GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCH-HOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 1:

Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche

ahu AG

Dr. [redacted]

Dipl.-Geol. [redacted]

Abgabe April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof. Dr. [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted]r)

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum: 16.07.2015

I N H A L T

0 Vorbemerkung 1

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1

0.2 Untersuchungsraum 2

1 Hydrogeologisch-hydrogeochemisches System 4

1.1 Systembeschreibung 4

1.1.1 Aufgaben und Grenzen der Systembeschreibung 4

1.1.2 Grundzüge des hydrogeologisch-hydrogeochemischen Systems 5

1.2 Hydrogeologischer Aufbau 6

1.2.1 Quartär 6

1.2.2 Kreide 7

1.2.3 Karbon 14

1.3 Hydrogeologisches Fließsystem Grundgebirge 19

1.3.1 Grundsätzlicher Aufbau des hydrogeologischen Fließsystems 19

1.3.2 Elemente des künstlichen Fließsystems Grundgebirge 20

1.3.3 Fließsystem während der Flutung 27

1.3.4 Teilprovinz Hansa 29

1.3.5 Teilprovinz Gneisenau 30

1.3.6 Teilprovinz Kurl 30

1.3.7 Teilprovinz Kurl 1 30

1.3.8 Einzugsgebiet Ost 30

1.3.9 Fließsystem nach der Flutung 31

2 Prüfung von Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 34

2.1 Anlass und bisherige Ergebnisse 34

2.2 Weitere Auswertungen und Untersuchungen 39

2.2.1 Chemische Untersuchungen des Lippeverbandes 39

2.2.2 Untersuchungen des Kreises Unna 40

2.2.3 Gesamtbewertung der festgestellten Auffälligkeiten 41

2.3 Wirkungszusammenhänge mit der BHV 41

2.3.1 Ausbreitung über den Wasserpfad 41

2.3.2 Ausbreitung über den Luftpfad 42

2.4 Thesen von Prof. [redacted] 44

2.4.1 Nicht durch Prof. [redacted] (2011) berücksichtigte Tatsachen und Sachverhalte 44

2.4.2 Diskussion der Thesen von Prof. [redacted] 45

2.4.3 Bewertung der Thesen 51

2.4.4 Zusammenfassende Beurteilung der Auswirkung der BHV auf die oberflächennahen Auffälligkeiten 53

3 Literatur 54

ABBILDUNGEN:

Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens 1

Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 3

Abb. 3: Vereinfachtes hydrogeologisches Profil Schacht Grillo 4 des Deckgebirges und des Grundgebirges 9

Abb. 4: Lage der tiefen Grundwassermessstellen in der Kreide, der BHV und des Bereichs der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 12

Abb. 5: Schematischer hydrogeologischer Schnitt NW-SE mit den Wasserspiegeln im Turon und im Emscher Mergel 13

Abb. 6: Vereinfachtes geologisches Profil im Untersuchungsgebiet mit der schematisch dargestellten Bruchhohlraumverfüllung in rot 14

Abb. 7: Hauptstörungssysteme im Bereich der BHV und Wasserwege 18

Abb. 8: Röhrensystem Wasserprovinz Haus Aden mit den zukünftigen Gruben-wasserflüssen in Mio. m^3/a nach dem Grubenwasseranstieg 21

Abb. 9: Röhrensystem, geschotterter Hauptwasserweg im BW Auguste Victoria 21

Abb. 10: Röhrensystem, Hauptwasserweg im BW Haus Aden/Monopol 22

Abb. 11: Rohrleitung DN 500 mit Unterbrechungen und definierten Zutrittstellen unter der Kiesschüttung 22

Abb. 12: Hydraulische Anbindung des Röhrensystems an das Gebirge aufgrund eines offenen Ausbaus 23

Abb. 13: Damm 2657 mit verschraubter Öffnung zur Wiederherstellung der Durchlässigkeit 24

Abb. 14: Beispiel für die Berücksichtigung der Dämme und Schächte im Streckennetz bei der Grundwassermodellierung 25

Abb. 15: Gerinne im BW Haus Aden/Monopol 27

Abb. 16: Wasserprovinz Haus Aden mit dem Einzugsgebiet Victoriadamm, Einzugsgebiet Ost, Grubenwasserständen und Übertrittstellen zwischen den Teilprovinzen 28

Abb. 17: Potentialdifferenzen Stand 3/2016 zwischen den Teilprovinzen und bereits eingestaute Bereiche und Zusickerungen aus dem Deckgebirge 29

Abb. 18: Vereinfachtes Systemdiagramm 32

Abb. 19: Aktuelle Stunde 16.09.2013 (WDR): Giftmüll im Grundwasser? Flächen „Auf dem Kamp“ im Bereich des Gösslinghofs 34
Abb. 20: Übersichtsplan zu den Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche am Gösslinghof 35
Abb. 21: Lage der Probenahmepunkte 36
Abb. 22: Lage Probenahmepunkte und vorhandenes Messstelleninventar nach Angaben des Lippeverbandes 37
Abb. 23: Untersuchungsergebnisse des Lippeverbandes 39
Abb. 24: Hauptwindrichtungen in Essen 43
Abb. 25: Berechnete Höhendifferenzen aus einem Vergleich von Höhenangaben der Preußischen Landesaufnahme und aktuellen Digitalen Geländemodellen für das westfälische Ruhrgebiet nach Harnischmacher und den Gesamtsenkungen seit 01.01.1875 bis Abbauende gemäß RAG 46
Abb. 26: Übersicht über die Senkungen im Bereich Gösslinghof 47
Abb. 27: Zeitsenkungskurven aus den beiden Senkungsschwerpunkten nördlich und nordöstlich vom Gösslinghof 48
Abb. 28: Zeitsenkungskurven am Gösslinghof 1972-1988 48
Abb. 29: Gesamtsenkungen im Bereich der BHV in Zentimetern 49
Abb. 30: Zeitabsenkungskurven der Senkungsschwerpunkte und die jeweiligen Bruchhohlraumverfüllungen zwischen 1961 und 2015 50

TABELLEN:

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten 2
Tab. 2: Auszug aus dem geologischen Standardprofil für die Scholle 137 7
Tab. 3: Überblick über Durchlässigkeitsbeiwerte im Emscher Mergel 10
Tab. 4: Grundwassermessstellen in der Kreide 11
Tab. 5: Überblick über Durchlässigkeitsbeiwerte im Oberkarbon 16
Tab. 6: Probenahme und Ergebnisse 37
Tab. 7: Schwermetallgehalte im Grünland 40
Tab. 8: Senkungen in den einzelnen Bauhöhen in m 50
Tab. 9: Verhältnis Betriebswasser zu gehobenem Grubenwasser 52

0 Vorbemerkung

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die ahu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte, die in der Abb. 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z. T. über die in der Abb. 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

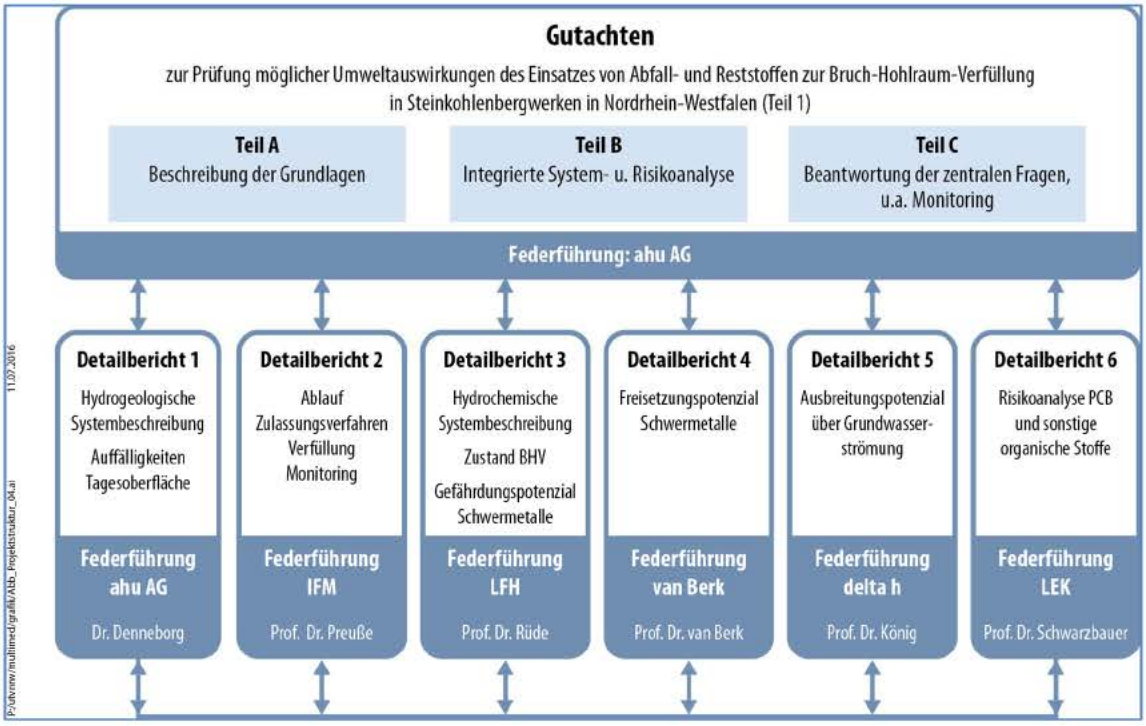


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens (ahu AG)

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u. a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten

Nr	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter/ Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulassungs-verfahrens, der Bruch-hohlraumverfüllung und des Monitorings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahrens und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfül-lung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungs-potentials 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof. [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 1.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (am Gösslinghof) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abb. 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgt in einer Tiefe zwischen - 800 m NHN und - 920 m NHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind noch zugänglich. Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

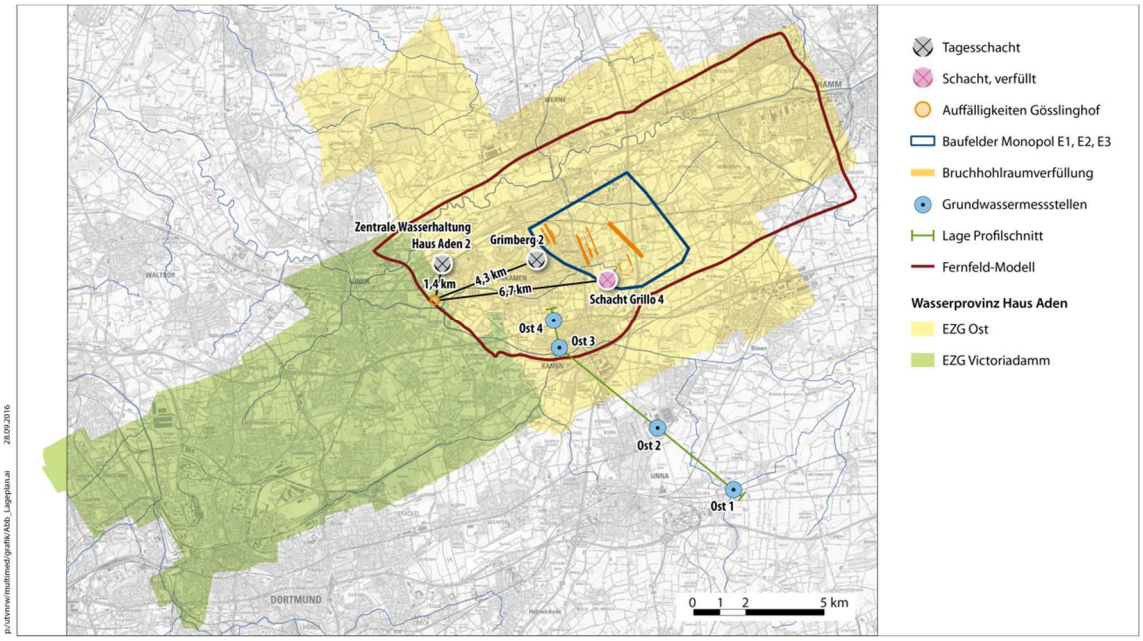


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 Hydrogeologisch-hydrogeochemisches System

1.1 Systembeschreibung

1.1.1 Aufgaben und Grenzen der Systembeschreibung

Um eine der zentralen Frage des Gutachtens „Gibt es heute oder zukünftig ein Risiko durch Schadstoffausträge aus der Bruchhohlraumverfüllung?“ zu beantworten, müssen zunächst das komplexe hydrogeologisch-hydrogeochemische System und die vielfältigen Wirkungszusammenhänge innerhalb des Systems analysiert und verstanden werden. Die hydraulischen Aspekte der Systembeschreibung, also die Frage nach den Durchlässigkeiten und den Grubenwasserströmungen sind auch bedeutend für die Risikoanalyse PCB (Detailbericht 6).

Für die Systembeschreibung werden „Hilfsmittel“ wie die hydrogeochemisch-thermodynamischen Modellierungen zum Stoffverhalten (Detailbericht 4) und hydraulische Grundwasserströmungsmodelle (Detailbericht 5) eingesetzt.

Grundlage für diese Modelle, die immer nur eine Vereinfachung der komplexen Realität sein können, ist eine hydrogeologisch-hydrogeochemische Systembeschreibung (konzeptionelles Modell) mit den Aufgaben,

- das vorhandene Wissen zu strukturieren und auf die zu Verfügung stehenden Werkzeuge (numerische Modelle) zu übertragen,
- die relevanten Randbedingungen und „Startparameter“ zu benennen bzw. hierfür begründbare Annahmen zu treffen, wenn sie nicht bekannt oder ermittelbar sind,
- die ablaufenden Prozesse soweit möglich zu beschreiben,
- die Größenordnung der relevanten Eingangsdaten und ihre Bandbreiten einzugrenzen (worst case, most likely, best case),
- die Unsicherheiten und deren Bedeutung zu benennen.

Diese numerischen Modelle haben dann v. a. die Aufgabe, dieses System- und Prozessverständnis zu überprüfen und weiterzuentwickeln. Auf dieser Grundlage können dann Prognosen über das Systemverhalten heute und in der Zukunft und unter sich ändernden Randbedingungen erstellt werden.

Es muss klar sein, dass nicht alle Randparameter des Systems bekannt sind bzw. erhoben werden können, weil z. B.

- Messwerte über ein mit Grubenwasser geflutetes System erst in der Zukunft (zumindest theoretisch) erhoben werden können;
- viele der komplexen hydrogeochemischen Prozesse über Jahrhunderte bis Jahrtausende ablaufen und auch jetzt noch nicht vollständig verstanden sind;

- Parameter wie z. B. die mineralogische Stoffzusammensetzung der eingebrachten Reststoffe unter In-Situ-Bedingungen (Druck, Temperatur, Einfluss Tiefengrundwasser) vor und während der Bruchhohlraumverfüllung nicht erfasst wurden und heute – zumindest innerhalb der nächsten Jahre und auch nicht repräsentativ – nacherhoben werden können[1].

Deshalb ist eine wichtige Aufgabe im Gutachten – auf Grundlage des hydrogeologisch-hydrogeochemischen Systemverständnisses – Aussagen zu treffen über:

- Plausibilität, Variabilität und Prognoseunsicherheiten der Modellaussagen,

- ggf. Vorschläge zur Behebung der Unsicherheiten und/oder weiterführender Untersuchungen,

- ein Monitoringkonzept, das rechtzeitig Auskunft gibt, ob die Entwicklung wie erwartet verläuft oder die Auslösung von Handlungsoptionen erforderlich ist.

1.1.2 Grundzüge des hydrogeologisch-hydrogeochemischen Systems

Das hier betrachtete hydrogeologisch-hydrogeochemische System in seiner Gesamtheit reicht bis ca. - 1.700 m NHN unter der Geländeoberfläche. Der Kohlenabbau erreichte Tiefen von ca. 1.400 m NHN. Innerhalb dieses Systems bestehen zahlreiche komplexe Wirkungszusammenhänge, die – aus geologischer Sicht – erst vor kurzem begonnen haben, teilweise sehr langsam ablaufen und noch Jahrtausende andauern werden.

Die wichtigsten Merkmale dieses Systems sind:

- Aufbau aus sehr unterschiedlichen hydrogeologischen Einheiten:
  - flacher quartärer, oberflächennaher Poren-Grundwasserleiter (bis ca. 10 m unter GOK);
  - unterlagernder Kluftgrundwasserleiter in der Auflockerungszone des Emscher Mergels (bis ca. 50 m unter GOK);
  - vereinzelte salinare Kluftwasserführung im tiefen Emscher Mergel (bis ca. 230 m unter GOK);
  - hoch salinarer Kluft/Karstgrundwasserleiter (v. a. Kalksteine des Turon) (bis ca. 370 bis 420 m unter GOK);
  - karbonisches Grundgebirge: Wechsellagerung Sandsteine/Tonsteine/Kohle (hier betrachtet bis ca. 1.700 m unter GOK).

- Auswirkungen des jahrzehntelangen Kohleabbaus in großen Teilen des flözführenden Gebirges und dadurch in der Folge:
  - Grundwasserabsenkung über die Strecken;

[1] Hier wären auch Rückstellproben wenig hilfreich, die unter anderen Umweltbedingungen gelagert worden wären.

  - weiträumige Entwässerung des die Strecken umgebenden Gebirges;
  - unverritztes Gebirge und abgebaute Bereiche (Alter Mann) mit einer geringen Durchlässigkeit und geringen Wasserführung;
  - in weiten Teilen künstliches Vorflutsystem (offen gehaltene Strecken = Hauptwasserwege) mit hoher Durchlässigkeit und Wasserführung.
- begonnene Flutung der Strecken und des entwässerten Gebirges.
- Versatz von ca. 170.000 t gebirgsfremden Stoffen (Bruchhohlraumverfüllung mit Reststoffen (Filterstäube aus der Hausmüllverbrennung) und RAA-Schlämmen), die in komplexen und langfristigen hydrogeochemischen Reaktionen mit dem Tiefengrundwasser wie wiederholte Ausfällung, Lösung und Umwandlung von Mineralgemischen stehen.

Um die Wechselwirkungen und Besonderheiten des Systems zu verstehen, ist es zunächst notwendig, die – für die Fragestellung relevanten – geologischen Einheiten zu beschreiben.

1.2 Hydrogeologischer Aufbau

Im Folgenden werden die Schichten, die den Untergrund aufbauen, kurz beschrieben. Es handelt sich von der Erdoberfläche aus gesehen um die Schichten des Quartärs und der Kreide, die zusammen das Deckgebirge aufbauen. Darunter liegt das Grundgebirge (Karbon), oft unterteilt in das Flözleere und Flözführende Karbon. Einen Überblick gibt das Bohrprofil in Abb. 3 und der hydrogeologische Schnitt in Abb. 5.

Als Datengrundlage stehen v. a. zur Verfügung: Fachliteratur, Daten aus der Kohlenvorratsberechnung (KVB) des Geologischen Dienstes NRW, Kenntnisse der Gutachter und Datenauswertung der umfangreichen Unterlagen der BR Arnsberg und der RAG.

1.2.1 Quartär

Das z. T. nur wenige Meter mächtige Quartär ist vor allem aus lehmig-tonigen Sedimenten aufgebaut. Im Bereich der Lippeaue sind auch geringmächtige sandig-kiesige Grundwasserleiter verbreitet.

Die Verbreitung, die Mächtigkeit, der Aufbau und die Startwerte für die Kalibrierung des oberflächennahen Grundwasserleiters für das Regionalmodell werden bereichsweise aus dem Grundwassermodell BW Ost des Lippeverbandes (LV) entnommen. Das Grundwassermodell des LV wurde von den Gutachtern geprüft. Es wurde festgestellt, dass das Modell nach dem aktuellen Stand der Technik aufgebaut ist und die verwendeten und berechneten Daten valide und plausibel sind (Detailbericht 5).

Gemäß dem Umweltportal NRW (http://www.umweltportal.nrw.de) gibt es im Untersuchungsraum (Abb. 2) keine festgesetzten oder geplanten Entnahmen für die öffentliche Trinkwasserversorgung und keine Heilquellen und damit auch keine festgesetzten oder geplanten Schutzgebiete.

1.2.2 Kreide

Im Rahmen des Sonderbetriebsplans Bruchhohlraumverfüllung (BHV) wurde am 15.12.1995 ein detailliertes Bohrprofil im Maßstab 1 : 1.000 am Schacht Grillo 4 eingereicht (Abb. 3). Der Schacht Grillo 4 liegt unmittelbar südlich der BHV (Abb. 2). Neben der genauen Schichtenfolge enthält das Bohrprofil auch Angaben zur Wasserführung.

Weiterhin wurden vom GD NRW drei sehr detaillierte geologische Standardprofile aus der Kohlenvorratsberechnung (KVB) bereitgestellt. Diese Profile reichen bis - 1.500 m. Die Tab. 2 zeigt in einem Ausschnitt ein Beispiel für die geologische Scholle 137, in der die Bruchhohlraumverfüllung (BHV) liegt.

Tab. 2: Auszug aus dem geologischen Standardprofil für die Scholle 137 (GD NRW)

Tiefe bis ... m	Beschreibung	Stratigraphie
5,00		Quartär
190,00	Mergelstein, schluffig, grau am Top Tonmergelstein	Untersantonium
265,00	Mergelstein, schluffig	Coniacium
275,00	Mergelstein, schluffig, grau Einlagerungen aus Kalkmergelstein, hellgrau	Turonium-Coniacium
300,00	Kalkmergelstein, Mergelstein, grau, hellgrau Einlagerungen aus Kalkstein, tonig, hellgrau, gebankt	Oberturonium
375,00	Kalkstein, teilweise tonig, hellgrau wenige Einlagerungen aus Ton, streifig an der Basis Glaukonit	Mittelturonium
380,00	Kalkstein, tonig, schluffig, feinsandig, graugrün, glaukonitisch	Mittelturonium: Soest-Grünsand-Subformation
405,00	Kalkstein, teilweise tonig, hellgrau, grünstichig wenige Einlagerungen aus Glaukonit	Mittelturonium
420,00	Kalkstein, tonig wechsellagernd mit Kalkmergelstein, grünlichgrau	Unterturonium
455,00	Kalkstein, teilweise tonig, grau wenige Einlagerungen aus Glaukonit	Cenomanium
464,40	Sandstein, stark schluffig, stark glaukonitisch, dunkelgrün, karbonathaltig an der Basis Gerölle	Cenomanium: Essen-Grünsand-Formation

Tiefe bis … m	Beschreibung	Stratigraphie	
465,00	Kohle		Westfalium: Essen-Formation
480,00	Sandstein		
493,40	Schluff-/Tonstein		
495,00	Kohle		
504,70	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
505,00	Kohle		
524,00	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
525,00	Kohle		
549,60	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
550,00	Kohle		
559,60	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
560,00	Kohle		
570,00	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
576,00	Sandstein		
579,10	Schluff-/Tonstein		
580,00	Kohle		
589,60	Sandstein-Schluff-/Tonstein-Wechselfolge		
590,00	Kohle		

Auf Grundlage dieser Profile wurde ein vereinfachtes hydrogeologisches Profil durch die ahu AG erstellt (Abb. 3). Beim Aufbau des Grundwassermodells und der Zuordnung der Modellparameter wurden diese Ergebnisse berücksichtigt.

Das Deckgebirge hat am Schacht Grillo 4 eine Mächtigkeit von 413 m (Abb. 3); gemäß dem Standardprofil liegt die Mächtigkeit des Deckgebirges bei 465 m. Für den Aufbau des Grundwassermodells wurden die Angaben aus dem Standardprofil des GD NRW verwendet. Die Schichten sind annähernd horizontal gelagert (Abb. 6), so dass diese Mächtigkeit und der hydrogeologische Aufbau zunächst mehr oder weniger auf das gesamte Untersuchungsgebiet übertragen werden können.

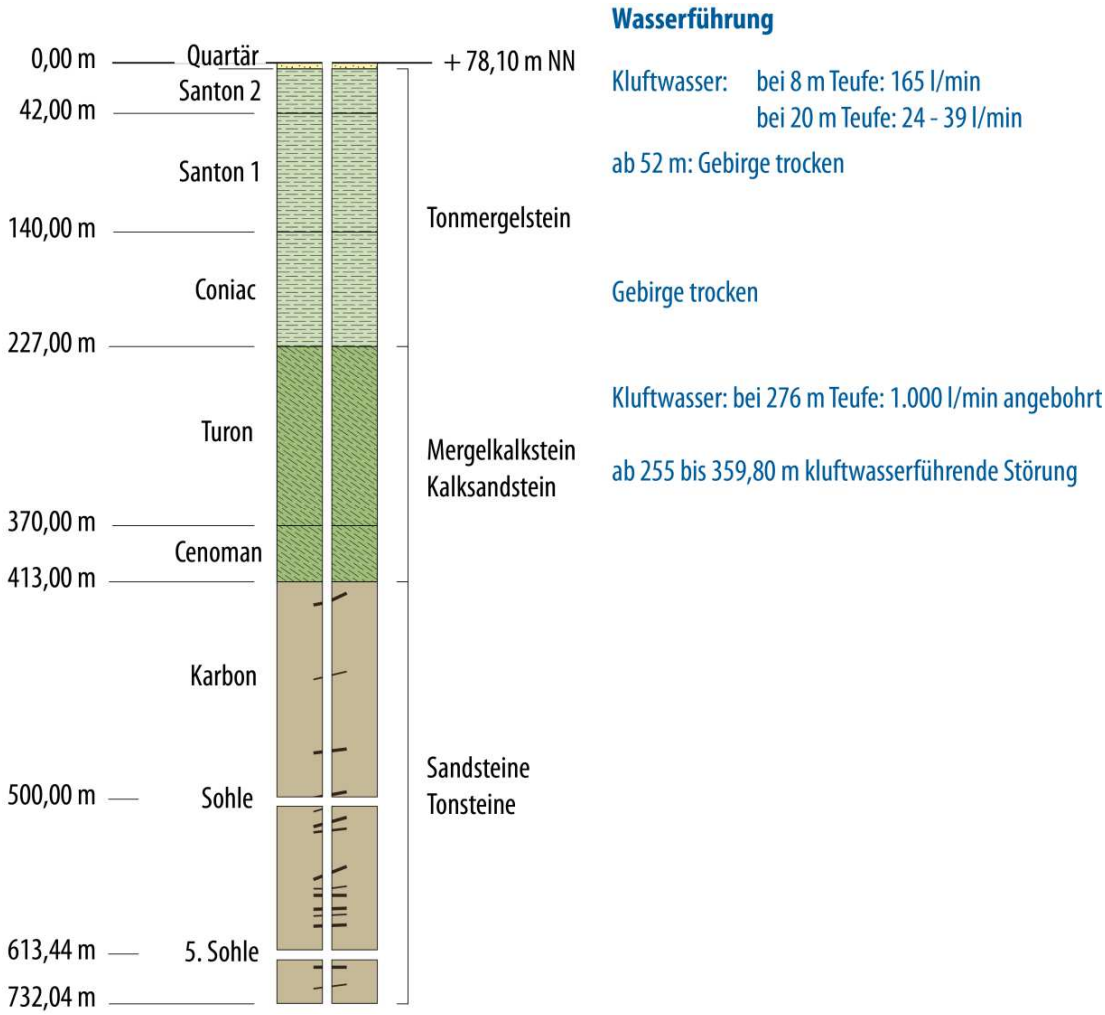


Abb. 3: Vereinfachtes hydrogeologisches Profil Schacht Grillo 4 des Deckgebirges und des Grundgebirges (ahu AG)

Unterhalb des Quartärs folgen die Schichten der Oberkreide. Innerhalb der Oberkreide werden die höher gelegenen tonig-mergeligen Schichten (Emscher Mergel) und die darunterliegenden kalkigen Schichten (Kalke des Cenoman und Turon) unterschieden.

1.2.2.1 Emscher Mergel

Bis zu einer Teufe von 227 m ist im Schacht Grillo 4 der Emscher Mergel verbreitet (Abb. 3). Unter „Emscher Mergel“ werden die Gesteine des mittleren Coniac bis mittleren Santon mit der Basis Recklinghausen Sandmergel zusammengefasst. Innerhalb des Emscher Mergel gibt es fazielle Unterschiede: Im nördlichen Ruhrgebiet ist der Emscher Mergel im Westen sandiger und im Osten (wie im Untersuchungsgebiet) toniger ausgebildet. Der Tonanteil beträgt hier ca. 65 bis 75 %. Zwischen Tonstein und Kalkstein ist eine variable Mischung möglich. Je höher der Tongehalt ist, desto weniger durchlässiger und plastischer ist der Emscher Mergel und reagiert auf Bergsenkungen durch Verformung und nicht durch Brüche (Detailbericht 2).

Die Tab. 3 gibt einen Überblick über Durchlässigkeitsbeiwerte, die für den Emscher Mergel in einigen Untersuchungen und Studien angenommen wurden. Aufgrund der geringen Durchlässigkeiten ist der Emscher Mergel unterhalb der Auflockerungszone als ein Grundwassergeringleiter einzustufen (Hölting & Coldewey 2005).

Tab. 3: Überblick über Durchlässigkeitsbeiwerte (Gebirgsdurchlässigkeit) im Emscher Mergel

Bereich	Durchlässigkeitsbeiwert m/s	Quelle
Auflockerungszone (bis ca. 100 m u. GOK) weitgehend unabhängig von der Fazies	1×10^{-6}	Sauter et al. (2012)
unterhalb der Auflockerungszone	1 bis 5×10^{-9}	DMT (2008)
	1×10^{-10}	GRS (1998)
	10^{-9} bis 10^{-12}	Stemke & Wohnlich (2012)*
	1×10^{-10}	Sauter et al. (2012)
	5×10^{-10}	Fernfeldmodell zur Berechnung des Ausbreitungspotentials

* lfd. Forschungsvorhaben: Herkunft des Methans im Grundwasser des Münsterländer Kreidebeckens (2012)

Wasserführung im Emscher Mergel

Bei der Bohrung zum Schacht Grillo 4 wurde Grundwasser im Emscher Mergel auf Klüften festgestellt. Die Wasserführung lag in 8 m Tiefe bei 2,7 L/s und nahm in 20 m Tiefe auf 0,4 bis 0,7 L/s ab. Ab einer Tiefe von 52 bis 255 m war die Bohrung Schacht Grillo 4 im Emscher Mergel trocken.

Berücksichtigung im Grundwassermodell

Im vorliegenden Grundwassermodell wurde eine Durchlässigkeit von 5×10^{-10} angenommen (Tab. 3). Der geplante Grubenwasseranstieg ist auf ca. - 670 m NHN in der ZWH begrenzt und erreicht damit nicht den Emscher Mergel, aber zur Berechnung der Grundwasserneubildung „von oben“ ist der Emscher Mergel im Grundwassermodell abgebildet und es muss ihm ein realistischer Wert zugeordnet werden.

Grundwassermessstellen im Emscher Mergel

Die Abb. 4 zeigt die Lage von vier tiefen Grundwassermessstellen in der Kreide, die 2002 von der RAG eingerichtet wurden. Die Messstellen sind so verfiltert, dass sie die Grundwasserstände im Emscher Mergel und im darunterliegenden Kalkstein-Grundwasserleiter des Turon messen. Die Messstellen werden regelmäßig gemessen.

Grundwasserchemismus im Emscher Mergel

Mit zunehmender Tiefe steigt der Salzgehalt im Emscher Mergel schnell an. In der Regel wird angenommen, dass ab ca. 150 m Tiefe das Grundwasser zu salzig für den menschlichen Genuss ist (Erläuterungen Blatt Münster C 4310). Die hydrochemische Grenze zwischen Süß- und Salzwasser liegt bei 1.000 mg/L. Einen Überblick über die Grundwasserqualitäten gibt die Tab. 4. Hiernach hat das Grundwasser bei der Messstelle Ost 2.2 bereits in einer Tiefe von 45 m einen hohen Chloridgehalt von über 10.000 mg/L.

Tab. 4: Grundwassermessstellen in der Kreide (Daten der RAG)

Messstelle	Tiefe [m]	Messort	Chloridgehalt 2014/2015 [mg/L]
Ost 1.1	70	Turon	30-55
Ost 2.1	165	Turon	11.-13.000
Ost 2.2	45	Emscher Mergel	10.-12.000
Ost 3.1	200	Emscher Mergel	13.-15.000
Ost 4.1	180	Emscher Mergel	13.-15.000
Ost 4.2	335	Turon	23.000

1.2.2.2 Kalksteine des Turon

Ab 227 bis 413 m wurden Kalksteine des Turon mit verschiedenen Beimengungen an Ton (Mergelkalkstein) und Sand (Kalksandstein) im Schacht Grillo 4 erbohrt. Ein reiner Kalkstein (Oberes Cenoman) wurde zwischen 370 und 392 m erbohrt. Eine Verkarstung wurde nicht erwähnt. Die Mergelkalksteine und Kalksandsteine des Turon und des oberen Cenoman (im Folgenden Kalksteine des Turon) bilden einen mehr oder weniger ergiebigen Kluft- bis Karstgrundwasserleiter. Die Basis der Kreide bildet ein grobes Transgressionskonglomerat.

Wasserführung und Hydrochemie in den Kalksteinen

Wasser führende Klüfte wurden wieder in einer Tiefe von 255 bis 359 m innerhalb der Kalksteine des Turon im Schacht Grillo 4 erbohrt. Besonders starke Zuflüsse (ca. 17 L/s) wurden bei 276 m Tiefe festgestellt. Grundwasseranalysen liegen aus den Kalksteinen im Schacht Grillo 4 nicht vor, wohl aber aus den vier Grundwassermessstellen, deren Analysenergebnisse in der Tab. 4. dargestellt sind. Sie zeigen, dass der Chloridgehalt mit der Tiefe weiter ansteigt und in 335 m Tiefe (Messstelle Ost 4.2) bereits bei 23.000 mg/L liegt.



Abb. 4: Lage der tiefen Grundwassermessstellen in der Kreide (Quelle: RAG), der BHV und des Bereichs der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (Darstellung: ahu AG)

1.2.2.3 Essen Grünsand

Der Essen Grünsand (Unteres Cenoman) ist ein schluffiger und damit geringdurchlässiger Feinsand, der eine hydraulische Trennung zwischen den wasserführenden Kalken des Turon und des Karbon bewirkt. Beim Auffahren der ersten Bergwerke konnte es beim Fehlen oder bei Geringmächtigkeit des Essen Grünsandes (wie z. B. im Standardprofil des GD NRW) oder bei höheren Durchlässigkeiten des Essen Grünsandes (wie im Westen des Ruhrgebietes) zu massiven Wassereinbrüchen und dauerhaften Wasserzuläufen kommen.

Der Essen Grünsand (Unteres Cenoman) wurde im Bohrprofil Schacht Grillo nicht explizit erwähnt. Im Standardprofil des GD NRW ist der Essen Grünsand nur 0,6 m mächtig. In dem schematischen hydrogeologischen Schnitt (Abb. 5) wird eine durchgehende Verbreitung des Essen Grünsand dargestellt.

Im Grundwassermodell wurde dem Deckgebirge eine Gesamttransmissivität (Faktor aus Durchlässigkeit und Mächtigkeit) zugeordnet.

1.2.2.4 Grundwasserfließsystem Deckgebirge

Die Abb. 5 zeigt einen schematischen hydrogeologischen NW-SE-Schnitt der RAG, die Lage ist in der Abb. 4 dargestellt. Der Bereich der BHV liegt nordöstlich der Messstelle Ost 4. Die Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (Gösslinghof) liegen westlich des Profils. Dargestellt sind die Verbreitung des Emscher Mergel, des darunter liegenden Turon (Kalksteine), des Essen Grünsand (Unteres Cenoman) und des noch tieferliegenden Karbon.

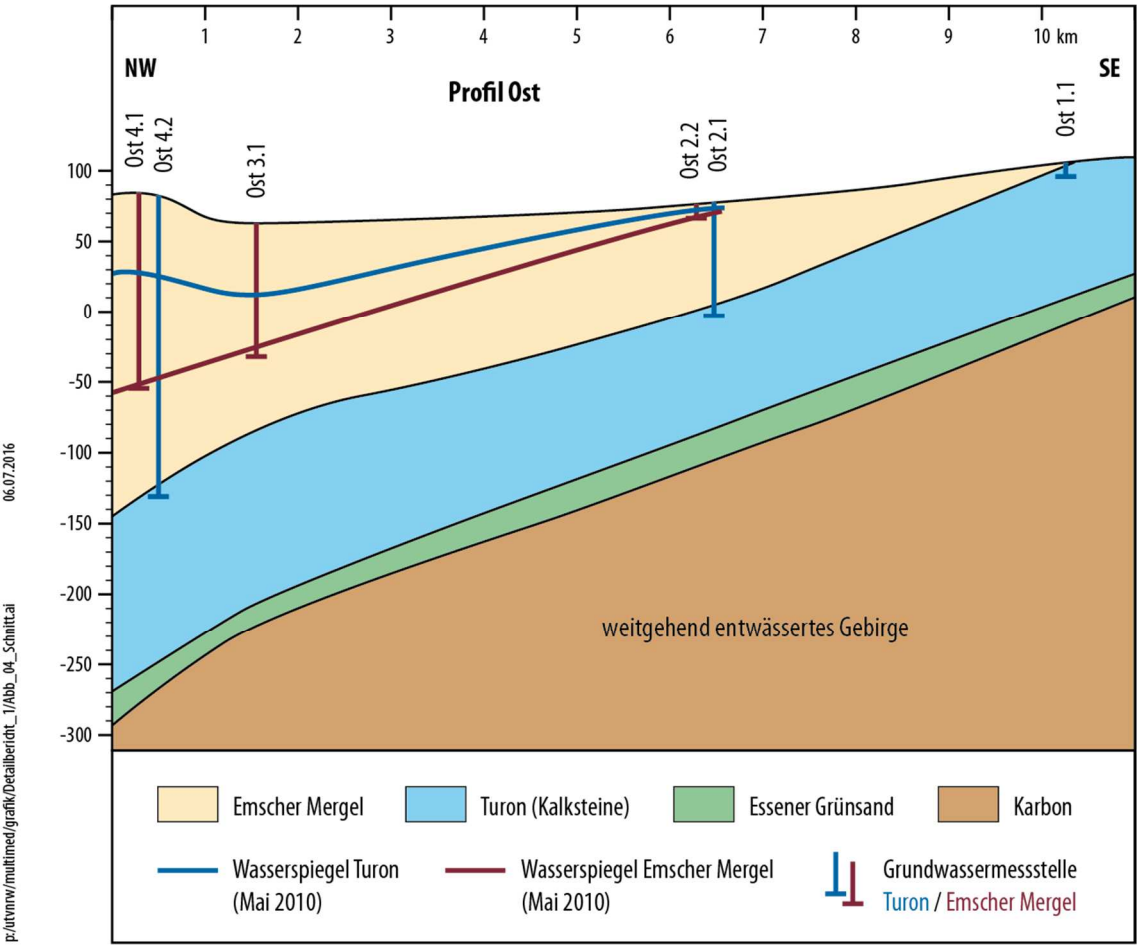


Abb. 5: Schematischer hydrogeologischer Schnitt NW-SE mit den Wasserspiegeln im Turon und im Emscher Mergel (Quelle: RAG, Darstellung: ahu AG)

Im BW Gneisenau/BW Scharnhorst/BW Kurl in der Wasserprovinz Haus Aden kam es beim Auffahren der BW und auch in den Kriegsjahren zu großen Wassereinbrüchen aus dem Deckgebirge. Entweder wurde der Sicherheitsabstand zum Deckgebirge unterschritten und/oder der hydraulisch trennende Essen Grünsand fehlte oder war zu geringmächtig (wie dies gemäß Standardprofil des GD und des Bohrprofils am Schacht Grillo 4 dargestellt ist). Dies ist der Grund dafür, dass das Grubenwasser, das heute in der Zentralen Wasserhaltung (ZWH) Haus Aden gefördert wird, mit 4.500 mg/L vergleichsweise gering mineralisiert ist und in so hohen Mengen anfällt (ca. 22 m^3/min). Aus den östlichen BW der Wasserprovinz Haus Aden fallen nur ca. 10 % dieser Menge, allerdings höher mineralisiert, an. Dies wird im Detail in Abschnitt 3.4.3 erläutert.

Im Osten, im Bereich der Messstellengruppe Ost 1 stehen die Kalksteine des Turon unter geringmächtiger quartärer Bedeckung an. In diesem Bereich ist auch ein Großteil der Grundwasserneubildung im Turon zu vermuten, wie der geringe Salzgehalt in der Messstelle Ost 1.1 mit 30 bis 50 mg/L anzeigt (Tab. 4). Alle Schichten fallen gleichmäßig nach NW hin ein. Mit zunehmendem Abtauchen der Schichten nimmt auch die Potentialdifferenz zwischen den Grundwasserständen im Emscher Mergel und den Grundwasserstände im Turon sowie der Salzgehalt zu. Während im Bereich der Messstellengruppe Ost 2 die Grundwasserdruckflächen im Emscher Mergel und im Turon noch annähernd auf gleicher Höhe liegen, liegt die Druckfläche des Turon im Bereich der Messstelle Ost 4 schon fast 80 m höher. Dies bedeutet, dass das Turon hoch gespannt ist: Gegenüber der Basis des Turon beträgt das Potential fast 280 m.

Das darunter liegende Karbon ist durch den langanhaltenden Bergbau weitestgehend entwässert. Solange das so bleibt, ist kein Grundwasseraufstieg aus dem Karbon möglich. Beim Auftreten von höherdurchlässigen Störungen/Klüften würde eine Fließrichtung aus der Kreide (Turon und Emscher Mergel) in das Karbon erfolgen und nicht umgekehrt.

Aber selbst nach einem Grubenwasseranstieg bis auf ca. – 0 m NHN (und einer Wassersättigung des Gebirges) wäre noch keine aufsteigende Wasserbewegung aus dem Karbon in die Kreide möglich, da der „Wasserüberdruck“ im Turon gegenüber dem Karbon wahrscheinlich immer noch ca. 10 bis 20 m betragen würde.

1.2.3 Karbon

Das Untersuchungsgebiet liegt in der Bochumer Mulde. Die Abb. 6 zeigt ein vereinfachtes geologisches NNW-SSE-Profil durch die Bochumer Mulde. Das Deckgebirge – bestehend aus Quartär und Kreide (Emscher Mergel, Turon/Cenoman) ist zusammenfassend dargestellt. Die Schichten fallen nur mit geringer Neigung nach NW ein. Die schematische Lage der BHV ist in rot dargestellt und liegt im Bereich einer weitgehend horizontalen Lagerung.

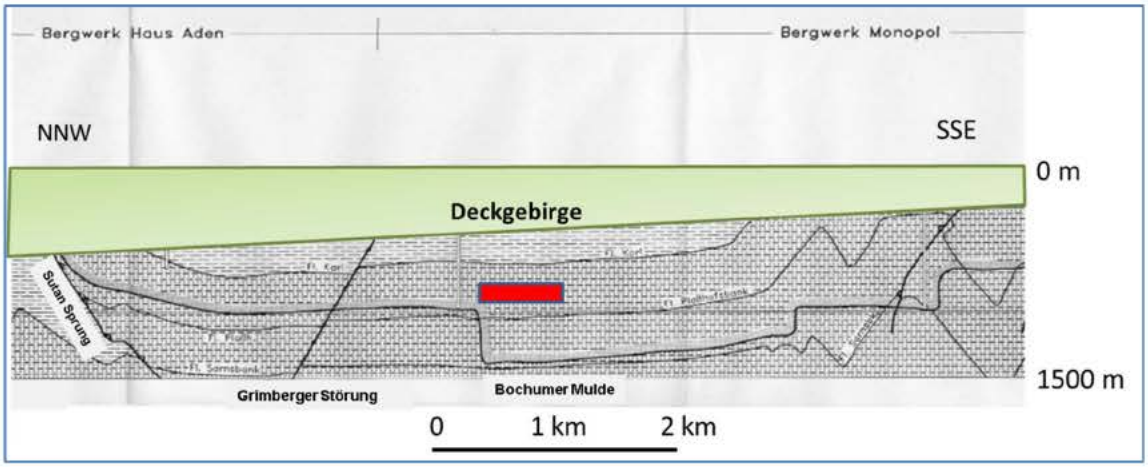


Abb. 6: Vereinfachtes geologisches Profil (NNW-SSE) im Untersuchungsgebiet mit der schematisch dargestellten Bruchhohlraumverfüllung in rot (WBK 1990)

1.2.3.1 Schichtenfolge des Karbon

Das flözführende Oberkarbon hat eine Gesamtmächtigkeit von ca. 3.000 m (Namur C (Sprockhövel Schichten) bis Westfal C). Darin sind ca. 200 Flöze enthalten. Die Mächtigkeit der Flöze beträgt wenige Zentimeter bis 5 bis 6 m. Insgesamt wird der Kohleanteil in den Flözen bezogen auf das flözführende Karbon auf 3 bis 5 % geschätzt. Es wird allgemein davon ausgegangen, dass im Nebengestein des flözführenden Karbon fein verteilt noch einmal dieselbe Menge an Kohlenstoff vorkommt (GD NRW 2011). Dies ist wichtig für die Bewertung der Sorptionseigenschaften der Gesteine bezüglich der organischen Schadstoffe PCDD/PCDF und PCB (Detailbericht 6).

Die einzelnen Flöze wurden in sog. Cyclothemen abgelagert. Dies ist eine regelmäßige Abfolge von Flöz, Ton- und Schluffsteinen, Sandsteinen/Konglomeraten, Schluffstein, Tonstein und dem nächsten Flöz. Die einzelnen Ton- und Schluffsteinlagen haben eine geringere Durchlässigkeit als die Sandsteinlagen, die auch geklüftet sein können. Die Mächtigkeit eines Cyclothems beträgt im Durchschnitt 7 bis 10 m.

Das Karbon beginnt im Untersuchungsgebiet gemäß der Bohrung Schacht Grillo 4 mit einer Wechsellagerung aus Sand- und Tonsteinen und gering mächtigen Kohleflözen.

In der Bohrung Schacht Grillo 4 wurden ca. 20 größere Kohleflöze angetroffen. Im Bereich der Baufelder Monopol E1-E3 wurden davon die folgenden Flöze in den Höhenlagen abgebaut:

- Flöz C von - 608 bis - 659
- Flöz B1 von - 640 bis - 677
- Flöz Zollverein 3 von - 736 bis - 766
- Flöz Zollverein 5 Oberbank von - 687 bis - 795
- Flöz Zollverein 6 Oberbank von - 704 bis - 785
- Flöz Zollverein 6 Unterbank von - 729 bis - 772
- Flöz Zollverein 8 von - 761 bis - 790
- Flöz **Grimberg 2-3 mit der BHV von - 800 bis - 920**
- Flöz Röttgersbank von – 1.394 bis – 1.460
- Flöz Wilhelm von – 1.385 bis - 1.480

Zwischen dem Abbau im Flöz Grimberg 2/3 und dem Abbau im Flöz Röttgersbank im Bereich der o. g. Baufelder besteht ein durchschnittlicher Abstand von ca. 600 m.

Die Tab. 5 gibt eine Übersicht über die bekannten Durchlässigkeitsbeiwerte im Oberkarbon (Startwerte für die Kalibrierung des Fernfeldmodells, Detailbericht 5).

