441 S.
- JESERIGK, H., G. SAUPE & K. ZIENER (1998): Badeseen in der Niederlausitz – Erwartungen und Realisierungsmöglichkeiten. – In: Jahrbuch Bergbaufolgelandschaft, Dachverband Bergbaufolgelandschaft e. V., Stiftung Bauhaus Dessau, 240 S.
- KLAPPER, H. & W. GELLER (2001): Die Wassergütebewirtschaftung von Bergbauseen – ein neues Feld der angewandten Hydrobiologie. - *Acta hydrochim. hydrobiol.* **29**, 6-7: 363-374
- KLÄRSCHLAMMVERORDNUNG (1992): AbfKlärV vom 15.4.1992, BGBl. Teil I:912
- LABO/LAGA-AG (1995): „Abfallverwertung auf devastierten Flächen“, Anforderungen an den Einsatz von Biokompost und Klärschlamm bei der Rekultivierung von langjährig devastierten Flächen in den neuen Bundesländern. - TVAB/41. Lfg. XI. 95, 28
- LAWA (1997/98): Zielvorgaben zum Schutz oberirdischer Binnegewässer, Bd. 1, 2, 3, LAWA 97/98 - 1, 2, 3, Kulturbuchverlag AG Berlin GmbH, Berlin
- LEWANDOWSKI, J., S. LEITSCHUH & V. KOSS (1997): Schadstoffe im Boden. - Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 339 S.
- MERKEL, B. & B. SPERLING (1998): Hydrogeochemische Stoffsysteme (Teil II). – In DVWK-Schriften Nr. 117, Wirtschafts- und Verlagsges. Gas und Wasser mbH, Bonn, 120-144
- PONTIUS, F. W. (2000): Defining a Guideline for Uranium. – *J. Amer. Water Works. Assoc.* **93**, 66-80
- SIEHL, A. (Hrsg.) (1996): Umweltradioaktivität. – Verlag Ernst & Sohn, Berlin
- STRAUCH, G. & W. GLÄSSER (2000): Entwicklung der Grundwasserqualität im mitteldeutschen Braunkohlenrevier. – In Berichte vom 16. Bochumer u. 11. Leipziger Altlastenseminar 2000: „Flächenrecycling und Grundwassersanierung“, Schürmann & Klagges Verlag, Bochum, 203-212
- TONNDORF, H. (1989): Bemerkungen zur Perspektive des Uran-Vorkommens Berzdorf Oberlausitz). – In Sitzungsmaterialien SDAG WISMUT, Geolog. Betrieb, Lfd.-Nr. 91/87, 36 – 39, Geolog. Archiv der WISMUT GmbH, ined.

- et al. (1986): Ergebnis der Untersuchung des Uran-Vorkommens Wetterscheid/Waldau mit Schlussfolgerungen zur Lagerstättenhöufigkeit des Tertiärs der südlichen DDR. – In Bericht SDAG WISMUT, Geolog. Betrieb, Geolog. Bereich 1; Grüna, 41 S., WISMUT GmbH, LGA/998/89, ined.
- Trinkwasserverordnung-TrinkwV, novelliert 2001, - In Bundesgesetzblatt, Jahrgang 2001, Teil I Nr. 24, 28.05.2001, Bonn
- TVO-BRD (2001): Verordnung über Trinkwasser und über Wasser für Lebensmittelbetriebe
- U.S. DEPARTMENT OF HEALTH & HUMAN SERVICES (1998): Draft for Public Comment - Toxicological Profile for Uranium. - prep. by: Research Triangle Institute, Contract No. 205-93-0606, Triangle Park (North Carolina), 1998
- VOIGT, H.-J. (1990): Hydrogeochemie. - Springer-Verlag, Berlin, 310 S.
- WHO-RICHTLINIEN (1996): Guidelines for drinking-water quality. – 2nd Ed., Vol. 1 and 2, World Health Organization, Geneve
- WISMUT GMBH (1990): Bericht “Beauftragung der WISMUT GmbH zur Radionuklid-Analytik durch die Wasserversorgungs- und Abwasserbehandlung Leipzig GmbH, Betriebsbereich Grimma”. – WISMUT GmbH, Archiv Sachsen, Dokument-Nr. 55506, ined.

Anschrift des Verfassers:

Prof. Dr. Volker Ender
Theodor-Körner-Allee 16
02763 Z i t t a u