Tab. 5: Überblick über Durchlässigkeitsbeiwerte im Oberkarbon (nach Paas 1997)

Stratigrafie	Lithologie	Porenvolumen	Gesteinsdurchlässigkeitsbeiwerte [m/s]	Gebirgsdurchlässigkeitsbeiwerte [m/s]	Gebirgsdurchlässigkeitsbeiwerte [m/s]
		nicht aufgelockert			aufgelockert
Älteres Oberkarbon	Siltsteine	< 1 %	6×10^{-13} bis $4{,}6\ 10^{-15}$	3×10^{-9} bis 3×10^{-10}	10^{-8} bis $1\ 10^{-9}$
	Sandsteine	1 bis 3 %		10^{-7} bis 3×10^{-9}	10^{-6} bis $3\ 10^{-8}$
Jüngeres Oberkarbon (Horst, Dorsten Schichten)	Siltsteine – Sandsteine	bis 10 %	8×10^{-9} bis $2\ 10^{-11}$		
Karbon allgemein					vertikal 6×10^{-9} horizontal 2×10^{-8} (GRS 1998)
Versatzbereich*					1×10^{-8} bis 1×10^{-9}
Fernfeldmodell				5×10^{-8}	$1{,}6 \times 10^{-8}$

* Unter Versatzbereich wird der vertikale Bereich einer Bruchhohlraumverfüllung (ca. 10 m) verstanden.

Damit sind die Wegsamkeiten auch bei Betrachtung der Gebirgsdurchlässigkeiten als „äußerst gering“ (Klassifizierung gemäß Hydrogeologische Karte, HK 50) einzuschätzen.

Die Auflockerung (Gefügezerstörung) durch den Steinkohlenabbau reicht nach Jäger et al. (1990) nur bis zum Drei- bis Fünffachen der jeweiligen Flözmächtigkeit ins Hangende hinein.

Der geologische Aufbau im Grundwassermodell beruht auf den digitalen Daten aus der Kohlenvorratsberechnung des GD NRW und einem für die geologische Scholle 137 entwickelten Standardprofil mit sehr hoher Auflösung im Meterbereich bis in eine Tiefe von 1.500 m u. GOK (Tab. 2).

1.2.3.2 Störungen im Karbon

Die variszische Gebirgsbildung mit der Auffaltung des Grundgebirges erfolgte vor ca. 280 Millionen Jahren. Die meisten Quer- und Diagonalstörungen im Grundgebirge entstanden jedoch erst postvariszisch – z. B. durch Aktivierung während der Gebirgsbildung der Alpen – in der Zeit zwischen Perm und Kreide (Wrede 1992, Drozdzewski & Wrede 1994, Wrede 2010).

Es liegen weitere umfangreiche Informationen über den tektonischen Bau vor, die im Rahmen des Gutachtens nicht im Detail ausgewertet wurden (z. B. Wrede 1992; Drozdzewski & Wrede 1994; Wrede 2010).

Die Störungstektonik ist durch folgende Punkte gekennzeichnet:

- Die Faltung des Grundgebirges läuft nach Norden zum Münsterländer Becken hin aus und nimmt nach Süden hin mit nach Norden und Süden einfallenden Auf- und Überschiebungen (Einengungstektonik) und vielen Querstörungen zu. Es gibt eine ungefähr gleiche Anzahl von nord- und südfallenden Aufschiebungen (z. B. Sutan-Überschiebung).

- Es gibt nur wenige nachgewiesene Störungen, die sich aus dem Grundgebirge in das Deckgebirge bis zur Geländeoberfläche fortsetzen, auch wenn die genaue Lage dieser Störungen an der Geländeoberfläche nicht überall bekannt ist. Diese wenigen bekannten Störungen liegen am Südrand des Münsterländer Beckens, in den im Zuge der Steinkohlengewinnung erkundeten Bereichen (z. B. Drevenacker Störung im Raum zwischen Bottrop und Dorsten). Im Untersuchungsgebiet sind das vor allem der Flierich er Sprung mit ca. 400 m Sprunghöhe und der Königsborner Sprung SW der Bauhöhe 17.

- Es gibt wesentlich mehr große Störungen aus dem Grundgebirge, die sich nachweislich nicht ins Deckgebirge fortsetzen, als Störungen, die aus dem Grundgebirge durch das Deckgebirge durchschlagen.

- Es gibt eine Reihe von Störungen im Deckgebirge, die wurzellos nach unten enden (Dölling & Juch 2009). Im Untersuchungsgebiet ist keine derartige Störung bekannt.

Die Durchlässigkeit einer Störung kann abschnittsweise unterschiedlich sein. So wurde beim Durchörtern der Sandgewand, einer großen Störung im Kohlenrevier bei Aachen, in den 1920er Jahren ein großer Wassereinbruch registriert, der fast zur Aufgabe des Bergwerks führte. Bei einer Durchörterung in den 1980er Jahren an einer anderen Stelle derselben Störung wurde keine Wasserführung festgestellt (ahu AG 2012).

Im Ruhrkarbon gibt es Erfahrungen, dass auch sehr große Störungen gering durchlässig sind: z. B. der Flierich er Sprung zwischen der Wittener und der Bochumer Hauptmulde. Dort besteht zwischen dem Bergwerk Ost und der Zeche Königsborn 4 ein Potentialunterschied im Grundwasser von > 1.000 m (ahu AG 2012).

Vielfach haben Störungen eine gegenüber dem umgebenden Gebirge verringerte Durchlässigkeit, da es durch die Bewegung zum Verschmieren von Tonen, Mylonitbildung gekommen ist, die die Durchlässigkeit deutlich herabsetzt (Wallbraun 1992).

Häufig sind Störungen infolge einer Dehnungs- und Zerrungstektonik (tektonische Gräben, Abschiebungen) durchlässiger als Störungen, die infolge einer Einengungstektonik (Blattverschiebungen, Aufschiebungen) entstanden sind.

Das Gebirge oberhalb der Bruchhohlraumverfüllung wurde fast flächig mit den Flözen der Zollvereinsgruppe durchbaut. Dabei wurden keine Wasser führenden Störungen festgestellt und größere, unbekannte Störungen, die potentielle Wasserwege darstellen können, sind nicht zu erwarten (Thein & Klingel 1995).

Im Untersuchungsgebiet treten drei große NNW-SSE verlaufende Störungen auf, die die einzelnen Schollen begrenzen. Vor allem der Königsborner Sprung ist von Bedeutung, da sie am nächsten an der BHV liegt und auch Verbindung zu dem Röhrensystem (offene Strecken zur Grubenwasserführung) hat (Abb. 7).

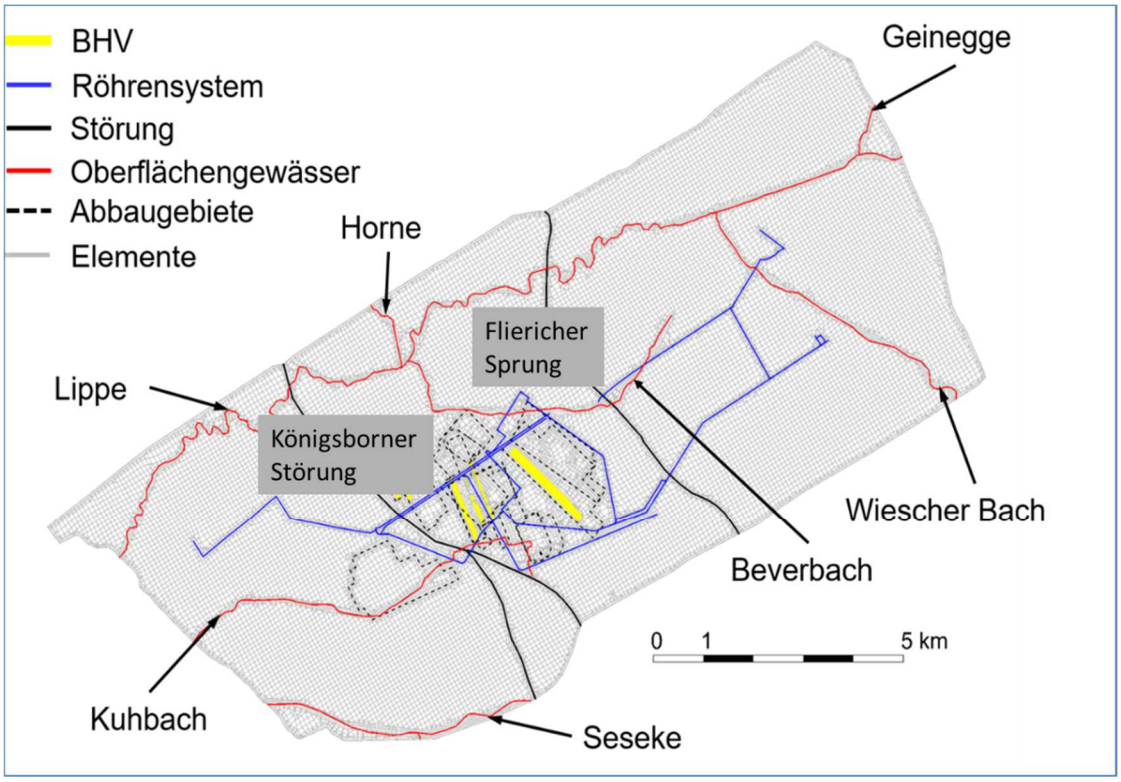


Abb. 7: Hauptstörungssysteme (schwarz) im Bereich der BHV (rot) und Wasserwege (blau) (Darstellung: delta h)

Die kürzeste Entfernung zwischen der BHV (Bauhöhen Gb16 und Gb17) zum Königsborner Sprung beträgt 200 Meter (Detailbericht 5).

Die kürzeste Entfernung von der BHV (Bauhöhen Gb16 und Gb17) über den Königsborner Sprung zu einer offenen Strecke, die dann zur ZWH führt, beträgt 266 m. Diese offene Strecke liegt in einer Tiefe von ca. 960 m (Detailbericht 5).

Die kürzeste Entfernung zwischen der BHV (Bauhöhen Gb1, Gb2 und Gb31) zu dem Röhrensystem beträgt 139 Meter, von der Bauhöhe Gb16 aus sind es 126 m (Detailbericht 5).

Hierbei ist zu beachten, dass die Hauptmasse der BHV und damit der eingebrachten Schwermetalle weiter von der Störung und dem Röhrensystem entfernt liegen (Abb. 7). Über die Grundwassermodellierungen wird für das gesamte Röhrensystem über die Zeit aufsummiert, welche Schwermetallfrachten in das Röhrensystem – ob über eine Störung oder über die Durchströmung des Gebirges – gelangen.

Eigene Untersuchungen oder sonstige Daten speziell zur Durchlässigkeit des Königsborner Sprungs liegen nicht vor. Hierzu Dr. [redacted] (GD NRW, Schreiben vom 13.06.2016):

„Generell sind, wie Sie zutreffend schreiben, die Verhältnisse bezüglich der Durchlässigkeit von Gebirgsstörungen im Karbon sehr uneinheitlich. Eine pauschalierende Annahme einer Erhöhung der Durchlässigkeit gegenüber dem umgebenden Gebirge um 1 – 2 Zehnerpotenzen (vergl. Landesgutachten Fracking 2012: S. 5/22) würde bei der

Annahme von Gebirgsdurchlässigkeiten in bergbaulich aufgelockerten Oberkarbongesteinen von $K_f = 10^{-8}$ bis 10^{-9} m/s auf Werte von $K_f = 10^{-6}$ bis 10^{-8} m/s führen (vergl. Paas 1997). Ähnliche Werte ($K_{f,v} = 5 \times 10^{-6}$ m/s; $K_{f,h} = 5 \times 10^{-8}$ m/s) nimmt auch die BGR an in ihrer Studie zu Schieferöl und Schiefergas in Deutschland (2016: 110) für die Störungen in ihren Modellrechnungen. Von Sauter et al. (2012) wurden als „worst case Szenario" bei ihren Modellierungen K_f-Werte von 10^{-4} m/s angenommen.

Damit wären die Störungen im Regelfall als „gering" bis „sehr gering durchlässig" zu betrachten. Gleichwohl ist eine höhere Wasserwegsamkeit im Einzelfall nicht auszuschließen".

In den Modellierungen mit dem Grundwassermodell wurden daher für die Störungen auch sehr hohe Durchlässigkeiten von 1×10^{-5} m/s angenommen, um die Bedeutung der Störung bei sehr hohen Durchlässigkeiten für das Grundwasserfließsystem bewerten zu können (Detailbericht 5).

Zusammenfassend ist zu sagen: Je durchlässiger die Störung ist, desto stärker orientiert sich langfristig das Grundwasserfließsystem auf die Modellränder und desto mehr verteilt sich eine zukünftige und langfristige Belastung aus der BHV im Tiefengrundwasser. Je geringer durchlässig die Störung ist, desto größer ist die Bedeutung des Röhrensystems als Vorfluter und desto größer ist der Anteil an Schwermetallen, die zukünftig und langfristig über die Grubenwasserhaltung erfasst und gehoben werden.

1.3 Hydrogeologisches Fließsystem Grundgebirge

Im Folgenden werden der Aufbau, die Elemente und ihre Wirkungszusammenhänge im Fließsystem des Grundgebirges erläutert.

Bei einem Grubenwasserstand von – 670 m NHN in der ZWH und ca. - 600 m NHN in der Wasserprovinz Haus Aden existiert ein Gefälle aus dem Deckgebirge in das Grundgebirge, und eine Grundwasserströmung kann ebenfalls nur in diese Richtung erfolgen. Aufstiege von Tiefengrundwasser sind so nicht möglich.

Dies bedeutet nicht, dass es bei einem Grubenwasseranstieg höher als - 670 m NHN in der ZWH zu einem Aufsteigen von Tiefengrundwässern kommt.

1.3.1 Grundsätzlicher Aufbau des hydrogeologischen Fließsystems

Das Fließsystem im Grundgebirge ist kein natürliches Fließsystem (mehr), sondern es gibt eine Reihe von anthropogenen Veränderungen, die einen großen Einfluss auf das hydrogeologische Fließsystem hatten und haben werden.

Vor dem Bergbau nahm das tiefe, hochsalinare (und schwere) Tiefengrundwasser kaum am Fließsystem teil. Lediglich an einigen Solequellen am Südrand des Münsterlandes trat Tiefengrundwasser zu Tage (ahu AG 2012). Durch den Bergbau erfolgt zum einen eine Entwässerung des Tiefengrundwassers bis in eine Tiefe von - 1.400 m und zum anderen wurden künstliche Wegsamkeiten mit einer hohen Durchlässigkeit geschaffen, die im Rahmen des Grubenwasserkonzeptes auch möglichst lange erhalten bleiben sollen, um eine gezielte Führung des Grubenwassers hin zu drei zentralen Wasserhaltungen im Ruhrgebiet (Walsum, Lohberg und Haus Aden) zu gewährleisten.

Das zukünftige Fließsystem ist am ehesten mit einem Karst-Grundwasserleiter zu vergleichen. In einem Karst-Grundwasserleiter erfolgt auch über die Karströhren (Höhlen) fast der gesamte Wasserumsatz. Die Gesteinsmatrix, das umgebende Gebirge, nimmt aufgrund der erheblich geringen Durchlässigkeit (mindestens 10.000.000-fach geringere Durchlässigkeit) kaum am Wasserumsatz teil. Dies betrifft auch die verbrochenen Abbaubereiche (Alter Mann), die nach einer gewissen Zeit fast dieselbe geringe Durchlässigkeit wie das nicht durchbaute Gebirge haben. Gemäß GRS (1998) wird für den Alten Mann langfristig eine Durchlässigkeit von 1×10^{-8} m/s angegeben. Im Fernfeldmodell wurde eine Durchlässigkeit von 5×10^{-8} m/s angenommen (Detailbericht 5). Der Nahbereich um die offenen Strecken (Röhren) herum ist durch den jahrzehntelangen Bergbau ebenfalls teilweise entwässert.

1.3.2 Elemente des künstlichen Fließsystems Grundgebirge

Anders als in einem natürlichen Karstsystem ist die zukünftige Entwässerungsfunktion der Grubengebäude – das Röhrensystem – jedoch geplant und gesteuert.

Dies betrifft vor allem die BW, die seit Mitte der 1990er Jahre abgeworfen wurden. Hierzu gehört auch die Wasserprovinz Haus Aden, die im vorliegenden Gutachten bewertet wird.

Die Abb. 9 bis Abb. 13 zeigen wichtige Elemente des Röhrensystems aus dem BW Haus Aden und dem BW Auguste Victoria. Sie werden im Folgenden näher beschrieben.

- offene Strecken mit Querschnitten bis zu 20 m^2 (Abb. 9 und Abb. 10).

- Schotterschicht: Alle gleisgebundenen Strecken sind geschottert. Die Mächtigkeit beträgt min. 10 cm. Selbst bei einer langfristig zusammengesunkenen Röhre soll der Schotter noch eine Grundwasserströmung ermöglichen (Abb. 9).

- zusätzliche ein bis zwei Rohrleitungen (DN 300 bis DN 500) mit regelmäßigen Wasserzutrittsmöglichkeiten, über diese Rohre soll das Grubenwasser fließen, wenn die Strecken langfristig verbrochen und vollständig verschlossen sind (Abb. 11).

- abgedämmte Strecken zur Steuerung des Wasserflusses.

Das Röhrensystem für den östlichen Teil der Wasserprovinz Haus Aden ist in der Abb. 8 dargestellt. Es zeigt die Haupt- und Nebenwasserwege als wichtigstes Element, einige Schächte und Dämme sowie die BHV-Bereiche sowie die erwarteten Grubenwassermengen. Hauptwasserwege stellen wichtige Verbindungen zwischen Teilprovinzen und der Zentralen Wasserhaltung auf Haus Aden 2 (ZWH) her, die Nebenwasserwege sind häufig Zubringer. Für die Grundwasserströmungsmodellierung sind aber alle Wasserwege mehr oder weniger gleich bedeutsam und werden zusammenfassend als Röhrensystem bezeichnet.

Die ZWH für die Wasserprovinz Haus Aden befindet sich auf Haus Aden 2. Hier werden zzt. nur die Wässer aus dem westlichen Einzugsgebiet Victoriadamm angenommen, welches hier nur mit einem Pfeil dargestellt ist (Zufluss im Durchschnitt 22 m^3/min).

Zukünftig, nach dem zugelassenen Grubenwasseranstieg bis auf - 960 m NHN in der ZWH, wird auch aus dem Einzugsgebiet Ost Grubenwasser in Höhe von ca. 2,8 m³/min der ZWH zuströmen. Die Hauptwasserführung im Ostteil der Wasserprovinz läuft ca. 600 m NHN unterhalb der BHV (Abb. 8) auf einem Niveau von - 1.420 m NHN. Die BHV liegt zwischen - 820 m NHN und - 930 m NHN. Ein Nebenwasserweg vom Blindschacht 50 zum Schacht Grimberg 2 wurde an beiden Stellen verdämmt.

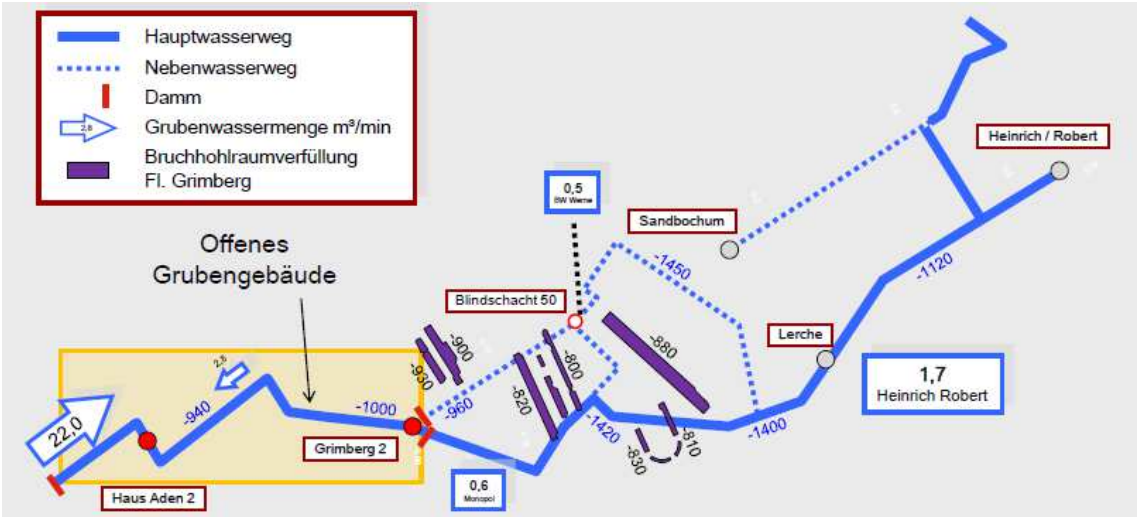


Abb. 8: Röhrensystem Wasserprovinz Haus Aden mit den zukünftigen Grubenwasserflüssen in Mio. m³/a nach dem Grubenwasseranstieg (Quelle: RAG)



Abb. 9: Röhrensystem, geschotterter Hauptwasserweg im BW Auguste Victoria (Foto: RAG)



Abb. 10: Röhrensystem, Hauptwasserweg im BW Haus Aden/Monopol (Foto: RAG)



Abb. 11: Rohrleitung DN 500 mit Unterbrechungen und definierten Zutrittstellen unter der Kiesschüttung (Foto: RAG)



Abb. 12: Hydraulische Anbindung des Röhrensystems an das Gebirge aufgrund eines offenen Ausbaus (Foto: RAG)

Hydraulische Anbindung der Röhren an die Gebirgsmatrix

Da die Wände des Röhrensystems nicht wasserdicht ausgebaut sind, bestehen Zutrittsmöglichkeiten von Grundwasser aus dem umgebenden Gebirge (Matrix) in die Röhren (Abb. 12). Aufgrund der mindestens 10.000.000-fach geringeren Durchlässigkeit der Matrix (und des Alten Manns) sind die Fließmengen in der Gebirgsmatrix auch erheblich geringer. Aufgrund des geringen Potentials in den Röhren sind die Röhren in der Regel der Vorfluter und werden angeströmt.

Ausnahmen sind Wasserzutritte an Klüften. Diese oft dauerhaft fließenden Zuläufe haben wahrscheinlich auch Kontakte zu geklüfteten Sandsteinlagen mit einer gewissen Wasserführung. Die unterschiedlichen Durchlässigkeiten der Sandstein- und Tonsteinschichten werden im Fernfeldmodell berücksichtigt.

Dämme

Im Bergwerksbetrieb wurden mit Fortschreiten des Abbaus nicht mehr genutzte Bereiche (abgeworfene Bereiche) abgedämmt, damit vor allem die Luftströmungen (Wetter) gezielter geführt werden konnten und aus abgeworfenen Bereichen keine Grubengase austreten konnten. Bei gasreichen Kohlen liegen die Abstände bei 25 m und darunter (z. B. Prosper Haniel). Dies erfolgte durch mehrere tausend Dammbauwerke, die in der

Regel aus Beton – gemäß den entsprechenden Regelwerken und häufig gemäß Sonderbetriebsplänen – errichtet wurden. Dadurch wurde sukzessive in den die Abbaue begleitenden Strecken eine Kaskade von Barrieren geschaffen, die auch bei einem Verbleib von Hohlräumen in langfristig zusammengedrückten Strecken eine durchgehende Durchlässigkeit einschränkt. Bei Dämmen, durch die eine spätere Wasserführung erfolgen soll, wird vor dem Rückzug aus dem BW eine aufgeschraubte Platte entfernt. Die Lage der Dämme wurde im Grundwassermodell berücksichtigt.



Abb. 13: Damm 2657 mit verschraubter Öffnung zur Wiederherstellung der Durchlässigkeit (Foto: RAG)

Die Abb. 14 gibt einen Eindruck von der Vielzahl der Dämme im Streckennetz des BW Haus Aden/Monopol. Die Lage der Dämme wurde von der RAG digital übernommen und in der Lage und Funktion im Grundwassermodell berücksichtigt (Detailbericht 5).

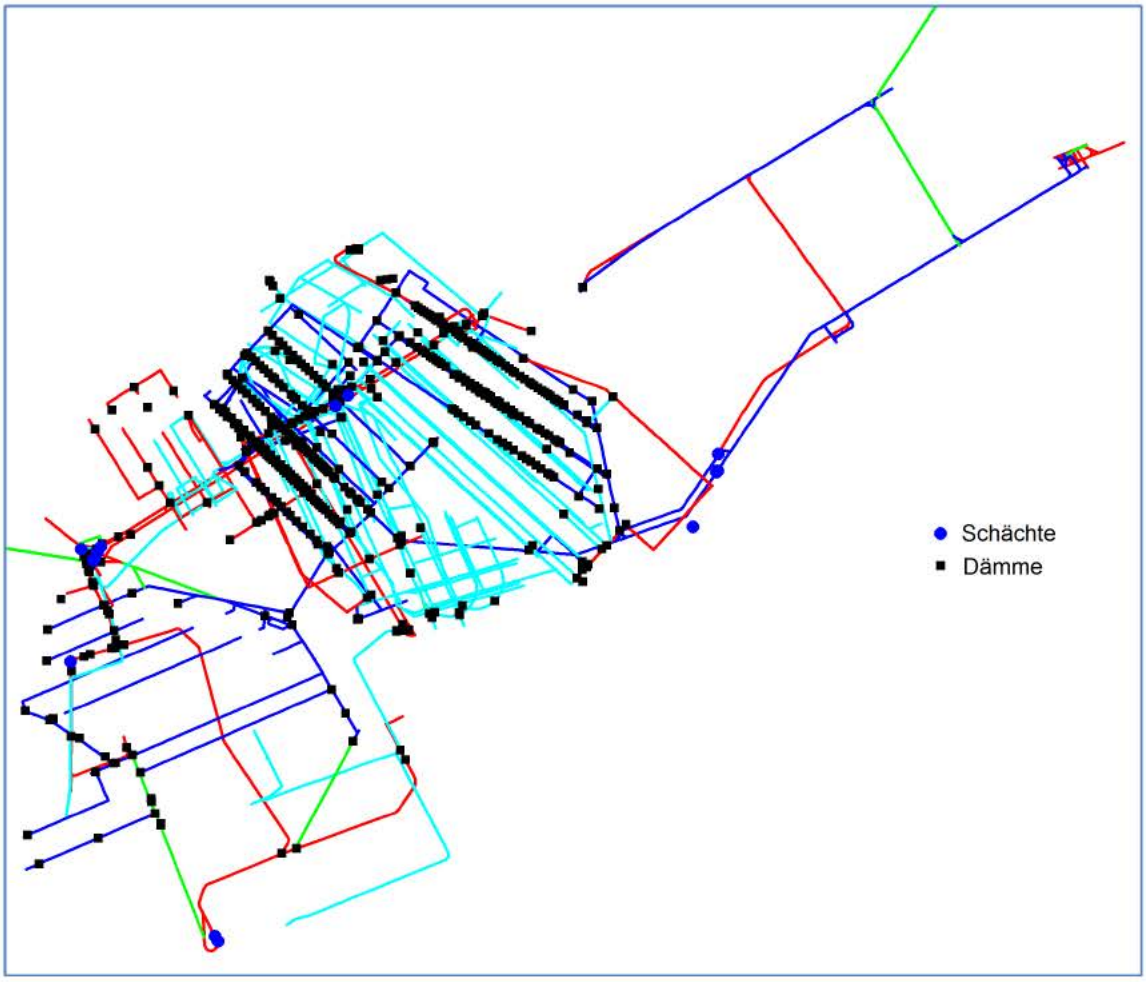


Abb. 14: Beispiel für die Berücksichtigung der Dämme und Schächte im Streckennetz bei der Grundwassermodellierung (Quelle: RAG, Darstellung: delta h)

Dauerhaftigkeit/Wasserwegsamkeit des Röhrensystems

Die Dauerhaftigkeit des Röhrensystems kann nur abgeschätzt werden, da seit langem abgeworfene Bergbaubereiche nicht mehr zugänglich sind. Die folgenden Punkte lassen vermuten, dass die Wasserwegsamkeiten aber mindestens über mehrere 10er Jahre bis 100er Jahre bestehen bleiben:

- Die Entwässerung der seit längerem abgeworfenen Grubenbereiche wie z. B. das Einzugsgebiet des Victoriadammes mit der Überleitung aus den BW Gneisenau und BW Hansa funktioniert.

- Die meisten Strecken bestehen seit mehreren 10er Jahren und erfolgten im Gleitbogenausbau. Der Gleitbogenausbau wurde in seiner ersten Ausführungsform Anfang der 1930er Jahre entwickelt und eingesetzt. Das heutige Profil des Gleitbogenausbaus wurde 1970 eingeführt, daher die Bezeichnung TH-70. In der Regel erfolgt kein Zusammendrücken der Firste, sondern ein „Hochdrücken" der Streckensohle durch den Gebirgsdruck. Im Betrieb wurden deshalb regelmäßig die Sohlen wieder abgeschoben. Es ist das Ziel des sohlenoffenen Bogenquerschnitts,

die Firste zu stabilisieren und Verformungen aus der Sohle zuzulassen. Dies gelingt in der Regel, da die freie Knicklänge der Sohle wesentlich größer ist als in der Firste (Stadie 1987).

- Die langfristig genutzten Strecken (Ausrichtungsstrecken), die zentrale Bedeutung für das Bergwerk haben, wurden so ausgebaut (z. B. durch Vollringausbau), dass sie ähnlich wie ein Tunnelbauwerk weitestgehend dauerhaft unverändert bleiben. Als Beginn dieser Technik der mechanisierten Gesteinsstreckenauffahrung (mit Vollschnittmaschinen) wird eine Auffahrung auf dem Bergwerk Minister Stein in der Zeit 1971 bis 1973 gesehen (Podjadke, Witthaus, Bartel 2008).

- Schotterschicht (min. 0,1 m): Selbst bei einer langfristig zusammengesunkenen Röhre soll der Schotter noch eine Grundwasserströmung ermöglichen (Abb. 9).

- Zusätzliche Rohrleitungen (DN 300 bis DN 500) mit regelmäßigen Wasserzutrittsmöglichkeiten. Über diese Rohre soll das Grubenwasser fließen, wenn die Strecken verbrochen und vollständig verschlossen sind (Abb. 11).

- Nach einem Grubenwasseranstieg ist das Tiefenwasser fast sauerstofffrei. Dies minimiert die Korrosion des Streckenausbaus.

Langfristig – mehrere 100er Jahre ? – werden auch Streckenverbindungen ihre hohe Durchlässigkeit verlieren. Die Folge wird zunächst der Aufbau höherer Potentialunterschiede zwischen den einzelnen Bergwerksbereichen sein, wie das bereits in einigen BW aus den 1930er Jahren im Süden der Wasserprovinz Haus Aden der Fall Ist (BW Kurl 1 und BW Kurl). In dem Grubenwasserkonzept der RAG sind deshalb an ausgewählten Zechenstandorten Sicherungsbrunnen vorgesehen, falls ein Zustrom aus einer Teilprovinz zur ZWH nicht mehr gewährleistet ist.

In der Grundwassermodellierung im Detailbericht 5 wurde von hohen Durchlässigkeiten im Röhrensystem ausgegangen. Es wird empfohlen, die Auswirkung einer langfristig verringerten Durchlässigkeit des Röhrensystems anhand weiterführender Grundwassermodellierungen in Teil 2 des Gutachtens zu untersuchen (Detailbericht 5).

Heutige Wasserführung

Durch die Jahrzehnte andauernde Bergwerkstätigkeit ist das Gebirge im direkten Kontakt zu den Röhren weitgehend entwässert. Auch durch die Bewetterung wurden und werden teilweise bis heute große Wassermengen ausgetragen.

Bei der untertägigen Probenahme im BW Haus Aden wurde deshalb nur ein relevantes Gerinne mit Wasserführung angetroffen (Abb. 15).



Abb. 15: Gerinne im BW Haus Aden/Monopol (Foto: RAG)

Die Wasserzutrittsstelle lag in der Deckenfirste wenige Meter oberhalb der Stelle der Abb. 15. Massive Salzablagerungen an der Decke als Stalaktiten und Bodenablagerungen zeigen den hohen Salzgehalt an. Eine Analyse des Wassers (Probe 18/3) ergab 44.000 mg/L Chlorid und bestätigt damit die hohe Mineralisation des Grundgebirges und des darüber liegenden Deckgebirges.

1.3.3 Fließsystem während der Flutung

Im Bereich der Wasserprovinz Aden handelt es sich um ein nach vier Seiten (Norden, Osten, Süden und Westen) weitgehend geschlossenes hydraulisches System, da hier das unverritzte Gebirge ansteht.

Nach den Abschätzungen der RAG im Box-Modell (DMT 2015) und den Erfahrungen aus anderen, bereits gefluteten BW wird das Grubenwasser ca. 100 bis 150 m pro Jahr steigen. Dies erfolgt zunächst vor allem in den Röhren und wird als „schnelles System“ bezeichnet.

Die Wasserprovinz Haus Aden gliedert sich in drei Bereiche (Abb. 16):

1) Einzugsgebiet Victoriadamm (derzeit Grubenwasseranstieg gestoppt),

2) Einzugsgebiet Ost (derzeit Grubenwasseranstieg),

3) zugängliche Bereiche zwischen Haus Aden 2 und Schacht Grimberg 2 (9,2 km).

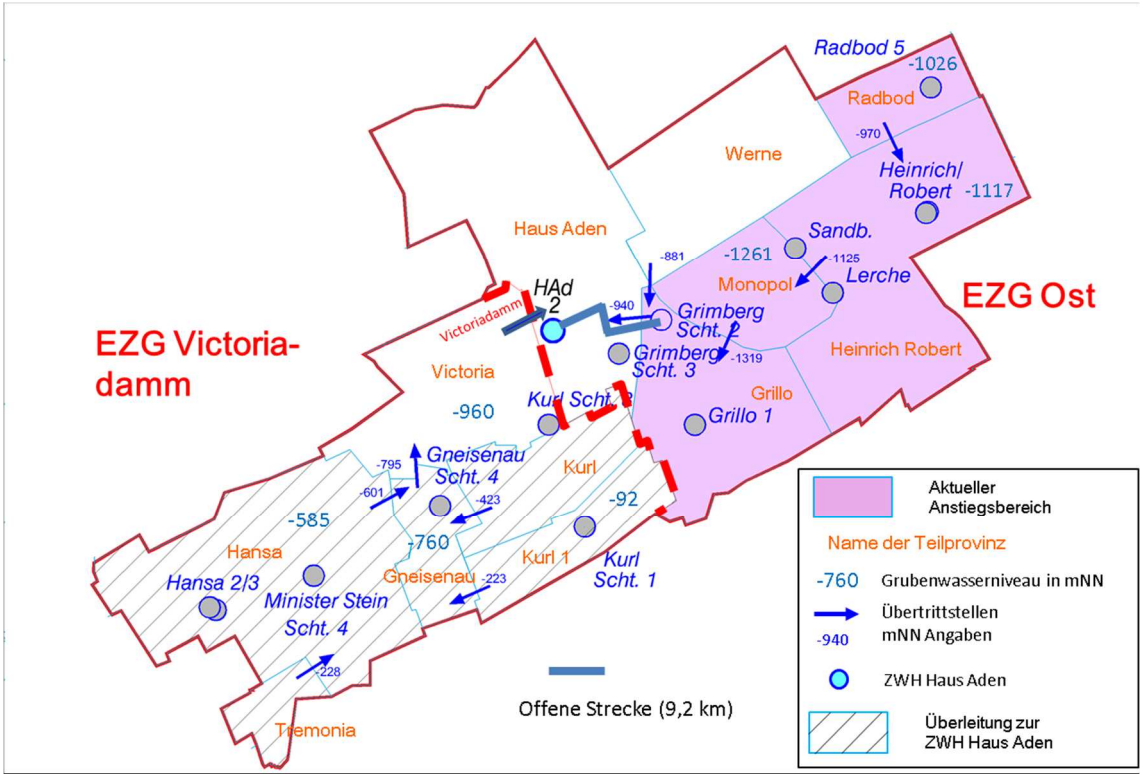


Abb. 16: Wasserprovinz Haus Aden mit dem Einzugsgebiet Victoriadamm, Einzugsgebiet Ost, Grubenwasserständen und Übertrittstellen zwischen den Teilprovinzen (Stand 2016) (Quelle: RAG)

Die Teilprovinzen, aus denen das Grubenwasser im Einzugsgebiet Victoriadamm stammt, werden im Folgenden mit Stand 2016 beschrieben.

Der Victoriadamm liegt im nordöstlichen Bereich der Teilprovinz Victoria (Abb. 16). Die Bereiche Victoria 1/2/3/4 werden zusammenfassend als Teilprovinz Victoria betrachtet. Am Victoriadamm werden auf einer Höhe von - 960 m NHN zzt. Grubenwässer in Höhe von ca. 22 bis 24 m^3/min angenommen und über eine geschlossene Leitung nach über Tage gepumpt und dann in die Lippe eingeleitet[2].

Hinter dem Victoriadamm steht im Baufeld Victoria geflutetes Resthohlraumvolumen von ca. 4 Mio. m^3 an, das seit Ende der 1990er Jahre in eingestaut ist. Die Abbautiefen reichten hier bis ca. - 1.460 m NHN. Die wassererfüllte Mächtigkeit im BW Victoria beträgt damit ca. 500 Meter. Diese mehrere 10er Kilometer langen wassergefüllten Strecken dienen aufgrund der geringen Fließgeschwindigkeit auch als Sedimentationsstrecke.

Weitere 22 Mio. m^3 Wasser sind in den übrigen Teilprovinzen bereits eingestaut, die im Folgenden beschrieben werden (blaue Bereiche in Abb. 17).

[2] Die aktuelle Grubenwasseranalyse ist im Detailbericht 3 dargestellt. An dieser Grubenwassereinleitung wurde auch die Untersuchungskampagne des LANUV in 2015 durchgeführt.

Die Abbaue oberhalb der derzeitigen Grubenwasseroberfläche von – 960 m NHN werden mit hohem Gefälle durchströmt, wie die Abb. 17 zeigt.

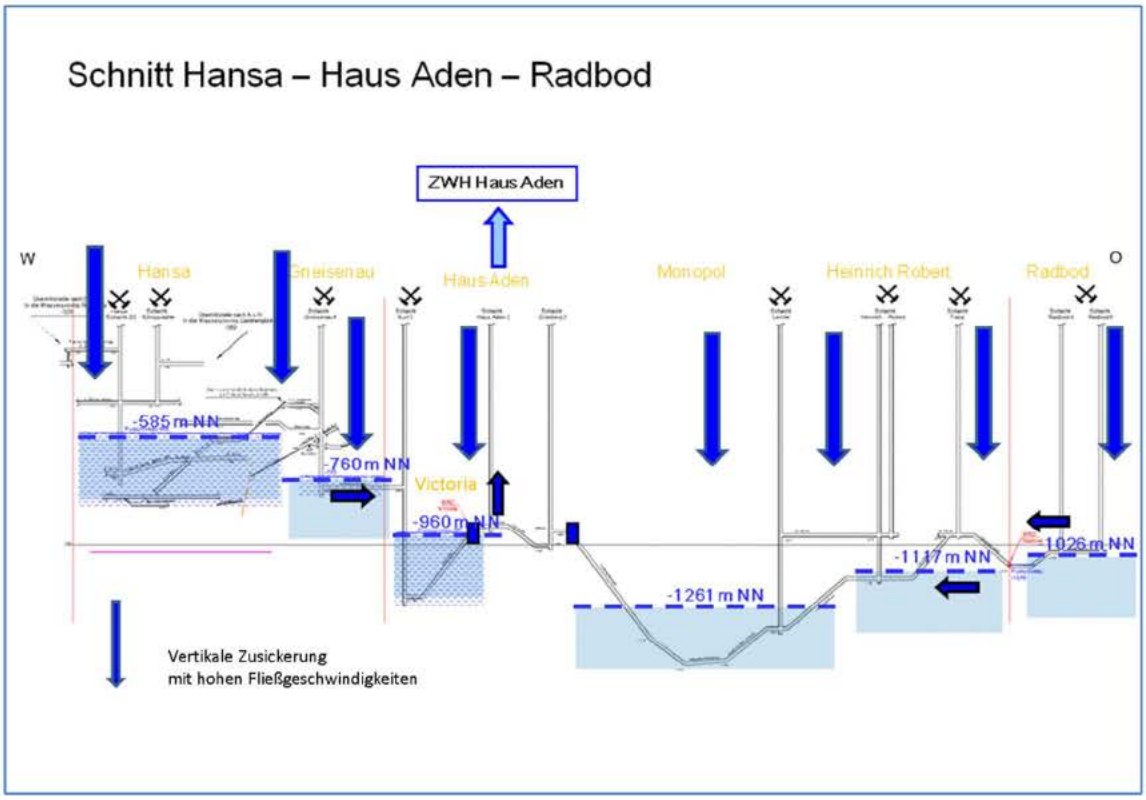


Abb. 17: Potentialdifferenzen Stand 3/2016 zwischen den Teilprovinzen und bereits eingestaute Bereiche (hellblau) und Zusickerungen aus dem Deckgebirge (Quelle: RAG, Ergänzung durch ahu AG)

1.3.4 Teilprovinz Hansa

Der Abbau reichte von – 167 m NHN bis – 974 m NHN. Das Grubenwasser steht derzeit bei - 585 m NHN.

Die Übertrittstelle in die Teilprovinz Gneisenau liegt bei - 601 m NHN. Das Grubenwasser überwindet dann kaskadenartig eine Höhendifferenz von ca. 175 m bis auf das Niveau von - 760 m NHN in Gneisenau. Dies erfolgt über wassergefüllte Strecken, wahrscheinlich aber auch in offenen Gerinnen mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten. Ein Beispiel für ein solches Gerinne zeigt die Abb. 15. Die Grubenwassermenge, die in die Teilprovinz Gneisenau überströmt, beträgt ca. 1,7 m^3/min.

1.3.5 Teilprovinz Gneisenau

In der Teilprovinz Gneisenau reichte der Abbau von - 290 m NHN bis ca. - 787 m NHN (Abb. 17). Bereits beim Auffahren des BW im Jahr 1875 soff die Grube aufgrund starker Wasserzutritte aus dem Deckgebirge zunächst ab. Bis heute strömen große Wassermengen in Höhe von ca. 11 m^3/min aus dem Deckgebirge in das BW Gneisenau. Deshalb stammt auch heute noch ein Großteil der am Victoriadamm angenommenen Grubenwässer aus der Teilprovinz Gneisenau. Das Grubenwasser überwindet eine Schwelle bei - 509 m NHN im BW Scharnhorst und fließt dann – wahrscheinlich auch über offene Gerinne – kaskadenartig in den nördlichen Bereich der Teilprovinz Gneisenau bis auf das Niveau von - 760 m NHN (Abb. 17).

1.3.6 Teilprovinz Kurl

Auch in der Teilprovinz Kurl kommt es zu großen Wasserzutritten aus dem Deckgebirge in Höhe von ca. 6,5 m^3/min. Der Wasserstand in Kurl liegt bei ca. - 423 m NHN, also im Bereich der Übertrittstelle bei - 423 m NHN nach Gneisenau.

Das Wasser überwindet dann kaskadenartig – und wahrscheinlich auch über offene Gerinne – einen sehr großen Höhenunterschied von 390 m auf dem Weg zum Victoriadamm. Die Fließmengen liegen ungefähr bei 7 m^3/min.

1.3.7 Teilprovinz Kurl 1

Auch in der Teilprovinz Kurl 1 kommt es zu großen Wasserzutritten aus dem Deckgebirge. Der Wasserstand in Kurl 1 liegt bereits bei - 92 m NHN, das heißt das gesamte BW ist bereits bis ins Deckgebirge hinein eingestaut. Das Deckgebirge liegt hier bei - 108 m NHN. Das BW wurde bereits 1930 stillgelegt.

Das Wasser fließt dann kaskadenartig – und wahrscheinlich auch über offene Gerinne – von - 92 m NHN über den Übertritt bei - 223 m NHN zum BW Gneisenau (- 509 m NHN) und weiter zum Victoriadamm (- 960 m NHN). Die Fließmengen liegen ungefähr bei 2 m^3/min.

1.3.8 Einzugsgebiet Ost

Das Einzugsgebiet Ost wird aufgebaut durch die Teilprovinzen Haus Aden, Werne, Grillo, Monopol, Heinrich Robert und Radbod.

Aus dem östlichen Bereich wird noch kein Grubenwasser angenommen. Das Grubenwasser befindet sich hier im Anstieg und steht derzeit bei ca. - 1.117 m NHN in der Teilprovinz Heinrich Robert und - 1.026 m NHN in der Teilprovinz Radbod 5. Sobald das Grubenwasser auch in den Teilprovinzen einen Wasserstand von ca. - 600 m NHN und in der ZWH von - 670 m NHN erreicht, soll das gesamte Grubenwasser in der ZWH (Zentrale Wasserhaltung) abgepumpt und in die Lippe eingeleitet werden. Zwischen den Teilprovinzen und der ZWH ist ein Gefälleunterschied erforderlich, damit das Wasser zur ZWH fließt. Der Gefälleunterschied von ca. 70 m ist eine Abschätzung, die sich aus den Untersuchungen zum Grubenwasserkonzept ergibt.

Aufgrund der ausgebauten gut durchlässigen Verbindungen zwischen den Teilprovinzen (Röhrensystem) werden deutlich geringere Gefälleunterschiede als im Einzugsgebiet Victoriadamm erwartet. Die sich einstellenden Grubenwasserstände werden durch Lotungen an einzelnen Messpunkten durch die RAG erfasst.

Es wird mit einem Zustrom von ca. 2,8 m^3/min aus dem EZG Ost gerechnet (Grubenwasserkonzept der RAG 2016).

1.3.9 Fließsystem nach der Flutung

Die Abb. 18 zeigt ein vereinfachtes Systemdiagramm mit den oben beschriebenen Wirkungszusammenhängen nach der Flutung.

Nach einem dauerhaften Anstieg des Grubenwassers auf ca. - 670 m NHN in der ZWH innerhalb weniger Jahre und ca. - 600 m NHN in den Teilprovinzen geht die RAG von ca. 13,4 Mio. m^3 Grubenwasser aus, die pro Jahr in der ZWH zu heben sind (Grubenwasserkonzept der RAG 2016).

Aus den östlichen Bereichen der Wasserprovinz Haus Aden sollen dann der ZWH ca. 2,8 m^3/min zufließen (Abb. 8). Weitere 22 m^3/min fließen im Mittel – wie bereits heute schon – aus Westen über den Victoriadamm zu. In der Summe sind dies dann zukünftig ca. 25 m^3/min bzw. 1.500 m^3/h bzw. 13 Mio. m^3/a.

Circa 90 % dieses Wassers kommen aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm und da vor allem aus dem Bereich des BW Gneisenau aus dem Deckgebirge. Das Grund-/Grubenwasser fließt dann kaskadenartig über die einzelnen Teilprovinzen bis auf das tiefste Niveau der Teilprovinz Victoria. Aufgrund der hohen Gefälle haben diese Teilströme in freifließenden Gerinnen ein hohes Erosionspotential.

Nach dem Anstieg des Grubenwassers bis auf ca. - 670 m NHN in der ZWH erfolgt nach und nach auch eine Aufsättigung des entwässerten Gebirges. Die Zeitdauer hierfür wird anhand der Modellberechnungen auf ca. 26 Jahre geschätzt. Erst wenn diese Phase abgeschlossen ist, beginnt eine langsame, vorwiegend vertikale, nach unten gerichtete Durchströmung der BHV. Die Strömung ist auf den nächsten Vorfluter, das tieferliegende Röhrensystem gerichtet. Der Beginn der Durchströmung, die mittlere Fließlänge bei der Durchströmung, die Strömungsmenge und die Konzentrationen an verschiedenen Inhaltsstoffen werden in den Grundwasserströmungsmodellierungen untersucht (Detailbericht 5).

In der BHV bestimmen die Fließlänge (und damit die Dauer des Kontaktes mit den Versatzmaterialien) und der Prozentsatz der Versatzmaterialien, die mit dem Tiefengrundwasser reagieren, wie lange eine hydrogeochemische Barriere in Form eines hohen pH-Wertes die Freisetzung der in den Reststoffen eingebrachten Schwermetalle begrenzt (Detailbericht 4).

Auf dem Weg aus der BHV zum „Vorfluter“, dem Röhrensystem erfolgt zunächst eine Durchströmung des unverritzten Gebirges und der durchbauten Grubenbereiche (Alter Mann). Hierbei kommt es zu komplexen hydrogeochemischen Wechselwirkungen wie z. B. der Sorption der Schwermetalle in der Porenmatrix der Sandsteine und an den Tonen selbst. Die Sorption – als konzentrationsvermindernder Prozess – wird jedoch bei der Risikobewertung nicht weiter berücksichtigt, da sie in ihrer Auswirkung nicht eingeschätzt werden kann.

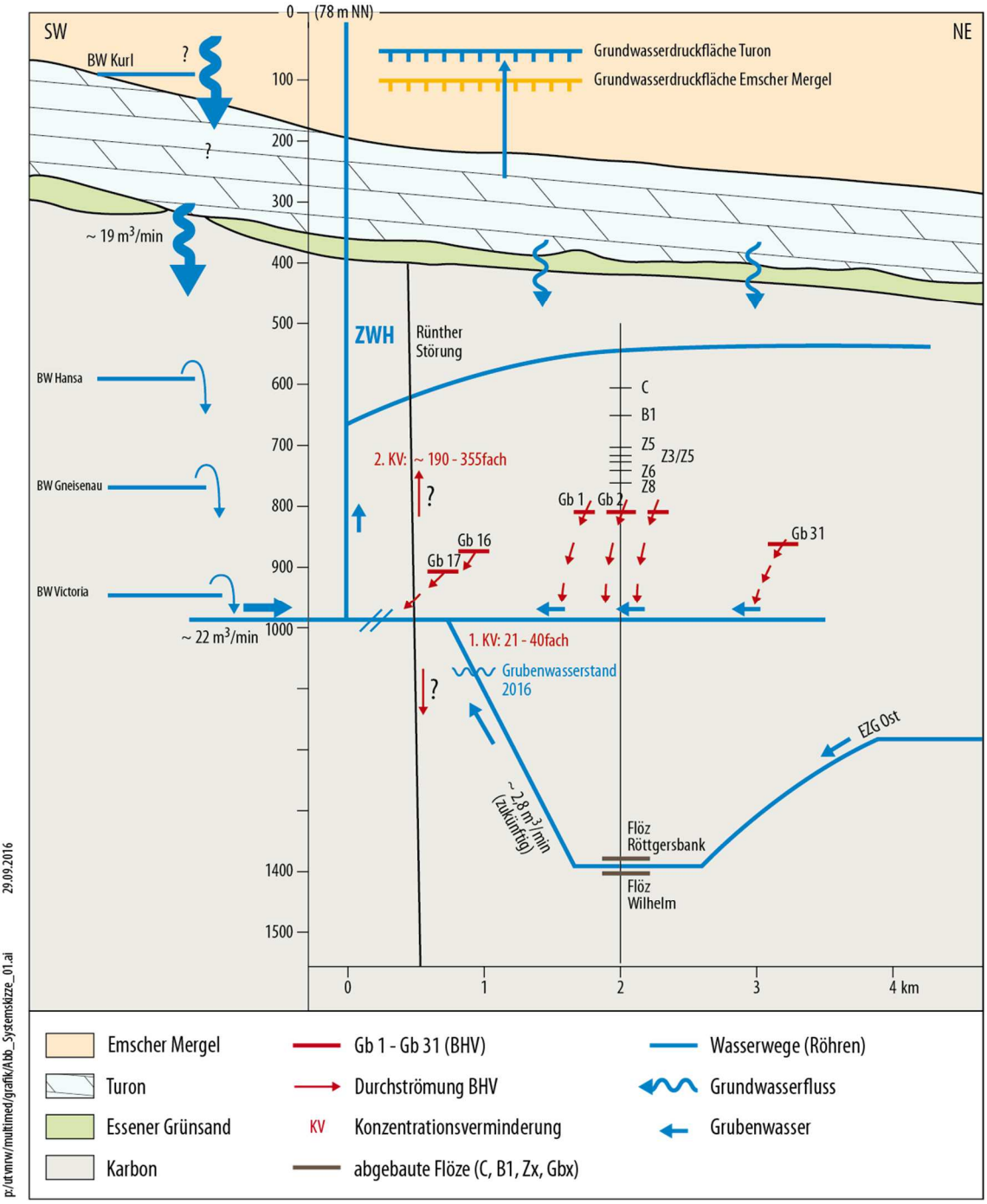


Abb. 18: Vereinfachtes Systemdiagramm (ahu AG)

Beim Übergang aus dem Gebirge in das Röhrensystem mit seinen wesentlich größeren Durchflussmengen (2,8 m³/min aus dem Einzugsgebiet Ost) im Bereich der BHV erfolgt eine erste Konzentrationsverminderung. Eine zweite Konzentrationsverminderung erfolgt in der ZWH beim Zusammentreffen mit den Grubenwässern aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm (im Mittel 22 m³/min).

Ein Grundwasseranstieg in das Deckgebirge (Kreide), das hier durchschnittlich bei ca. - 400 m NHN ansteht, ist durch die Begrenzung des Grubenwasseranstiegs auf ca. - 670 m NHN nicht möglich.

Darüber hinaus ist das Grundwasser im Turon hoch gespannt. Gegenüber der Basis des Turon beträgt das Druckpotential fast 280 m. Solange das so bleibt, ist auch bei höheren Grubenwasserständen kein Grundwasseraufstieg aus dem Karbon in den Emscher Mergel möglich. Beim Auftreten von höherdurchlässigen Störungen/Klüften würde ein Grundwasserfluss aus der Kreide (zunächst Turon und Emscher Mergel) in das Karbon erfolgen und nicht umgekehrt.

Aber selbst nach einer Wassersättigung des Karbons (z. B. durch einen Grubenwasseranstieg bis auf ca. - 0 m NHN) wäre noch keine aufsteigende Wasserbewegung aus dem Karbon in die Kreide möglich, da der „Wasserüberdruck“ im Turon immer noch ca. 10 bis 20 m betragen würde (Abb. 5).

2 Prüfung von Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche

2.1 Anlass und bisherige Ergebnisse

Ein Anlass für das vorliegende Gutachten waren die Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche südwestlich von Bergkamen auf privaten, landwirtschaftlich genutzten Fläche im Bereich des Gösslinghofes. Die Auffälligkeiten wurden in einem Gutachten beschrieben (Krutz 2011). Gemäß dem Gutachten „*treten auf den bewirtschafteten Ackerflächen*“ („Auf dem Kamp“) *„Vernässungsprobleme auf*“ und es wurden drei Wasserproben und zwei Bodenproben untersucht.

Auftrag des vorliegenden Gutachtens ist es, diese Auffälligkeiten zu bewerten und die Frage zu beantworten, ob diese mit der BHV in einem ursächlichen Zusammenhang stehen.

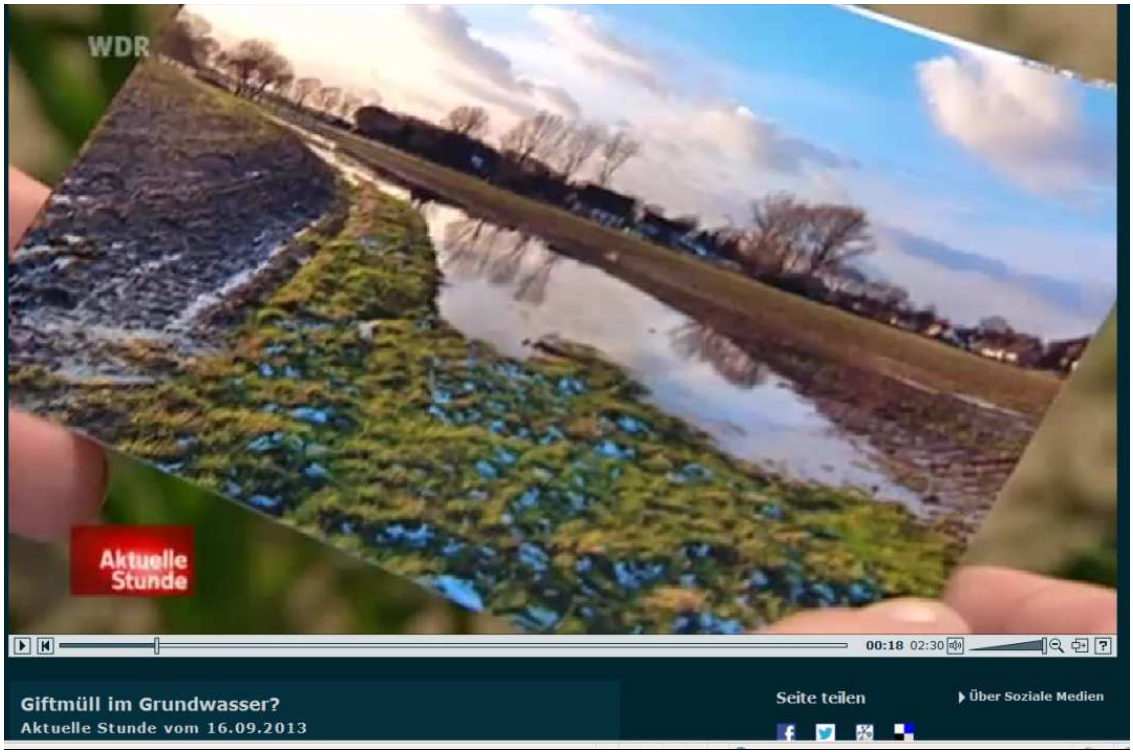


Abb. 19: Aktuelle Stunde 16.09.2013 (WDR): Giftmüll im Grundwasser?
Flächen „Auf dem Kamp“ im Bereich des Gösslinghofs (Screenshot Internet)

Die Abb. 20 zeigt den räumlichen Zusammenhang zwischen dem Bereich der untertägigen BHV und dem Standort des Schachtes Grillo 4, an dem auch zwischen 1992 und 1998 die oberirdische Mischungsstation betrieben worden war, der zukünftigen zentralen Wasserhaltung (ZWH) Schacht Haus Aden 2 und den Flächen, die in Abb. 21 gezeigt sind.

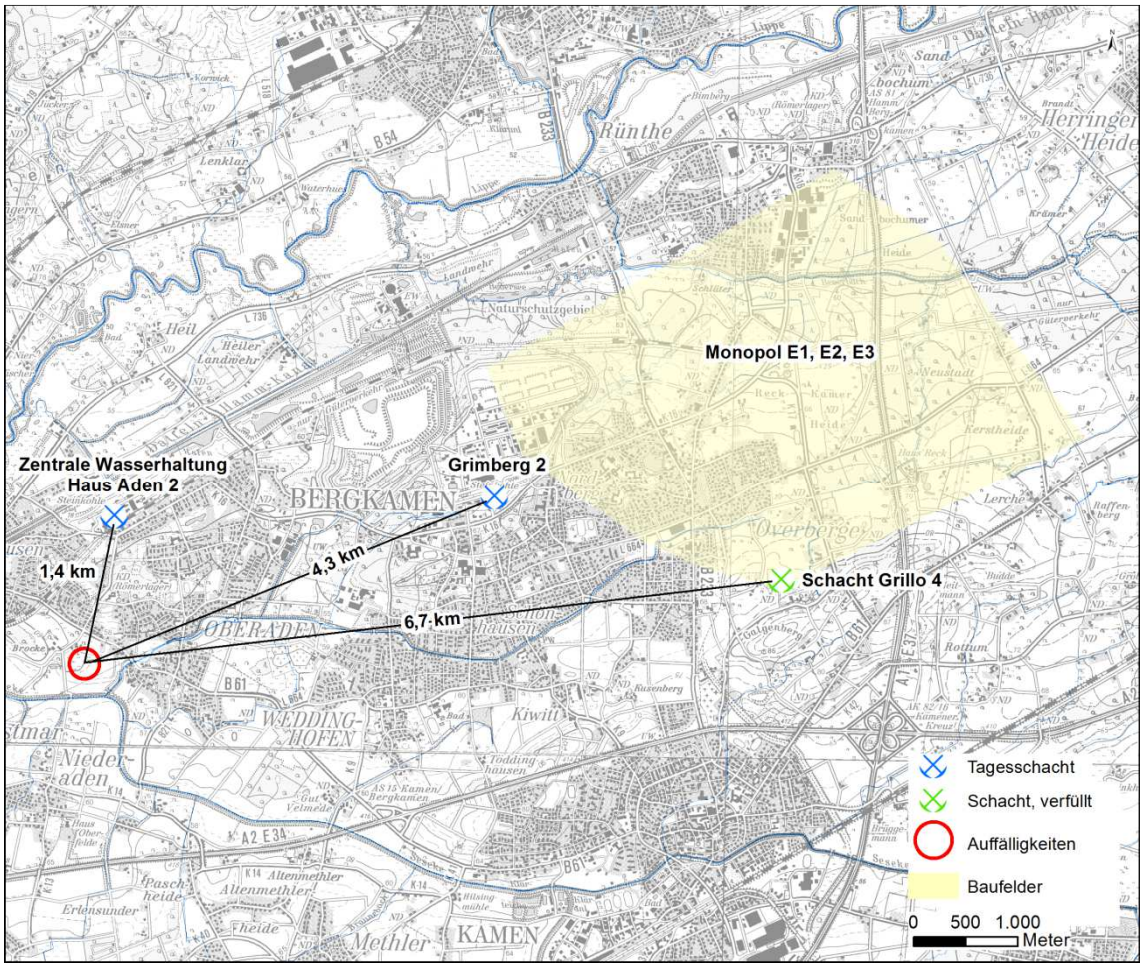


Abb. 20: Übersichtsplan zu den Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche am Gössling-hof (Quelle ahu AG)

Die Entfernung (Luftlinie) zwischen dem Schacht Grillo 4 und den landwirtschaftlichen Flächen „Auf dem Kamp“ beträgt 6,7 km; die Entfernung (Luftlinie) bis zum Mittelpunkt der BHV 7 Km und die Entfernung (Luftlinie) zur Zentralen Wasserhaltung 1,4 km. Das gehobene Grubenwasser wird unmittelbar nördlich der Zentralen Wasserhaltung in die vorbeifließende Lippe eingeleitet.

Grundlage für die Aussagen des o. g. Gutachtens waren die Ergebnisse aus drei Wasserproben und zwei Bodenproben vom 07.11.2011, die auf die Parameter PAK und Fluorid untersucht wurden (Abb. 21). Die Probe W4 wurde in ca. 1,6 km Entfernung (Luftlinie) außerhalb des Untersuchungsbereiches am Oberlauf des Kuhbachs oberhalb des Pumpwerks Bergkamen entnommen (Abb. 22). Das Pumpwerk Bergkamen liegt in einem bergbaubedingten Senkungsschwerpunkt. Der Kuhbach ist ab dem Pumpwerk über längere Fließstrecken verrohrt.

Die für die Bewertung relevanten Ergebnisse zeigt die Tab. 6. Die größte Auffälligkeit waren die erhöhten Fluoridgehalte in den Wasserproben.

Als Erklärung wurde im Gutachten (Krutz 2011) formuliert: „*Es scheint naheliegend, einen … Einfluss bergbaulicher und/oder wasserbaulicher Maßnahmen in den Fokus der Ursachenbetrachtung mit einzubeziehen*“.

Eine weitere Ursachenbetrachtung oder ein Wirkungszusammenhang mit bergbaulichen und/oder wasserbaulichen Maßnahmen wurde jedoch nicht beschrieben.

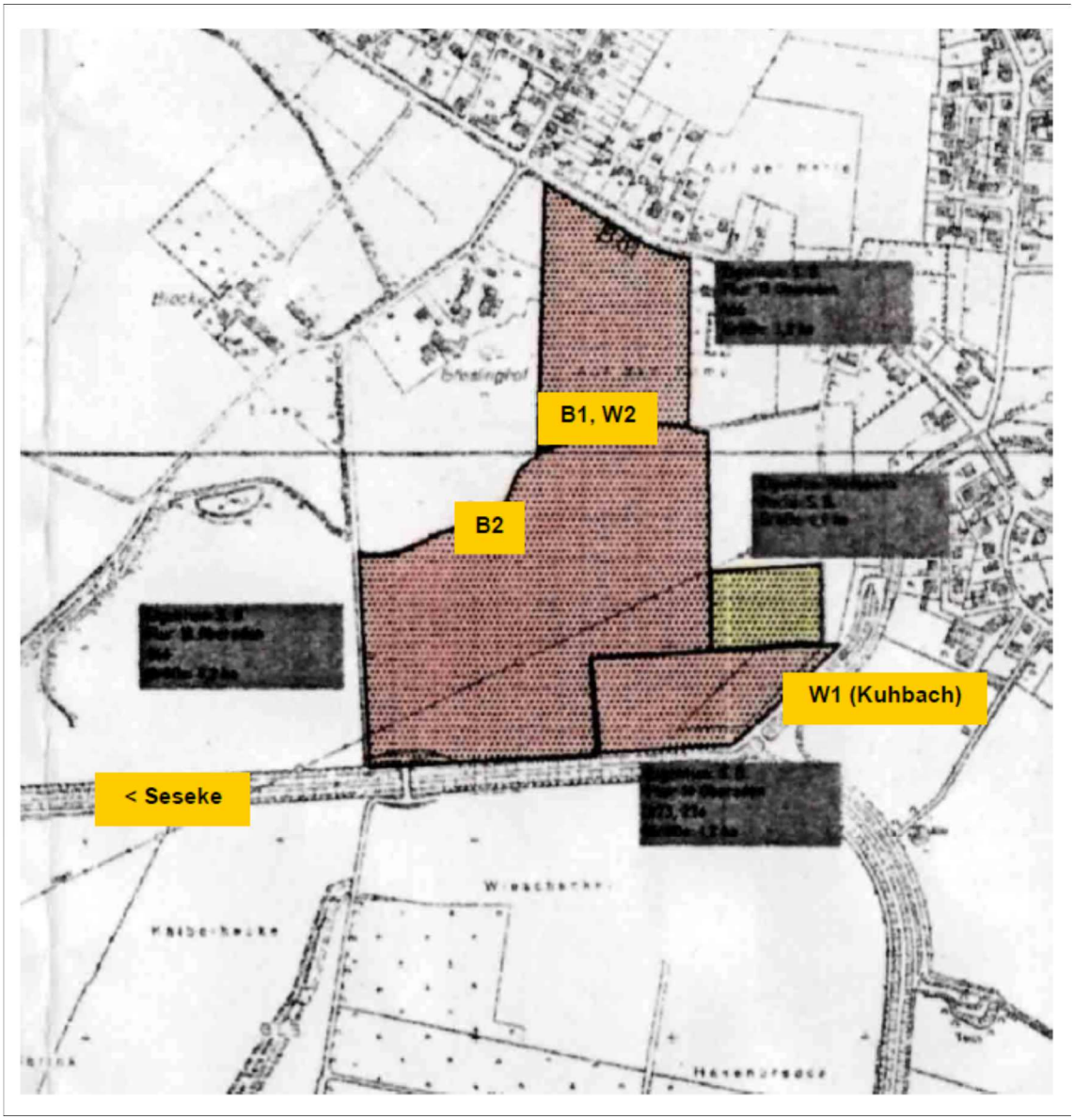


Abb. 21: Lage der Probenahmepunkte (Krutz 2011)
(W4 liegt außerhalb der Darstellung.)

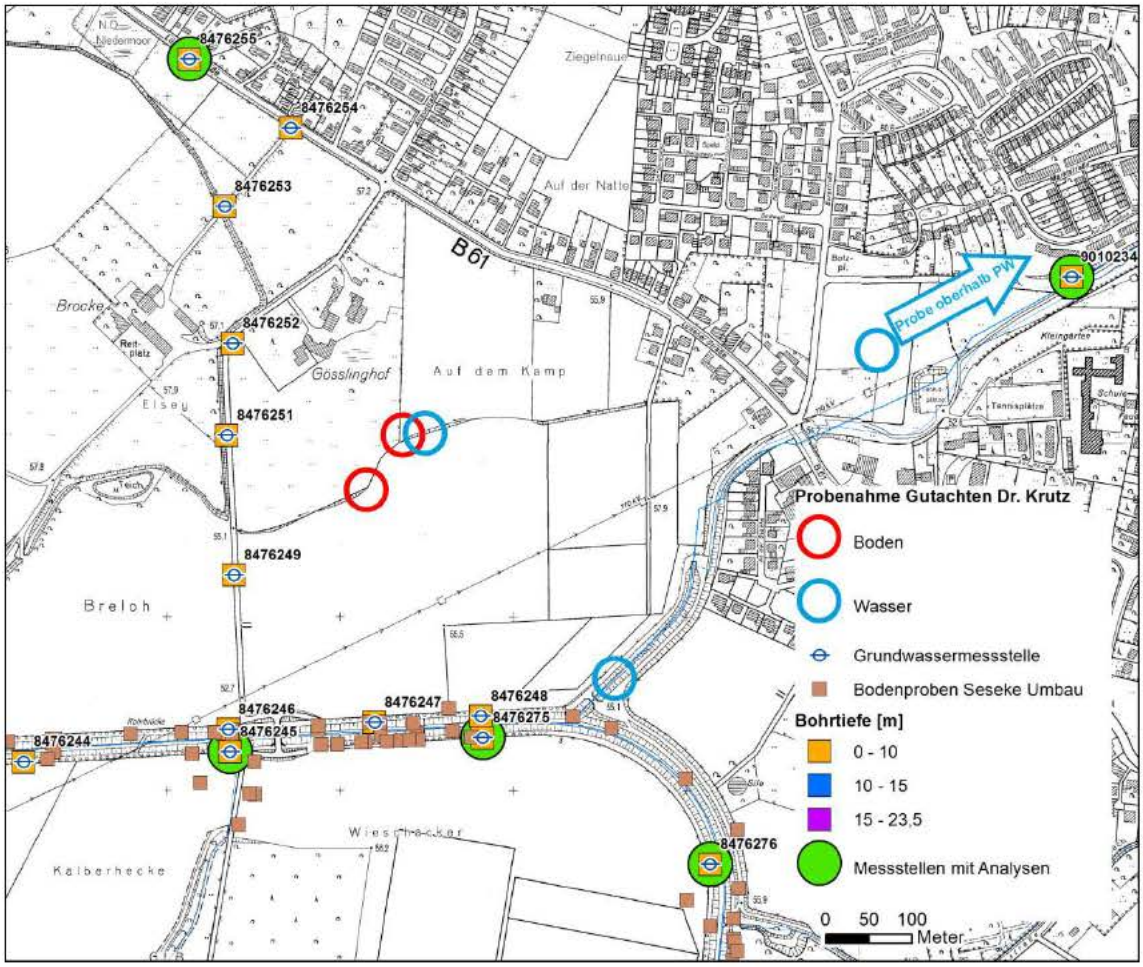


Abb. 22: Lage Probenahmepunkte (Krutz 2011) und vorhandenes Messstellen-inventar nach Angaben des Lippeverbandes (Daten des LV, Darstellung: ahu AG)

Tab. 6: Probenahme und Ergebnisse (zusammengestellt nach Krutz 2011)

Probe	Ort	Ergebnisse			
		Wasserproben			Bodenprobe
		Fluorid [mg/L]	Chlorid [mg/L]	Eisen [mg/L]	PAK [mg/kg]
W1	Kuhbach Mündung Seseke	4,9	235	k. A.	n. u.
W2	Wasserfläche Acker;Flur 10, Flurstück 166	6,2	< 200	4,8	n. u.
W4	Kuhbach oberhalb PW Bergkamen, Schenkstraße	5,2	< 200	5,3	n. u.
B1	Acker bei W2	0,8	k. A.	k. A.	0,3
B2	Gewässersohle Flur 10, Flurstück 166, Einlauf Gewässer 73	0,6	k. A.	k. A.	0,15

k. A. = keine Angaben, n. u. = nicht untersucht

Im Folgenden werden die festgestellten Auffälligkeiten zunächst anhand geeigneter Grenz-, Schwellen- und Orientierungswerte eingeordnet.

PAK im Feststoff

Die festgestellten PAK-Gehalte liegen mit 0,15 bis 0,3 mg/kg deutlich unter den Vorsorgewerten der BBodSchV. Dieser liegt für Böden mit einem Humusgehalt ≤ 8 % bei 3 mg/kg. Bei Überschreitung des Vorsorgewertes liegt der Verdacht auf eine schädliche Bodenveränderung vor[3].

Fluorid im Feststoff und Eluat

Die Analysen, auch am Oberlauf des Kuhbachs deuten auf einen erhöhten Fluoridgehalt von ca. 5 mg/l hin. In einer ähnlichen Größenordnung liegt die Probe aus der stehenden Wasserfläche. Es ist nicht bekannt, ob dieses Wasser aus dem Kuhbach stammt.

Für Fluorid in Oberflächengewässern ist keine Umweltqualitätsnorm festgelegt. Auch in der alten Allgemeinen Güteanforderung für Fließgewässer (AGA 1991) war Fluorid nicht enthalten.

Für das Grundwasser gibt es folgende Orientierungswerte:

- Natürliche Grundwasserbeschaffenheit Deutschland (LAWA 2004): 0,3 mg/l
- Entwurf Geringfügigkeitsschwellenwerte (LAWA 2015): 0,75 mg/l.
- Geogen erhöhter Hintergrund im Emscher Mergel/Münsterland: 9,2 mg/l (Coldewey, auf der Basis von 2.050 Grundwasseranalysen, http://dialog-erdgasundfrac.de/sites/dialog-erdgasundfrac.de/files/Coldewey_Monitoring_120320.pdf).

Die festgestellten Fluoridwerte zwischen 4,9 mg/L und 6,2 mg/L sind im Vergleich zu den oben genannten Orientierungswerten erhöht. Sie liegen im Bereich der von Coldewey angegebenen geogenen Hintergrundbelastung.

[3] Allerdings sind nur zwei Proben nicht aussagekräftig.

2.2 Weitere Auswertungen und Untersuchungen

2.2.1 Chemische Untersuchungen des Lippeverbandes

Der Bereich „Auf dem Kamp“ grenzt im Süden an die Seseke an. Im Rahmen des Gewässerumbaus der Seseke wurden durch den Lippeverband eine Reihe von Grundwassermessstellen errichtet und Grundwasser- und Bodenproben analysiert. Die Ergebnisse der Untersuchungen des Lippeverbandes wurden dem Gutachterkonsortium zur Verfügung gestellt.

Die Angaben des Lippeverbandes zum Messnetz und die bisherigen Probenahmepunkte sind in der Abb. 22 dargestellt.

Die Untersuchungsergebnisse des Lippeverbandes sind in der Abb. 23 dargestellt. Die Bodenproben wurden überwiegend in Aufschüttungen entlang der Seseke entnommen.

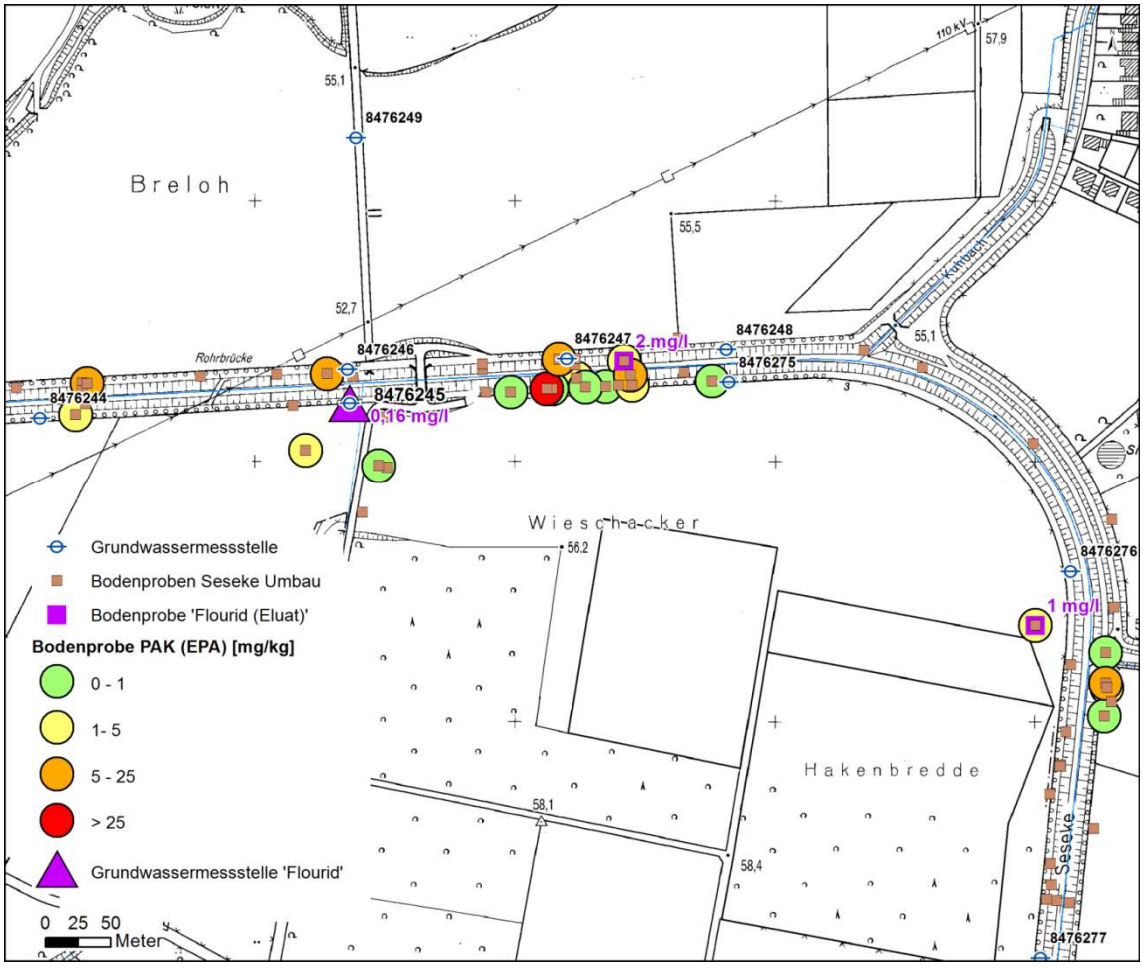


Abb. 23: Untersuchungsergebnisse des Lippeverbandes
(Daten des LV, Darstellung: ahu AG)

Flourid in Bodenproben und im Grundwasser:

- 2 x Bodenproben: 1 – 2 mg/l;
- 1 x Fluorid im Grundwasser: 0,16 mg/l

PAK in Bodenproben:

- 8 x 0 bis 1 mg/kg
- 6 x 1 bis 5 mg/kg
- 5 x 5 bis 25 mg/kg
- 1 x < 25 mg/kg

2.2.2 Untersuchungen des Kreises Unna

Für das Schwermetallkataster des Kreises Unna wurden im Jahr 1984 nach einem Rastersystem im gesamten Kreis Unna Bodenproben gezogen und in einer Bodenbelastungskarte dargestellt (Schwermetalle in Böden verschiedener Nutzungsformen im Kreis Unna, Teil I, 1986). Der Beprobungspunkt 56 (Grünland) liegt entweder auf den Flächen des Untersuchungsgebietes oder sehr nahe daran (Lünener Straße/Kreuzung Kuhbach). Die damaligen Ergebnisse sind in der Tab. 7 dargestellt. Sie zeigen für Blei keine Überschreitung der Vorsorgewerte. Sie deuten aber insgesamt darauf hin, dass es sich – mit Stand 1984 – um ein Gebiet mit einer leichten Vorbelastung für Schwermetalle handelt.

Tab. 7: Schwermetallgehalte im Grünland (Kreis Unna 1986)

Parameter	Gehalt [mg/kg]	Vorsorgewerte* nach BBodSchV (Lehm/Schluff) [mg/kg]	Maßnahmewerte nach BBodSchV für Grünland [mg/kg]
Zink	108	150	-
Blei	53	70	1.200
Cadmium	0,58	1	20
Kupfer	21	40	1.300**
Nickel	8	50	1.900
Chrom	17	60	-
Quecksilber	0,08	0,5	2

* Vorsorgewerte sind nicht pfadbezogen, bei Überschreitung besteht der Verdacht einer „schädlichen Bodenveränderung“ und es folgen in der Regel weitere Untersuchungen
** Grünland bei Schafnutzung: 200 mg/kg

Nach Auskunft des Kreises Unna existieren noch weitere Bodenproben des Kreises Unna, die auf PAK im Feststoff untersucht wurden. Diese Daten liegen noch nicht vor, da hierfür eine Freigabe des Flächenbesitzers erforderlich ist, die von der ahu AG angefragt, aber bislang noch nicht erteilt wurde.

2.2.3 Gesamtbewertung der festgestellten Auffälligkeiten

Die Auffälligkeiten innerhalb der Flächen „Auf dem Kamp“ liegen unterhalb der Vorsorgewerte für **PAK**. Die Bodenanalysen des Kreises Unna zeigen jedoch die leicht erhöhte anthropogene Grundbelastung dieses Bereichs mit Schwermetallen, möglicherweise aufgrund der langen industriellen Vorgeschichte der Region. Die Analysen des Lippeverbandes deuten gemäß den ausgewerteten Bohrprofilen auf die Verwendung von Fremdmaterialien beim Ausbau der Seseke hin (z. B. Berge) und sind nicht repräsentativ für oberflächennahe Belastungen.

Im Kuhbach und auf dem Acker wurden annähernd identisch hohe Flouridgehalte festgestellt. Für Fluorid sind in Oberflächengewässern keine Grenzwerte festgelegt.

2.3 Wirkungszusammenhänge mit der BHV

Im Rahmen des vorliegenden Gutachtens war zu bewerten, ob die festgestellten Auffälligkeiten ursächlich mit der BHV im Zusammenhang stehen können. Da über Tage nur Fluorid untersucht wurde, wird dies zunächst mit den Fluoridgehalten – unabhängig von realistischen Fließpfaden! – verglichen.

In den S4-Eluatanalysen der versetzten Reststoffe wurden 4 bis 11 mg/l Fluorid festgestellt. Die Feststoffgehalte Fluorid betragen teilweise mehrere 1.000 mg/kg.

Entscheidend ist jedoch das Ausbreitungspotential aus der BHV bis an die Tagesoberfläche. Es werden deshalb die möglichen Ausbreitungspfade beschrieben und bewertet.

2.3.1 Ausbreitung über den Wasserpfad

2.3.1.1 Grundwasser

Der Pfad über das Grundwasser setzt die entsprechenden Fließwege und Durchlässigkeiten und eine Potentialdifferenz zwischen dem Bereich der BHV und der Geländeoberfläche voraus, da Wasser **immer** von einem höheren Potential zu einem niedrigeren Potential fließt (Bernoullische Druckgleichung).

Derzeit liegt der Grubenwasserstand bei ca. -1.100 m NHN. In der Vergangenheit lag er noch ca. 400 m tiefer. Dies bedeutete auf jeden Fall in der Bergbauzeit eine abwärtsgerichtete Potentialdifferenz (und damit Fließrichtung) innerhalb des Karbons.

Das Grundwasser im Turon (an der Basis des Deckgebirges) ist hoch gespannt. Gegenüber der Basis des Turon beträgt das Druckpotential fast 280 m. Das darunter liegende Karbon ist durch den lang anhaltenden Bergbau weitestgehend entwässert. So-

lange das so bleibt, ist kein Grundwasseraufstieg aus dem Karbon möglich. Beim Auftreten von Störungen/Klüften würde ein Grundwasserfluss aus der Kreide (zunächst Turon und Emscher Mergel) in das Karbon erfolgen und nicht umgekehrt. Aber selbst nach einem Grubenwasseranstieg bis auf ca. - 250 m wäre noch keine aufsteigende Wasserbewegung aus dem Karbon in die Kreide möglich, da der „Wasserüberdruck“ im Turon immer noch ca. 280 m betragen würde.

2.3.1.2 Grubenwasser

Das Grubenwasser wird derzeit aus ca. - 960 m NHN aus einem Einzugsgebiet hinter dem Victoriadamm in der Wasserhaltung in Haus Aden 2 an die Tagesoberfläche gepumpt und auf direktem Weg in die Lippe eingeleitet.

Auch bei Hochwasser der Lippe und der Seseke kann dieses Grubenwasser nicht auf die mehrere Kilometer entfernt liegenden Flächen „Auf dem Kamp“ gelangen.

2.3.2 Ausbreitung über den Luftpfad

Die ehemalige Mischstation zu Zeiten der Bruchhohlraumverfüllung 1992 bis 1998 stand unmittelbar in der Nähe des Schachtes Grillo 4. Die Entfernung bis zu den Flächen „Auf dem Kamp“ betragen ca. 6,7 km. Die Hauptwindrichtung ist Südwest – Nordost gerichtet (Abb. 24). Von der Mischstation in Richtung „Auf dem Kamp“ weht der Wind an ca. 70 Tagen im Jahr.

Die Umweltauswirkungen der Mischstation über den Luftpfad wurden im Jahr 1993 und 1995 in zwei Untersuchungskampagnen an 10 Flächen in der Nähe des Schachtes Grillo 4 überprüft.

1) Vor Inbetriebnahme der Anlage wurde 1993 durch die RWTÜV Anlagentechnik GmbH ein Immissionskataster Boden erstellt.

2) Die Untersuchungen wurden im Jahr 1995 an denselben Standorten wiederholt (GWS 1995).

Es wurden – bis auf eine Fläche – keine flächenhaften Veränderungen bei den Schwermetallen sowie PCB und Dioxine/Furane festgestellt. Bei den PAK wurden auf drei Flächen Erhöhungen festgestellt. Ein räumlicher Zusammenhang – flächige Ausbreitung über Schwebstaub – wurde als nicht sehr wahrscheinlich erachtet (GWS 1995).

Eine Begründung für die Veränderungen hinsichtlich der PAK wurde letztlich nicht gegeben, da alle anderen möglichen Emissionsquellen nicht untersucht wurden.

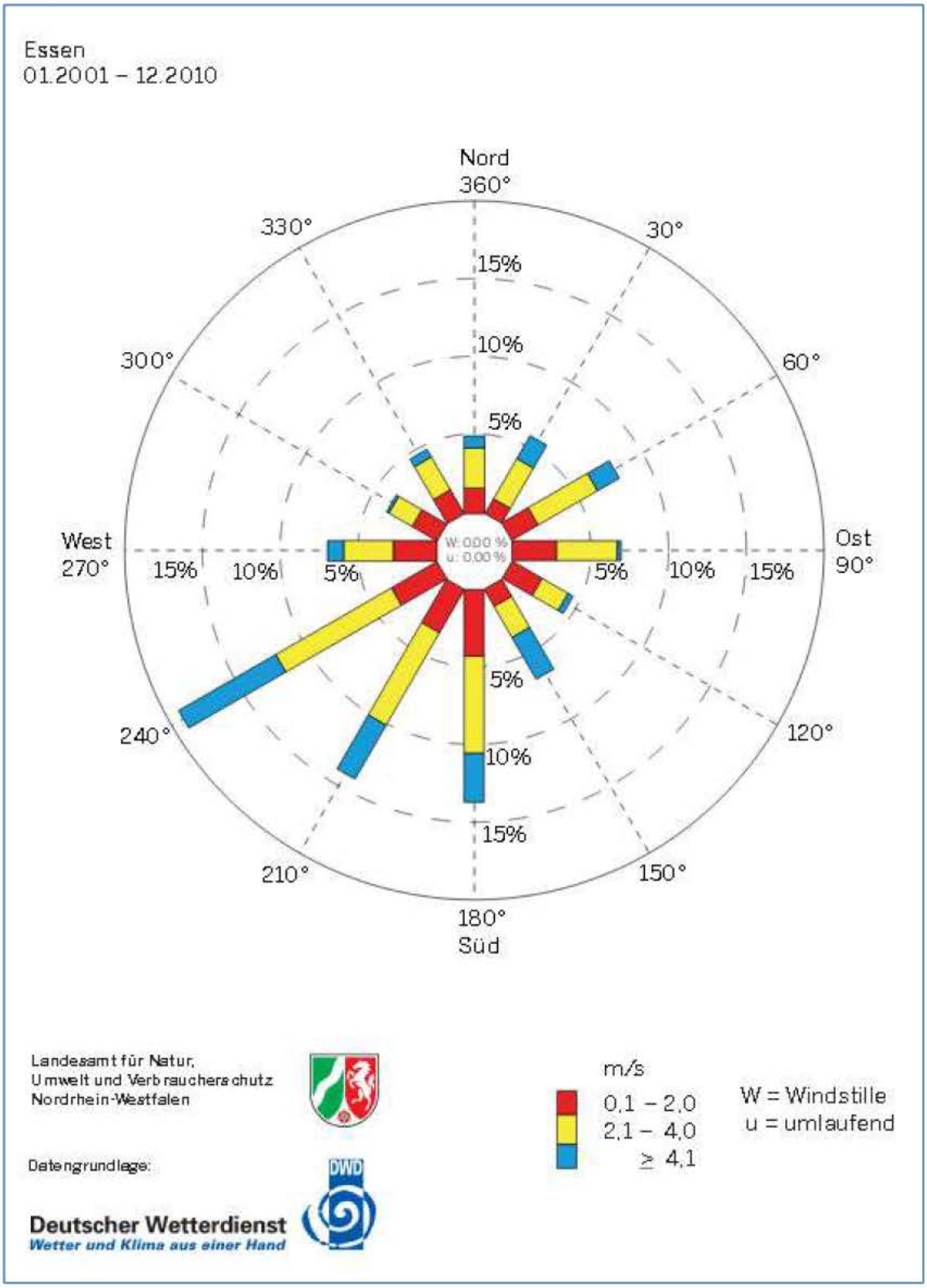


Abb. 24: Hauptwindrichtungen in Essen (Auswertung Januar 2001 bis Dezember 2010) (Quelle: DWD)

2.4 Thesen von Prof. [redacted]

Prof. [redacted] (2013, 2015, 2016a, 2016b, siehe Dok. 3) stellt die „Auffälligkeiten“ auf den Flächen am Gösslinghof in einen ursächlichen Zusammenhang mit der Bruchhohlraumverfüllung und sieht generell die Möglichkeit – auch bei dem derzeitigen Grubenwasserstand – des Aufsteigens von belasteten Flüssigkeiten.

Ein Gespräch mit Prof. [redacted] kam trotz vielfacher, dokumentierter Bemühungen der Gutachter nicht zustande.

Die Einschätzung von Prof. [redacted] wurden durch die Gutachter in Abschnitt 4.5.2 zu vier Thesen zusammengefasst, zu denen die Gutachter im Folgenden Stellung nehmen.

Darüber hinaus wurden verschiedene Tatsachen und Sachverhalte durch Prof. [redacted] und Krutz (2011) nicht berücksichtigt, die zunächst zusammengestellt sind.

2.4.1 Nicht durch Prof. Carls und Krutz (2011) berücksichtigte Tatsachen und Sachverhalte

1. Fehlender Bezug zu Raum, Zeit und den Belastungen

- BHV-typische Belastungen wie Schwermetalle und Dioxine/Furane wurden auf den Flächen am Gösslinghof nicht untersucht. Untersucht wurden nur Fluorid und PAK. Die festgestellten „Auffälligkeiten“ sind leicht erhöhte Fluoridgehalte im Kuhbach und auf einer Vernässungsfläche auf einem Acker; die PAK-Gehalte liegen deutlich unter den Vorsorgewerten.

- Die kürzeste Entfernung zwischen den „Auffälligkeiten“ und der Westecke der Versatzbereiche, Bauhöhe Gb17 beträgt min. 5 km (Abb. 2). Die Bauhöhe Gb31 ist sogar ca. 8 km entfernt.

- Das Grubenwasser steht im Bereich der BHV bei – 1.260 m NHN. Die BHV ist also noch nicht geflutet.

- Die „Auffälligkeiten“ auf den Flächen „Auf dem Kamp“ am Gösslinghof wurden 2011 festgestellt. Die letzte Bruchhohlraumverfüllung (Gb31) erfolgte 1998, also 13 Jahre früher.

Es ist nicht erkennbar, welchen Zusammenhang es mit der BHV geben soll.

2. Andere mögliche Ursachen

Im Rahmen des vorliegenden Gutachtens war es nicht Aufgabe, andere mögliche Pfade und Emissionsquellen zu identifizieren, zu beschreiben und zu bewerten. Dennoch werden im Folgenden mögliche Pfade und Emissionsquellen genannt, die im Lauf der Recherche erkannt wurden. Alle diese möglichen Ursachen für die „Auffälligkeiten“ wurden nicht von Prof. Carls und Krutz (2011) diskutiert:

- Eine mögliche Emissionsquelle ist die hohe Staubbelastung im Ruhrgebiet in der Vergangenheit. In den 1960er Jahren wurden im Ruhrgebiet jährlich ca. 1,5 Mio. Tonnen Staub emittiert, die sich zum großen Teil auch wieder im Ruhrgebiet absetzten (Spiegel 1961, http://www.spiegel.de/spiegel/print/d-21112102.html).

- Der begradigte und teilweise voll verrohrte Kuhbach diente lange Zeit zur Ableitung von industriellen Abwässern im Oberlauf (u. a. chemische Industrie, Grubenwässer). Bei Hochwasser konnten diese Wässer auf die Felder gelangen.

- Erhöhter geogener Hintergrund mit Fluorid, Barium, Strontium im Emscher Mergel im Münsterland (http://www.wn.de/Muensterland/2012/05/Die-Gefahr-aus-der-Tiefe-Zu-hohe-Fluorid-Werte-im-Wasser-Kinder-mit-braunen-Flecken-auf-den-Zaehnen, http://dialog-erdgasundfrac.de/sites/dialog-erdgasundfrac.de/files/Coldewey_Monitoring_120320.pdf) sowie eine neue Veröffentlichung über die „geogene Fluorid- und Borproblematik des Emschermergels im Münsterland“ (Wisotzky et al. 2017).

- Beim Gewässerausbau und Begradigung der Seseke und des Kuhbachs wurden wahrscheinlich große Mengen ortsfremdes (Boden-)Material, u. a. zur Kompensation von Bergsenkungen eingebaut. Aus diesem Grund erfolgen im Rahmen des Sesekeumbaus auch umfangreiche Bodenuntersuchungen.

2.4.2 Diskussion der Thesen von Prof. [redacted]

Von Prof. [redacted] wurden wiederholt Wirkungszusammenhänge zwischen den Bergsenkungen, der Bruchhohlraumverfüllung und den Auffälligkeiten an den Tagesoberflächen postuliert, die im Folgenden diskutiert werden. Diese postulierten Wirkungszusammenhänge von Prof. [redacted] werden in vier Thesen (in kursiv) zusammenfassend benannt und dann von den Gutachtern beantwortet:

I „Es treten Bergsenkungen von bis zu 30 m auf. Der Emscher Mergel wird durch die Bergsenkungen blitzartig durch neue Störungen zerrissen und durchlässig. Sie ermöglichen Tiefengrundwässern direkte Wege in die oberen Grundwasserstockwerke“.

II „Belastete Wässer, die nicht durch die Zementation und die Quellung von Tonsteinen fixiert werden, werden durch den Überlagerungsdruck ins Hangende und Liegende injiziert. In Verbindung mit (1) können so belastete Wässer an die Tagesoberfläche gelangen“.

III „Die Grubenwässer mit unterschiedlichen Salzgehalten untertage zeigen die vielen unterschiedlichen Wegsamkeiten im überlagernden Gebirge“.

IV „Die klüftigen Sandsteine und besondere Schichten (Wurzelböden etc.) stellen auch Fließwege da und müssen berücksichtigt werden“.

2.4.2.1 Bergsenkungen im Bereich des Gösslinghofs und der Bruchhohlraumverfüllung

Im Zusammenhang mit der These I wird zunächst das Ausmaß und der Verlauf der Bergsenkungen im Bereich des Gösslinghofes und im Bereich der BHV beschrieben.

Die Abb. 25 zeigt einen Ausschnitt aus der Übersichtskarte der berechneten Höhendifferenzen aus einem Vergleich von Höhenangaben der Preußischen Landesaufnahme (1892) und aktuellen Digitalen Geländemodellen (Harnischmacher 2010, https://www.lwl.org/LWL/Kultur/Westfalen_Regional/Wirtschaft/Bergsenkungen)). Diese Angaben sind als farbige Flächen dargestellt. Die Darstellung von Harnischmacher (2010) ist zunächst nur eine rechnerische Differenzendarstellung zweier Geländeoberflächen ohne eine Zuordnung von Ursachen. Es ist aber klar, dass bei größeren Senkungen ab ca. 2 Meter der Bergbau die Hauptursache ist. Dies wird auch durch die von der RAG angegebenen Senkungen seit Beginn des Steinkohlenabbaus in 1875 bis heute deutlich (blaue Linien). Die flächigen und die linienhaften Angaben der Senkungen stimmen prinzipiell überein (Abb. 25).

Die Fläche „Auf dem Kamp“ in dem schwarzen Rechteck liegt hiernach randlich der großen Senkungsschwerpunkte im Norden und im Nordosten.

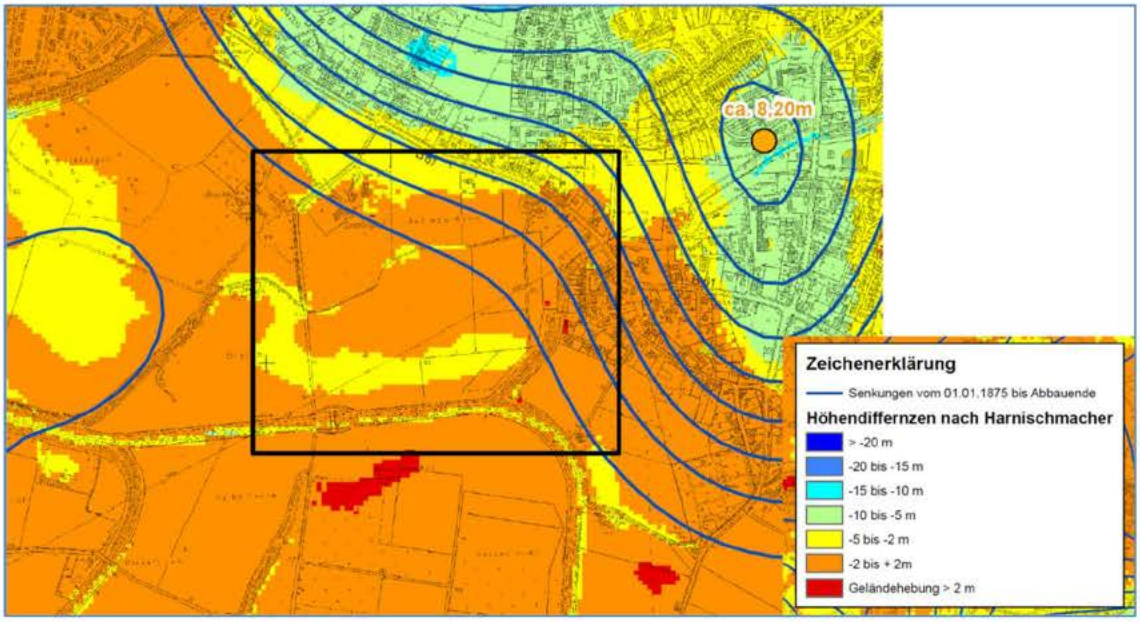


Abb. 25: Berechnete Höhendifferenzen aus einem Vergleich von Höhenangaben der Preußischen Landesaufnahme (1892) und aktuellen Digitalen Geländemodellen für das westfälische Ruhrgebiet nach Harnischmacher (2010) und den Gesamtsenkungen seit 01.01.1875 bis Abbauende (Quelle: RAG)

Die Senkungen in den beiden nördlich und nordöstlich gelegenen Senkungsschwerpunkten waren zum Zeitpunkt Januar 1987 bzw. Januar 1991 weitestgehend abgeklungen (Abb. 26), wie der zeitliche Verlauf der Senkungen in der Abb. 27 zeigt.

Die fünf grünen Punkte in Abb. 26 sind Höhenmesspunkte der RAG am Gösslinghof, die im Detail den Verlauf der gleichmäßigen Senkungen in Höhe von max. 2,1 m von Januar 1973 bis maximal Januar 1987, also über einen Zeitraum von 14 Jahren, zeigen (s. Abb. 28.)

Die Entwicklung der Bergsenkungen im Bereich der BHV ist in der Abb. 29 dargestellt.

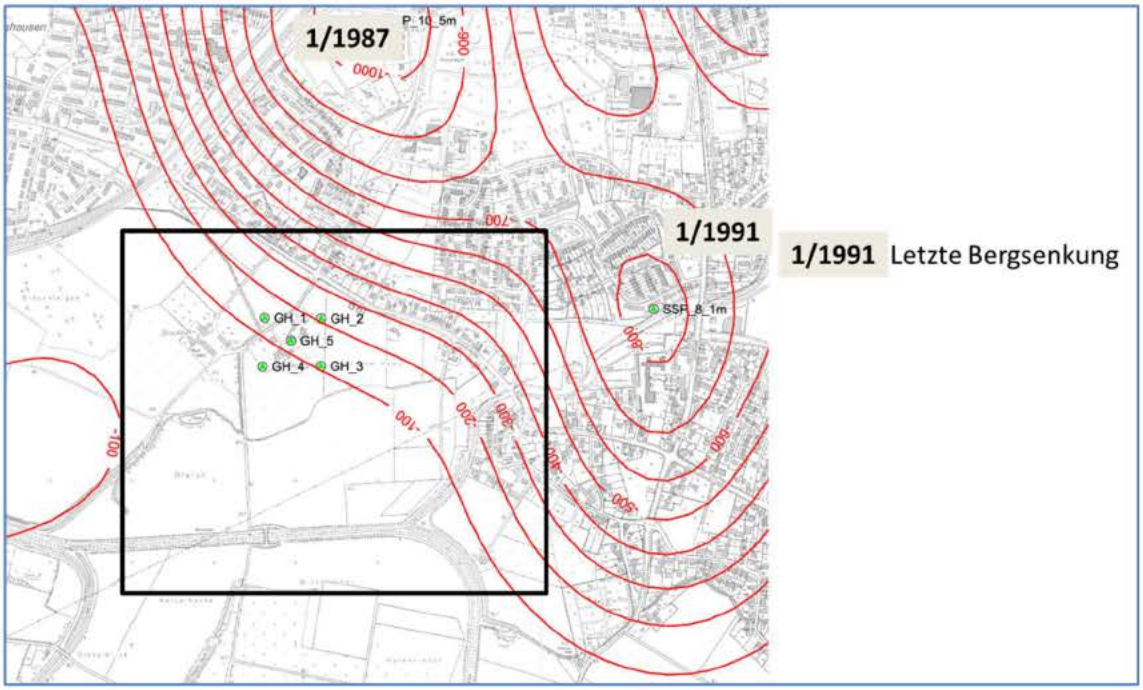


Abb. 26: Übersicht über die Senkungen (rot in Zentimeter) im Bereich Gösslinghof (Darstellung: RAG)

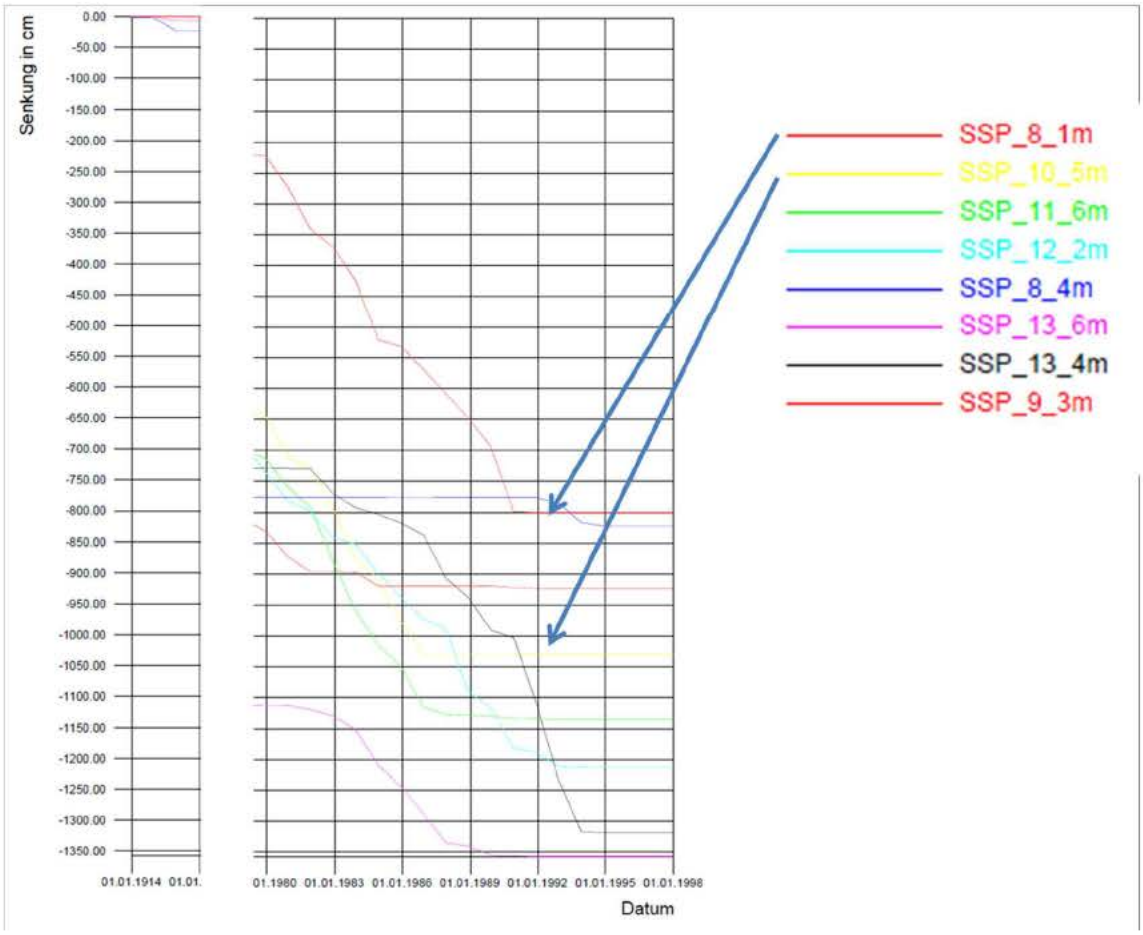


Abb. 27: Zeitsenkungskurven aus den beiden Senkungsschwerpunkten nördlich und nordöstlich vom Gösslinghof (Darstellung: RAG)

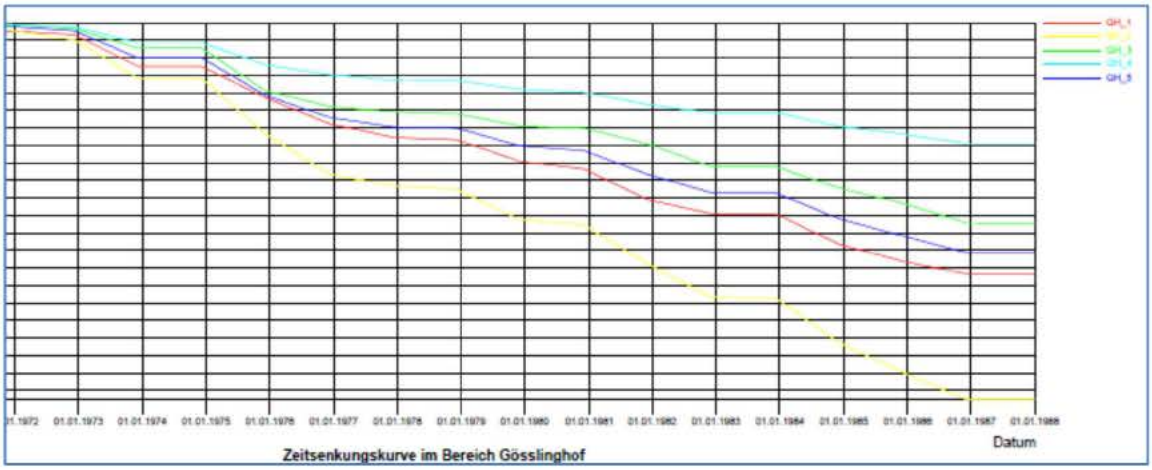


Abb. 28: Zeitsenkungskurven am Gösslinghof 1972-1988 (Darstellung: RAG)

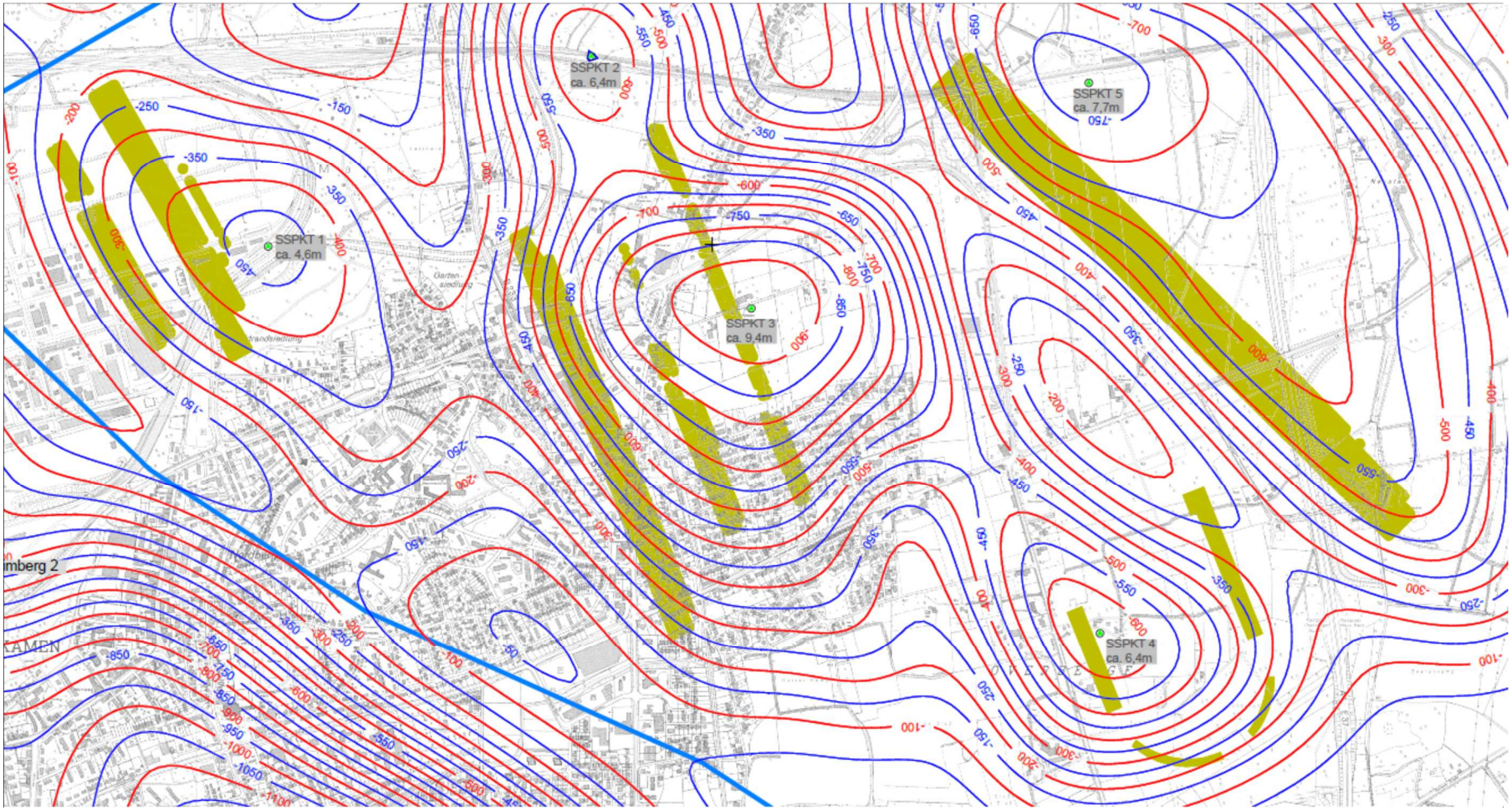


Abb. 29: Gesamtsenkungen im Bereich der BHV in Zentimetern (Darstellung: RAG)

Die Abb. 30 zeigt die Zeitsenkungskurven jeweils für die Senkungsschwerpunkte zwischen 1961 und 2015. Der Abstand zwischen zwei vertikalen Linien beträgt 3 Jahre, der Abstand zwischen zwei horizontalen Linien beträgt 0,5 m Senkung. Hieraus kann das Ausmaß der Senkungen und der zeitliche Verlauf abgeleitet werden. Dies erfolgt unter der Worst-Case-Annahme, dass die Senkungen an den Senkungsschwerpunkten auch in dieser Höhe in der BHV auftreten. Dies ist – bis auf den östlichen Teil der Gb2 – nicht der Fall, da die BHV nicht in den Senkungsschwerpunkten liegen.

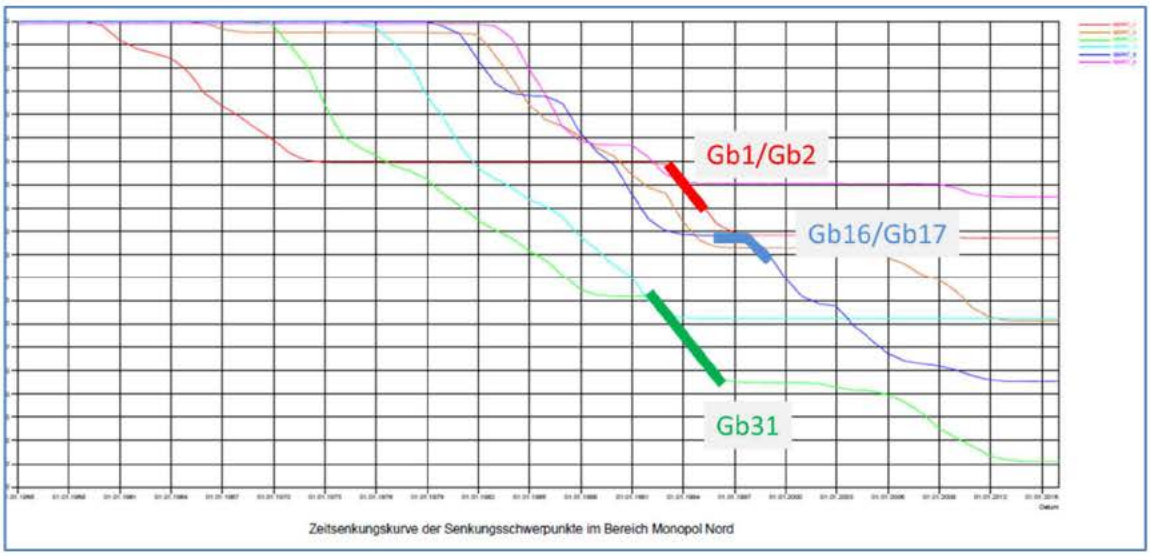


Abb. 30: Zeitabsenkungskurven der Senkungsschwerpunkte und die jeweiligen Bruchhohlraumverfüllungen zwischen 1961 und 2015 (Quelle: RAG, Ergänzungen zu den Bauhöhen durch ahu AG)

Für den Bereich der BHV ergeben sich in der Größenordnung folgende Angaben:

Tab. 8: Senkungen in den einzelnen Bauhöhen in m
(Quelle: RAG, Auswertung: ahu AG)

Bauhöhe	Bauzeit	Senkungen vor Abbau (in % der Gesamtsenkung)	Senkungen während der BHV	Senkungen nach Abbau	Senkungen gesamt
Gb1/Gb2	92-96	6 (63 %)	2,5	1,8	9,5
Gb16/Gb17	93-95	3 (80 %)	0,75	0,15	3,75
Gb31	96-98	4,5 (58 %)	1,5	2	7,75

2.4.3 Bewertung der Thesen

2.4.3.1 Bewertung These I

I „Es treten Bergsenkungen von bis zu 30 m auf. Der Emscher Mergel wird durch die Bergsenkungen blitzartig durch neue Störungen zerrissen und durchlässig. Sie ermöglichen Tiefengrundwässern direkte Wege in die oberen Grundwasserstockwerke".

- Im Bereich Gösslinghof traten gleichmäßige Bergsenkungen bis max. 2,1 m über einen Zeitraum von 14 Jahren auf. Diese waren 1987, also mindestens 4 Jahre vor Beginn der BHV abgeschlossen.

- Im Bereich der BHV traten vor dem Versatz 58 % bis 80 % der Gesamtsenkungen auf zwischen 3 und 6 m auf. Der Zeitraum, in dem diese Senkungen auftraten, umfasste fast 30 Jahre. Die restlichen Senkungen traten während und nach dem Versatz innerhalb eines Zeitraums von ca. 20 Jahren auf.

- Die von Prof. [redacted] postulierten Senkungen „im 30 m Bereich" traten nicht auf und die Senkungen, die auftraten, verliefen über einen mehrjährigen Zeitraum.

- Die nach einem Abbau zeitlich verzögert eintretenden Bergsenkungen erfolgen im Emscher Mergel annähernd flächig und gleichmäßig in Form eines bruchlosen Durchbiegens der Deckgebirgsschichten. Ein *„blitzartiges Zerreißen"* und das Entstehen neuer, durchgängiger Klüfte vom Karbon über die gesamte Mächtigkeit (ca. 400 m) des Emscher Mergels erfolgt nicht. Der Emscher Mergel reagiert aufgrund seines hohen Tongehalts plastisch auf ggf. auftretende ungleichförmige Setzungen an der Karbonoberfläche und gleicht diese aus.

Darüber hinaus hätten diese „neuen Durchlässigkeiten" – wenn sie denn entstanden wären – auch nicht die von Prof. [redacted] zugeschriebene Bedeutung, wie im Folgenden erläutert wird (These II).

2.4.3.2 Bewertung These II

II „Belastete Wässer, die nicht durch die Zementation und die Quellung von Tonsteinen fixiert werden, werden durch den Überlagerungsdruck ins Hangende und Liegende injiziert. In Verbindung mit (These I) können so belastete Wässer an die Tagesoberfläche gelangen".

Austretendes Wasser aus den Versatzbereichen wurde nicht beobachtet. Die Mixturen wurden so angesetzt, dass kein Überschusswasser austreten sollte. Die beobachteten Betriebsstörungen zeigten auch oft das Gegenteil: Die pastöse Masse band sehr schnell ab und führte zu Verstopfungen in den Rohrleitungen. Auch die Monitoring-Analysen im Grubenwasser während des Verbringens der Versatzstoffe zeigen keine Hinweise auf ein Austreten von solchen Wässern (Detailbericht 3).

Aber selbst wenn es zu einem unbemerkten Freisetzen geringer Wassermengen gekommen wäre – was auch nicht auszuschließen ist – hätte dies keine gravierenden Folgen gehabt: Durch den jahrzehntelangen Abbau war das Gebirge teilentwässert. Austretendes Wasser hätte diese – jetzt luftgefüllten – Poren wieder mit Wasser gefüllt und sich nicht über eine längere Strecke bewegt.

Ein Verdrängungseffekt der Porenwässer über 1.000 Meter und letztlich das „Auspressen“ dieses Überschusswassers im Bereich der Geländeoberfläche ist aus hydrogeologischer Sicht nicht möglich, da er fundamental gegen die Bernoullische Druckgleichung, die das Grundwasserfließen bestimmt, verstößt. Zudem ist der Bereich der Bruchhohlraumverfüllung mindestens mehrere Kilometer von den betrachteten Flächen entfernt und die Bruchhohlraumverfüllung erfolgt mindestens 13 Jahre früher.

2.4.3.3 Bewertung These III

III „Die Grubenwässer mit unterschiedlichen Salzgehalten untertage zeigen die vielen unterschiedlichen Wegsamkeiten im überlagernden Gebirge“.

Das unbeeinflusste tiefe Grundwasser hat **immer** eine sehr hohe Mineralisation (> 80.000 mg/L für unbeeinflusste Tiefengrundwässer (Wedewardt 1995), Detailbericht 3).

Aber auch zusickerndes Wasser „von oben“ ist in der Regel hoch mineralisiert (z. B. Probenahme 18.02.2016 auf Haus Aden in einem Zulauf aus der Firste mit 44.000 mg/L Chlorid). Im Emscher Mergel wird davon ausgegangen, dass ab ca. 100 m das das Wasser aufgrund der zunehmenden Mineralisation nicht mehr als Trinkwasser geeignet ist. Die Tab. 4 zeigt die hohen Chloridgehalte bereits ab 45 m Tiefe in der Kreide von ca. 10.000 mg/L.

Eine Besonderheit sind einige BW im Einzugsgebiet Victoriadamm (BW Gneisenau, BW Scharnhorst, BW Kurl), wo beim Auffahren der BW, z. T. in den Kriegsjahren, kein ausreichender Abstand zu dem Grundwasserleiter im Turon eingehalten wurde. Bis heute laufen hier aus dem Deckgebirge große Wassermengen in die BW. Die Mineralisation beträgt ca. 4.500 mg/L Chlorid. In dem vergleichbar großen Einzugsgebiet Ost, wo der Sicherheitsabstand eingehalten wurde, beträgt diese Wassermenge nur ca. 10 % der Wassermenge bei einer deutlich höheren Mineralisation.

Die Hauptursache für die geringen Salzgehalte mancher Grubenwässer in solchen BW ist nicht die Zusickerung von geringmineralisiertem oberflächennahem Grundwasser, sondern die Vermischung der Grubenwässer mit dem Betriebswasser. Als Betriebswasser (z. B. zur Staubbekämpfung) wurden und werden große Mengen gering mineralisiertes Wasser (v. a. Trinkwasser, aber auch eigene Brunnen) eingesetzt, das sich dann mit den hoch mineralisierten Grubenwässern vermischt und dann wieder an die Tagesoberfläche gepumpt wird.

Tab. 9: Verhältnis Betriebswasser zu gehobenem Grubenwasser (RAG 2016)

Bergwerk	jährlicher Wasserbrauch*	jährlich gehobenes Grubenwasser*	Anteil Betriebswasser am Grubenwasser
Prosper Haniel	3 Mio. m^3	4 Mio. m^3	75 %
Ibbenbüren	1,9 Mio. m^3	2,6 Mio. m^3	73 %

* Mittelwert letzte 5 Jahre

2.4.3.4 Bewertung These IV

IV „Die klüftigen Sandsteine und besondere Schichten (Wurzelböden etc.) stellen auch Fließwege dar und müssen berücksichtigt werden“.

Die unterschiedlichen Durchlässigkeiten der geklüfteten Sandsteine, Tonsteine und Störungen werden im Grundwassermodell entsprechend berücksichtigt (Detailbericht 5).

2.4.4 Zusammenfassende Beurteilung der Auswirkung der BHV auf die oberflächennahen Auffälligkeiten

Es sind nach jetzigem Kenntnisstand keine Wirkungszusammenhänge bekannt oder denkbar, nach denen die Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche ursächlich über den Grundwasserpfad mit der BHV in Verbindung gebracht werden könnten.

3 Literatur

ahu AG (2012): Fracking in unkonventionellen Erdgaslagerstätten in Nordrhein-Westfalen.

Carls (2013): Gutachterliche Stellungnahme zu dem im Genehmigungsverfahren Sonderbetriebsplan für die Verbringung von Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusse auf dem Bergwerk Haus Aden/Monopol vorgelegten Gutachten vom 24.08.2013.

Carls (2015): Vortrag 06.11.2015 vor der Kurhessischen Gesellschaft für Kunst und Wissenschaft in der Universität Kassel: Probleme bei der Nachnutzung von Bergwerken als Gefahrstoff-Deponien im Berg und in Ämtern.

Carls (2016a): Schreiben an die ahu AG vom 28.04.2016.

Carls (2016b): Schreiben an die ahu AG vom 06.06.2016.

DMT (2015): Boxmodell gestützte Prognose zu Einleitwerten am Standort Haus Aden bei Flutung der Wasserprovinz Ost, unveröffentlichtes Gutachten.

Dölling & Juch (2009): Strukturgeologische Modellvorstellungen zum Kreide-Deckgebirge im zentralen Münsterland.- Scriptum Heft 18, Arbeitsergebnisse aus dem Geologischer Dienst NRW.

Drozdzewski, G. & Wrede (1994): Faltung und Bruchtektonik – Analyse der Tektonik im Subvariscikum, Fortschr. Geol. Rhld. u. Westf. 38.

GD NRW (2011): Unkonventionelle Erdgas-Vorkommen in Nordrhein-Westfalen.: http://www.gd.nrw.de /zip/l_rcbm01.pdf.

Geologische Karten 1:100.000 und Erläuterungen Blatt Münster C 4310 (2. Auflage 1990).

GRS (1998) (Hrsg.): Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein. Abschlussbericht. Fachband 5: Methodenanwendung.

GWS (1995): Folgeuntersuchung Immissionskataster Boden im Umfeld der Hohlraumverfüllungsanlage Monopol.

Harnischmacher (2010): Berechnete Höhendifferenzen aus einem Vergleich von Höhenangaben der Preußischen Landesaufnahme (1892) und aktuellen Digitalen Geländemodellen für das westfälische Ruhrgebiet https://www.lwl.org/LWL/Kultur/Westfalen_Regional/Wirtschaft/Bergsenkungen.

Hölting, B. & Coldewey, W. (2005): Hydrogeologie, 6. Auflage, Elsevier (München).

Jäger, B.; Obermann, P. & Wilke, F.L. (1991): Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen.- Unveröffentlichtes Gutachten im Auftrag des Landesamtes für Wasser und Abfall NRW.

Kreis Unna (1986): Schwermetalle in Böden verschiedener Nutzungsformen im Kreis Unna, Teil I, 1986.

Krutz (2011): Gutachten über die Einwirkung von Oberflächenwässern auf Ackerboden in Bergkamen (12.12.2011).

LAWA (2004): Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser.

LAWA (2015): Entwurf zur Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten.

Mineral- und Tafelwasserverordnung (1984): Verordnung über natürliches Mineralwasser, Quellwasser und Tafelwasser (Mineral- und Tafelwasser-Verordnung).

Paas, N. (1997): Untersuchungen zur Ermittlung der geochemischen Barriere von Gesteinen aus dem Umfeld untertägiger Versatzräume im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons. DMT-Berichte aus Forschung und Entwicklung, Heft 54, Bochum.

Podjadke; Witthaus & Bartel (2008): Entwicklung im stählernen Streckenausbau – eine Erfolgsstory, Beitrag Aachen International Mining Symposium.

RAG (2015/2016): Von der RAG wurden zahlreiche Dokumente, Betriebsangaben und Auswertungen, etc. zur Verfügung gestellt und u. a. auf den in Tabelle 1 im Gutachten zwölf dokumentierten Gesprächen den Gutachtern übergeben.

RAG (2016): Power Point Vortrag zum Grubenwasserkonzept am 01.07.2016 bei MWEIMH in Düsseldorf.

Richtlinie 98/83/EG (1998): RICHTLINIE 98/83/EG DES RATES vom 3. November 1998 über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch.

Sauter, M.; Helmig, R. & Ingenieurbüro Heitfeld-Schetelig (2012): Abschätzung der Auswirkungen von Fracking-Maßnahmen auf das oberflächennahe Grundwasser - Generische Charakterisierung und Modellierung. Gutachten im Rahmen des Informations- und Dialogprozess der ExxonMobil über die Sicherheit und Umweltverträglichkeit der Fracking-Technologie für die Erdgasgewinnung.

Stadie, Ulrich (1987): Konvergenz, Nachbruch und Ausbauverformung in gebohrten Strecken im Ruhrkarbon, Dissertation TU Clausthal.

Stemke & Wohnlich (2012): Forschungsvorhaben: Herkunft des Methans im Grundwasser des Münsterländer Kreidebeckens.

Thein & Klingel (1995): Gutachtliche Stellungnahme zur Einhaltung der Anforderungsbedingungen für das Prinzip des vollständigen Einschlusses bei der geplanten Verbringung von Reststoffen in die Abbaue von Flöz Grimberg 2/3 und Flöz Viktoria 1/2 Obk in den Baufeldern E3 und E4 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol, Betriebsbereich Monopol der Ruhrkohle Bergbau AG.

TrinkwV (2013): Verordnung über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch, 3. Verordnung.

Wallbraun A. (1992): Einfluß der Schollenrandstörungen in der Niederrheinische Bucht auf den Grundwasserabfluß, Diss. RWTH Aachen.

WBK (1990): Untertagedeponie: Geologisch-Hydrogeologische Schnitte, unveröffentlichtes Gutachten.

Wisotzky, F. et al. (2017): Hydrochemie und geogene Fluorid- und Borproblematik des Emschermergels im Münsterland. Grundwasser – Zeitschrift der Fachsektion Hydrogeologie. 22:3-15. DOI 10.1007/s00767-016-0345-9

Wrede, V. (1992): Störungstektonik im Ruhrkarbon, Z. angew. Geol. 38.

Wrede, V. (2010): Zur Zeitlichkeit postvariscischer Tektonik in südwestlichen Teil des Münsterschen Kreidebeckens, Schr.-R. Dt. Ges. Geowiss. 73.

GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCH-HOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 2:

Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol – Dokumentation der nachversetzten Bereiche und Ablauf des bergrechtlichen Zulassungsverfahrens

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau, RWTH Aachen University

Prof. Dr. [redacted]

Dr. [redacted]

April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen (Dr. [redacted])

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum:

16.07.2015

I N H A L T

0 Vorbemerkung 1

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1

0.2 Untersuchungsraum 2

1 Einleitung 4

2 Das Bergwerk Haus Aden/Monopol 7

3 Versatz im deutschen Steinkohlenbergbau 10

4 Möglichkeiten der umweltverträglichen Verbringung von Abfällen in untertägige Grubenbaue des Steinkohlenbergbaus 15

4.1 Abfallbegriffe im Zeitraum der Bruchhohlraumverfüllung 15

4.2 Grundprinzipien der umweltverträglichen Verbringung von Abfällen im Steinkohlenbergbau 16

4.2.1 Immissionsneutrale Untertageverbringung 17

4.2.2 Untertageverbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses 18

4.3 Rechtliche Einordnung der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen 23

5 Untertägige Verbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle im Bergwerk Haus Aden/Monopol nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses 26

5.1 Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung 26

5.2 Technischer Ablauf der Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol und Dokumentation der Versatzbereiche 27

5.3 Eignung der eingebrachten Abfallstoffe als Versatz, Qualitätssicherungsprogramm, Einfluss der Unterbauung 32

6 Bergrechtliches Zulassungsverfahren für die Verwertung bergbaufremder Abfälle als Versatz im Bergwerk Haus Aden/Monopol 37

6.1 Genehmigungsgrundlagen 37

6.2 Begleitende Prüfung durch den Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“ 39

6.3 Ablauf der bergrechtlichen Zulassung des Nachversatzes zur Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen zur Verwertung 41

6.3.1 Nachversatz mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen im Baufeld Monopol E2 41

6.3.2 Nachversatz mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen in den Baufeldern Monopol E1 und E3 50

7 Zusammenfassung 52

8 Quellennachweis 56

ABBILDUNGEN:

Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens 1

Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 3

Abb. 3: Zeitliche Entwicklung der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen im Steinkohlenbergbau an der Ruhr 5

Abb. 4: Feldesgrenzen des 2010 stillgelegten Verbundbergwerks Ost; Baufelder Monopol E1, E2, E3 und Standorte ausgewählter, bis auf Haus Aden 2 und Grimberg 2 bereits wieder verfüllter Schächte 8

Abb. 5: Schematische grundrissliche Darstellung des Strebbaus 10

Abb. 6: Bruchbildung bei festen (links) und bei gebrächen Dachschichten 11

Abb. 7: Versatzverdichtung 12

Abb. 8: Bruchhohlraumverfüllung – Einbringen pastöser Massen mit Schlepprohren 14

Abb. 9: Schematischer Schichtenschnitt durch die Essener Schichten 20

Abb. 10: Teufenabfolge der Phasen der Senkungsbewegung im klastischen Gebirge 22

Abb. 11: Verwertung und Beseitigung bergbaufremder Abfälle in Bergwerken 24

Abb. 12: Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaulichen Abfällen im Zuge des Abbaus der Bauhöhe Gb6, Anschluss an die seigere Rohrleitung im Schacht Grillo 4 und Anordnung der Schlepprohre 27

Abb. 13: Nachversatz durch Bruchhohlraumverfüllung in Teilbereichen des Abbaus im Flöz Grimberg 2/3, Baufelder E1, E2 und E3 des BW Haus Aden/Monopol 29

Abb. 14: Die BHV-Versuchsanlage am Schacht Grillo 4 30

Abb. 15: Nachversatz aus dem Strebraum mit Schlepprohren 31

Abb. 16: Prinzipschnitt Bruchhohlraumverfüllung und Stadien der Kompaktierung 31

Abb. 17: Bergwerk Walsum, Untersuchungsstrecke im nachversetzten Bruchfeld 33

Abb. 18: Ortsbrust (oben) und Streckenstoß (Mitte) einer Untersuchungsstrecke im nachversetzten Bruchhaufwerk im Bergwerk Walsum 34

TABELLEN:

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten 2

Tab. 2: Arten des Einbringens von Versatz in untertägige bergmännische Hohlräume 11

Tab. 3: Abfallrechtliche Begriffe, unterschieden nach Entsorgungsziel (Beseitigung/Verwertung) und Überwachungserfordernis, im Zeitraum der Bruchhohlraumverfüllung in Bergwerken der RAG von 1989 bis 2004 16

Tab. 4: Stratigraphische Gliederung des Steinkohlengebirges im Oberkarbon mit Angabe der Grenzhorizonte 20

Tab. 5: F+E-Projekte zur anlagen- und materialtechnischen Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung im Steinkohlenbergbau 26

Tab. 6: Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“ 40

Tab. 7: Zeitlicher Ablauf der Zulassung der ersten Nachversatzmaßnahmen im Bergwerk Haus Aden/Monopol 43

Tab. 8: Nachversatz mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen im Baufeld Monopol E2, Flöz Grimberg 2/3 49

Tab. 9: Nachversatz mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen in den Baufeldern Monopol E1 und E3, Flöz Grimberg 2/3 51

0 Vorbemerkung

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die ahu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte, die in der Abbildung 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z. T. über die in der Abbildung 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

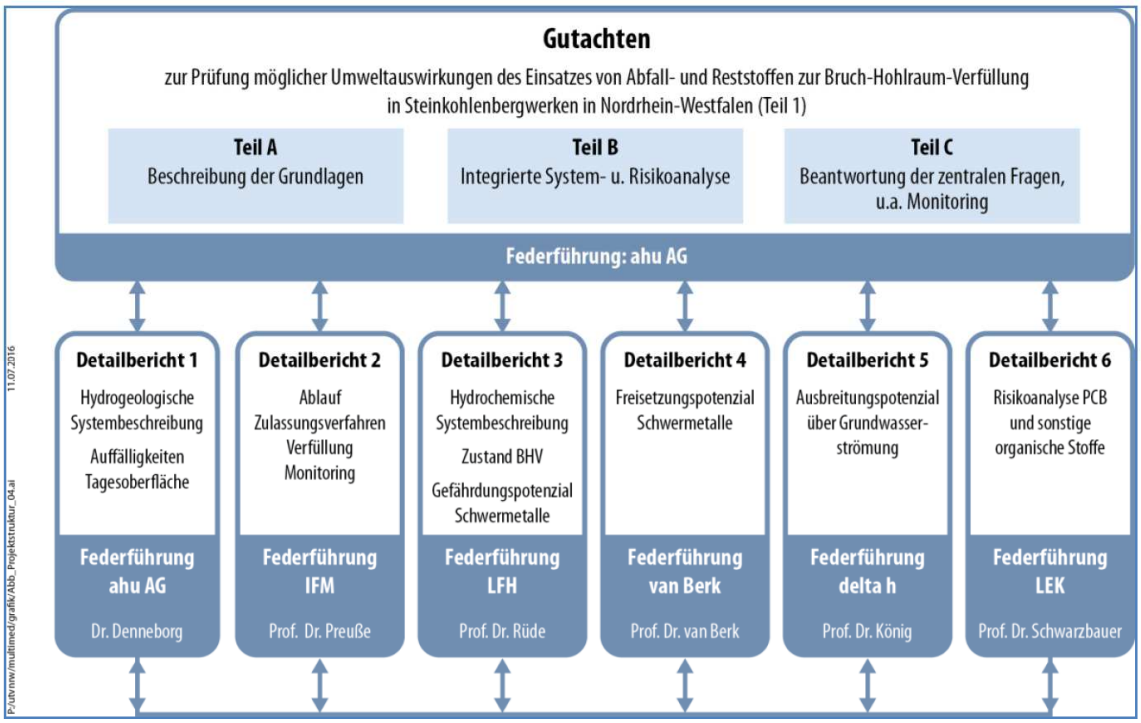


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u. a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten

Nr.	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter / Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Sys-tembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulas-sungsverfahrens, der Bruchhohlraumverfül-lung und des Monito-rings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahren und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfüllung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungspotentials 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof. [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannah-men
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof. [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 2.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (private landwirtschaftliche Flächen westlich von Bergkamen) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abbildung 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgte in einer Tiefe zwischen -800 mNHN und -920 mNHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe nach unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind noch zugänglich. Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

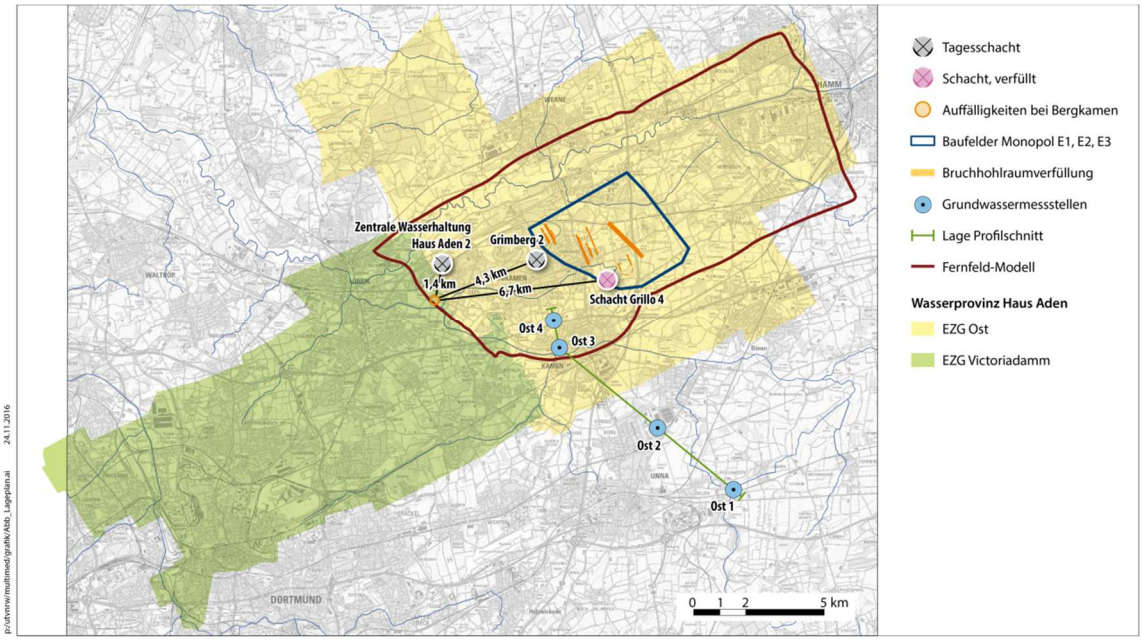


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 Einleitung

In der Einführung zur Kurzfassung der „Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“ (sogenannte *Machbarkeitsstudie*, Jäger et al. 1990) wies der Präsident des damaligen Landesamtes für Wasser und Abfall NRW, Dr. [redacted] Irmer, darauf hin, dass die geordnete Ablagerung der Abfälle auf Deponien seinerzeit an ihre Grenzen stieß: „Bei weiter steigendem Abfallaufkommen schwinden die verfügbaren Kapazitäten immer rascher, die Vermeidung und Verwertung der Abfälle müssen deutlich verbessert werden. Besonders die sogenannten Massenabfälle … binden einen großen Teil der zur Verfügung stehenden oberirdischen Deponiekapazität. Auch für sie müssen die Verwertungsmöglichkeiten ausgeweitet werden, indem neue und umweltverträgliche Entsorgungswege beschritten werden. …“

Bundesweit existierte zu dieser Zeit bereits ein breites, nach Kelm und Möller (1992) vier Grundtypen aufweisendes Spektrum an Maßnahmen der Verbringung bergbaufremder Abfälle in untertägigen Bergwerken:

- Entsorgung in untertägiger Vielstoffdeponie
- Entsorgung in untertägiger Monodeponie
- Direkte Verwertung unter Tage
- Indirekte Verwertung unter Tage

In diesem Zusammenhang spielt auch der Aspekt des Erhaltens der Wirtschaftlichkeit eines Bergwerks eine Rolle. Hierzu kann es nach Lange (1984) erforderlich sein, zusätzliche Erlösquellen zu erschließen, beispielsweise in Form der untertägigen Verbringung industrieller Abfallstoffe als Versatzkomponente.

Im Steinkohlenbergbau fällt im Zuge der Aufbereitung der geförderten Rohkohle Abraum („Berge“) unterschiedlicher Korngrößen an, der überwiegend Bergehalden und Ablagerungsteichen zugeführt wird. Insbesondere für die feinkörnigen Flotationsberge wurde nach einer alternativen Verbringungsmöglichkeit gesucht (Siepmann und Sill 1991). Darüber hinaus hatte sich auf dem Kohlenmarkt das Konzept „Ver- und Entsorgung in einer Hand“ etabliert (Czech 1993). Die Kohle für Kraftwerke, Heizwerke und Feuerungsanlagen wurde zum Teil nur noch dann abgenommen, wenn der Kohlelieferant die Entsorgung der Kraftwerksabfälle übernahm.

Ausgehend von dem Bestreben, bestimmte Rückstände aus der Kohlenaufbereitung und aus der Kohlenverbrennung auch untertägig verbringen zu können, wurde im Ruhrbergbau das Verfahren der *Bruchhohlraumverfüllung (BHV)* entwickelt (Hamm 1991). Im Zuge des Abbaus eines Kohleflözes ermöglicht dieses Verfahren den hydraulischen Nachversatz von Hohlräumen im noch lockeren Bruchhaufwerk der in den ausgekohlten Raum hereinbrechenden Dachschichten. Gemäß der Machbarkeitsstudie ist hierfür dickflüssiges, pastöses, selbsterhärtendes Versatzmaterial geeignet.

Auch bestimmte Abfälle mit hohen Schadstoffgehalten wurden basierend auf den Ergebnissen der Machbarkeitsstudie zur untertägigen Verwertung im Steinkohlenbergbau zugelassen und mithilfe des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung in Abbauhohlräume eingebracht. Auf Grund der *Verordnung über den Versatz von Abfällen unter*

Tage von 2002 erfolgte dann aber der Ausschluss des Einbringens derartiger Abfälle als Versatz in Bergwerken, „die nicht den dauerhaften Abschluss von der Biosphäre im Salzgestein gewährleisten“.

Dieser Bericht behandelt bergtechnische und bergrechtliche Aspekte der Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol. Zu Beginn wird die geschichtliche Entwicklung dieses Bergwerks, das 1998 mit dem damals ebenfalls noch aktiven Bergwerk Heinrich Robert zum Bergwerk Ost konsolidiert wurde, vorgestellt. Anschließend werden verschiedene Versatzverfahren sowie bergtechnische und bergsicherheitliche Gründe für die Einbringung von Versatz in untertägige Steinkohlenbergwerke zunächst allgemein erläutert. Die Bruchhohlraumverfüllung wird hier als ein spezielles Versatzverfahren eingeordnet.

Die Grundprinzipien der gemäß den Ergebnissen der Machbarkeitsstudie zwar grundsätzlich möglichen (Wilke 1991), im Einzelfall jedoch nur unter bestimmten Voraussetzungen und Einschränkungen umweltverträglich durchführbaren Untertageverbringung von Abfällen werden dargestellt und kommentiert. Nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses erfolgte in den Jahren 1993 bis 1998 im Bergwerk Haus Aden/Monopol die Bruchhohlraumverfüllung mit gefährlichen (im Sinne der RICHTLINIE DES RATES vom 12. Dezember 1991 über gefährliche Abfälle (91/689/EWG)) Abfällen bergbaufremder Herkunft zur Verwertung („überwachungsbedürftige Reststoffe“ nach damaliger bundesdeutscher Abfallrechtsnomenklatur). Dem ging ein rund zehnjähriger Entwicklungsprozess dieses Nachversatzverfahrens voraus. Diese Art der Verbringung erfolgte auch auf den Bergwerken Walsum und Hugo/Consolidation (Abb. 3).

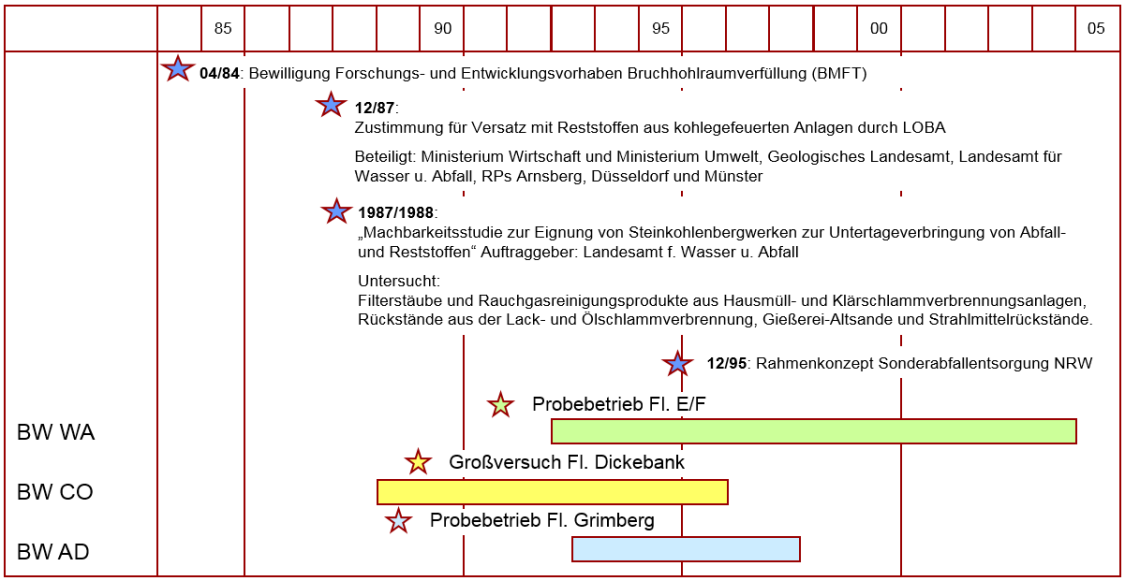


Abb. 3: Zeitliche Entwicklung der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen im Steinkohlenbergbau an der Ruhr (RAG Aktiengesellschaft 2013)

Einen weiteren Schwerpunkt dieses Berichtes bildet die Beschreibung der Grundlagen und die Darstellung des Ablaufes der bergrechtlichen Zulassungsverfahren für die Abbaubetriebe mit Nachversatz im Bergwerk Haus Aden/Monopol. In diesem Zusammenhang wird auch die begleitende Prüfung durch den beim damaligen Landesoberbergamt NRW eingerichteten Arbeitskreis behandelt, dessen Aufgabe darin bestand, einerseits vor Beginn der Bruchhohlraumverfüllung anhand des seitens des Bergbauunternehmens vorgelegten Rahmenkonzeptes die Erfüllung der in der Machbarkeitsstudie geforderten Rahmenbedingungen zu prüfen und andererseits die anschließende technische Durchführung zu begleiten.

2 Das Bergwerk Haus Aden/Monopol

Der Steinkohlenbergbau im Ruhrrevier konzentrierte sich in den letzten Jahrzehnten zunehmend auf Großschachtanlagen. Im Zuge des Rückgangs der Steinkohlenförderung wurde zum 1. April 1998 aus den aneinandergrenzenden, damals noch aktiven Bergwerken Haus Aden/Monopol in Bergkamen und Heinrich Robert in Hamm das *Verbundbergwerk Ost* (s. Abb. 4) gebildet (Huske 1998, Bergwerk Ost 2016).

Dieses Verbundbergwerk nutzte auch zwei Schächte des 1990 stillgelegten Bergwerks Radbod in Hamm-Bockum-Hövel, mit dem Heinrich Robert seit 1975 untertägig verbunden war. Der Schacht Radbod 6 befand sich im Grubenfeld Donar eines zeitweise geplanten, jedoch nicht realisierten (Anschluss-)Bergwerks. Nach Einstellung der Förderung in Bergkamen wurden die Kohlen untertägig nach Heinrich Robert transportiert, um dort zu Tage gehoben zu werden. Das Bergwerk Ost wurde am 30. September 2010 stillgelegt. Der Schacht Haus Aden 2 ist zentraler Bestandteil des langfristigen Grubenwasserhaltungskonzeptes für das östliche Ruhrrevier.

Zum Zeitpunkt der Entstehung des Verbundbergwerks Ost war die Bruchhohlraumverfüllung bereits abgeschlossen. Diese erfolgte im Grubenfeld des ehemals eigenständigen Bergwerks Monopol innerhalb der in der Abbildung 4 gekennzeichneten Baufelder E1, E2, E3. In diesen Baufeldern wurden mehrere Flöze abgebaut, und die Bruchhohlraumverfüllung wurde in Teilbereichen des Abbaus im Flöz Grimberg 2/3 durchgeführt.

Das Bergwerk Monopol wurde 1874 gegründet, nachdem die Teufarbeiten für den Schacht Grillo 1 in Kamen im Vorjahr unter dem Zechennamen Akropolis begonnen hatten. Die ersten Kohlen wurden 1877 gefördert. Für das Bergwerk Monopol wurden in der Folge weitere Schächte zum Aufschluss der Lagerstätte abgeteuft, sodass zeitweise drei fördernde Schachtanlagen existierten (Anlagen Monopol I, Monopol II und Monopol III; nicht zu verwechseln mit den verliehenen Grubenfeldern).

Die in nachfolgender Aufzählung der ehemaligen Schächte des Bergwerks Monopol angegebenen Jahreszahlen markieren jeweils den Beginn der Teufarbeiten (Huske 1998, Monopol in Kamen/Bergkamen 2016):

Schachtanlage Monopol I (Grillo):

- 1873: Schacht Grillo 1 in Kamen
- 1887: Schacht Grillo 2 (neben Schacht Grillo 1)
- 1906: Schacht Grillo 3 in Bergkamen (genannt Kiwitt)
- 1956: Schacht Grillo 4 in Bergkamen-Overberge (genannt Drei Finken, *s. Kap. 5.2*)

Schachtanlage Monopol II (Grimberg 1/2):

- 1890: Schacht Grimberg 1 in Bergkamen
- 1893: Schacht Grimberg 2 (neben Schacht Grimberg 1)

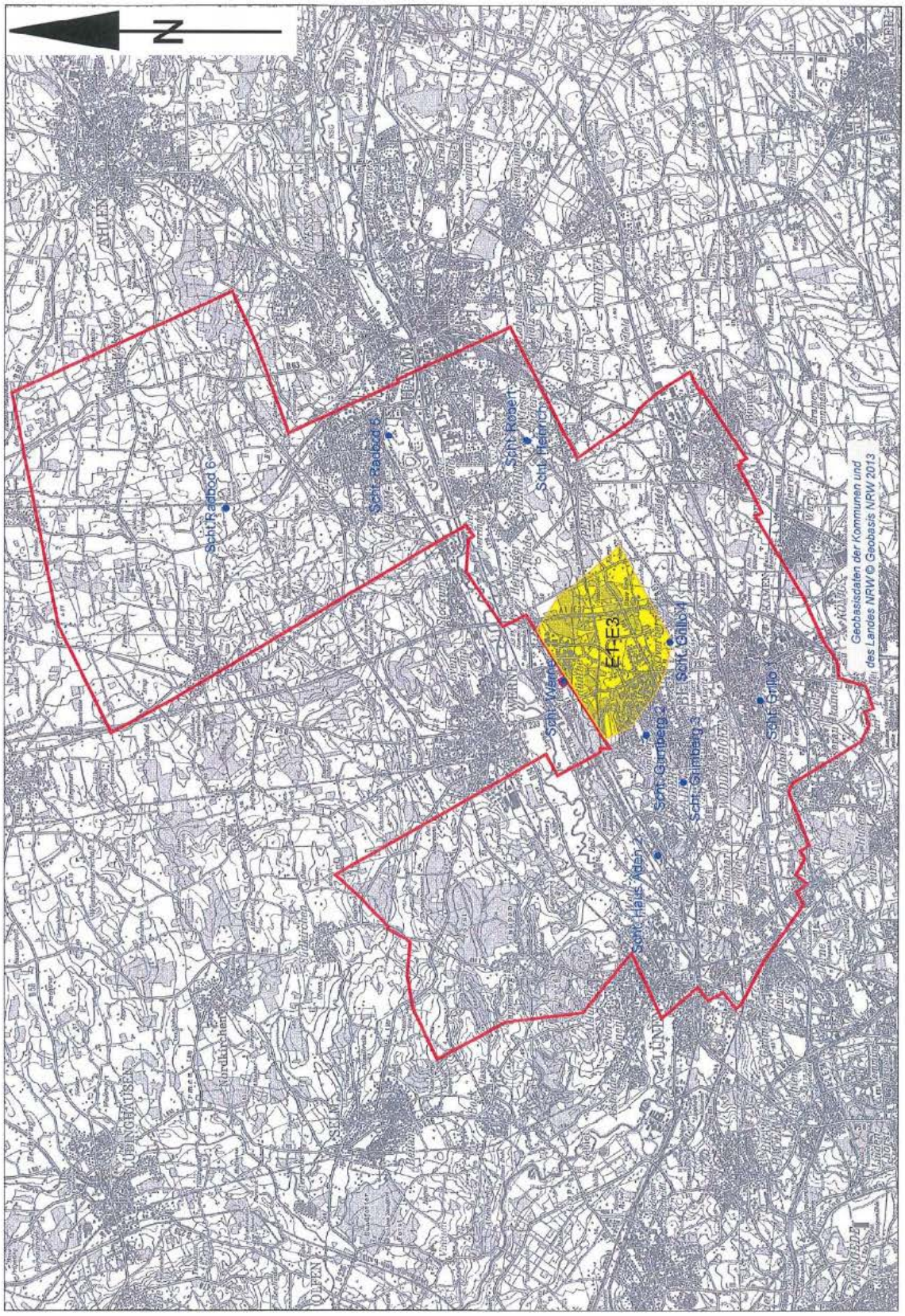


Abb. 4: Feldesgrenzen des 2010 stillgelegten Verbundbergwerks Ost; Baufelder Monopol E1, E2, E3 und Standorte ausgewählter, bis auf Haus Aden 2 und Grimberg 2 bereits wieder verfüllter Schächte

Schachtanlage Monopol III (Grimberg 3/4):

- 1923: Schacht Grimberg 3 in Bergkamen-Weddinghofen (genannt Kukuck, 1972 umbenannt in Schacht Haus Aden 3)

- 1934: Schacht Grimberg 4 (neben Schacht Grimberg 3; 1972 umbenannt in Schacht Haus Aden 4)

Das Bergwerk Monopol verfügte gegen Ende des 19. Jahrhunderts über das seinerzeit größte Grubenfeld im Ruhrrevier (87 km^2) (Huske 1998). Der Schacht Grimberg 2 erreichte im Jahr 1905 eine Teufe von 850 m und war damit der damals tiefste Schacht im Ruhrbergbau (Endteufe im Jahr 1980: 1143 m). Auf Monopol III erfolgte 1942 der erstmalige Einsatz von schreitendem Ausbau im Ruhrrevier.

Ab 1945 kam es zu einer Entflechtung der drei Schachtanlagen. Die Zeche Grimberg 3/4 operierte nun eigenständig, und zwischen 1952 und 1967 waren auch die Zechen Grillo und Grimberg 1/2 betrieblich getrennt.

Am 20. Februar 1946 ereignete sich auf der Zeche Grimberg 3/4 das schwerste Grubenunglück in Deutschland. Durch eine untertägige Kohlenstaub-/Schlagwetterexplosion kamen 405 Menschen ums Leben.

Die Zeche Grimberg 3/4 bildete 1970 eine Werksdirektion mit der Zeche Haus Aden und wurde 1974 vollständig durch Haus Aden übernommen. 1989 erreichte der Schacht Grimberg 3 eine Endteufe von 1635 m und war damit der tiefste Schacht in Europa.

Mitte der 1970er-Jahre begannen im Baufeld Grimberg 1/2 Ausrichtungs- und Aufschlussarbeiten für das Bergwerk Neu-Monopol. Ab 1979 wurde auch der Schacht Werne 3, Bergkamen-Rünthe, des 1975 stillgelegten Bergwerks Werne von Neu-Monopol genutzt. 1982 wurde Neu-Monopol nach Übernahme des Baufeldes und der Belegschaft der Schachtanlage Grillo umbenannt in Monopol.

Aus den Bergwerken Haus Aden und Monopol entstand zum 1. Januar 1993 das *Verbundbergwerk Haus Aden/Monopol*, das in demselben Jahr mit einer Förderung von 4,9 Mio. t und 6731 Beschäftigten das größte Bergwerk im Ruhrrevier war. Ab 1994 wurden die im Baufeld Monopol gewonnenen Kohlen untertägig nach Haus Aden gefördert, um dort zu Tage gehoben zu werden.

Innerhalb der Baufelder E1, E2, E3 (Abb. 4) wurden von April 1993 bis Februar 1998 bergbaufremde, besonders überwachungsbedürftige Abfälle zur Verwertung als Nachversatz in Bruchhohlräume des Abbaus im Flöz Grimberg 2/3 eingebracht. Dies fiel somit in den Zeitraum des Bestehens des Verbundbergwerks Haus Aden/Monopol. Die Bruchhohlraumverfüllung wurde dann eingestellt, da aufgrund einer Förderrücknahme in Folge kohlepolitischer Entscheidungen der Schacht Grillo 4, in dem die Rohrleitung zur Förderung des Feststoff-Wasser-Gemisches installiert war, verfüllt wurde.

3 Versatz im deutschen Steinkohlenbergbau

Die Wahl des Abbauverfahrens zur Gewinnung von Bodenschätzen hängt von den Lagerstättenbedingungen ab. Im modernen deutschen Steinkohlenbergbau kommt ausschließlich der Strebbau (Abb. 5), ein untertägiges Abbauverfahren mit langfrontartiger Bauweise, zum Einsatz. Beim Strebbau wird ein zumeist rechteckförmiger Flözteil zwischen zwei parallel verlaufenden Abbaustrecken hereingewonnen. Der als Gewinnungsort dienende Strebraum schreitet über die gesamte Länge des Abbaus („Baulänge“) fort. Dies führt zur zunehmenden Vergrößerung des "Alten Mannes", dem ausgekohlten Grubenraum, der nun das Bestreben hat, sich wieder zu schließen. (Reuther 1989, Preuße 2002)

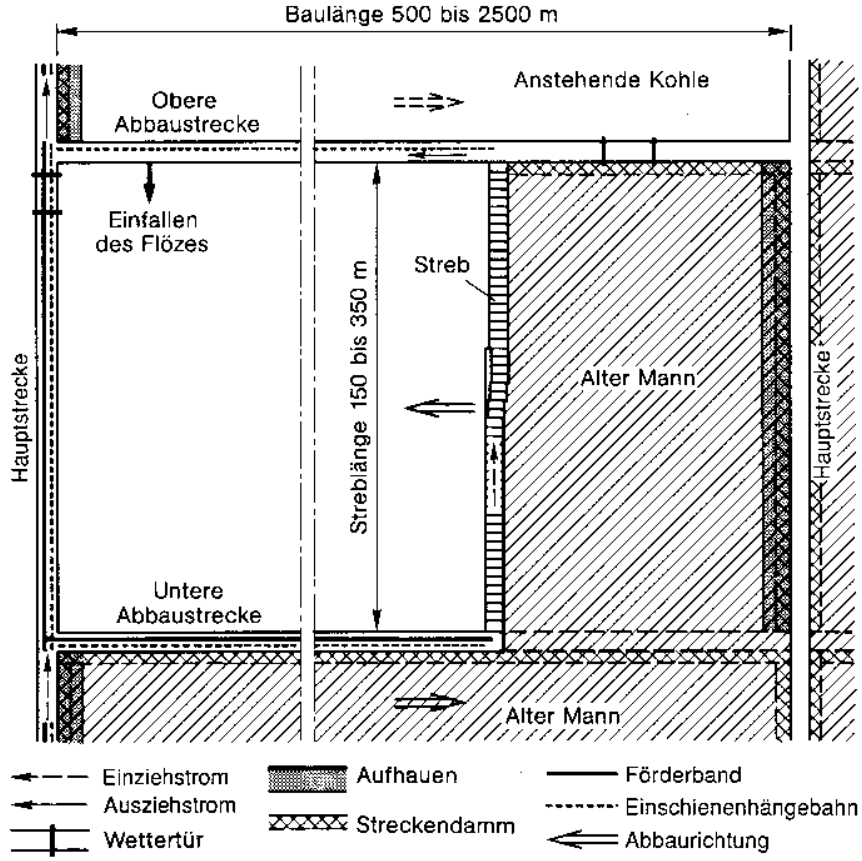


Abb. 5: Schematische grundrissliche Darstellung des Strebbaus (Reuther 1989)

Hinsichtlich der Behandlung der Hangendschichten über dem abgebauten Flöz kann der Strebbau sowohl als Bruchbau − dies ist aus technisch/wirtschaftlichen Gründen im deutschen Steinkohlenbergbau heute ausnahmslos üblich - als auch als Versatzbau ausgestaltet sein.

Strebbruchbau

Beim Vorrücken der Strebfront brechen die das Kohleflöz überlagernden Schichten hinter dem Strebausbau in die durch den Abbau des Flözes entstandenen Hohlräume herein. Dieses Hereinbrechen der überlagernden Schichten wird als "Selbstversatz"

oder "Bruchbau" bezeichnet (Abb. 6). Durch das planmäßige, dem Abbaufortschritt folgende Zubruchwerfen der Dachschichten wird den Gebirgsschichten oberhalb der entstandenen Bruchzone ein neues Auflager gegeben; im Bruchhaufwerk vorhandene Hohlräume werden durch den Überlagerungsdruck des Gebirges allmählich und fast vollständig wieder verschlossen.

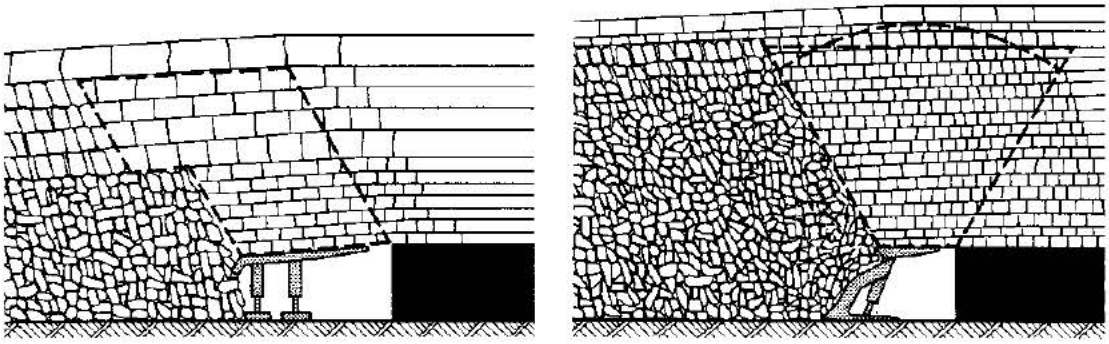


Abb. 6: Bruchbildung bei festen (links) und bei gebrächen Dachschichten (Reuther 1989)

Versatzbau

Eine Verringerung des sich übertägig einstellenden Absenkungsbetrages kann erreicht werden, wenn der durch den untertägigen Steinkohlenabbau geschaffene Hohlraum unmittelbar nach dem Strebdurchgang wieder verfüllt (= versetzt) wird. In der nachfolgenden Tabelle sind verschiedene Versatzverfahren genannt. Durch Laborversuche wiesen Knissel und Triebel (1991) nach, dass die durch den Gebirgsdruck erfolgende Kompaktion des Versatzkörpers die Dichtigkeit von Verfüllstoffen, insbesondere gegen Flüssigkeiten, fördert.

Tab. 2: Arten des Einbringens von Versatz in untertägige bergmännische Hohlräume (nach Reuther 1989, ergänzt nach Länderausschuss Bergbau 1996/2006)

Versatzverfahren		**Einbringen des Versatzgutes**
Handversatz		von Hand oder mit der Schaufel
Versatz mittels Schwerkraft	Sturzversatz	mithilfe der Schwerkraft auf Bergeböschung oder fester Rutsche
	Fließversatz	mithilfe der Schwerkraft durch Rohrleitung
Hydraulischer Versatz	Spülversatz	mithilfe der Schwerkraft oder einer Pumpe durch Rohrleitung mit *viel* Wasser
	Pumpversatz	mithilfe der Schwerkraft und/oder einer Pumpe durch Rohrleitung mit *wenig* Wasser
Maschinenversatz	Blasversatz	mithilfe von Druckluft durch Rohrleitung
	Schleuderversatz	mithilfe motorangetriebenen Kurzbandes
Stapelversatz	Versatz von Behältnissen	als Gebinde; z. B. Big-Bags, Fässer

Blasversatz

Im Ruhrbergbau wurde über Jahrzehnte in Kombination mit dem Strebbau das Blasversatzverfahren eingesetzt, ein pneumatisches Verfüllen der Abbauhohlräume mit hauptsächlich grobkörnigen Stoffen. Ab 1960 war der Blasversatz jedoch stark rückläufig. Grundlage dieses Verfahrens (Reuther 1989, Voss 1988, Preuße 2002) ist die schwebende Bewegung des Versatzgutes durch strömende Luft in Rohrleitungen. Die strömende Trägerluft bringt hierbei die zum Verblasen erforderliche Energie auf. Die Einschleusung des Versatzgutes in den Druckluftstrom der Rohrleitung erfolgt mithilfe der meist etwa 100 m vom Streb entfernt positionierten Blasversatzmaschine. Bei diesem Versatzverfahren konnte ein hoher Verfüllungsgrad des ausgekohlten Raumes und eine große Einbringdichte des Versatzgutes erreicht werden (Knissel und Triebel 1991). Das auflagernde Gebirge bewirkte anschließend ein Komprimieren (Abb. 7) der eingeblasenen, aus der Steinkohlenaufbereitung stammenden Waschberge (= von der verwertbaren Kohle abgetrennte Rückstände).

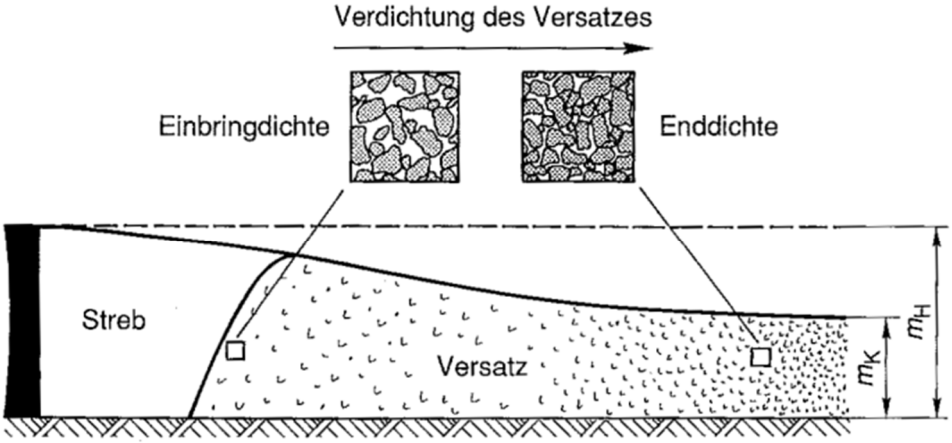


Abb. 7: Versatzverdichtung (Knissel und Triebel 1991)

Im deutschen Steinkohlenbergbau wurde Blasversatz im Wesentlichen aus folgenden Gründen eingebracht (Voss 1988, Hansel 1991, Länderausschuss Bergbau 1996/2006, Preuße 2002):

- Bergewirtschaft, Schonung von Bergehaldenkapazitäten
- Minderung von Bergschäden an der Tagesoberfläche, Reduzierung der Unterhaltungskosten des Grubengebäudes
- Bessere Gebirgsbeherrschung beim Abbau von Flözen mit großer Mächtigkeit
- Verbesserung des Grubenklimas durch Reduzierung des Wärmeflusses aus dem Gebirge in den Strebraum sowie Kühlung der Strebwetter
- Reduzierung der Brandgefahr, d. h. möglicher (Rest-)Kohle-Selbstentzündung in Folge des Abbaus

- Bessere Beherrschung des zuströmenden Grubengases
- Bessere Ausnutzung der Lagerstätte

Den Vorteilen des Einbringens von Versatz stehen auch Nachteile gegenüber (Haarmann 1991), insbesondere der logistische Aufwand für die Beförderung des Versatzgutes von der Tagesoberfläche bis zum Abbau − hierfür sind zusätzliche Anlagen und technische Einrichtungen erforderlich - sowie die organisatorische Abstimmung zwischen Gewinnungs- und Versatzbetrieb. Das Einbringen von Versatz ist also mit Investitionen und hohen Betriebskosten inklusive der Kosten für besonders geschultes Personal verbunden.

Hydraulischer Versatz

Beim hydraulischen Verfüllen untertägiger Hohlräume sind die *Dünnstromförderung* und die *Dickstofförderung* zu unterscheiden (Knissel und Triebel 1991). In einer über- oder untertägigen Mischanlage wird ein fließfähiges Feststoff-Wasser-Gemisch nach einer bestimmten Rezeptur erstellt und über Rohrleitungen unter Nutzung der Schwerkraft (z. B. Falleitung im Schacht) und/oder Pumpenkraft dem Versatzfeld zugeführt.

Beim *Spülversatz* erfolgt eine Dünnstromförderung eines gut entwässerbaren Wasser-Feststoff-Gemisches, das keine Schadstoffe enthalten darf. Nach Einbringen der Spültrübe in den Abbauhohlraum wird das Transportwasser vom Feststoff getrennt, aufgefangen und geklärt zur Mischanlage zurückgepumpt. (Reuther 1989, Knissel und Triebel 1991, Länderausschuss Bergbau 1996/2006)

Demgegenüber zielt die Dickstoffförderung beim *Pumpversatz* darauf ab, ohne eine Entwässerung des Versatzgutes das Transportwasser im Versatzfeld und ggf. im trockenen Nebengestein des Flözes zu binden. Es handelt sich also um einen erhärtenden, selbstverfestigenden Versatz mit puzzolanischen, abbindenden Eigenschaften, die ggf. auch durch Hinzufügen von Bindemitteln erreicht werden. Um Rohrleitungsverstopfungen bei Förderunterbrechung zu vermeiden, enthält die Rezeptur des Feststoff-Wasser-Gemisches weitere Zuschlagstoffe wie z. B. Fließmittel, Erstarrungsverzögerer etc. (Reuther 1989, Knissel und Triebel 1991, Länderausschuss Bergbau 1996/2006).

Bruchhohlraumverfüllung

Das Verfahren der Bruchhohlraumverfüllung wurde in Kombination mit dem Strebbruchbau entwickelt (Maurer und Sill 1989, Jäger et al. 1990, Pollmann und Wilke 1994). Hierbei handelt es sich um ein hydraulisches Versatzverfahren mit Dickstofförderung. Die Bruchhohlraumverfüllung ist als *Nach*versatz zu bezeichnen, ein dem abbaubedingten Zubruchgehen der Dachschichten insbesondere aus bergtechnischen und bergsicherheitlichen Gründen nachfolgendes planmäßiges Verfüllen der im Bruchhaufwerk verbliebenen Hohlräume. Das Versatzgut (pastöses Feststoff-Wasser-Gemisch) wurde mithilfe der Schwerkraft sowie durch Pumpenenergie in die Bruchhohlräume verpresst (Abb. 8). Der Wassergehalt des pastösen Versatzgutes musste so gering sein, dass das Wasser bzw. die Trübe zur Gänze im Alten Mann, d. h. im Bruchfeld, verblieb. Dieses im Rahmen untertägiger Abfall-/Reststoffverwertung angewendete Verfahren wird im Kapitel 5 näher erläutert.

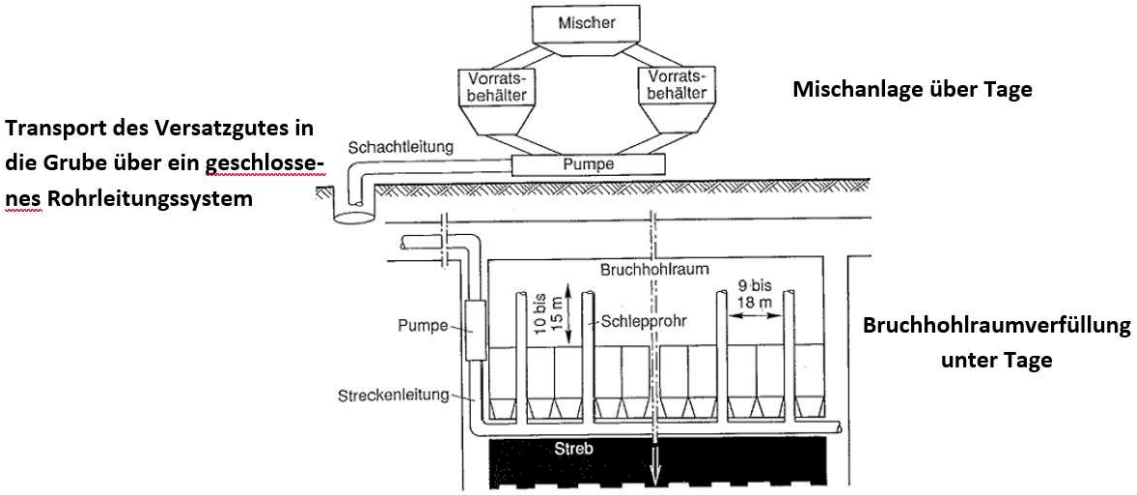


Abb. 8: Bruchhohlraumverfüllung – Einbringen pastöser Massen mit Schlepprohren (Plate 1988, ergänzt)

4 Möglichkeiten der umweltverträglichen Verbringung von Abfällen in untertägige Grubenbaue des Steinkohlenbergbaus

4.1 Abfallbegriffe im Zeitraum der Bruchhohlraumverfüllung

Auf Bundesebene erfolgte eine Zusammenfassung des Abfallrechts erstmals im Jahre 1972 in einem eigenen Gesetz. Das *Abfallbeseitigungsgesetz* verpflichtete zur ordnungsgemäßen Beseitigung von Abfällen.

Neben der Beseitigung von Abfällen regelte dann das *Abfallgesetz* von 1986 auch die Verwertung und die Vermeidung von Abfällen und gab der Abfallverwertung „Vorrang vor der sonstigen Entsorgung…". Bereits das *Bundes-Immissionsschutzgesetz* von 1974 verpflichtete die Betreiber genehmigungsbedürftiger Anlagen, „die beim Betrieb der Anlagen entstehenden Reststoffe ordnungsgemäß und schadlos [zu verwerten] oder, soweit dies technisch nicht möglich und wirtschaftlich nicht vertretbar ist, als Abfälle ordnungsgemäß [zu beseitigen]".

Das *Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz* von 1994 (1996 in Kraft getreten) zielte insbesondere auf eine Förderung der Abfallvermeidung ab und setzte die europäische Neuordnung des Abfallbegriffes in bundesdeutsches Recht um. Mit der Änderung des Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetzes in 2006 wurde die Anpassung an die europarechtliche Terminologie fortgeführt. Eine weitere Novellierung des Abfallrechts erfolgte durch das *Kreislaufwirtschaftsgesetz* von 2012, dessen Zweck die Förderung der Kreislaufwirtschaft zur Schonung der natürlichen Ressourcen und die Sicherung der umweltverträglichen Bewirtschaftung von Abfällen ist.

Die Bruchhohlraumverfüllung mit Abfall-/Reststoffen in Bergwerken der RAG fiel in den Geltungszeitraum des Abfallgesetzes von 1986 und des Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz von 1994 sowie – im Falle des Bergwerks Walsum - auch in den Geltungszeitraum der *Abfallverzeichnis-Verordnung* von 2001 (2002 in Kraft getreten). Im Rahmen des Gutachtens ist die in der Tabelle 3 dargestellte Entwicklung der Abfallbegriffe zu berücksichtigen. In Rechtsverordnungen wurden diejenigen Abfälle/Reststoffe, die einer (besonderen) Überwachung bedürfen, je nach Abfallart und Abfallherkunft mit 5-stelliger, ab 1999 6-stelliger Schlüsselnummer festgelegt. Die Möglichkeit der Verwertung ist für diese zu prüfen.

Das damalige Bundesabfallgesetz (AbfG) galt nicht für bergbauliche Abfälle, die beim Aufsuchen, Gewinnen und Aufbereiten (z. B. Flotationsberge) in den unter Bergaufsicht stehenden Betrieben anfielen. Somit waren für die Abfallentsorgung der sog. bergbaulichen Abfälle die Regelungen des Bundesberggesetzes anzuwenden. Im Betriebsplanverfahren war u. a. zu prüfen, ob die Bestimmungen des § 55 Abs. 1 Ziffer 6 BBergG zur ordnungsgemäßen Abfallbeseitigung eingehalten wurden. Hierfür wurden diesbezüglich Richtlinien des LOBA im Betriebsplanverfahren zur Geltung gebracht. So wurde sichergestellt, dass auch abfallrechtliche Bestimmungen des Bundes materiell übernommen wurden.

Die im BW Haus Aden/Monopol zwischen April 1993 und Februar 1998 als Bruchhohlraumverfüllung eingebrachten Feststoff-Wasser-Gemische enthielten die im Detailbericht 1 dokumentierten überwachungsbedürftigen Reststoffe sowie bergbauliche Abfälle (Flotationsberge). Nach aktueller Abfallrechtsnomenklatur handelt es sich bei den überwachungsbedürftigen Reststoffen bzw. besonders überwachungsbedürftigen Abfällen zur Verwertung um *gefährliche Abfälle zur Verwertung* (Tab. 3).

Tab. 3: Abfallrechtliche Begriffe, unterschieden nach Entsorgungsziel (Beseitigung/ Verwertung) und Überwachungserfordernis, im Zeitraum der Bruchhohlraumverfüllung in Bergwerken der RAG von 1989 bis 2004

(VO = Rechtsverordnung)

Zeitraum	Beseitigung		Verwertung		
ab 1986	**Abfälle**		**Reststoffe**		
	Besonders überwachungsbedürftige Abfälle gem. VO	Abfälle	Überwachungsbedürftige Reststoffe gem. VO	Reststoffe	
ab 1996	**Abfälle zur Beseitigung**		**Abfälle zur Verwertung***		
	Besonders überwachungsbedürftige Abfälle gem. VO	Überwachungsbedürftige Abfälle	Besonders überwachungsbedürftige Abfälle gem. VO	Überwachungsbedürftige Abfälle gem. VO	Nicht überwachungsbedürftige Abfälle
ab 2002	**Abfälle zur Beseitigung**		**Abfälle zur Verwertung**		
	Besonders überwachungsbedürftige, gefährliche Abfälle gem. VO	Überwachungsbedürftige Abfälle	Besonders überwachungsbedürftige, gefährliche Abfälle gem. VO	Überwachungsbedürftige Abfälle gem. VO	Nicht überwachungsbedürftige Abfälle
ab 2006	**Abfälle zur Beseitigung**		**Abfälle zur Verwertung**		
	Gefährliche Abfälle gem. VO	Nicht gefährliche Abfälle	Gefährliche Abfälle gem. VO	Nicht gefährliche Abfälle	

* Der Begriff „Reststoffe“ wurde nach den Übergangsvorschriften der Verordnung zur Einführung des Europäischen Abfallkatalogs, EAK-Verordnung (EAKV) vom 13. September 1996, noch bis zum 31. Dezember 1998 verwendet. Damit sollte den Bescheidnehmern und der Verwaltung der Übergang in die europäische Abfallnomenklatur ermöglicht werden.

4.2 Grundprinzipien der umweltverträglichen Verbringung von bergbaufremden Abfällen im Steinkohlenbergbau

Die Umweltverträglichkeit der Verbringung von Abfällen im Ruhrbergbau kann nicht in genereller Weise beurteilt werden. Vielmehr sind die örtlichen Gegebenheiten im jeweiligen Einzelfall einer Untertageverbringung zu analysieren.

Werden schadstoffhaltige Abfälle in tiefe Grubenbaue des Steinkohlenbergbaus verbracht, dann sind aufgrund großräumig vorhandener natürlicher oder durch den Bergbau geschaffener künstlicher, dem Fließen von Wasser einen nur geringen Widerstand entgegensetzender Wegsamkeiten insbesondere eine Kontamination der Grubenwässer und eine damit verbundene mögliche Ausbreitung von Schadstoffen bis in die nutzbaren Grundwasserhorizonte zu verhindern (Wilke 1991, Wilke und Dartsch 1995). Der *Besorgnisgrundsatz des Wasserhaushaltsgesetzes* verlangt, dass der Umgang mit wassergefährdenden Stoffen nicht zu einer nachteiligen Veränderung der Eigenschaften von Gewässern führen darf.

In der *Machbarkeitsstudie* (Jäger et al. 1990, Wilke 1991, Ministerien für Wirtschaft und für Umwelt 2013) wurde untersucht, ob und in welcher Weise das Risiko einer Schadstoffausbreitung mit hinreichender Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden kann.

Die in einem Zeitraum von mehr als zweieinhalb Jahren angefertigte Studie beschreibt, unter welchen Voraussetzungen eine Verbringung von bestimmten Abfällen im Steinkohlenbergbau möglich ist. Hierfür ungeeignet sind insbesondere Abfälle pflanzlichen und tierischen Ursprungs sowie von Veredlungsprodukten, Abfälle chemischer Umwandlung und Syntheseprodukte, radioaktive Abfälle, Siedlungsabfälle (Landesamt für Wasser und Abfall 1987). Nach Plate (1991) sind darüber hinaus aus grubensicherheitlichen und arbeitshygienischen Gründen „…explosible, selbstentzündliche, leicht entflammbare, gefährlich ausgasende und infektiöse Stoffe…“ für die Verbringung ungeeignet.

Die jeweiligen Abfalleigenschaften sind maßgeblich dafür, ob die Untertageverbringung *immissionsneutral* erfolgen kann – dies ist dann laut Machbarkeitsstudie in allen Grubenbauen des Steinkohlenbergbaus vertretbar - oder ob ein nur in bestimmten Bereichen und unter bestimmten Voraussetzungen erreichbarer *vollständiger Einschluss* der Abfälle das sichere und dauerhafte Fernhalten der Schadstoffe von der Biosphäre gewährleistet. Die aus der Deponietechnik bekannten Begriffe der Immissionsneutralität und des vollständigen Einschlusses wurden in der Machbarkeitsstudie speziell für die Gegebenheiten des Steinkohlenbergbaus definiert.

4.2.1 Immissionsneutrale Untertageverbringung

Werden Abfälle in längerfristig offene, dem Aufschluss der Lagerstätte und der Vorbereitung des Abbaus dienende Grubenbaue des Steinkohlenbergbaus eingebracht, und können aus den eingebrachten Materialien Schadstoffe in das Einbringungsmilieu, insbesondere in das Grubenwasser gelangen, so besteht die Möglichkeit, dass diese über den Wasserweg bis in die Biosphäre transportiert werden.

Unter solchen Bedingungen ist nur eine immissionsneutrale Verbringung von Abfällen vertretbar, wobei die chemische Beschaffenheit der Stoffe bekannt und gleichbleibend sein muss. Die immissionsneutrale Verbringung ist zunächst dadurch definiert, dass das den Verbringungsbereich umgebende Grubenwasser die jeweiligen Schadstoffe geogen bereits in einer Konzentration enthält, die eine weitere Aufnahme aus den eingebrachten Abfällen verhindert. Abfälle mit geringerem Schadstoffpotential (z. B. Flugaschen und –stäube aus kohlebefeuerten Kraftwerken) kommen hierfür in Frage. Eine immissionsneutrale Untertageverbringung sei in Einzelfällen aber auch dann möglich, wenn die eingebrachten Materialien durch ihre Beschaffenheit eine innere Barriere bilden, die eine Freisetzung der Schadstoffe ausschließt. (Jäger et al. 1990)

Bei der Untersuchung von Abfällen mit einem höheren Schadstoffpotential (z. B. Rückstände aus Müllverbrennungsanlagen) wurde festgestellt, „dass die Elution mit dem Grubenwasser in der Regel für bestimmte Schadstoffe einen höheren Austrag ergab als bei der Eluierung mit entmineralisiertem Wasser“ (Wilke 1991). Kann das Grubenwasser die eingebrachten nicht immissionsneutralen Abfälle durchströmen, so ist ein Schadstoffaustrag in das Grubenwasser – über dessen geogene Vorbelastung hinaus - zu besorgen. Unter solchen Bedingungen ist eine umweltverträgliche Untertageverbringung also nur nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses möglich.

4.2.2 Untertageverbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses

Nach Einschätzung der Machbarkeitsstudie lässt sich im Steinkohlengebirge ein relativ kleinräumiger vollständiger Einschluss nicht immissionsneutraler Abfälle unter folgenden für die Langzeitsicherheit relevanten Voraussetzungen erzielen, wobei die Kombination verschiedener Barrieren (Jäger et al. 1990, Wilke 1991, vgl. Czech 1993, vgl. Thein et al. 1997) einen Schadstoffaustrag verhindern soll:

1) Hydraulische Bruchhohlraumverfüllung

Unmittelbar hinter dem Gewinnungsstreb (Abb. 5 und 6) brechen die Dachschichten in den durch den Abbau der Kohle entstandenen Hohlraum hinein. In dieses Bruchfeld werden die Abfälle hydraulisch als Bruchhohlraumverfüllung (Kap. 5.2) eingebracht, wobei eine gegebenenfalls durch Zuschlagstoffe erreichte Hydratationsfähigkeit und in Verbindung mit der Bruchfeldkompaktierung entstehende Dichtigkeit des eingebrachten Materials gefordert wird (innere hydraulische Barriere). Dieser Nachversatz muss in unmittelbarer Folge des Verhiebs der Kohle geschehen, da schon kurze Zeit später die Verdichtung des Bruchhaufwerks so weit fortgeschritten ist, dass dieses praktisch keine Hohlräume mehr enthält, die verfüllt werden könnten. Je nach Lage des Verbringungsbereiches innerhalb des Bruchfeldes ist dieser in geeigneter Weise gegenüber dem allgemeinen Grubengebäude abzudichten.

Die Entwicklung des Verfahren zur Bruchhohlraumverfüllung begann 1982 (Hamm 1991). Erst nach Durchführung verschiedener über- und untertägiger Versuche wurde es ab 1993 im Bergwerk Haus Aden/Monopol zur Verbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle bergbaufremder Herkunft zur Verwertung im Zuge laufender Abbaubetriebe eingesetzt (Kap. 5.1 und 5.2).

Die im Selbstversatz unmittelbar nach dem Verhieb der Kohle hereinbrechenden Nebengesteinsschichten und das eingebrachte Feststoff-Wasser-Gemisch bilden nach der Kompaktierung (s.u. Nr. 4) und Aushärtung einen schlüssigen Gesteinskörper, der eine Durchströmung weitgehend verhindert. Im Gegensatz dazu verbleiben beim Verbringen von Abfällen in längerfristig offene Grubenbaue aufgrund der in der Regel geringeren Kompaktierung Unstetigkeitszonen, die zu Wasserwegsamkeiten führen können und dadurch ggf. eine Schadstoffausbreitung ermöglichen. Solche Unstetigkeitszonen sind nur beim Verbringen von Abfällen in Hohlräume in einem trockenen, absolut wasserfreien stillgelegten Salzbergwerk unschädlich (Kind 1991).

Die Verfasser der Machbarkeitsstudie weisen darauf hin, dass bei geeigneter Beschaffenheit der Nebengesteinsschichten (Nr. 2) auch in den Abbaubegleitstrecken eine Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses möglich sei. Im Gegensatz zu den langfristig offenen Grubenbauen tritt in diesen Strecken ein erheblicher Gebirgsdruck auf, der ein Konvergieren der Strecken bewirkt. Abfälle könnten hier hydraulisch oder auch in Gebinden verbracht werden, in jedem Fall sei ein sicherer Abschluss der Abbaubegleitstrecken gegen das weitere Grubengebäude zu gewährleisten.

2) Tonmineralreiches Nebengestein

Zur weiteren Aufnahme gegebenenfalls schadstoffbelasteten Transportwassers sowie zur Gewährleistung der ausreichenden, durch den Gebirgsdruck initiierten Kompaktierung der eingebrachten Stoffe müssen die unmittelbaren Dachschichten

des Flözes tonige Bestandteile in ausreichender Mächtigkeit aufweisen. Gebirgsschichten von überwiegend grobkörniger oder klüftiger Beschaffenheit können aufgrund ihrer Wasserdurchlässigkeit nicht in Betracht kommen. Darüber hinaus ist es erforderlich, dass das Haupthangende oberhalb der Dachschichten ein quasiplastisches Verformungsverhalten in Folge des Abbaus zeigt, um einen dichten Abschluss zu erreichen. Die Schichten müssen sich ohne makroskopische Brüche oder Auflockerungen auf das Bruchhaufwerk auflegen.

Bei einer Mächtigkeit tonmineralreicher Schichten von jeweils 20-25 m im Hangenden und im Liegenden des nachversetzten Abbaus wird von einer ausreichenden Dichtigkeit des umgebenden Gesteins und auch einer Fähigkeit zur Schadstoffadsorption ausgegangen (äußere hydraulische Barriere und äußere geochemische Barriere). „Diese Situation ist insbesondere in den Schichten des Mittelkarbons im Bereich der Zollverein-Flözgruppe bzw. bei den sogenannten Buchstaben- und Namens-Flözen [„Essener Schichten“, Wilke 1991] anzutreffen. Ob und inwieweit auch andere Teile des flözführenden Karbons für eine solche Verbringung in Frage kommen, ist von der Beurteilung des jeweiligen Einzelfalles abhängig zu machen; …“ (Jäger et al. 1990).

Im Ruhrrevier ist das rund 3.000 m mächtige flözführende Oberkarbon stratigraphisch in sechs, mit Ortsnamen belegte Schichtenpakete (Tab. 4) mit unterschiedlichem Inkohlungsgrad, d. h. zur Teufe hin abnehmenden Gehalten an Wasser und flüchtigen Bestandteilen gegliedert.

Wie von Kukuk und Hahne (1962) sehr ausführlich beschrieben, weist das Nebengestein der Kohlenflöze in allen der in der Tabelle 4 genannten Schichtengruppen im Wesentlichen Trümmergesteine mit wechselnden Mengen von Quarz- und Tonerdemineralen auf. In petrographischer Grobansprache sind dies Schieferton, Sandschieferton, Sandstein und Konglomerat.

Die Schichtengruppen des Steinkohlengebirges weisen hinsichtlich der Ausbildung des Nebengesteins der Kohle jeweils besondere Merkmale auf (Kukuk und Hahne 1962):

- In den Sprockhöveler Schichten sind im Nebengestein der Kohle zahlreiche mächtige Sandsteine mit Konglomeraten sowie Eisensteinlagen und auch marine Einlagerungen anzutreffen.
- In den Wittener Schichten können die Einzelflöze vielfach anhand mariner Einlagerungen im Nebengestein oder auch anhand mächtiger, meist mit Quarzkonglomeraten durchsetzter Sandsteinbänke identifiziert werden.
- Die Bochumer Schichten enthalten im unteren sowie im mittleren Abschnitt mehrere mächtige, wechselvoll zusammengesetzte Sandsteinbänke, im oberen Abschnitt jedoch überwiegend Schieferton. Darüber hinaus treten marine und nicht marine Einlagerungen sowie Pflanzenschichten auf.
- Die Essener Schichten (Abb. 9) enthalten überwiegend toniges Nebengestein, kaum mächtigere Sandsteine. Im Laura-Victoria-Abschnitt sind häufig Muschelschichten in einem überwiegend gebrächen Bänderschieferton anzutreffen. Im Zollverein-Abschnitt und auch in dem Abschnitt der unteren Buchstabenflöze treten oft aushaltende Pflanzenlagen auf.
- Die Horster Schichten sind sehr viel sandsteinreicher als die tieferen Gebirgsschichten. Einige Flöze dieses Schichtenabschnitts werden von beständigen und mächtigen Sandsteinbänken über- bzw. unterlagert.
- Die Dorstener Schichten enthalten zahlreiche konglomeratische Sandsteine. Zu nennen sind auch die mächtige fossilreiche Meeresschicht über Flöz Ägir und die feuerfesten Tone in den Flözen Erda und Hagen.

Tab. 4: Stratigraphische Gliederung des Steinkohlengebirges im Oberkarbon mit Angabe der Grenzhorizonte (nach Kukuk und Hahne 1962)

Stratigr. Stufe		Alte Schichtenbezeichnung	Neue Schichtenbez.		Mächtigkeit ca.	Grenzhorizont
Westfal	Oberes (C)	Flammkohlen-Schichten	Dorstener Schichten	Obere	140 m	Tonsteinflöz Hagen
				Untere	220 m	Marine Schicht über Fl. Ägir
	Mittleres (B)	Gasflammkohlen-Schichten	Horster Schichten	Obere	150 m	Konglomerat über Fl. T
				Untere	210 m	Dominaschicht über Fl. L
		Gaskohlen-Schichten	Essener Schichten	Obere	210 m	Fl. Zollverein 1
				Mittlere	140 m	Fl. Zollverein 9
				Untere	135 m	Marine Schicht über Fl. Katharina
	Unteres (A)	Fettkohlen-Schichten	Bochumer Schichten	Obere	150 m	Fl. Hugo
				Mittlere	230 m	Konglomerat über Fl. Präsident
				Untere	250 m	Marine Schicht über Fl. Plaßhofsbank
		Eßkohlen-Schichten	Wittener Schichten	Obere	150 m	Marine Schicht über Fl. Finefrau Nbk.
				Untere	220 m	Marine Schicht über Fl. Sarnsbank
Namur		Magerkohlen-Schichten	Sprockhöveler Schichten	Obere	290 m	Konglomerat über Fl. Neuflöz
				Untere	340 m	Liegende Werksandsteinbank

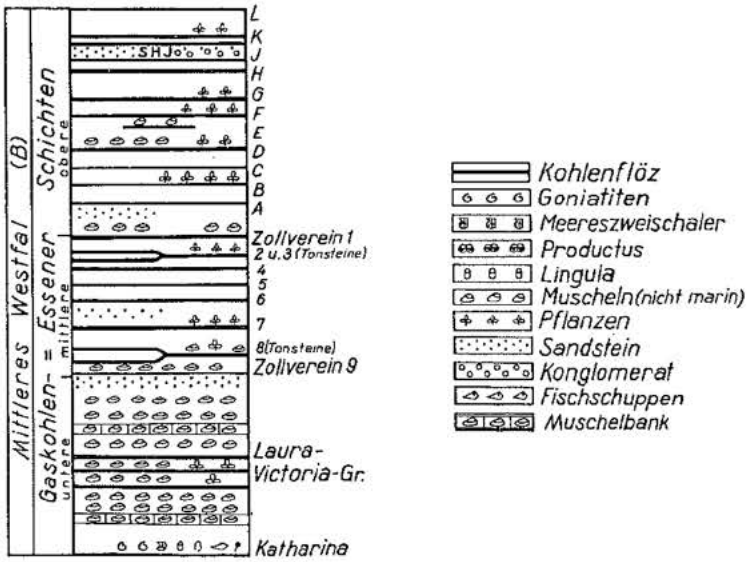


Abb. 9: Schematischer Schichtenschnitt durch die Essener Schichten (Kukuk und Hahne 1962)

Im Vergleich der Schichtengruppen des Steinkohlengebirges kann festgestellt werden, dass die Essener Schichten aufgrund des überwiegend tonigen Nebengesteins am ehesten für die Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in Betracht kommen. Dies entspricht der in der Machbarkeitsstudie für die Anwendung der Bruchhohlraumverfüllung empfohlenen Schichtengruppe. Auf das Erfordernis der Überprüfung der konkreten Verbringungssituation hinsichtlich der Gewährleistung des vollständigen Einschlusses sei in diesem Zusammenhang noch einmal hingewiesen.

3) Abstand von mindestens 20-25 m zur nächsttieferen und zur nächsthöheren Sohle

Ein Grubenwasserwiederanstieg nach Stilllegung des Bergbaus und Einstellung der Wasserhaltung ist hinsichtlich einer möglichen Schadstoffausbreitung besonders kritisch. Eine allmähliche Durchströmung des Verbringungsbereiches kann hierbei einen Schadstoffaustrag in das Grubenwasser bewirken. Um eine weitere Schadstoffausbreitung über Wasserwegsamkeiten in längerfristig offenen Grubenbauen zu unterbinden, fordert die Machbarkeitsstudie einen Abstand des Verbringungsbereiches von mindestens 20-25 m sowohl zur nächsttieferen als auch zur nächsthöheren Sohle. Bis zum Erreichen der fortgeschrittenen, „weit weniger kritisch zu beurteilenden“ (Jäger et al. 1990) Phase eines Grubenwasseranstiegs, in der sich der Verbringungsbereich dann bereits unterhalb des Grundwasserspiegels befindet, biete dieser Abstand eine hinreichende Sicherheit gegenüber einem Schadstoffaustrag aus dem verbrachten Material.

4) Teufe mindestens 800 m

Durch das im tiefen Bergbau hinreichende Ausmaß des Gebirgsdrucks der überlagernden Schichten – in der Machbarkeitsstudie wird eine Teufe von mindestens 800m gefordert – und durch den abbaubedingten, der Gewinnungsfront nacheilenden zusätzlichen Gebirgsdruck wird das Bruchhaufwerk inkl. des eingebrachten Materials in einen neuen Gebirgsverband überführt (äußere hydraulische Barriere); „das eingebrachte Material wird quasi in das Gebirge eingebaut – mit einer durch in-situ-Messungen nachgewiesenen sehr geringen Wasserdurchlässigkeit, praktisch Wasserdichtigkeit“ (Jäger et al. 1990).

Nach Hollmann (1995) kommt es im klastischen Gebirge gemäß der Abbildung 10 zu einer abbaubedingten Auflösung des Gebirgsverbandes in der Dachschichtenzone über dem Abbau, deren Mächtigkeit bei Bruchbau dem Dreifachen der in einem zusammenhängenden Teufenabschnitt „Verbandsauflösung/Verbandszerrüttung“ insgesamt gebauten Flözmächtigkeit abzüglich der wirksamen Versatzhöhe entspricht. Die Dachschichten lösen sich vom Haupthangenden und brechen in den Abbauhohlraum hinein.

Oberhalb der Zone der Verbandsauflösung erfolgt eine Zerrüttung und darüber eine Auflockerung des Gebirgsverbandes, die jeweils mit zunehmendem vertikalem Abstand vom Abbau abnehmen. Beim oberflächennahen Bergbau, dessen Teufe gemäß Abbildung 10 das 60-fache der Abbaumächtigkeit (abzüglich der wirksamen Versatzhöhe) nicht übersteigt, kann es unter Auflast zur Nachverdichtung von Gefügeauflockerungen kommen, beim tagesnahen Bergbau mit geringer Festgesteinsüberdeckung darüber hinaus zu Tagesbrüchen.

Der tiefe Bergbau, der zu einer Senkungsverformung der Erdoberfläche führt, umfasst alle Grubenbaue unterhalb der Teufengrenze des oberflächennahen Bergbaus. Nach dem Abklingen der Bewegungsvorgänge, im Steinkohlenbergbau in der Regel wenige Jahre nach dem letzten Abbau, befindet sich das Gebirge wieder in einem stabilen Zustand.

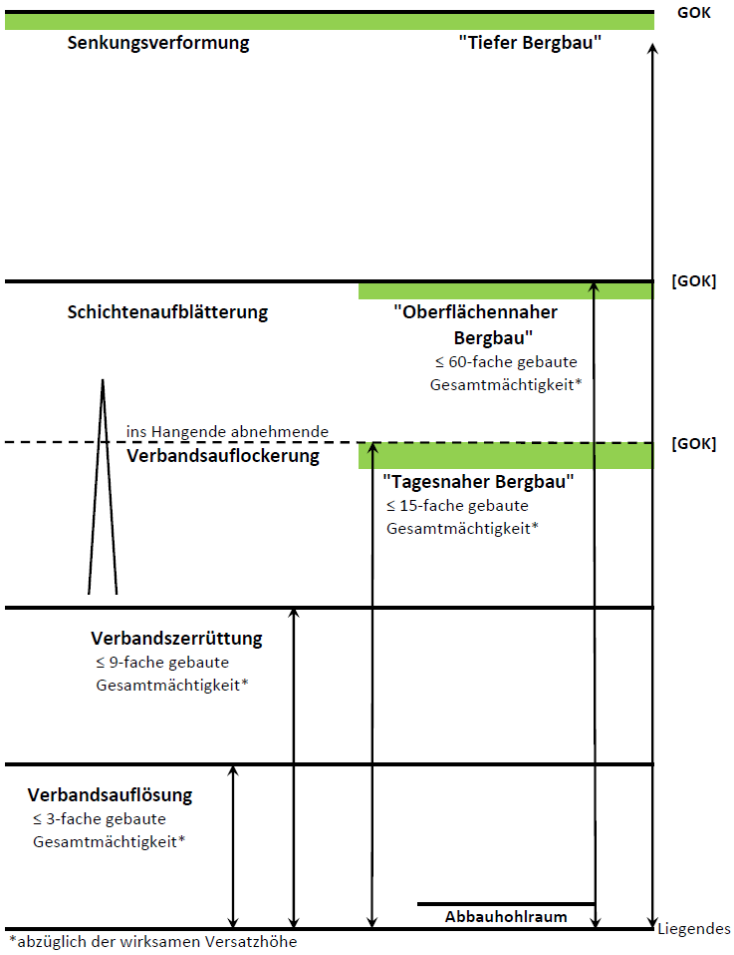


Abb. 10: Teufenabfolge der Phasen der Senkungsbewegung im klastischen Gebirge (nach Hollmann 1995)

Die geforderte Mindestteufe von 800 m gewährleistet somit die Kompaktierung des nachversetzten Bruchhaufwerks und des Nebengesteins in relativ kurzer Zeit, was in Verbindung mit der Forderung nach tonmineralreichem Nebengestein (Nr. 2, quasi-plastisches Verformungsverhalten) zu einer sehr geringen Wasserdurchlässigkeit des Verbringungsbereiches und seines näheren Umfeldes führt. Die zwischenzeitliche Beeinflussung des Gebirgsverbandes ist damit vor Beginn der Phase des Grubenwasserwiederanstieges (s. Nr. 3) neutralisiert, d. h. es kann von einer Abdichtung gegenüber längerfristig offenen Strecken und den durch diese gebildeten Wasserwegsamkeiten ausgegangen werden.

5) Sicherheitsabstand zu potenziellen Wasserwegsamkeiten

Ergänzend zur Grundvoraussetzung Nr. 3 fordert die Machbarkeitsstudie die Einhaltung oder ggf. durch Abdämmen gewährleistete Wiederherstellung eines Sicherheitsabstandes zu wasserführenden geologischen Störungen und weiteren potenziellen Wasserwegsamkeiten wie Schächten und Blindschächten. Die Dimensionierung des Sicherheitsabstandes könne z. B. auf Grundlage der bergbehördlichen Vorschriften über die Bemessung von Schutzfesten gegenüber untertägigen Wasseransammlungen (Standwässern) erfolgen.

6) Ausreichende hydrogeologische Systemkenntnis

Ein weiterer Aspekt der Gewährleistung des vollständigen Einschlusses sei die Verifizierung des Nichtvorhandenseins potenzieller Wasserwegsamkeiten, beispielsweise auf geologischen Störungen, im Umfeld des geplanten Verbringungsbereiches. Eine Vor-felderkundung zum Nachweis einer solchen Störungsfreiheit könne beispielsweise durch folgende Maßnahmen erfolgen:

- Über- oder Unterbauung in einem anderen Flöz
- Auffahren von Erkundungsstrecken
- Geophysikalische Messungen (Flözwellenseismik, Durchschallung)

In der Machbarkeitsstudie wurden noch weitere, in der Verbringungsphase hinsichtlich der Grubensicherheit und des Arbeitsschutzes erforderliche Voraussetzungen definiert sowie die Situationen während und nach einem Grubenwasserwiederanstieg diskutiert. Diese werden hier jedoch nicht betrachtet.

4.3 Rechtliche Einordnung der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen

Werden vom Bergbau über- oder untertägig geschaffene Hohlräume mit *bergbaulichen* Abfällen verfüllt, so handelt es sich um eine bergtechnische Verwertung dieser beim Aufsuchen, Gewinnen, Aufbereiten und Weiterverarbeiten von Bodenschätzen anfallenden Abfälle. Hierdurch wird z. B. die übertägige Haldenkapazität geschont. Darüber hinaus können auch geeignete *bergbaufremde* Abfälle mineralischen Ursprungs zur Verfüllung bergmännischer Hohlräume eingesetzt werden (Fürer 1991, Plate 1991), z. B. zur Überbrückung von Entsorgungsengpässen bezüglich dieser Stoffe.

Nach Plate (1991) orientiert sich die Risikobewertung der untertägigen Verwertung oder Beseitigung bergbaufremder Abfälle unabhängig von der Art des durchgeführten Zulassungsverfahrens an dem jeweiligen Gefährdungspotential dieser Stoffe: „Voraussetzung für die untertägige Verwertung oder Ablagerung ist auf jeden Fall der Nachweis der Unschädlichkeit insbesondere in ökologischer und arbeitssicherheitlicher Hinsicht. Der Nachweis der Unschädlichkeit in ökologischer Hinsicht bedeutet dabei vor allem den Nachweis der Grundwasserunschädlichkeit und zwar sowohl für den überschaubaren Zeitraum des Bergwerks- bzw. Deponiebetriebs, als auch für den Langfristzeitraum danach“.

Sind bergbaufremde Abfälle zur schadlosen Verwertung in einem Bergwerk vorgesehen, so wird das bergrechtliche Betriebsplanverfahren angewendet (Abb. 11; die in der Abbildung genannten Bezeichnungen sind zum Teil nicht mehr aktuell). Eine Verwertung liegt dann vor, wenn durch die Einbringung bergtechnische, grubensicherheitliche und bergwirtschaftliche Verbesserungen zu erzielen sind (vgl. Kap. 3). Das Betriebsplanverfahren berücksichtigt dabei in pragmatischer Weise die veränderlichen Bedingungen des fortschreitenden Bergbaubetriebes. Handelt es sich jedoch um eine Beseitigung in einem Bergwerk, bei der die Verbringung der Stoffe nicht bergtechnisch oder grubensicherheitlich begründet ist, so wird ein abfallrechtliches Genehmigungsverfahren oder Planfeststellungsverfahren mit UVP durchgeführt.

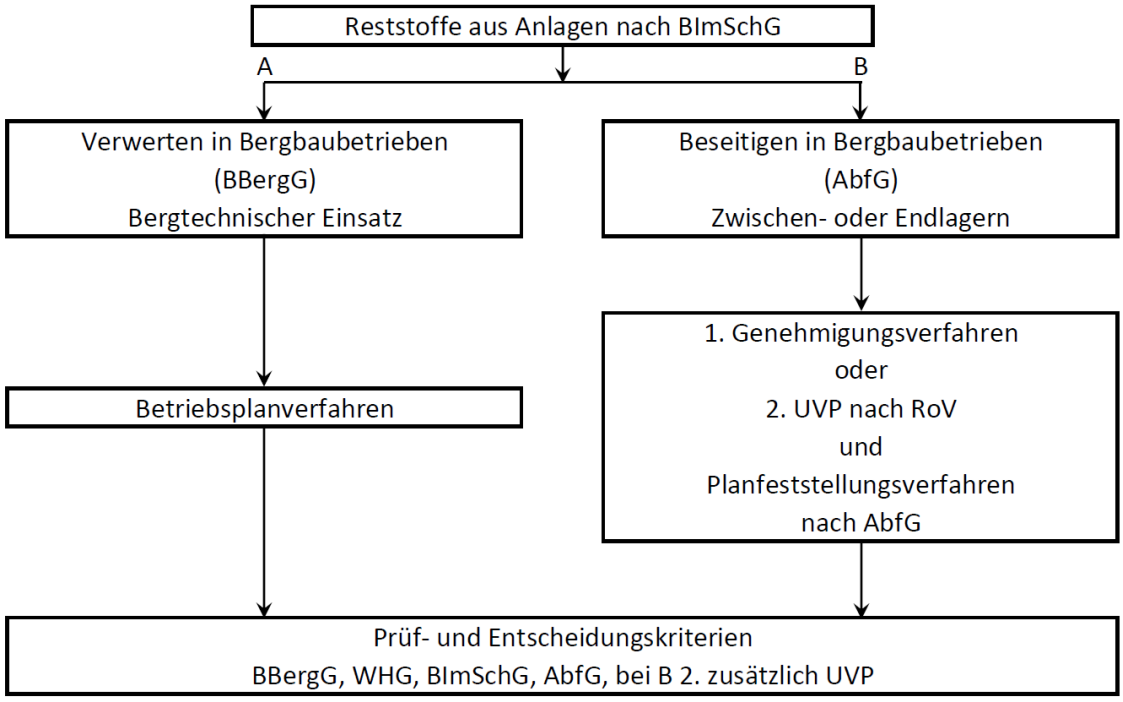


Abb. 11: Verwertung und Beseitigung bergbaufremder Abfälle in Bergwerken (nach Fürer 1991)

Für das Bergwerk Haus Aden/Monopol wurde am 12.02.1993 der erste Sonderbetriebsplan bezüglich der Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung durch das Bergamt Kamen zugelassen. Hierbei wurde festgelegt, dass außer Flotationsbergen und Feinbergen sowie Reststoffen aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen nur Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen sowie Gießerei-Altsande zur untertägigen Verwertung angenommen werden durften. In der Begründung der Zulassung wurde dargelegt, dass die Bruchhohlraumverfüllung bergtechnische, gruben- und arbeitssicherheitliche Ziele verfolgte und daher als Verwertung bergbaufremder Abfälle/Reststoffe eingestuft wurde.

Gegen diese Sonderbetriebsplanzulassung hatte der BUND geklagt. Dieser sah das Vorhaben als der Beseitigung von Abfall dienend an und hielt ein abfallrechtliches Planfeststellungsverfahren für erforderlich, in dessen Rahmen er hätte mitwirken, Einsicht in die einschlägigen sachverständigen Gutachten und Einfluss auf die Abwägung nehmen können.

Auf Grund der Klage des BUND bestätigte das Oberverwaltungsgericht für das Land Nordrhein-Westfalen in seinem Beschluss vom 18.7.1997 (Az: 21 B 1717/94) die Rechtmäßigkeit der untertägigen Abfallverwertung und damit der bergrechtlichen Zulassung: „Der Einsatz der … Reststoffe zur Bruchhohlraumverfüllung als Nachversatz ist stoffliche Verwertung, nämlich die Nutzung der stofflichen Eigenschaften der Stoffe zu einem konkreten Zweck, die eine auf die schadlose Verwahrung beschränkte bloße Ablagerung unnötig macht; …“.

Das OVG stellte bezüglich der Bruchhohlraumverfüllung unter anderem fest, dass

- nach Prüfung der Unterlagen es nicht zweifelhaft sein könne, dass die verwerteten, schadstoffhaltigen Stoffe Verfülleigenschaften besitzen,
- die Verfülleigenschaften der nachversetzten Stoffe zur Abdichtung der Bruchhohlräume und damit zu bergtechnischen und grubensicherheitlichen Zwecken genutzt werden, insbesondere zur Vermeidung der Gefahr von Selbstentzündungsbränden der Restkohle im Alten Mann und der Verbesserung der Grubenwetter im Streb und in den Abbaustrecken,
- die Nutzung der Verfülleigenschaften der Hauptzweck der Verwertung und nicht ein untergeordneter Nebeneffekt einer eigentlich beabsichtigten Beseitigung der Abfälle sei,
- auch gegenüber den seitens der RAG für die Abnahme der Abfälle erzielten Erlöse die versatztechnischen Vorteile maßgebend seien,
- die bergrechtliche Betriebsplanzulassung nach Verfahren und nach materiellen Zulassungsvoraussetzungen so ausgestaltet sei, dass mögliche Gefährdungen der menschlichen Gesundheit, der Umwelt oder anderer rechtlich geschützter öffentlicher und privater Belange verhindert werden müssen,
- die Bergbehörde im Betriebsplanzulassungsverfahren entgegenstehende überwiegende öffentliche Interessen zu prüfen habe,
- Betriebsplanzulassungen damit auch den europarechtlichen Vorgaben für die Genehmigung von Anlagen zur Verwertung von Abfällen genüge.

Demgegenüber wurden jedoch mit der am 30. Oktober 2002 in Kraft getretenen Verordnung über den Versatz von Abfällen unter Tage unter anderem „stoffliche Anforderungen…für Versatzstandorte, die nicht im Salzgestein liegen und nicht den dauerhaften Abschluss der Abfälle durch einen Langzeitsicherheitsnachweis belegen können, rechtsverbindlich festgelegt“ (Bundesministerium für Umwelt 2002, Frenz 2003). Hiermit sollte die Einbringung von hoch schadstoffhaltigen Abfällen als Versatz in solchen Bergwerken ausgeschlossen werden, „die nicht den dauerhaften Abschluss von der Biosphäre im Salzgestein gewährleisten“. Ausnahmen von den in der Verordnung definierten Schadstoffgrenzwerten sind nur dann zugelassen, wenn die Abfälle die geogenen Schadstoffgrundgehalte des aufnehmenden Gesteins nicht überschreiten. Darüber hinaus dürfen Hohlräume im Kohle- und Nebengestein mit Abfällen aus der Kohleverfeuerung verfüllt werden.

Aufgrund von Übergangsregelungen waren die in der Versatzverordnung genannten Anforderungen spätestens ab dem 1. März 2006 einzuhalten. Im Jahr 2004 endete der Einsatz der Bruchhohlraumverfüllung im deutschen Steinkohlenbergbau.

5 Untertägige Verbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle im Bergwerk Haus Aden/Monopol nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses

5.1 Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung

In den Jahren 1982 bis 1984 wurde die „DMT-Technologie zur Bruchhohlraumverfüllung" entwickelt (Hamm 1991) und anschließend in Zusammenarbeit mit der RAG zur Betriebsreife geführt. Hierdurch wurde eine neue Möglichkeit geschaffen, bei der Kohlenaufbereitung anfallende bergbauliche Abfälle sowie Rückstände aus der Kohlenverbrennung, die vom Bergbau übernommen wurden, untertägig zu verbringen (Czech 1993, Siepmann und Sill 1991, Thiehofe 1991).

Bei der Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung baute DMT[1] (damals Bergbau-Forschung GmbH) auf den Arbeiten zur Herstellung hochkonzentrierter Kohle-Wasser-Suspensionen (Dürrfeld et al. 1984), den Fortschritten beim Pumpen von Beton und Mörteln in der Bauindustrie und den Arbeiten zur Entwicklung des Pumpversatzverfahrens für das Erzbergwerk Grund (Lerche und Renetzeder 1984) auf. Die Tabelle 5 gibt einen Überblick über die Entwicklung des Verfahrens.

Tab. 5: F+E-Projekte zur anlagen- und materialtechnischen Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung im Steinkohlenbergbau

Zeitraum	Titel des Projekts bzw. Abschlussberichts	Projektleitung	Projektförderer
1982 bis 1984	Verfahren zum Versetzen der Hohlräume eines Bruchfeldes (Patent) Rohrleitungen für das Nachversetzen von untertägigen Hohlräumen (Patent)	DMT	
bis 1987	Verfahrenstechnik in geneigter Lagerung	DMT	Land NRW
bis 1988	Grundlagenuntersuchungen für das hydraulische Deponieren von feinkörnigen Abfallprodukten und Weiterentwicklung des pneumatischen und hydraulischen Transports von Dammbaustoffen	DMT	Land NRW
1985 bis 1988 Anschlussprojekt bis 1994	Verfüllung des Bruchhohlraums und anderer abgeworfener Grubenbaue mit Flugasche und anderen feinkörnigen Abfallprodukten durch hydraulische Förderung vom Tage aus	DMT	EGKS, Land NRW
1986 bis 1987	Verringerung von Bergschäden und Reduzierung der übertägigen Deponien durch Einbringen von Aufbereitungs- und Kraftwerksabgängen in den Grubenbetrieb – Hydraulische Senkrechtförderung	DMT	Land NRW
1985 bis 1986	Entwicklung eines Verfahrens für das Einbringen von Flugasche und anderen feinkörnigen Verbrennungsrückständen in untertägige Bruchhohlräume (Versuche auf dem Bergwerk Walsum)	RAG, DMT	Bund
1986 bis ca. 1990	Untersuchung zur Verwendung von Kraftwerksrückstanden in Bergwerken (Versuche auf dem BW Consolidation/Nordstern)	RAG, DMT	Bund

[1] Die DMT ist ein aus der Forschung und Lehre im Ruhrbergbau hervorgegangenes, weltweit in den Branchen Bergbau, Bauwesen und Anlagenbau agierendes Dienstleistungsunternehmen mit Hauptsitz in Essen.

1986 bis 1991	Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume (BW Walsum und Monopol)	RAG, DMT	Bund

Die Auflistung in der Tabelle 5 zeigt, dass dem betrieblichen Einsatz der Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol ein intensiver Entwicklungs- und Erprobungsprozess vorausging, an dem ein öffentliches Interesse bestand.

5.2 Technischer Ablauf der Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol und Dokumentation der Versatzbereiche

Im Bergwerk Haus Aden/Monopol erfolgte von August 1990 bis Juni 1991 im Rahmen eines bergbehördlich zugelassenen großtechnischen Versuchs die Einbringung von Flotationsbergen (nicht überwachungsbedürftige, bergbauliche Abfälle aus der Steinkohlenaufbereitung) als Feststoff-Wasser-Gemisch in den Bruchhohlraum der Bauhöhe Gb6 (Bauhöhe 6 im Flöz Grimberg 2/3, Abb. 12).

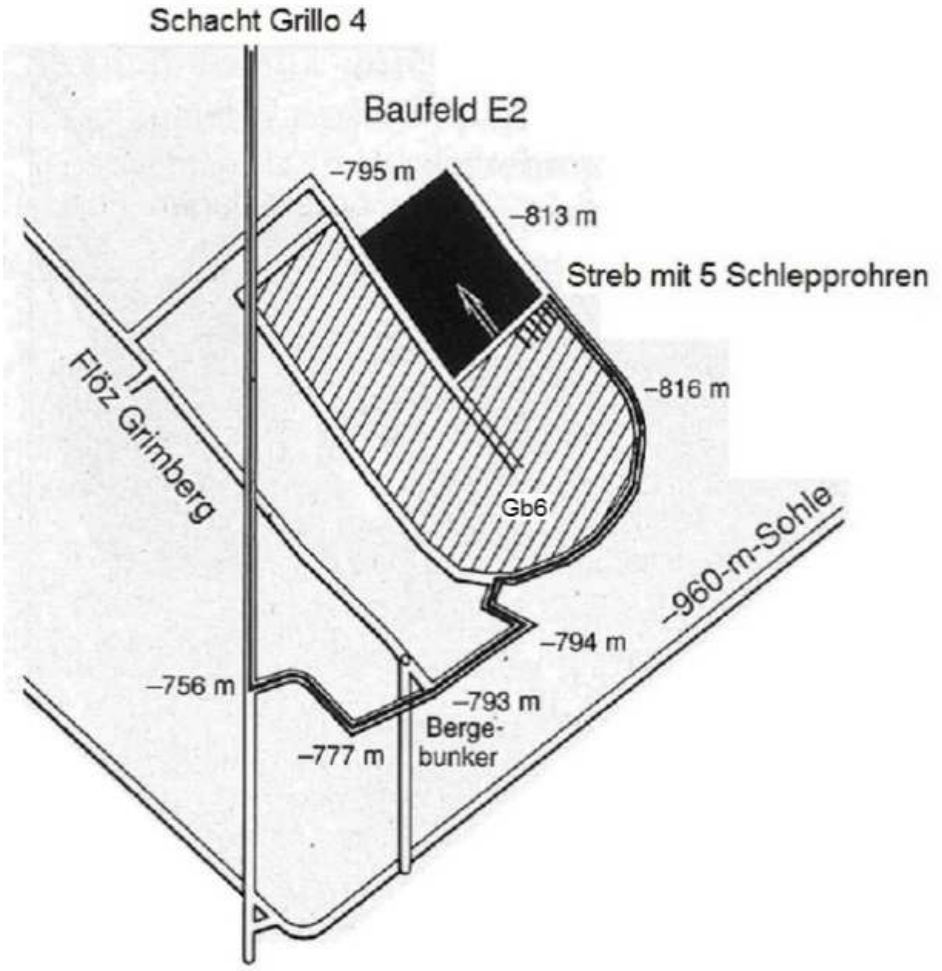


Abb. 12: Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaulichen Abfällen im Zuge des Abbaus der Bauhöhe Gb6, Anschluss an die seigere Rohrleitung im Schacht Grillo 4 und Anordnung der Schlepprohre (Siepmann und Sill 1991)

Nach weiterer bergrechtlicher Zulassung (Kap. 6) wurden von April 1993 bis Februar 1998 im Flöz Grimberg 2/3 bergbaufremde, besonders überwachungsbedürftige Abfälle zur Verwertung in die Versatzfelder der Bauhöhen Gb1, Gb2, Gb16, Gb17 und Gb31 eingebracht. Eine auf Grundlage umfangreicher Auswertungen des Risswerks erstellte Übersichtsdarstellung dieser Bruchhohlraumverfüllung zeigt die Abbildung 13. Mit *bergbaufremden* Abfällen nachversetzte Bereiche sind rot, mit *bergbaulichen* Abfällen nachversetzte Bereiche grün gekennzeichnet. Die Abbildung enthält auch die Umrisslinien des Abbaus in zwei Flözen ca. 600 m unterhalb von Flöz Grimberg 2/3.

Im Vergleich zum gesamten Abbaubereich dieses Bergwerks handelt es sich beim Abbau im Flöz Grimberg 2/3 in den Baufeldern Monopol E1, E2, E3 um einen relativ kleinen Bereich.

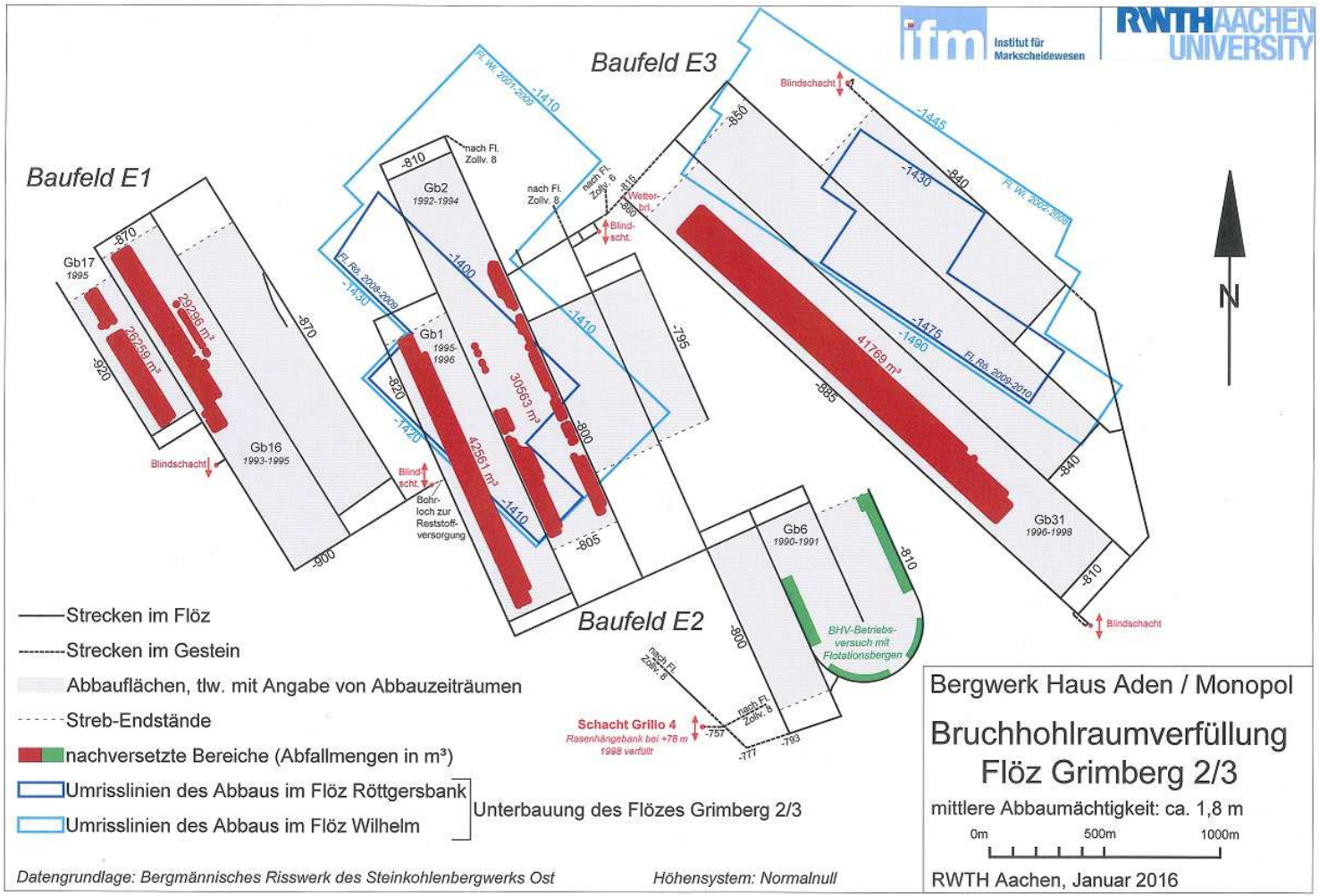


Abb. 13: Nachversatz durch Bruchhohlraumverfüllung in Teilbereichen des Abbaus im Flöz Grimberg 2/3, Baufelder E1, E2 und E3 des BW Haus Aden/Monopol

Die für die Bruchhohlraumverfüllung benötigten technischen Einrichtungen wurden von der RAG im „Rahmenkonzept für die Verbringung von Gemischen aus Flotationsbergen sowie Flugaschen und –stäuben […] und Rauchgasreinigungsrückständen […] aus Hausmüllverbrennungsanlagen […] zur Bruchhohlraumverfüllung“ vom 10.04.1991 beschrieben:

Die übertägige Anlage (Abb. 14) zur Herstellung der Feststoff-Wasser-Gemische mit hohem Feststoffanteil wurde vom Bergamt Kamen in einem Sonderbetriebsplan vom 25.08.1988 zugelassen.

Die Flotationsberge und die Schlämme aus der Rauchgas-Abwasserreinigungs-Anlage (RAA-Schlämme) wurden in Fahrzeugen angeliefert. Die feinkörnigen, pulverförmigen und trockenen Filterstäube aus den HMVA wurden in geschlossenen Silofahrzeugen angeliefert und mittels Druckluft über Schlauch- und Rohrleitungen in Silos vor Ort umgefüllt. Die Silos waren mit Abluftfiltern und Überblaseinrichtungen versehen. Die Mischstation mit den Silos stand unmittelbar östlich des Schachtes Grillo 4.

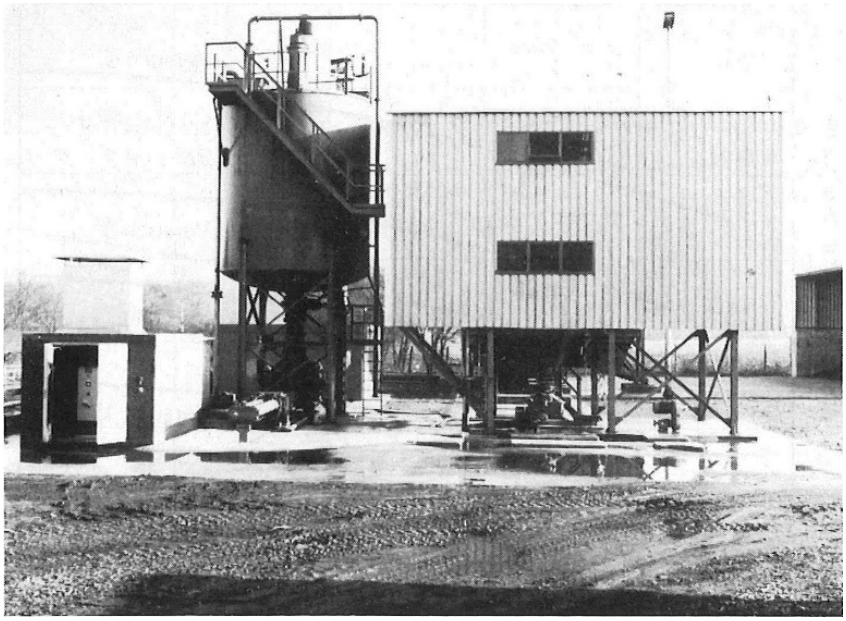


Abb. 14: Die BHV-Versuchsanlage am Schacht Grillo 4 (Siepmann und Sill 1991)

Gemäß der zuvor gewählten Rezeptur wurden die einzelnen Stoffe einem Chargenmischer zugeführt. Unter Zugabe von Wasser wurde das Feststoff-Wasser-Gemisch zu einer pastösen Masse angerührt. Diese Mischung wurde zunächst in einen Vorratsbehälter gepumpt. Von hier wurde es über eine Doppel-Kolbenpumpe der Schacht- und Streckenleitung zugeführt. Gemäß Tabelle 2 des Zwischenberichtes vom 14.3.2016 lag der Anteil der Reststoffe am Feststoff-Wasser-Gemisch zwischen 34 und 80 %.

Im Schacht und in den Strecken erfolgte die Förderung über Rohrleitungen DN150/PN160, teilweise DN150/PN200 (vgl. Kap. 3, Abb. 8). Als Förderenergie diente Pumpenenergie sowie der hydrostatische Druck in der Schachtleitung. In den Streben wurden Rohrleitungen DN100/PN100 eingesetzt. Aus den Strebleitungen wurden ca. 15 m lange, im Abstand von 15 bis 20 m zwischen den Einheiten des Schildausbaus verlegte, in das Bruchfeld hineinragende Schlepprohre beaufschlagt (Abb. 15). Über diese Schlepprohre wurde die Suspension in den Bruchhohlraum eingebracht.

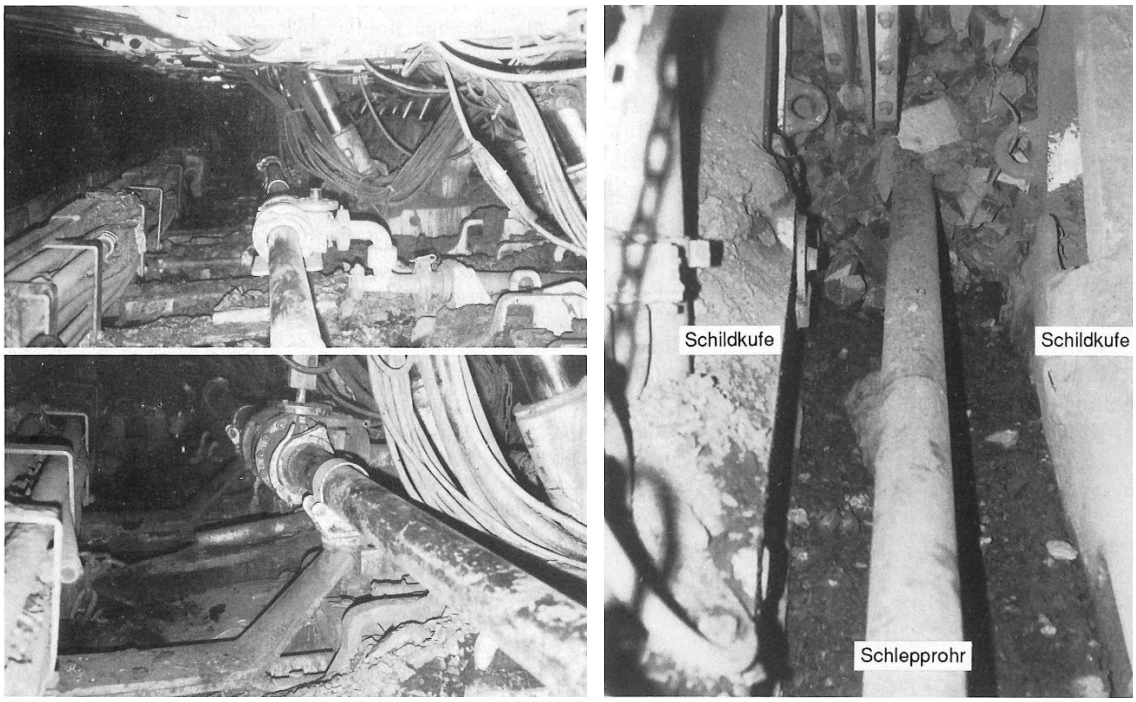


Abb. 15: Nachversatz aus dem Strebraum mit Schlepprohren
links oben: Strebrohrleitung mit Schlepprohrabzweig; links unten: Lagerung der Strebrohrleitung auf einem Schreitwerk (Siepmann und Sill 1991); rechts: Schlepprohr zwischen den Kufen benachbarter Schilde (Hamm 1991)

Die eingebrachten Nachversatzmengen machten nur wenige Volumenprozente eines verbrochenen Bereichs aus (Abb. 16). In den Abschlussberichten wurden die erreichten verpressten Mengen mit 0,1 bis 0,5 m^3 pro m^2 abgebauter Fläche angegeben.

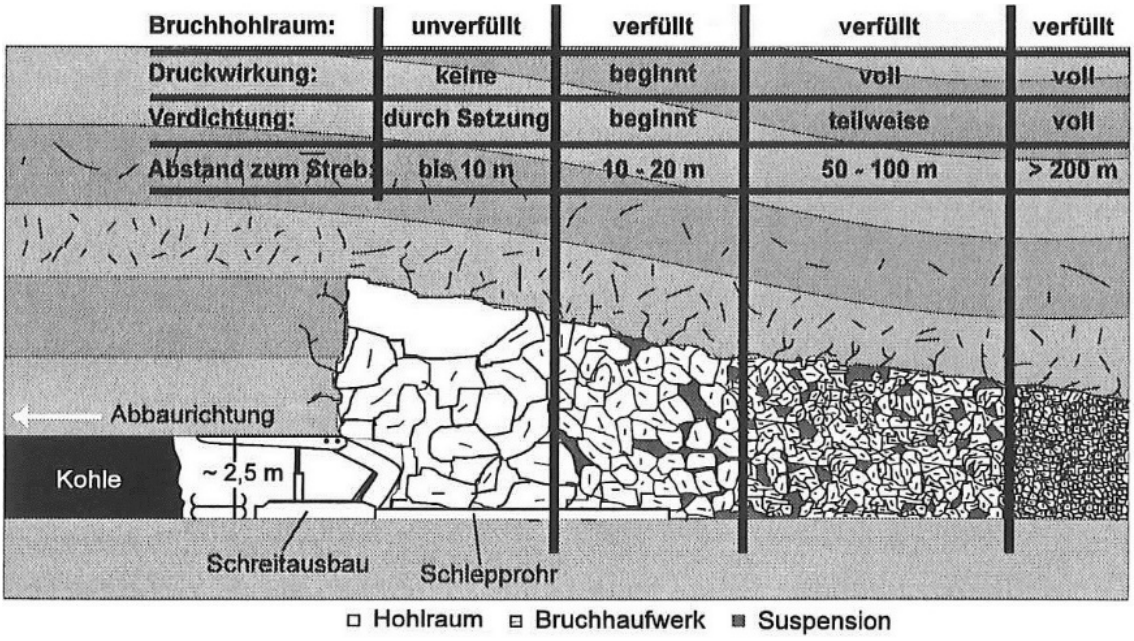


Abb. 16: Prinzipschnitt Bruchhohlraumverfüllung und Stadien der Kompaktierung (Hildebrandt 1997)

5.3 Eignung der eingebrachten Abfallstoffe als Versatz, Qualitätssicherungsprogramm, Einfluss der Unterbauung

Ungeeignet für eine Verbringung im Steinkohlenbergbau sind insbesondere folgende Stoffe (Landesamt für Wasser und Abfall 1987, Plate 1991):

- Abfälle pflanzlichen und tierischen Ursprungs sowie von Veredlungsprodukten
- Abfälle chemischer Umwandlungs- und Syntheseprodukte
- radioaktive Abfälle
- Siedlungsabfälle
- explosible, selbstentzündliche, leicht entflammbare, gefährlich ausgasende und infektiöse Stoffe

Im Bergwerk Haus Aden/Monopol durften im Zuge des Abbaus im Flöz Grimberg 2/3 gemäß der durch die Bergbehörde erteilten Zulassungen der Sonderbetriebspläne (Kap. 6.3) nur nachfolgend genannte Abfälle angenommen und verbracht werden. Hierbei handelte es sich um Stoffe staubförmiger oder rieselfähiger oder stichfester Konsistenz:

1) bergbauliche Abfälle: Flotationsberge und Feinberge unter 5 mm Korngröße
2) Abfälle aus steinkohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen
3) Filterstäube (RSN 31309) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen
4) Rauchgasreinigungsrückstände (RSN 31312) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen
5) Gießerei-Altsande (RSN 31401)

Abfälle aus steinkohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen sind nach § 4 Abs. 2 Zi. 2 der Versatzverordnung von 2002 auch heute geeignet für die Verbringung im Kohle- und dessen Nebengestein. Die Abfallarten Nr. 3 bis 5 wurden im Rahmen der Machbarkeitsstudie näher untersucht; für diese kam aufgrund des möglichen Schadstoffaustrages nur die untertägige Verbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses (Kap. 4.2.2) in Betracht.

Untersuchungen zur Verifizierung des vollständigen Einschlusses der mithilfe der Bruchhohlraumverfüllung eingebrachten Abfälle

Insbesondere das Verfestigungsverhalten des nachversetzten Dickstoffes, das Erzielen einer Wasserdichtigkeit und das Verhindern eines Schwermetallaustrages entscheiden im Hinblick auf einen vollständigen Einschluss über die Eignung der Abfallstoffe als Versatz.

Nach Maurer und Sill (1989) ist bei der Bruchhohlraumverfüllung mit Feststoff-Wasser-Gemischen die wichtigste Bedingung, dass kein Wasser aus dem verbrochenen und nachversetzten Abbauraum austritt. Vorversuche zeigten in diesem Zusammenhang,

dass naturtrockene Bruchberge eine Wasseraufnahmefähigkeit aufweisen, die zur Aufnahme des überschüssigen Transportwassers ausreichen kann.

1988 wurde im Bergwerk Walsum in einem Bruchfeld, das mit einem Elektrofilterasche-Flotationsberge-Wasser-Gemisch nachversetzt worden war, acht Monate nach Strebdurchgang eine 31 m lange und 3,3 m hohe Untersuchungsstrecke (Abb. 17 und 18) aufgefahren (Hamm 1991, Thiehofe 1991). Am Ende dieser Strecke wurde diese auf 7,3m hochgebrochen. Das Nachversatzmaterial, das über 3,6 m hochgedrückt worden war und sich in Klüfte und Risse des Bruchhaufwerks verteilt hatte, wurde weitgehend entwässert und standfest angetroffen. Das nachversetze Bruchfeld war bereits so weit verfestigt, dass der Streckenvortrieb durch Sprengarbeit erfolgen musste.

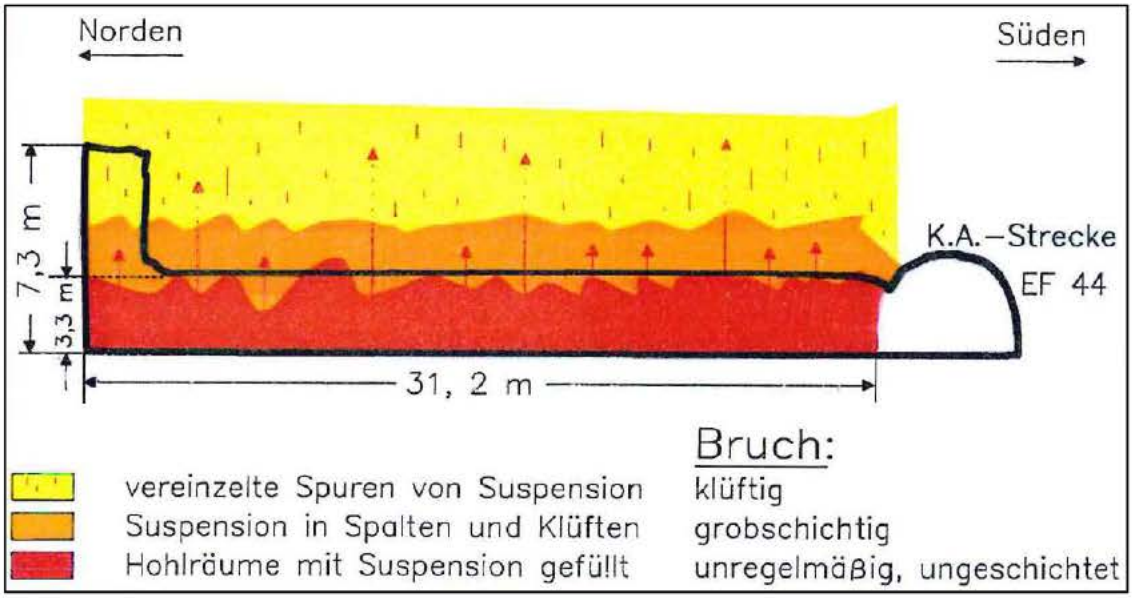


Abb. 17: Bergwerk Walsum, Untersuchungsstrecke im nachversetzten Bruchfeld (Thiehofe 1991)

Während der Bruchhohlraumverfüllung und in der Zwischenzeit bis zur Auffahrung der Untersuchungsstrecke wurden keine Austritte von Überschusswasser beobachtet. Dies führte zu dem Schluss, dass dieses Wasser vom Bruchhaufwerk und vom Nebengestein gebunden wurde. Wasserdruckversuche über Bohrlöcher, die aus der Untersuchungsstrecke in das Bruchfeld gestoßen wurden, ergaben, dass das nachversetzte Bruchfeld „hydrogeologisch als sehr gering wasserdurchlässig anzusehen“ war.

Im Rahmen der im Bergwerk Haus Aden/Monopol durchgeführten Bruchhohlraumverfüllung kam es zu Betriebsstörungen, die im Kapitel 11 des Zwischenberichtes vom 1.6.2016 aufgelistet und vorläufig bewertet wurden: „Die betriebsbedingten Störungen sind letztlich kein In-situ-Nachweis, zeigen aber deutlich das Erstarren der Mischungen durch die festgestellten Viskositätsänderungen“; weitere Ausführungen hierzu sind im Detailbericht 3 (LFH, Prof. [redacted]) zu finden.

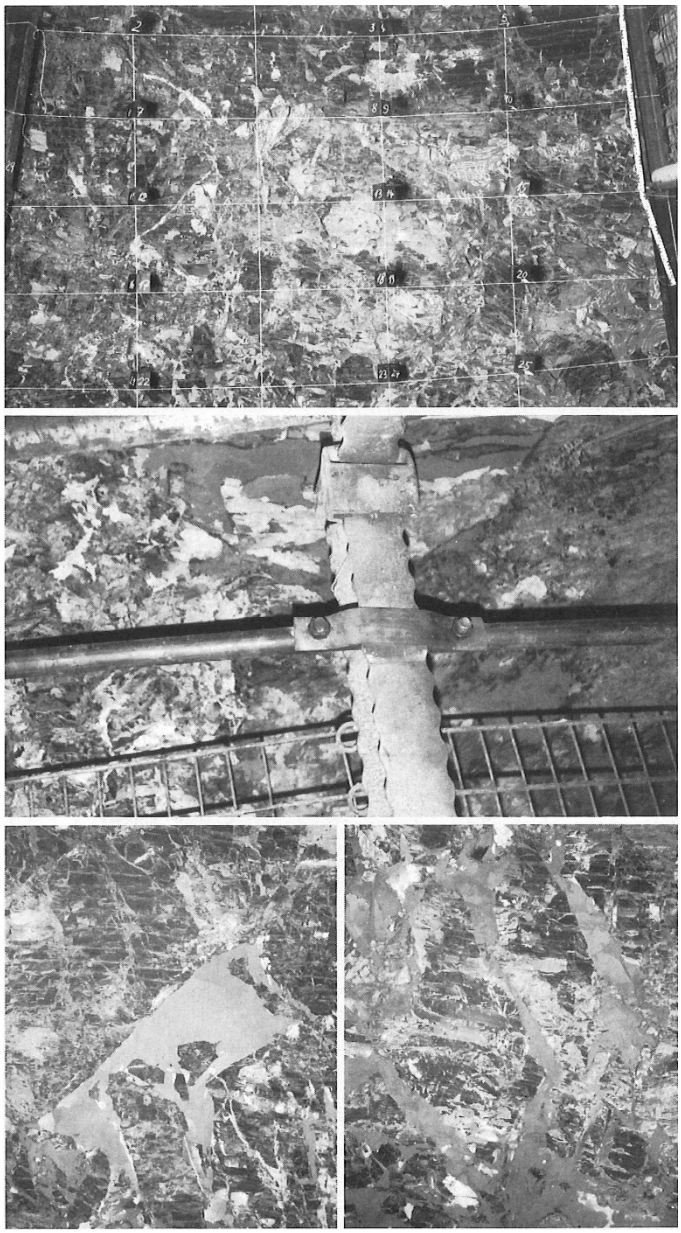


Abb. 18: Ortsbrust (oben) und Streckenstoß (Mitte) einer Untersuchungsstrecke im nachversetzten Bruchhaufwerk im Bergwerk Walsum (Hamm 1991)
unten: Nahaufnahmen des Gefüges aus Bruchbergen und Nachversatzgut

Bergbehördlich gefordertes Qualitätssicherungsprogramm

Im Zuge eines bergbehördlich geforderten Qualitätssicherungsprogrammes, das vom Institut für Bergbauwissenschaften der TU Berlin im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH koordiniert und wissenschaftlich begleitet wurde (Wilke und Dartsch 1995), konnte nachgewiesen werden, „dass sich die in der Machbarkeitsstudie aufgestellten Annahmen bezüglich des Prinzips des vollständigen Einschlusses uneingeschränkt im Labor als auch in situ bestätigen ließen. Die aus diesen Annahmen abgeleiteten Anforderungen geologischer, hydrogeologischer und verfahrenstechnischer Art für eine umweltverträgliche Einbringung von Abfallstoffen sind demzufolge uneingeschränkt und in vollem Umfang erfüllt, teilweise übererfüllt."

Innerhalb eines Zeitraumes von 36 Monaten wurden insbesondere die räumliche und zeitliche Entwicklung des Gebirgsdrucks im nachversetzten Bruchfeld und die sich hieraus ergebende Verdichtung des Nachversatzgutes sowie Abnahme der Wasserdurchlässigkeit des Gebirges untersucht. Im Zuge der Machbarkeitsstudie konnten diese für die Gewährleistung des vollständigen Einschlusses wesentlichen Parameter mangels ausreichender In-situ-Messwerte noch nicht abschließend beurteilt werden. Es wurden unter anderem folgende Untersuchungsergebnisse erzielt (Wilke und Dartsch 1995):

- Im Zuge von Laboruntersuchungen an verdichteten Abfällen von Hausmüllverbrennungsanlagen wurde eine Durchlässigkeitsverringerung mit steigender, zunehmenden Verbringungsteufen entsprechender Verdichtung des jeweiligen Probekörpers identifiziert.

- Die Probekörper waren in den meisten Fällen schwach oder sehr schwach durchlässig. Erfolgte der Elutionsvorgang unter Last, so waren die ermittelten Durchlässigkeiten um Größenordnungen niedriger als bei verdichteten, aber spannungsfrei eluierten Proben.

- Eine untertägigen Gebirgstemperaturen entsprechende Erhöhung der Versuchstemperatur wirkte sich tendenziell positiv auf die Durchlässigkeit und den Schadstoffaustrag aus.

- Hinsichtlich der Konzentrationen und der absolut ausgetragenen Schadstoffmengen wurde tendenziell ein Rückhaltevermögen des Nebengesteins festgestellt.

- Untertägige messtechnische Ermittlungen der Gebirgsdruckentwicklung bestätigten den für den vollständigen Einschluss erforderlichen Anstieg des Gebirgsdruckes in nachversetzten Bruchfeldern, die in einer Teufe unterhalb 800 m bereits während der bergbaulichen Betriebsphase unter erhebliche Druckeinwirkungen gerieten. In der flachen Lagerung (Nachversatzbetriebe im Bergwerk Haus Aden/Monopol) erfolgte der Druckaufbau deutlich schneller als in der geneigten Lagerung (Nachversatzbetrieb im Bergwerk Hugo/Consolidation). Mit zunehmender Entfernung einer Messstelle von einem als Widerlager wirkenden, nicht abgebauten Flözteil wurden jeweils höhere Drücke gemessen.

- Untertägige Wasser-Druck-Tests ergaben für nachversetzte Bruchräume eine geringere Gebirgsdurchlässigkeit als für unmittelbar angrenzende, nicht nachversetzte Bruchräume. Die Ausbildung einer inneren hydraulischen Barriere im Zuge der durch den Gebirgsdruck erfolgenden gemeinsamen Verdichtung von Bruchhaufwerk und Nachversatzgut wurde somit bestätigt.

Einfluss der Unterbauung

Ein in der geneigten Lagerung in einer Teufe zwischen 1.075 und 1.233 m gefahrener Nachversatzbetrieb der Schachtanlage Consolidation wurde in einem bankrechten Abstand von rund 30 m im nächsten bauwürdigen Flöz unterbaut (Skrzyppek et al. 1993). Zwei Bohrungen wurden in einem horizontalen Abstand von 9 m und auf eine Länge von 12 bzw. 14 m in das nachversetze Bruchfeld niedergebracht, um zu prüfen, ob die Unterbauung dort zu Auflockerungen und Wasserwegsamkeiten zu benachbarten Flözhorizonten geführt hatte. Der Bereich um die beiden Bohrungen war kurz zuvor unterbaut worden und befand sich daher temporär in der Zone einer Gebirgsdruckentlastung als Folge des Absinkens der Hangendschichten über dem 30 m tieferen Abbau. Bei beiden Bohrungen traten keinerlei Spülverluste auf, der bisher auf diesen Bereich wirksame Gebirgsdruck hatte das Bruchhaufwerk und den Nachversatz offensichtlich ausreichend kompaktiert.

Im Bergwerk Haus Aden/Monopol erfolgte ebenfalls eine Unterbauung von Nachversatzbetrieben. Diese fand einige Jahre nach der Bruchhohlraumverfüllung im Flöz Grimberg 2/3 rund 600 m tiefer in den Flözen Röttgersbank und Wilhelm statt. In der Abbildung 13 sind die Umrisslinien der Unterbauung dargestellt. Gemäß der in der Abbildung 10 nach Hollmann (1995) dargestellten Teufenabfolge der Phasen der Senkungsbewegung im klastischen Gebirge nimmt die Verbandsauflockerung ins Hangende ab. Die Teufendifferenz von 600 m lässt im Vergleich mit dem im Bergwerk Consolidation erzielten Untersuchungsergebnis vermuten, dass die Unterbauung der nachversetzten Bruchfelder im Flöz Grimberg 2/3 nicht zu Auflockerungen und Wasserwegsamkeiten führte.

6 Bergrechtliches Zulassungsverfahren für die Verwertung bergbaufremder Abfälle als Versatz im Bergwerk Haus Aden/Monopol

6.1 Genehmigungsgrundlagen

Immissionsneutrale Verbringung

Die Betreiber von Kraftwerken, Heizwerken und Feuerungsanlagen konnten deutsche Kohlen zum Teil nur noch dann abnehmen, wenn die Kohlelieferanten die Entsorgung der Kraftwerksabfälle gewährleisteten (Czech 1993). Während dies im Braunkohlenbergbau ohne besondere Schwierigkeiten möglich war, mussten für eine untertägige Verbringung im Steinkohlenbergbau geeignete Techniken entwickelt werden (Kap. 5).

Die Wasser- und Abfallbehörden des Landes NRW stuften die untertägige Verbringung von Kohlekraftwerksabfällen im Steinkohlenbergbau basierend auf der Kenntnis über die wasserwirtschaftlichen Auswirkungen als immissionsneutral ein. Aufgrund der im Zuge von Probebetrieben erzielten Ergebnisse erfolgte im Jahr 1987 die generelle Zulassung zur Untertageverbringung dieser Abfälle mit zwei Rundverfügungen des damaligen Landesoberbergamts NRW:

1) Teil- und Nachversatz mit Reststoffen aus kohlegefeuerten Kraftwerken und Feuerungsanlagen (Aschen und Stäube, Nassentschwefelungsgips, -sulfit, Schlämme aus der Kesselabwasser- und Speisewasseraufbereitung und aus der Kühlturmabschlämmung) – 18.21.2–2–4 -. Rundverfügung an die Bergämter des Landes Nordrhein-Westfalen vom 16.12.1987.

2) Kurzbeschreibung der in der Rundverfügung des Landesoberbergamts NRW vom 16.12.1987 aufgeführten Verfahren des Teil- und Nachversatzes in Steinkohlenbergwerken. Rundverfügung an die Bergämter des Landes Nordrhein-Westfalen vom 28.12.1987.

Auf dieser Grundlage durften die Betriebspläne für Versatzbetriebe ohne eine weitergehende wasserwirtschaftliche Prüfung von den Bergämtern zugelassen werden, und zwar unter der Bedingung, dass

– „die Menge des Überschusswassers auf weniger als 10% der Einsatzwassermenge begrenzt wird und

– der Nachversatz in Teufen unterhalb von -800 m NHN eingebracht wird, da hier von einer geogen bedingten gleichartigen Belastung des Grundwassers auszugehen und somit eine nachteilige Veränderung des Grundwassers im Sinne von § 34 Abs. 2 WHG nicht zu besorgen ist.“

Die beiden Rundverfügungen wurden zuvor in einer aus Vertretern nordrhein-westfälischer Behörden bestehenden Arbeitsgruppe abgestimmt (Czech 1993):

- Ministerium für Wirtschaft, Mittelstand und Technologie
- Ministerium für Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft
- Landesamt für Wasser und Abfall
- Geologisches Landesamt

- Regierungspräsident Arnsberg
- Regierungspräsident Düsseldorf
- Landesoberbergamt

Verbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses

In der – im Auftrag des damaligen Landesamtes für Wasser und Abfall NRW durchgeführten – *Machbarkeitsstudie* (Jäger et al. 1990) wurden Möglichkeiten zur Verbringung weiterer Abfallarten (Kap. 5.3) untersucht. Die Praxis der immissionsneutralen Verbringung von Kraftwerksabfällen wurde hierbei bestätigt und darüber hinaus im Rahmen eines Multibarrierenkonzeptes Anforderungen an die Verbringung bestimmter nicht immissionsneutraler Abfälle definiert.

Da der vollständige Einschluss nicht immissionsneutraler Abfälle nur unter besonderen geologischen und technischen Bedingungen gewährleistet werden kann, sollte in Arbeitskreisen unter Federführung des Landesoberbergamts NRW geprüft werden (Kap. 6.2), ob die in der Machbarkeitsstudie geforderten Voraussetzungen (Kap. 4.2.2) im Falle konkret geplanter Versatzbereiche auch tatsächlich vorlagen. An diese Prüfung schloss sich standortspezifisch die Durchführung des bergrechtlichen Betriebsplanverfahrens an.

Den ab 1993 erfolgten bergrechtlichen Zulassungen von Nachversatzbetrieben im Bergwerk Haus Aden/Monopol lagen folgende Unterlagen zugrunde:

- Betriebsplananträge des Bergbauunternehmens mit Anlagen

- Schlussbericht über das vom BMFT vom 1.4.1987 bis 30.6.1991 unterstützte Forschungs- und Entwicklungsvorhaben "Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume", Förderungskennzeichen 03226416 B (RAG-Kenn-Nr. 03610100)

- Machbarkeitsstudie "Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen" (Jäger et al. 1990: Band 1, 2, 3, 4; Kapitel I, II, III, IV, V)

- Auf die geplanten Versatzbereiche bezogene gutachtliche Stellungnahmen zur Einhaltung der in der Machbarkeitsstudie definierten Bedingungen für die Untertageverbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses

- Ergebnisse der Sitzungen des Arbeitskreises "Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“

- Ab 30.12.1994 die vom Länderausschuss Bergbau erarbeiteten „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Reststoffen/Abfällen als Versatz unter Tage – Technische Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfällen als Versatz (vom 11.10.1994)“.

6.2 Begleitende Prüfung durch den Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“

Im Jahre 1991 wurde im Hinblick auf die Verwertung von Abfällen aus der Hausmüllverbrennung als Nachversatz im Steinkohlenbergbau zwischen der Bergbehörde NRW und dem Bergbauunternehmen folgende Absprache getroffen und in der Verfügung des damaligen Landesoberbergamtes NRW vom 18.01.1991 dokumentiert:

1) Von den Bergwerken Monopol, Consolidation/Nordstern und Walsum waren dem Landesoberbergamt im April 1991 über die Bergämter Konzepte bezüglich der Verwertung der Abfälle vorzulegen.

2) Für diese drei Bergwerke wurden unter der Federführung des Landesoberbergamtes Arbeitskreise gebildet, deren Aufgabe es war, die vorgelegten Konzepte nach Maßgabe der in der Machbarkeitsstudie definierten Voraussetzungen, die den vollständigen Einschluss untertägig verbrachter nicht immissionsneutraler Abfälle gewährleisten sollten, zu prüfen.

3) Die auf Grund der Diskussionen in den Arbeitskreisen überarbeiteten Verwertungskonzepte sollten den zuständigen Bergämtern als „Rahmenbetriebspläne“ vorgelegt und von den Bergämtern in das Beteiligungsverfahren gegeben werden.

Die Verfügung sah eine Besetzung der Arbeitskreise mit Vertretern folgender nordrhein-westfälischer Behörden vor:

- Geologisches Landesamt
- Landesamt für Wasser und Abfall
- Bezirksregierungen
- Staatliche Umweltämter
- Kreise bzw. kreisfreie Städte
- Landesoberbergamt (federführend)
- Bergämter

Ziel war es, im bergrechtlichen Betriebsplanverfahren die Zulassung für einen Nachversatzbetrieb erst dann auszusprechen, wenn ein Einvernehmen mit den Arbeitskreismitgliedern bestand. Die Niederschriften zu den in der Tabelle 6 genannten Sitzungen des für das Bergwerk Monopol gebildeten Arbeitskreises lassen erkennen, dass die vom Bergbauunternehmen vorgelegten Betriebspläne für Nachversatzmaßnahmen intensiv geprüft und dabei Mängel sowie Unklarheiten aufgezeigt wurden. Dies führte zu Änderungen und Ergänzungen der Betriebspläne. Die betriebliche Durchführung wurde ebenso durch diesen Arbeitskreis begleitet; hierbei erfolgten Sachstandsberichte seitens des Bergbauunternehmens.

Tab. 6: Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“

Nr.	Sitzungstag und -ort	Diskutiert wurden insbesondere folgende Themen
1	27.06.1991 Landesoberbergamt NRW	1) Ergebnisse des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens zur Verbringung von Flotations- und Feinbergen auf dem Bergwerk Monopol 2) Rahmenkonzept des Bergwerks Monopol der Ruhrkohle Westfalen AG vom 10.04.1991 für die Verbringung von Gemischen aus Flotationsbergen sowie Flugaschen und -stäuben […] und Rauchgasreinigungsrückständen […] aus Hausmüllverbrennungsanlagen […] zur Bruchhohlraumverfüllung 3) Fragen bzgl. der Machbarkeitsstudie (Jäger et al. 1990)
2	11.09.1991 Bergwerk Monopol	1) Nachweis der immissionsneutralen Verbringung durch chemische Analysen 2) Verunreinigung des Grubenwassers bei Betriebsstörungen?
3	07.11.1991 Bergwerk Monopol	Entwurf des Rahmenbetriebsplans für die Verbringung von Reststoffen zur Bruchhohlraumverfüllung auf dem Bergwerk Monopol: Es wurden eine Erweiterung des Stoffkataloges um Flotationsberge und Abfälle aus kohlegefeuerten Kraftwerken und Feuerungsanlagen sowie Ergänzungen und genauere Darstellungen zu vielen Details gefordert
4	23.01.1992 Bergwerk Monopol	1) Aufgabe des Arbeitskreises: anhand des vorgelegten Rahmenkonzeptes prüfen, ob die in der Machbarkeitsstudie definierten Rahmenbedingungen erfüllt werden 2) Aufgrund der Vorschriften des Bundesberggesetzes ist der Betriebsplan für die Verbringung von Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses auf dem Bergwerk Monopol als *Sonderbetriebsplan* zu behandeln 3) Mängel und Unklarheiten des vorliegenden Betriebsplanes wurden benannt und eine vollständige Überarbeitung des Textteiles gefordert
5	25.05.1994 Landesoberbergamt NRW	1) Sachstandsbericht über den seit 1993 erfolgten Nachversatz im Baufeld Monopol E2 und Vorstellung der weiteren Planung für 1994, Baufelder E2 und E1 2) Widerspruch und nachfolgende Klage des BUND gegen die am 12.02.1993 seitens des Bergamts Kamen ergangene Zulassung des Sonderbetriebsplans für die Verbringung von Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses auf dem Bergwerk Monopol, Baufeld E2 3) Damaliger Standpunkt der Landesregierung NRW zur Verwertungsfrage
6	17.01.1995 Landesoberbergamt NRW	1) Anwendung der vom Länderausschuss Bergbau erarbeiteten „Technischen Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfällen als Versatz“ im Betriebsplanverfahren 2) Sachstandsbericht über die untertägigen Nachversatzmaßnahmen in 1994 und Vorstellung der für 1995 geplanten Maßnahmen 3) Generell konnte jede der Müllverbrennungsanlagen jedes der Bergwerke, in denen in Teilbereichen die Verbringung von Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses erfolgte, beliefern 4) Stand des Verwaltungsstreitverfahrens BUND gegen Bergamt Kamen 5) Zuständigkeitswechsel der Bergämter
7	05.09.1995 Landesoberbergamt NRW	1) Sachstandsbericht über die Nachversatzmaßnahmen im Zeitraum Januar bis August 1995 und Vorstellung der für 1996 geplanten Maßnahmen 2) vom Länderausschuss Bergbau erarbeitete „Technische Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfällen als Versatz“, Einführung in NRW und Fortschreibung

(Fortsetzung Tab. 6)

Nr.	Sitzungstag und -ort	Diskutiert wurden insbesondere folgende Themen
8	26.03.1996 Bergwerk Haus Aden/ Monopol	1) Sachstandsbericht über die Nachversatzmaßnahmen im Zeitraum September 1995 bis Februar 1996 2) Vorstellung der für das Baufeld E3/E4 geplanten Maßnahmen; der Antrag auf betriebsplanmäßige Zulassung der Reststoffverbringung für das Flöz Victoria wurde zurückgezogen; Erörterung der gutachterlichen Stellungnahme von Professor [redacted] hinsichtlich der einzelnen Zulassungsvoraussetzungen der Machbarkeitsstudie 3) Endbericht des „Qualitätssicherungsprogrammes zur Verifizierung des in der Machbarkeitsstudie formulierten vollständigen Einschlusses der in den Bruchhohlraum eingebrachten Reststoffe“
9	12.05.1998 Landesoberbergamt NRW	1) Sachstandsbericht über die Nachversatzmaßnahmen im Zeitraum März bis Juni 1996 (Abbaubetrieb Gb1) und Dezember 1996 bis Februar 1998 (Gb31); Stilllegung der Abfallverwertungsanlage auf dem Bergwerk Haus Aden/Monopol im Februar 1998 gemäß eines Sonderbetriebsplanes; vom Kreis Unna im August 1996 geäußerte Bedenken hinsichtlich eines mangelnden Erkundungsgrades der Baufelder E3/E4 konnten ausgeräumt werden 2) Abschluss der Nachversatzmaßnahmen wegen Aufgabe des Standortes Schacht Grillo 4 auf Grund kohlepolitischer Entscheidungen; Überwachung des Nachversatzbereiches durch monatliche Entnahme und Analyse von Wasserproben; „Alle Untersuchungen bestätigen das Vorhandensein der mehrfachen unabhängig wirkenden natürlichen Barrieren und belegen die Langzeitsicherheit des Versatzes im Steinkohlengebirge“ 3) Beendigung des Verwaltungsstreitverfahrens BUND gegen Bergamt Kamen: die Klage gegen die Betriebsplanzulassung wurde zurückgezogen (s. Kap. 4.3)

6.3 Ablauf der bergrechtlichen Zulassung des Nachversatzes zur Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen zur Verwertung

6.3.1 Nachversatz mit bergbaufremden, Abfällen/Reststoffen im Baufeld Monopol E2

6.3.1.1 Überblick über den Ablauf der Zulassung der ersten Nachversatzmaßnahmen

Im Bergwerk Haus Aden/Monopol, Baufelder E1, E2 und E3, wurden von April 1993 bis Februar 1998 bergbaufremde, besonders überwachungsbedürftige Abfälle zur Verwertung in die durch Abbau des Flözes Grimberg 2/3 geschaffenen Bruchhohlräume eingebracht (Abb. 13). Das im **April 1991** der Bergbehörde vorgelegte „Rahmenkonzept für die Verbringung von Gemischen aus Flotationsbergen sowie Flugaschen und -stäuben […] und Rauchgasreinigungsrückständen […] aus Hausmüllverbrennungsanlagen […] zur Bruchhohlraumverfüllung“ bezog sich zunächst nur auf das (zentrale) Baufeld E2, Flöze Grimberg und Victoria, und berücksichtigte zunächst nicht die Verbringung von Abfällen aus steinkohlegefeuerten Kraftwerken und Feuerungsanlagen. Eine Erweiterung des Stoffkataloges erfolgte jedoch noch (s. Tab. 6, Nr. 3).

Das Rahmenkonzept enthielt Erläuterungen zu den für den Nachversatz vorgesehenen Abbaubetrieben in den Flözen Grimberg und Victoria im Baufeld E2, zu den im Rahmen der Bruchhohlraumverfüllung über- und untertägig benötigten technischen Einrichtungen, zur Anlieferung und Dokumentation der HMVA-Abfälle und zum Schutz der Belegschaft. Das Rahmenkonzept wurde im *begleitenden Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“* unter Federführung des damaligen Landesoberbergamtes NRW erstmalig im **Juni 1991** diskutiert.

Im **September 1991** wurde eine gutachtliche Stellungnahme der DMT (Thein und Müller 1991) zur Umweltverträglichkeit der im Rahmenkonzept vorgestellten Maßnahmen vorgelegt. Hierin wurde ein Überblick über die Geologie und Hydrogeologie im Umfeld des Verbringungsbereiches gegeben und eine auf dem Anforderungskatalog der Machbarkeitsstudie (Jäger et al. 1990) basierende Bewertung einer umweltverträglichen Untertageverbringung nicht immissionsneutraler Abfälle vorgenommen. Nach Ansicht der Gutachter waren die Kriterien für die Umweltverträglichkeit erfüllt.

Bezüglich zweier später im Rahmen der Planung des Nachversatzes im Baufeld E1 vorgelegter Gutachten (Thein und Klingel 1994) beanstandet Friedrich (2013) unter anderem: „Das Gutachten, das Grundlage des Sonderbetriebsplanes war, vernachlässigt Wasserwegsamkeiten…“.

Im Rahmen der im **November 1991** und **Januar 1992** erfolgten Sitzungen des begleitenden Arbeitskreises (Tab. 6) wurde ein zwischenzeitlich erstellter Entwurf des Betriebsplans für die Untertageverbringung nicht immissionsneutraler Abfälle, Baufeld E2, im Detail diskutiert. Die Zulassung des entsprechend überarbeiteten „Sonderbetriebsplan[es] für die Verbringung von Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses auf dem Bergwerk Monopol“ wurde am **11.02.1992** beantragt.

Ein Jahr später, am **12.02.1993**, erfolgte die bergbehördliche Zulassung dieses Sonderbetriebsplanes. „Die Zulassung umfasst[e] die gesamte Organisation und Durchführung der Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung in den Flözen Grimberg und Victoria, Baufeld E 2, einschl. der zugehörigen über- und untertägigen Betriebsanlagen und -einrichtungen für das Bergwerk Haus Aden/Monopol.“ *Für jede einzelne Nachversatzbauhöhe war in einem Sonderbetriebsplan insbesondere der Nachweis zu erbringen, dass mit Standwasserbereichen nicht zu rechnen war*. Für den Abbaubetrieb Gb2 (Abb. 13), den ersten Abbaubetrieb mit Nachversatz bergbaufremder Abfälle, geschah dies mit Sonderbetriebsplanantrag vom **19.02.1993**. Dieser Betriebsplan wurde am **01.03.1993** zugelassen.

Der zeitliche Ablauf der bergrechtlichen Zulassung für die ersten Nachversatzmaßnahmen im Baufeld E2 ist in der Tabelle 7 zusammengefasst. Nachdem die Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung seit den frühen 1980er-Jahre vorangetrieben worden war (Kap. 5.1), vergingen ab April 1991 von der Vorstellung des Nachversatzkonzeptes für das Bergwerk Haus Aden/Monopol über die Erstellung und Abstimmung des Betriebsplanes bis hin zu dessen Zulassung und dem anschließenden Beginn der betrieblichen Durchführung rund zwei Jahre.

Tab. 7: Zeitlicher Ablauf der Zulassung der ersten Nachversatzmaßnahmen im Bergwerk Haus Aden/Monopol (Bauhöhe Gb2 im Baufeld Monopol E2)

Datum	Vorgang	Inhalt
08.01.1991	Besprechung RAG und LOBA	Erste Vorstellung der Planung zur Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol
10.04.1991	RAG an LOBA: Rahmenkonzept BHV	Beschreibung des Rahmenkonzeptes zur Bruchhohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden/Monopol
27.06.1991	Sitzung begleitender Arbeitskreis	Diskussion des Rahmenkonzeptes im Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“
03.09.1991	Gutachten DMT	Gutachtliche Stellungnahme zur Umweltverträglichkeit des Rahmenkonzeptes zur Bruchhohlraumverfüllung
11.02.1992	RAG an Bergamt Kamen: Zulassungsantrag	Sonderbetriebsplan für die Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses im Baufeld Monopol E2
12.02.1993	Bergamt Kamen an RAG: Zulassung	Zulassung des Sonderbetriebsplanes vom 11.02.1992
19.02.1993	RAG an Bergamt Kamen: Zulassungsantrag	Ergänzender Sonderbetriebsplan für die Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in den Bruchhohlraum des Abbaubetriebes Gb2 im Baufeld Monopol E2
01.03.1993	Bergamt Kamen an RAG: Zulassung	Zulassung des Sonderbetriebsplanes vom 19.02.1993
April 1993	Beginn der untertägigen Verbringung bergbaufremder, besonders überwachungsbedürftiger Abfälle zur Verwertung im Bergwerk Haus Aden/Monopol	

6.3.1.2 Antrag auf Zulassung des Sonderbetriebsplanes für die Verbringung von Abfällen/Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses im Baufeld Monopol E2, Beteiligung der betroffenen Träger öffentlicher Belange

Mit überarbeitetem Sonderbetriebsplan vom 11.02.1992 beantragte die RAG die Zulassung der untertägigen Verwertung der im Kapitel 5.3 genannten Abfälle. In diesem Sonderbetriebsplan wurden folgende Themen behandelt:

1) Bergbauberechtigung

2) Geologie der Lagerstätte: Deckgebirge und Karbon im Baufeld E2

3) Abbauplanung: geplante Abbaubetriebe, Abdämmung abgeworfener Abbaubetriebe, Wasserzuflüsse und Wasserhaltungsmaßnahmen

4) Bewertung der Einhaltung der in der Machbarkeitsstudie im Hinblick auf den vollständigen Einschluss definierten Voraussetzungen; laut Gutachten der DMT (Thein und Müller 1991) waren die Kriterien für die Umweltverträglichkeit erfüllt.

5) Anlage zur Bruchhohlraumverfüllung: technische Details und Anlagenüberwachung

6) Maßnahmen zur Beseitigung von Betriebsstörungen

7) Stoffeigenschaften

8) Anlieferungen

Basierend auf den Bestimmungen des Bundesberggesetzes leitete das für die Prüfung des Sonderbetriebsplanes zuständige Bergamt Kamen diesen im Februar 1992 mit der Bitte um Stellungnahme an folgende Verfahrensbeteiligte weiter:

- Regierungspräsident Arnsberg, Wasser- und Abfallwirtschaft

  Im Zuge des Zulassungsverfahrens sah der RP Arnsberg von ihm zu entscheidende Belange nicht berührt, brachte jedoch mit Schreiben von September 1992 fachtechnische Hinweise in das Verfahren ein, unter anderem hinsichtlich organisatorischer Maßnahmen sowie Überwachungsmaßnahmen gemäß der TA-Abfall.

- Kreis Unna, Untere Wasserbehörde und Untere Abfallwirtschaftsbehörde

  Der Kreis Unna stimmte der beantragten Abfallverbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses mit Schreiben vom 02.06.1992 grundsätzlich zu, gab jedoch konkrete, als ergänzende Maßgaben zu beachtende Hinweise bzgl. der Einhaltung der in der Machbarkeitsstudie definierten Voraussetzungen der Verbringung im Steinkohlenbergbau.

- Stadt Bergkamen

  Mit Schreiben vom 27.05.1992 forderte die Stadt Bergkamen, dass das Bergamt Kamen sicherzustellen habe, „dass die Untertageverbringung von Reststoffen in den Bruchhohlräumen der Abbaubetriebe der Flöze ‚Grimberg' und ‚Victoria' im Baufeld E2 des Bergwerks ‚Monopol' so durchgeführt wird, dass die Bevölkerung und die dort arbeitenden Menschen nicht beeinträchtigt werden." Daher stimmte die Stadt Bergkamen dem Sonderbetriebsplan nur unter einer Anzahl von in diesem Schreiben genannten Auflagen und Bedingungen zu.

- Staatliches Amt für Wasser- und Abfallwirtschaft Herten

  Mit Schreiben vom 25.03.1992 äußerte das StAWA Herten keine Bedenken gegen die Betriebsplanzulassung, sofern mit dieser die in dem Schreiben genannten Nebenbestimmungen festgesetzt würden.

- Geologisches Landesamt Krefeld

  Das GLA teilte mit Schreiben vom 13.07.1992 mit, dass aus geologisch/hydrogeologischer Sicht keine Bedenken gegen den Sonderbetriebsplan vorlagen.

- Landesamt für Wasser und Abfall NRW

  Das LWA teilte mit Schreiben vom 25.05.1992 mit, dass aus wasser- und abfallwirtschaftlicher Sicht keine Bedenken gegen den Antrag auf Zulassung des Be-

triebsplanes bestanden, forderte als notwendige Ergänzung jedoch insbesondere ein den Versatz nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses begleitendes Qualitätssicherungsprogramm.

Darüber hinaus erfolgten Stellungnahmen zweier nicht am Zulassungsverfahren Beteiligter, die dennoch in die Entscheidungsfindung einbezogen wurden:

- Der Bund für Umwelt und Naturschutz BUND NW richtete am 26.06.1992 eine Stellungnahme zum Sonderbetriebsplan an das Bergamt Kamen. Hierin begründete er die Forderung nach einer abfallrechtlichen Planfeststellung des Vorhabens, welche nicht durch die Bergbehörde, sondern durch den Regierungspräsidenten Arnsberg durchzuführen sei.
- Der Leiter des im Zuge dieses Zulassungsverfahrens (nicht zuständigen) Bergamtes Hamm teilte dem Landesoberbergamt NRW sowie dem Bergamt Kamen mit Schreiben vom 10.03.1992 kritische Anmerkungen zu dem von Wilke (1991) veröffentlichten Vortrag „Ergebnisse einer Machbarkeitsstudie zur Verbringung schadstoffhaltiger Rückstände in Steinkohlenbergwerken“ mit. Insbesondere trug er für den Fall, dass kein endgültiger Verzicht auf den Abbau der unterhalb des geplanten Verbringungsbereiches anstehenden Fettkohlenflöze erfolgte, erhebliche Bedenken gegen den Nachversatz im Flöz Grimberg vor.

6.3.1.3 Zulassung des Sonderbetriebsplanes für die Verbringung von Abfällen/Reststoffen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses im Baufeld Monopol E2, Nebenbestimmungen

Der „Sonderbetriebsplan für die Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung“ wurde am 12.02.1993 gemäß §§ 55, 56 BBergG durch das Bergamt Kamen zugelassen. In der Begründung der Zulassung führte das Bergamt aus, dass die im Rahmen der oben genannten Stellungnahmen vorgebrachten Hinweise, Anregungen und Bedenken in die Prüfung des Sonderbetriebsplanes und in die Entscheidungsfindung einbezogen worden waren und – sofern diese sachlich und/oder rechtlich begründet und nicht bereits Gegenstand des Betriebsplanantrages waren - im Zulassungsbescheid als Nebenbestimmung oder Hinweis Berücksichtigung fanden. Darüber hinaus wurde erläutert, aus welchen Gründen einige vorgebrachte Anregungen, Bedenken und Forderungen nicht berücksichtigt worden waren. Der Zulassungsbescheid wurde an den Antragsteller, an die Verfahrensbeteiligten, an den BUND und an den Leiter des Bergamtes Hamm gesendet.

„Die Zulassung umfasst[e] die gesamte Organisation und Durchführung der Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung in den Flözen Grimberg und Victoria, Baufeld Monopol E 2, einschl. der zugehörigen über- und untertägigen Betriebsanlagen und -einrichtungen für das Bergwerk Haus Aden/Monopol“. Die Zulassung enthielt zahlreiche Nebenbestimmungen. Hierbei wurden eingangs Grundsätze genannt, die auf den folgenden Seiten im Wesentlichen wörtlich wiedergegeben werden:

1) Außer Flotationsbergen und Feinbergen unter 5 mm sowie Abfällen/Reststoffen aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen durften nur folgende Abfälle/Reststoffe zur untertägigen Verwertung angenommen werden:

- Filterstäube (RSN 313 09) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen
- Rauchgasreinigungsrückstände (RSN 31312) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen
- Gießerei-Altsande (RSN 314 01)

2) Die Abfallarten Filterstäube (RSN 313 09) und Rauchgasreinigungsrückstande (RSN 313 12) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen waren gemäß der damals gültigen Reststoffbestimmungsverordnung vom 3. April 1990 überwachungsbedürftig. Unabhängig davon, ob die zuständigen Behörden die Nachweispflicht angeordnet hatten, durften diese Stoffe nur angenommen und verarbeitet werden, wenn die dem Begleitscheinverfahren und dem Verwertungsnachweisverfahren (Verantwortliche Erklärung, Annahmeerklärung) gemäß den §§ 25 und 26 Abfall- und Reststoffüberwachungsverordnung vom 3. April 1990 entsprechenden Unterlagen vorgelegt wurden; entsprechendes galt für Gießerei-Altsande (RSN 314 01).

3) Für Abfälle/Reststoffe aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen war ein Verwertungsnachweis (Verantwortliche Erklärung, Annahmeerklärung) und Lieferscheinverfahren anzuwenden. Dieser Nachweis musste hinsichtlich der Angaben dem Verwertungsnachweis gemäß Abfall- und Reststoffüberwachungsverordnung entsprechen. Der Lieferschein musste mindestens folgende Angaben enthalten:

Art…… RSN……
Menge…… t oder …….. m^3
Erzeuger…… Nr. ……
Beförderer…… Nr. ……
Amtliches Kennzeichen des Fahrzeugs……
Datum der Annahme……
Name des Annehmers……

4) Die Verwertung von Abfällen/Reststoffe als Nachversatz war unter Beachtung von DIN 21913 Teil 5 im Risswerk mit Angabe der Art und Menge des Nachversatzes zu dokumentieren.

5) Abfälle/Reststoffe aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen sowie Filterstäube (RSN 313 09) und Rauchgasreinigungsrückstände (RSN 313 12) aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen sowie Gießerei-Altsande (RSN 314 01) waren bei der Anlieferung getrennt zu lagern.

6) Für jeden Abbaubetrieb, für den Nachversatz vorgesehen war, war ein Sonderbetriebsplan vorzulegen. Dieser musste zumindest die folgenden Angaben enthalten:

- Abbaugrundriss
- Nachweis, dass mit Standwasserbereichen nicht zu rechnen war. Hierzu war das Hüllkörperverfahren (Abstand 100 m) anzuwenden (§ 122 BVOSt). Dazu waren folgende Unterlagen vorzulegen:
  - Grubenbildauszüge (Grundrisse/Schnittrisse) mit Darstellung des Betriebsvorhabens und der Prüfgrenzen, Eintragung der bekannten und vermuteten

Standwasserbereiche sowie von vorhandenen und möglichen Wasseraustrittstellen (Klüfte, Störungen)

- Verzeichnis der bei der Prüfung verwendeten Risse und weiteren Unterlagen
- Verzeichnis der ermittelten Annäherungsstellen mit Angabe des Zustandes, der Art und Stärke der verbleibenden Sicherheitsfesten sowie der Wasserdrücke im Bereich der Annäherungsstellen
- Zusammenfassung des Prüfergebnisses und Folgerungen

– für Abfälle aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen:

  Nachweis, dass die Voraussetzungen aus der Rundverfügung des Landesoberbergamts NRW vom 16.12.1987 - 18.21.2-2-4 - (Teufe unterhalb - 800 m NN, kein Überschusswasser) eingehalten wurden.

– für die Verwendung von Gießerei-Altsanden (RSN 314 01) zusätzlich:
  - Name und Anschrift des Abfall/Reststofferzeugers
  - Angabe der Herkunft des Abfalles/Reststoffes
  - Detaillierte Darstellung des Verfahrens, bei dem der Abfall/Reststoffe anfällt. Hierbei sind insbesondere der Verfahrensablauf, die im Verfahren eingesetzten Stoffe und entstehende Stoffverbindungen sowie schädliche Beimengungen darzustellen
  - Gesamtstoffanalyse (Elementaranalyse, Feststoffanalyse)
  - Eluatanalyse nach dem Deutschen Einheitsverfahren (DEV) S 4 sowie zusätzlich mit synthetischem Grubenwasser gemäß einer Anlage zur Sonderbetriebsplanzulassung

7) Der untertägige Transport der Abfälle/Reststoffe durfte nur in geschlossenen Leitungen erfolgen.

Im Anschluss an diese Grundsätze enthielt die Zulassung detaillierte Nebenbestimmungen zu folgenden Punkten:

- Organisation der Abfall-/Reststoffverwertungsanlage
- Abfall-/Reststoffannahme
- Abfall-/Reststoffüberwachung
- Abfall-/Reststoffumschlag
- Abfall-/Reststoffverarbeitung
- Abfall-/Reststoffverbringung
- Zufahrt/Einzäunung/Schilder
- Betriebsflächen

- Betriebsanlagen und Betriebseinrichtungen, Abnahme
- Arbeitsschutz/Arbeitshygiene
- Qualitätssicherungsprogramm
- Betriebsstörungen (Maßnahmen/Verhalten)
- Berichts- und Anzeigepflicht (Dokumentation)

Die Dokumentation war dem Bergamt vierteljährlich vorzulegen, zusätzlich jeweils zum 31.03. ein aktueller Auszug aus dem Bergmännischen Risswerk. Die *Quartalsberichte* mussten insbesondere folgende Angaben enthalten:

a) Art, Herkunft und Menge der verbrachten Abfälle/Reststoffe (getrennt)

b) Ergebnisse der Grubenwasseranalyse

> Für die Grubenwasseruntersuchung waren die Probenahmestellen in der Nähe des Versatzbereiches vorher mit dem Bergamt festzulegen, markscheiderisch einzumessen und zu dokumentieren. Das Grubenwasser des Verbringungsbereichs war in Abständen von höchstens einem Monat über die in der wasserrechtlichen Erlaubnis festgelegten Parameter hinaus zusätzlich auf die in einer Anlage zur Sonderbetriebsplanzulassung genannten Stoffe zu untersuchen.

c) Ergebnisse der Abfall-/Reststoffbeprobung

> Im Rahmen der Eigenüberwachung war in unregelmäßigen zeitlichen Abständen unangemeldet – mindestens jedoch alle drei Monate – aus einer Lieferung von Abfällen/Reststoffen aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen sowie Gießerei-Altsanden eine Stichprobe zu entnehmen und zu analysieren. Der Analyseumfang hatte sich auf die Parameter zu erstrecken, die in der Zulassung der jeweiligen Hausmüll- oder Klärschlammverbrennungsanlage vorgeschrieben waren. War bei einer dieser Anlagen der Analysenumfang nicht vorgegeben, so richtete sich dieser nach den in einer Anlage zur Sonderbetriebsplanzulassung genannten Parametern.

d) Rezepturen der Verfüllmassen (Feststoff/Wasser-Verhältnis)

e) Besondere Vorkommnisse und getroffene Maßnahmen

Erkenntnisse und Ereignisse im Zusammenhang mit dem Betrieb der Abfall-/Reststoffverwertungsanlage, die den Umweltschutz, den Arbeits- und Gesundheitsschutz oder die Grubensicherheit berührten, waren dem Bergamt unverzüglich zu melden.

Spätestens 6 Monate nach Beendigung der Abfallverwertung in einem auf der Grundlage der Sonderbetriebsplanzulassung vom 12.02.1993 beantragten Abbaubetrieb war dem Bergamt ein *Abschlussbericht* mit Angabe des Zeitabschnitts der Abfall/Reststoffverwertung, der Abfall/Reststoffmenge in m^3 je abgebauter Fläche (m^3/m^2) sowie der im Rahmen der Quartalsberichte geforderten Angaben a) – e) vorzulegen.

6.3.1.4 Ergänzende Sonderbetriebspläne für die einzelnen Nachversatzbauhöhen

Da für jeden Abbaubetrieb im Baufeld E2, für den Nachversatz vorgesehen war, ein Sonderbetriebsplan vorzulegen war, der zumindest die im Kapitel 6.3.1.3 unter Nr. 6 genannten Angaben enthalten sollte, wurden entsprechende Zulassungsanträge für die Nachversatzbauhöhen Gb2 und Gb1 gestellt (s. Tab. 8). Der Sonderbetriebsplan vom 19.02.1993 enthielt Angaben über den Abbaubetrieb Gb2, über die Art der dort zu verbringenden Abfälle (im Rahmen des im Kapitel 6.3.1.3 unter Nr. 1 genannten Stoffkataloges), über das Rohrleitungssystem, über die Hinterfüllung der Kohlenabfuhrstrecke und die Sicherung des strebseitigen Abbaustreckensaumes sowie über die erfolgte Standwasseruntersuchung. Zwar wurde auch die Verbringung von Gießerei-Altsanden beantragt, die bezüglich dieser Abfallart geforderten detaillierten Angaben waren in dem Zulassungsantrag jedoch nicht enthalten. Es wurden keine Gießerei-Altsande im Flöz Grimberg verbracht (s. Detailbericht 1).

Für die Nachversatzbauhöhe Gb1 wurde die Zulassung eines Sonderbetriebsplans am 28.03.1995 beantragt. Zusätzlich zu den für Gb2 beantragten bergbaufremden Abfallarten war für Gb1 auch eine bergbauliche Abfallart – Flotationsberge - als Komponente des Nachversatzgutes vorgesehen. Unter Berücksichtigung der *"Technischen Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfällen als Versatz"* (Länderausschuss Bergbau, Entwurf vom 11.10.1994) erfolgte mit Schreiben der RAG vom 23.06.1995 eine Ergänzung dieses Sonderbetriebsplans. Die Zulassung des Sonderbetriebsplans beinhaltete nicht die Verwertung von Gießerei-Altsanden und wies darüber hinaus auf die Beachtung der Nebenbestimmungen der Sonderbetriebsplanzulassung vom 12.02.1993 (Kap. 6.3.1.3) hin, soweit für die Nachversatzbauhöhe Gb1 unter Berücksichtigung der oben genannten Entwurfsfassung der „Technischen Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfälle als Versatz" nicht abweichende Regelungen getroffen worden waren.

Tab. 8: Nachversatz mit bergbaufremden Abfällen/Reststoffen im Baufeld Monopol E2, Flöz Grimberg 2/3 (vgl. Abb. 13)

Baufeld	Zulassungsantrag vom	Gutachten vom	Zulassungsbescheid vom	Zeitraum Nachversatz	Abschlussbericht vom
E2	(10.04.1991 Rahmen-konzept) 11.02.1992 gesamte Organisation und Durchführung	03.09.1991 (Thein und Müller, DMT)	12.02.1993		
	19.02.1993 Abbaubetrieb Gb2		01.03.1993	April 1993 bis April 1994	12.09.1994
	28.03.1995 23.06.1995 (Ergänzung) Abbaubetrieb Gb1		14.07.1995	Juli 1995 bis Juni 1996	03.09.1996

6.3.2 Nachversatz mit bergbaufremden Abfällen/Reststoffen in den Baufeldern Monopol E1 und E3

Der Vorgehensweise für die ersten Nachversatzmaßnahmen im Baufeld E2 folgend wurden für die Verbringung bergbaufremder, besonders überwachungsbedürftiger Abfälle in den Baufeldern E1 und E3(E4) zunächst Sonderbetriebspläne für die gesamte Organisation und Durchführung der Abfallverwertung aufgestellt. In Gutachten wurden auf dem Anforderungskatalog der Machbarkeitsstudie (Jäger et al. 1990) basierende Bewertungen einer umweltverträglichen Untertageverbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle vorgenommen.

Im Zuge der Zulassungsverfahren für die Nachversatzmaßnahmen in diesen Baufeldern erfolgte keine Beteiligung von Trägern öffentlicher Belange, da deren Aufgabenbereiche im Vergleich zum vorherigen Zulassungsverfahren für das Baufeld E2 nicht noch weitergehend berührt waren. Die betroffenen Träger öffentlicher Belange waren jedoch Mitglieder im begleitenden Arbeitskreis unter Vorsitz des Landesoberbergamtes NRW und konnten hier ihre Interessen vertreten (s. Kap. 6.2).

Die Zulassungen der Sonderbetriebspläne für Nachversatzmaßnahmen in den Baufeldern E1 und E3(E4) sahen wiederum vor, dass für die einzelnen Nachversatzbauhöhen jeweils ergänzende Sonderbetriebspläne vorzulegen waren. Der zeitliche Ablauf der Planung, Prüfung, Zulassung, Durchführung und Dokumentation der Nachversatzmaßnahmen in den genannten Baufeldern ist in der Tabelle 9 dargestellt. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass in dieser Phase bereits Erfahrungen bezüglich der Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses im Bergwerk Haus Aden/Monopol vorlagen.

Tab. 9: Nachversatz mit bergbaufremden, besonders überwachungsbedürftigen Abfällen in den Baufeldern Monopol E1 und E3, Flöz Grimberg 2/3 (vgl. Abb. 13)

Baufeld	Zulassungsantrag vom	Gutachten vom	Zulassungsbescheid vom	Zeitraum Nachversatz	Abschlussbericht vom
E1	03.12.1993 gesamte Organisation und Durchführung	01.02.1994 (Thein und Klingel, Uni Bonn) 18.03.1994 (Thein und Klingel, Uni Bonn)	21.04.1994		
	14.04.1994 Abbaubetrieb Gb16		29.04.1994	Mai 1994 bis Januar 1995	07.04.1995
	25.08.1994 Abbaubetrieb Gb17		21.10.1994	Januar 1995 bis Juli 1995	22.09.1995
E3	19.04.1996 gesamte Organisation und Durchführung	27.04.1995 (Thein und Klingel, Uni Bonn) 12.04.1996 (Zimmer, Werne) 19.06.1996 (Thein, Uni Bonn)	14.08.1996		
	24.07.1996 Abbaubetrieb Gb31		19.08.1996	Dezember 1996 bis Februar 1998	10.06.1998

7 Zusammenfassung

In den Jahren 1982 bis 1984 wurde die „DMT-Technologie zur Bruchhohlraumverfüllung“ entwickelt (Hamm 1991) und anschließend in Zusammenarbeit mit der RAG zur Betriebsreife geführt. Dieses Versatzverfahren dient dem hydraulischen Nachversatz von Hohlräumen im noch lockeren Bruchhaufwerk der im Zuge des untertägigen Abbaus in den ausgekohlten Raum hereinbrechenden Dachschichten. Durch die Entwicklung dieses Verfahrens wurde zunächst eine neue Möglichkeit geschaffen, bei der Kohlenaufbereitung anfallende bergbauliche Abfälle sowie Rückstände aus der Kohlenverbrennung, die vom Bergbau übernommen wurden, untertägig zu verbringen (Czech 1993, Siepmann und Sill 1991, Thiehofe 1991).

Die in diesem Detailbericht behandelten Aspekte der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen werden im Folgenden zusammenfassend erläutert, wobei zur übersichtlicheren Unterscheidung dieser Aspekte Zwischenüberschriften eingefügt wurden:

Immissionsneutrale Untertageverbringung von Kohlekraftwerksabfällen

Die Wasser- und Abfallbehörden des Landes NRW stuften die Verbringung von Kohlekraftwerksabfällen in Steinkohlenbergwerken basierend auf der Kenntnis über deren wasserwirtschaftliche Auswirkungen als *immissionsneutral* ein. Aufgrund der im Zuge von Probebetrieben erzielten Ergebnisse erfolgte im Jahr 1987 durch das damalige Landesoberbergamt NRW die generelle Zulassung zur Untertageverbringung dieser Abfälle in großer Teufe und unter weiteren Randbedingungen.

Umweltverträgliche Untertageverbringung nicht immissionsneutraler Abfälle

Aber auch eine Untertageverbringung bestimmter *nicht immissionsneutraler Abfälle* ist gemäß der „Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“ (sogenannte *Machbarkeitsstudie*, Jäger et al. 1990) unter speziellen Voraussetzungen und Einschränkungen umweltverträglich durchführbar. Nach dem *Prinzip des vollständigen Einschlusses* wurden derartige Abfälle in den Jahren 1993 bis 1998 im Bergwerk Haus Aden/Monopol, Bergkamen, eingebracht. Maßnahmen der Bruchhohlraumverfüllung erfolgten hier im Flöz Grimberg 2/3 in einem im Vergleich zum gesamten Abbaubereich dieses Bergwerks relativ kleinen Bereich. Diese Art der Verbringung erfolgte auch auf den Bergwerken Hugo/Consolidation in Gelsenkirchen und Walsum in Duisburg.

Machbarkeitsstudie: Voraussetzungen für den vollständigen Einschluss nicht immissionsneutraler Abfälle im Steinkohlenbergbau

Nach Einschätzung der Machbarkeitsstudie kann im Steinkohlengebirge ein relativ kleinräumiger vollständiger Einschluss nicht immissionsneutraler Abfälle unter nachfolgend genannten, für die Langzeitsicherheit relevanten Voraussetzungen erzielt werden, wobei die Kombination verschiedener Barrieren (Jäger et al. 1990, Wilke 1991, vgl. Czech 1993, vgl. Thein et al. 1997) einen Schadstoffaustrag verhindern soll. Zu diesen Voraussetzungen zählen: hydraulische Bruchhohlraumverfüllung, tonmineralreiches Nebengestein, ein Abstand von mindestens 20-25 m zur nächsttieferen und zur nächsthöheren Sohle, eine Verbringungsteufe von mindestens 800 m, die Einhaltung

eines Sicherheitsabstands zu potenziellen Wasserwegsamkeiten sowie eine ausreichende hydrogeologische Systemkenntnis.

In der Machbarkeitsstudie wurden noch weitere, in der Verbringungsphase hinsichtlich der Grubensicherheit und des Arbeitsschutzes erforderliche Voraussetzungen definiert sowie die Situationen während und nach einem Grubenwasserwiederanstieg diskutiert.

Eignung der Abfallstoffe als Versatz, Qualitätssicherungsprogramm

Für das Bergwerk Haus Aden/Monopol wurde am 12.02.1993 der erste, zunächst nur das Baufeld E2 betreffende „Sonderbetriebsplan bezüglich der Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung“ durch das Bergamt Kamen zugelassen. Hierbei wurde festgelegt, dass außer Flotationsbergen und Feinbergen sowie Abfällen aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen nur Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen sowie Gießerei-Altsande zur untertägigen Verwertung angenommen werden durften. In der Begründung der Zulassung wurde dargelegt, dass die Bruchhohlraumverfüllung bergtechnische, gruben- und arbeitssicherheitliche Ziele verfolgte und daher als Verwertung bergbaufremder Abfälle (bis 1998: „Reststoffe“) eingestuft wurde.

Abfälle aus kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen sind nach § 4 Abs. 2 Zi. 2 der Versatzverordnung von 2002 auch heute noch geeignet für die Verbringung im Kohle- und dessen Nebengestein. Im Rahmen der Machbarkeitsstudie wurden insbesondere Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüll- und Klärschlammverbrennungsanlagen sowie Gießerei-Altsande näher untersucht; für diese kam aufgrund des möglichen Schadstoffaustrages nur die untertägige Verbringung nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in Betracht.

Ein über einen Zeitraum von 36 Monaten durchgeführtes Qualitätssicherungsprogramm im Rahmen der untertägigen Verbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle beinhaltete insbesondere die Untersuchung der räumlichen und zeitlichen Entwicklung des Gebirgsdrucks im nachversetzten Bruchfeld und die sich hieraus ergebende Verdichtung des Nachversatzgutes sowie Abnahme der Wasserdurchlässigkeit des Gebirges. Im Zuge der Machbarkeitsstudie konnten diese für die Gewährleistung des vollständigen Einschlusses wesentlichen Parameter mangels ausreichender In-situ-Messwerte noch nicht abschließend beurteilt werden. Im Zuge dieses bergbehördlich geforderten Qualitätssicherungsprogrammes konnte nachgewiesen werden (Wilke und Dartsch 1995), „dass sich die in der Machbarkeitsstudie aufgestellten Annahmen bezüglich des Prinzips des vollständigen Einschlusses uneingeschränkt im Labor als auch in situ bestätigen ließen. Die aus diesen Annahmen abgeleiteten Anforderungen geologischer, hydrogeologischer und verfahrenstechnischer Art für eine umweltverträgliche Einbringung von Abfallstoffen sind demzufolge uneingeschränkt und in vollem Umfang erfüllt, teilweise übererfüllt.“

Begleitende Prüfung durch den Arbeitskreis „Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“

Wie in der Verfügung des Landesoberbergamtes NRW vom 18.01.1991 dokumentiert, sollte in Arbeitskreisen, bestehend aus Vertretern des Geologisches Landesamtes, des Landesamtes für Wasser und Abfall, der Bezirksregierungen, der Staatlichen Umweltämter, der Kreise bzw. kreisfreien Städte, des Landesoberbergamtes (federführend)

und der Bergämter, geprüft werden, ob die in der Machbarkeitsstudie geforderten Voraussetzungen der Untertageverbringung im Falle konkret geplanter Versatzbereiche tatsächlich vorlagen und damit der vollständige Einschluss nicht immissionsneutraler Abfälle im Steinkohlengebirge gewährleistet war. An diese Prüfung schloss sich standortspezifisch die Durchführung des bergrechtlichen Betriebsplanverfahrens an.

Die Niederschriften zu den Sitzungen des für das Bergwerk Haus Aden/Monopol gebildeten Arbeitskreises lassen erkennen, dass die vom Bergbauunternehmen vorgelegten Betriebspläne für Nachversatzmaßnahmen intensiv geprüft und dabei Mängel sowie Unklarheiten aufgezeigt wurden. Dies führte zu Änderungen und Ergänzungen der Betriebspläne. Im Rahmen der Arbeitskreissitzungen erfolgten darüber hinaus in der Verbringungsphase Sachstandsberichte über die durchgeführten Nachversatzmaßnahmen und die Vorstellung der jeweils weiteren geplanten Maßnahmen.

Ablauf des Zulassungsverfahrens, Prüfung der Einhaltung der in der Machbarkeitsstudie geforderten Voraussetzungen für eine umweltverträgliche Untertageverbringung besonders überwachungsbedürftiger Abfälle

Im Rahmen des vorliegenden Detailberichtes wurde der Ablauf des bergrechtlichen Zulassungsverfahrens zunächst für die ersten Nachversatzmaßnahmen im Baufeld Monopol E2 detailliert nachvollzogen. Nachdem die Entwicklung des Verfahrens der Bruchhohlraumverfüllung seit den frühen 1980er-Jahre vorangetrieben worden war, vergingen ab April 1991 von der Vorstellung des Nachversatzkonzeptes für das Bergwerk Haus Aden/Monopol über die Erstellung und Abstimmung des Betriebsplanes bis hin zu dessen Zulassung und dem anschließenden Beginn der betrieblichen Durchführung rund zwei Jahre. Die Planungen für die Verbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in den Baufeldern E1 und E3 konnten auf den bereits gewonnenen Erfahrungen aufbauen.

Bezüglich der in den drei Baufeldern geplanten Nachversatzmaßnahmen wurden gutachtliche Stellungnahmen (DMT, Universität Bonn) zur Umweltverträglichkeit dieser Maßnahmen vorgelegt. Hierin wurde jeweils ein Überblick über die Geologie und Hydrogeologie im Umfeld der Verbringungsbereiche gegeben und eine auf dem Anforderungskatalog der Machbarkeitsstudie basierende Bewertung einer umweltverträglichen Untertageverbringung nicht immissionsneutraler Abfälle nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses vorgenommen. Nach Ansicht der im Rahmen der Zulassungsverfahren tätigen Gutachter waren die Kriterien der Machbarkeitsstudie jeweils erfüllt.

Basierend auf den Bestimmungen des Bundesberggesetzes leitete das damals zuständige Bergamt Kamen den Sonderbetriebsplan vom 11.02.1992 für die ersten Nachversatzmaßnahmen im Baufeld Monopol E2 noch im Februar 1992 mit der Bitte um Stellungnahme an die am Zulassungsverfahren beteiligten, vom Vorhaben betroffenen Träger öffentlicher Belange weiter. Über die Stellungnahmen dieser Stellen hinaus erfolgten weitere Stellungnahmen zweier nicht am Zulassungsverfahren Beteiligter, die dennoch vom Bergamt in die Prüfung des Sonderbetriebsplanes einbezogen wurden.

In der Begründung der Zulassung führte das Bergamt aus, dass die im Rahmen der Stellungnahmen vorgebrachten Hinweise, Anregungen und Bedenken in die Prüfung des Sonderbetriebsplanes und in die Entscheidungsfindung einbezogen worden waren und – sofern diese sachlich und/oder rechtlich begründet und nicht bereits Gegenstand des Betriebsplanantrages waren - im Zulassungsbescheid als Nebenbestimmung oder

Hinweis Berücksichtigung fanden. Darüber hinaus wurde erläutert, aus welchen Gründen einige vorgebrachte Anregungen, Bedenken und Forderungen nicht berücksichtigt worden waren.

Im Zuge der folgenden Zulassungsverfahren für die Nachversatzmaßnahmen in den Baufeldern E1 und E3 erfolgte keine Beteiligung von Trägern öffentlicher Belange, da deren Aufgabenbereiche im Vergleich zum vorherigen Zulassungsverfahren für das Baufeld E2 nicht noch weitergehend berührt waren. Die betroffenen Träger öffentlicher Belange waren jedoch Mitglieder im begleitenden Arbeitskreis unter Vorsitz des Landesoberbergamtes NRW und konnten hier ihre Interessen vertreten.

Weitere rechtliche Entwicklung bezüglich der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Abfällen

Auf Grund der Klage des BUND gegen die mit Bescheid vom 12.02.1993 bergrechtlich zugelassenen ersten Nachversatzmaßnahmen im Baufeld Monopol E2 hat das Oberverwaltungsgericht für das Land Nordrhein-Westfalen in seinem Beschluss vom 18.7.1997 (Az: 21 B 1717/94) die Rechtmäßigkeit der untertägigen Abfallverwertung und damit der bergrechtlichen Zulassung bestätigt: „Der Einsatz der … Reststoffe zur Bruchhohlraumverfüllung als Nachversatz ist stoffliche Verwertung, nämlich die Nutzung der stofflichen Eigenschaften der Stoffe zu einem konkreten Zweck, die eine auf die schadlose Verwahrung beschränkte bloße Ablagerung unnötig macht; …".

Demgegenüber wurden jedoch mit der am 30. Oktober 2002 in Kraft getretenen Verordnung über den Versatz von Abfällen unter Tage unter anderem „stoffliche Anforderungen…für Versatzstandorte, die nicht im Salzgestein liegen und nicht den dauerhaften Abschluss der Abfälle durch einen Langzeitsicherheitsnachweis belegen können, rechtsverbindlich festgelegt" (Bundesministerium für Umwelt 2002, Frenz 2003). Hiermit sollte die Einbringung von hoch schadstoffhaltigen Abfällen als Versatz in solchen Bergwerken ausgeschlossen werden, „die nicht den dauerhaften Abschluss von der Biosphäre im Salzgestein gewährleisten". Aufgrund von Übergangsregelungen waren die in der Versatzverordnung genannten Anforderungen spätestens ab dem 1. März 2006 einzuhalten. Im Jahr 2004 endete der Einsatz der Bruchhohlraumverfüllung im deutschen Steinkohlenbergbau.

8 Quellennachweis

Bergmännisches Risswerk des Bergwerks Ost. RAG, Herne. Bezirksregierung Arnsberg, Abt. 6, Dortmund.

Bergwerk Ost. Am 3.3.2016 heruntergeladen von https://de.wikipedia.org/wiki/Bergwerk_Ost

Bundesberggesetz vom 13.8.1980. BGBl. I 1980, S. 1310.

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit: Neue Regeln für die untertägige Abfallverwertung. 29.07.2002.

Czech, H.: Reststoffverwertung im nordrhein-westfälischen Bergbau. In: Glückauf 1993, Nr. 4.

Dürrfeld, R., Trondt, M., Schmidt, V., Much, J., Sandberg, M.: Rheologisches Verhalten von Kohle-Wasser-Suspensionen und die Beeinflussung durch Additive. In: Glückauf-Forschungshefte 1984, Nr. 6.

Frenz, W.: Untertägige Abfallentsorgung im Fadenkreuz aktueller Rechtsprechung und Gesetzgebung. In: Zeitschrift für Bergrecht 2000.

Frenz, W.: Die Bergversatzverordnung. In: Markscheidewesen 2003, Nr. 1.

Friedrich, H.: Die Risiken und langfristigen Umweltauswirkungen des untertägigen Versatzes von gefährlichen hochtoxischen Sonderabfällen in den Bergwerken der Steinkohle von NRW. Gutachterliche Stellungnahme, 2013.

Fürer G.: Rahmenbedingungen für die Verwertung von Reststoffen oder Entsorgung von Abfällen im Bergbau. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Gesetz über die Beseitigung von Abfällen (Abfallbeseitigungsgesetz) vom 7.6.1972. BGBL. I 1972, S. 873.

Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge (Bundes-Immissionsschutzgesetz − BImSchG) vom 15.3.1974. BGBL. I 1974, S. 721

Gesetz über die Vermeidung und Entsorgung von Abfällen (Abfallgesetz) vom 27.8.1986. BGBL. I 1986, S. 1410.

Gesetz zur Ordnung des Wasserhaushalts (Wasserhaushaltsgesetz). Neufassung vom 23.9.1986, BGBL. I 1986, S. 1529. Letze Neufassung vom 31.7.2009, BGBL. I 2009, S. 2585.

Gesetz zur Förderung der Kreislaufwirtschaft und Sicherung der umweltverträglichen Beseitigung von Abfällen (Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz) vom 27.9.1994. BGBl. I 1994, S. 2705.

Haarmann, K.-R.: Planung und Betrieb moderner Blasversatzstreben am Beispiel des Bergwerks Haus Aden. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Hamm, E.: Die Entwicklung des Verfahrens zur Bruchhohlraumverfüllung. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Hansel, G.: Auswirkungen von Versatz auf innere und äußere Bergschäden. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Hildebrandt, T.: Umweltverträgliche Einbringung von Abfällen nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in Hohlräumen im Sedimentgestein. Dissertation TU Berlin, 1997. Shaker Verlag: Aachen, 1998.

Hollmann, F.: Zur bleibenden Beeinträchtigung der Nutzung von Boden und Baugrund im Senkungstrog nach Einstellung bergbaulicher Tätigkeit bzw. nach Auslaufen bergbaulicher Bodenbewegungen. In: Bergbau 1995, Nr. 2.

Huske, J.: Die Steinkohlenzechen im Ruhrrevier. Deutsches Bergbau-Museum: Bochum, 1998.

Jäger, B., Obermann, P., Wilke, F.L.: Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen (Machbarkeitsstudie), in 4 Bänden im Auftrag des Landesamtes für Wasser und Abfall NRW, Düsseldorf. 1990.

Kelm, U., Möller, H.: Studie zu untertägigen Entsorgung und Verwertung bergbaufremder Stoffe in der Bundesrepublik Deutschland. Im Auftrag des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Scientific Consulting Dr. [redacted] BDU, Köln, 1992.

Kind, H.-J.: Die Untertagedeponie Herfa-Neurode. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Knissel, W.: Die Nutzung von Grubenräumen für den Umweltschutz. In: Glückauf 1991, Nr. 15/16.

Knissel, W., Triebel, R.: Grundlagen des Verfüllens untertägiger Hohlräume. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Kukuk, P., Hahne, C.: Die Geologie des Niederrheinisch-Westfälischen Steinkohlengebietes (Ruhrrevier). Verlag C. Th. Kartenberg, Herne, 1962.

Lange, J.: Industrielle Abfallstoffe als Versatzkomponente, eine zusätzliche Erlösquelle für Bergwerke. In: Erzmetall 1984, Nr. 2.

Länderausschuss Bergbau (LAB): Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Reststoffen/Abfällen als Versatz unter Tage – Technische Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Reststoffen/Abfällen als Versatz. 22.10.1996.

Länderausschuss Bergbau (LAB): Technische Regeln für den Einsatz von Abfällen als Versatz. 17.10.2006.

Landesamt für Wasser und Abfall: Zusammenstellungen der für die Ablagerung in Steinkohlenbergwerken als geeignet, bedingt geeignet bzw. ungeeignet angesehenen Abfallarten. 1987. Siehe Jäger et al. 1991.

Landesoberbergamt NRW: Teil- und Nachversatz mit Reststoffen aus kohlegefeuerten Kraftwerken und Feuerungsanlagen (Aschen und Stäube, Naßentschwefelungs-

gips, -sulfit, Schlämme aus der Kesselabwasser- und Speisewasseraufbereitung und aus der Kühlturmabschlämmung) – 18.21.2–2–4 -. Rundverfügung an die Bergämter des Landes Nordrhein-Westfalen vom 16.12.1987.

Landesoberbergamt NRW: Kurzbeschreibung der in der Rundverfügung des Landesoberbergamts NRW vom 16.12.1987 aufgeführten Verfahren des Teil- und Nachversatzes in Steinkohlenbergwerken. Rundverfügung an die Bergämter des Landes Nordrhein-Westfalen 28.12.1987.

Lerche, R., Renetzeder, H.: Die Entwicklung des Pumpversatzverfahrens für das Erzbergwerk Grund. In: Erzmetall 1984, Nr. 10.

Maurer, H., Sill, F.: Entsorgung feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksrückstände durch Nachversetzen des Bruchhohlraumes. In: Glückauf 1989, Nr. 3/4

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes NRW, Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes NRW: Erkenntnisse zum Zustand des Grund- und Oberflächenwassers im Bereich von Steinkohlenbergwerken, in denen bergbaufremde Abfälle eingesetzt wurden; Einsatz bergbaufremde Abfälle in Steinkohlenbergwerken. Landtagsbericht vom 17.09. 2013.

Monopol in Kamen/Bergkamen. Am 8.3.2016 heruntergeladen von http://www.ruhrzechenaus.de/kamen-bergkamen/monopol.html

Oberverwaltungsgericht für das Land Nordrhein-Westfalen: Beschluss vom 18.7.1997. Az: 21 B 1717/94.

Plate, M.: Verwertung und Ablagerung von Reststoffen und Abfällen in den Bergwerken der Ruhrkohle AG. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Plate, M.: Entsorgung unter Tage – Chance zur Lösung von Umweltproblemen. In: Glückauf 1988, Nr. 4/5.

Pollmann, H., Wilke, F.L.: Der untertägige Steinkohlenbergbau und seine Auswirkungen auf die Tagesoberfläche. Stuttgart: Boorberg, 1994.

Preuße, A.: Versatz im untertägigen Steinkohlenbergbau. RWTH Aachen, 2002.

RAG Aktiengesellschaft: Bruchhohlraumverfüllung im Steinkohlenbergbau an der Ruhr. Präsentation vom 06.11.2013.

Reuther, E.U.: Lehrbuch der Bergbaukunde. Erster Band. 11. vollständig neu bearbeitete Auflage. Essen: Glückauf 1989.

Scheidat, L., Brocks, U.: Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume. Teilvorhaben Ruhrkohle Westfalen AG, Bergwerk Monopol, Phasen I und II. Schlussbericht über das vom 1.4.1987 bis 30.6.1991 vom Bundesminister für Forschung und Technologie finanziell unterstützte F+E-Vorhaben.

Siepmann, D., Sill, F.: Erste Ergebnisse einer Versuchsanlage zur Bruchhohlraumverfüllung auf dem Bergwerk Monopol. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Skrzyppek, J., Wilke, F. L., Plate, M.: Schadlose Verbringung anorganischer Reststoffe im Steinkohlenbergbau. In: Glückauf 1993, Nr. 10.

Thein, J., Müller, W.: Gutachtliche Stellungnahme zur Umweltverträglichkeit des Rahmenkonzeptes für die Verbringung von Gemischen aus Flotationsbergen sowie Flugaschen und -stäuben (Reststoff-Schlüssel-Nr. 31309) und Rauchgasreinigungsrückständen (Reststoff-Schlüssel-Nr. 31312) aus Hausmüllverbrennungsanlagen (HMVA-Reststoffe) zur Bruchhohlraumverfüllung. DMT, Bochum, 03.09.1991.

Thein, J., Klingel, R.: Gutachtliche Stellungnahme zur Einhaltung der Anforderungsbedingungen für das Prinzip des vollständigen Einschlusses bei der geplanten Verbringung von Reststoffen in die Abbaue von Flöz Grimberg 2/3 im Baufelder E1 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol, Betriebsbereich Monopol, der Ruhrkohle AG. Universität Bonn, 01.02.1994.

Thein, J.; Klingel, R.: Gutachtliche Stellungnahme zur petrologischen Ausbildung der hangenden Deckschichten von Flöz Grimberg 2/3 im Baufeld E1 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol, Betriebsbereich Monopol, der Ruhrkohle AG. Universität Bonn, 18.03.1994.

Thein, J.: Gutachtliche Stellungnahme zur Einhaltung der Anforderungsbedingungen für das Prinzip des vollständigen Einschlusses bei der geplanten Verbringung von Reststoffen in die Abbaue von Flöz Grimberg 2/3 und Flöz Viktoria 1/2 Obk in den Baufeldern E3 und E4 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol, Betriebsbereich Monopol, der Ruhrkohle Bergbau AG. 27.04.1995.

Thein, J.: Gutachtliche Stellungnahme zum Gutachten von Dipl.Geol. Zimmer bezüglich der Reststoffverbringung in den Baufeldern E3 und E4 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol. 19.06.1996.

Thein, J., Veerhoff, M., Klinger, C.: Geochemische Barrieren bei Versatzbergwerken im Fels. In: Matschullat, J. et al.: Geochemie und Umwelt. Springer-Verlag: Berlin Heidelberg 1997.

Thiehofe, B.: Erste Ergebnisse der Bruchhohlraumverfüllung auf dem Bergwerk Walsum. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Thiehofe, B.: Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume. Teilvorhaben I: Ruhrkohle Niederrhein AG, Bergwerk Walsum. Forschungsbericht 0326416 B im Auftrag des BMFT. Essen, 1991.

Verordnung über das Einsammeln und Befördern sowie über die Überwachung von Abfällen und Reststoffen (Abfall- und Reststoffüberwachungs-Verordnung) vom 3.4.1990. BGBl. I 1990, S.648.

Verordnung über Verwertungs- und Beseitigungsnachweise (Nachweisverordnung) vom 10.9.1996. BGBl. I 1996, S. 1382.

Verordnung über das Europäische Abfallverzeichnis (Abfallverzeichnis-Verordnung) vom 10.12.2001. BGBl. I 2001, S. 3379.

Verordnung über den Versatz von Abfällen unter Tage (Versatzverordnung) vom 24.7.2002. BGBL. I 2002, S. 2833.

Voss, K. H.: Der gegenwärtige Entwicklungsstand der Blasversatztechnik und die zukünftigen Perspektiven für den Vollversatz im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik. In: bergbau 1988, Nr. 2.

Wilke, L.: Ergebnisse einer Machbarkeitsstudie zur Verbringung schadstoffhaltiger Rückstände in Steinkohlenbergwerken. In: Glückauf 1991, Nr. 19/20.

Wilke, F.L., Skrzyppek, J.: Wissenschaftliche Begutachtung und labortechnische Untersuchungen zum technischen Großversuch „Verbringung von MVA-Reststoffen als hydraulischer Nachversatz auf der Schachtanlage Consolidation“ im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH. TU Berlin, 1993.

Wilke, F.L., Dartsch, B.: Endbericht über die Koordinierung und wissenschaftliche Begleitung des „Qualitätssicherungsprogrammes zur Verifizierung des in der Machbarkeitsstudie formulierten vollständigen Einschlusses der in den Bruchhohlraum eingebrachten Reststoffe“ im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH. TU Berlin, 1995.

Zimmer, H.-D.: Gutachtliche Stellungnahme zur geplanten Einlagerung von Abfällen in die Bruchhohlräume der Flöze Grimberg 2/3 und Viktoria der Baufelder E3 und E4 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol unter Berücksichtigung der Kriterien für eine Verbringung nach dem „Prinzip des vollständigen Einschlusses“. 12.04.1996.

GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCH-HOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 3:

Hydrogeochemische Systemanalyse

Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University

Univ.-Prof. Dr. Thomas R. [redacted]

Dipl.-Geol. [redacted]

[redacted] M. Sc.

[redacted] M. Sc.

[redacted] B. Sc.

Abgabe April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen (Dr. [redacted])

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof. [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum: 16.07.2015

INHALTSVERZEICHNIS

0 Vorbemerkung 1

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1

0.2 Untersuchungsraum 2

1 Einleitung und Aufgabenstellung 4

2 Grundwasser in der Kreide 5

3 Tiefengrundwasser 7

3.1 Datenerfassung und Literatirrecherche 7

3.2 Auswahl von Tiefengrundwässern 10

3.3 Teufenabhängigkeit der Parameter 11

3.3.1 Abdampfrückstand 11

3.3.2 pH-Wert 13

3.3.3 Temperatur 14

3.3.4 Gehalt an NaCl 15

3.3.5 Spezifische elektrische Leitfähigkeit 16

3.3.6 Dichte 16

3.4 Chemische Zusammensetzung des Tiefengrundwassers im Bereich der BHV 17

3.5 Bewertung und Diskussion der Ergebnisse 20

4 Grubenwasser 22

4.1 Datenerfassung 22

4.2 Auswertung der Analysen 23

4.2.1 Untertägige Grubenwasserproben aus der Zeit der Bruchhohlraumverfüllungen 23

4.2.2 Übertägige Proben aus der Grubenwasserhebung Haus Aden 2008-2015 29

4.2.3 Aktuelle untertägige Probenahme 32

4.3 Bewertung und Diskussion der Ergebnisse 34

5 Versatzmaterialien 36

5.1 Datenerfassung und Literaturrecherche 36

5.2 Metallinventar der bergbaufremden Versatzmaterialien 37

5.2.1 Machbarkeitsstudie 37

5.2.2 Abschlussberichte 37

5.2.3 RAA-Schlämme 41

5.3 Hausmüllverbrennungsaschen (HMVA)-Zusammensetzung und Mineralphasen in den Aschen 44
5.4 Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 50
5.4.1 Forschungsberichte, Laborversuche und Überprüfung der Erhärtung 56
5.4.2 Überprüfung der Erhärtung in der BHV 58
5.5 Überschusswasser 60
5.6 Störfälle während des Betriebs 60
5.7 Auswertung nationaler und internationaler Literatur zum Thema BHV, insbesondere dem Aggregatzustand 62
5.8 Zusammenfassende Bewertung und Diskussion der Ergebnisse 67
6 Nebengesteine 69
6.1 Datenerfassung und Literaturrecherche 69
6.2 Art der Nebengesteine 69
6.3 Zusammensetzung der Nebengesteine 70
7 Literatur 72
ANHANG 1 82
ANHANG 2 87
ANHANG 3 93
ANHANG 4 99
ANHANG 5 100
ANHANG 6 105
ANHANG 7 114
ANHANG 8 115

ABBILDUNGEN:

Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens 1
Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 3
Abb. 3: Tiefenabhängige Verteilung der Abdampfrückstände für das BW Haus Aden / Monopol (Wedewardt 1995) im Vergleich mit den mittleren Abdampfrückständen für die Grubenwasseranalysen von Gb1 (RAG), des Grundwassers von Consolidation (Schacht 4, 11. Sohle; 1.210 mNHN; Jäger et al. 1990) und dem berechneten Abdampfrückstand des RAG-Wassers (s.o.) 12

Abb. 4:	Tiefenabhängige Verteilung des pH-Wertes, BW Haus Aden / Monopol	13
Abb. 5:	Tiefenabhängige Verteilung der Temperatur, Haus Aden / Monopol	14
Abb. 6:	Teufenabhängige Verteilung der NaCl-Konzentration, Haus Aden / Monopol	15
Abb. 7:	Tiefenabhängige Verteilung der spezifischen elektrischen Leitfähigkeit (bezogen auf 25 °C), Haus Aden / Monopol	16
Abb. 8:	Teufenabhängige Verteilung der Dichte, Haus Aden / Monopol	17
Abb. 9:	Lage der Bauhöhen, Bereiche mit Bruchhohlraumverfüllung und Grubenwasserentnahmestellen im Flöz Grimberg 2/3, Baufelder E1 bis E3 des BW Haus Aden / Monopol	23
Abb. 10:	Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle Gb 1/3	25
Abb. 11:	Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle Gb 16/1, (Datengrundlage: Abschlussberichte RAG); Lage in Abb. 7 als 17/1 markiert	26
Abb.12:	Teilprovinzen des Einzugsgebiet Victoriadamm, Einzugsgebiet Ost und Grubenwasserstände	30
Abb. 13:	Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes in Proben der Wasser-hebung im Bergwerk Haus Aden von 2008 bis 2015	32
Abb. 14:	Lage der drei Wasserbeprobungsstellen (18/1, 18/3 und 18/6) der Berpobungsmaßnahme 18.02.2016 im Schachtbereich Grimberg 2	33
Abb. 15:	Entstehung von RAA-Schlämme im Kraftwerk	42
Abb. 16:	Röntgendiffraktometrie Analyse gewonnener Kerne in die verbrachten Reststoffe	49
Abb. 17:	Technische CSH-Phasen	50
Abb. 18:	Aufnahme von Bruchhaufwerk	51
Abb. 19:	Kristallwachstum beim Abbinden von Zement	53
Abb. 20:	Schematische Darstellung des Verbundes zwischen Abbaubetrieb und BHV	54
Abb. 21:	Typisches Versatzgut mit den geforderten thixotropen Eigenschaften und hohem Feststoffgehalt	57
Abb. 22:	Herausdrückvorgang mit Rohrreinigungsgerät	57
Abb. 24:	Nahaufnahme einer Ortsbrust im Bergwerk Walsum. Gefüge aus Bruchbergen und Füllstoff nach Einbau über Schlepprohr	59
Abb. 25:	Lage der Reststoffe in einem Steinkohlenbergwerk in Ohio, USA	64
Abb. 26:	ESEM-Aufnahme (Environmental Scanning Electron Microscope) von Zementstein nach 3 Stunden Hydratation (Erstarren)	65
Abb. 27:	ESEM-Aufnahme (Environmental Scanning Electron Microscope) von Zementstein nach 28 Tagen Hydratation (Erhärten)	65
Abb. 28:	Mikroskopische Aufnahmen des Porenraumes mit CSH-Phasen, die den Porenraum verschließen	66

TABELLEN:

Tab. 1:	Grundwassermessstellen in der Kreide (Daten aus Beprobungen 2014/2015 der RAG); nach Detailbericht 1	6
Tab. 2:	Mittlere Tiefengrundwasserzusammensetzung im BW Haus Aden / Monopol in den Teufen der Bruchhohlraumverfüllungen mit bergbaufremden Reststoffen	18
Tab. 3:	Mögliche geogene Hintergrundzusammensetzungen des Tiefengrundwassers zur Modellierung	20
Tab. 4:	Verhältnis Betriebswasser zu gehobenem Grubenwasser	22
Tab. 5:	Bezeichnung der Beprobungsstellen zu den Bauhöhen nach den Abschlussberichten des Bergbautreibenden an die Aufsichtsbehörden	24
Tab. 6:	Abdampfrückstände in den Grubenwasserproben in Haus Aden	27
Tab. 7:	Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb1	28
Tab. 8:	Bandbreiten der Konzentrationen im Grubenwasser von Chlorid und ausgewählten Schwermetallen über den gesamten Verbringungszeitraum	29
Tab. 9:	Gehobene Grubenwässer von BW Haus Aden von 2008 bis 2015	31
Tab. 10:	Grubenwasseranalysen von der Beprobung im Bergwerk Haus Aden / Monopol vom 18.02.2016	33
Tab. 11:	Chemische Stoffanalysen der untersuchten Reststoffe (Auswahl von Proben der Abfallgruppen I bis VII aus Band 3 der Machbarkeitsstudie). Analyse im Königswasseraufschluss	37
Tab. 12:	Verbrachte Reststoffe und RAA-Schlämme in den einzelnen Bauhöhen	38
Tab. 13:	Massenbilanzierung RAA-Schlamm, andere Materialien	38
Tab. 14:	Bandbreiten der Belastungen der verbrachten Reststoffe mit Schwermetallen und Chlorid	39
Tab. 15:	Verbrachtes Reststoffinventar des HMVA-Filterstaubs im BW Haus Aden / Monopol	39
Tab. 16	Mittlere Metallgehalte der in Gb 2 verbrachten Filterstäube	41
Tab. 17:	Erzeuger von den im Bergwerk Haus Aden / Monopol verbrachten RAA-Schlämmen	43
Tab. 18:	Spannbreiten der chemischen Zusammensetzung der Trockensubstanz von RAA-Schlämme	44
Tab. 19:	Zusammenstellungen von HMVA-Zusammensetzungen im internationalen und zeitlichen Vergleich	46
Tab. 20:	Verschiedene Untersuchungen zu den Mineralphasen in Filteraschen	48
Tab. 21:	Zusammenfassung der Daten zu den Störfallberichten	62
Tab. 22:	Abschätzung der Mineralzusammensetzung nach Klinger (1994) auf Basis der chemischen Zusammensetzung und der röntgenographischen Untersuchung	71

0 Vorbemerkung

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die ahu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte die in der Abb. 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z. T. über die in der Abb. 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

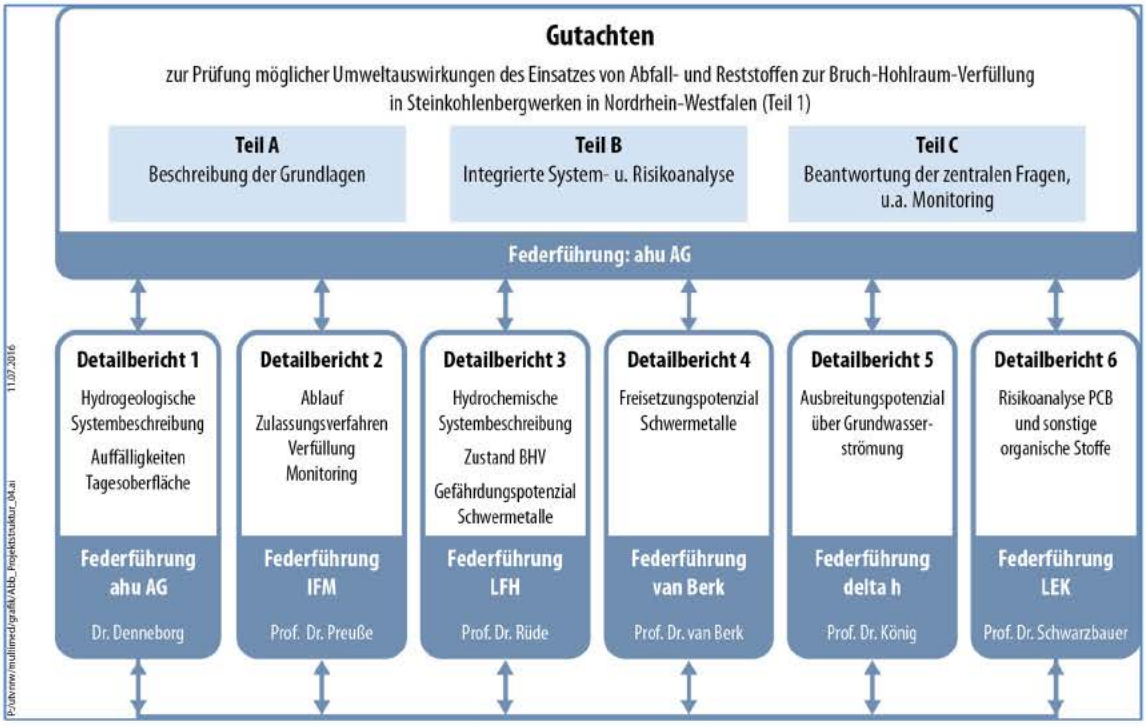


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u.a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten:

Nr	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter / Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulassungsverfahrens, der Bruchhohlraumverfüllung und des Monitorings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahren und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfüllung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungspotential 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof. [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof. [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 3.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (am Gösslinghof) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abb. 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgt in einer Tiefe zwischen -800 m NHN und -920 m NHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind noch

zugänglich. Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

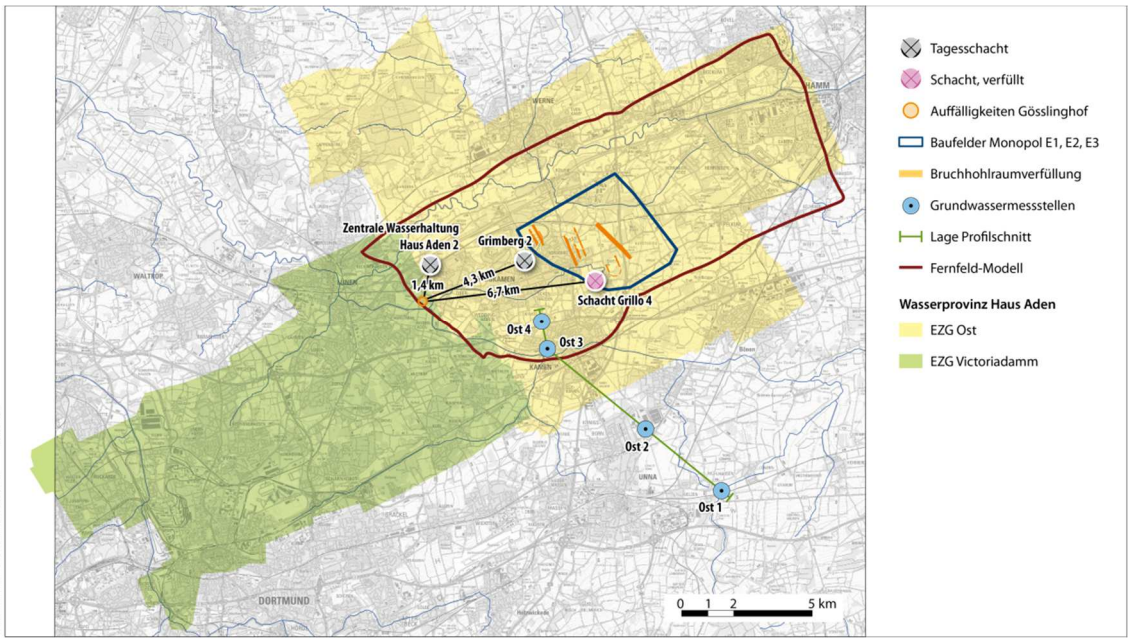


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 Einleitung und Aufgabenstellung

Das Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie (LFH) der RWTH Aachen bearbeitet vorrangig den Teilbereich „Hydrochemische Systemanalyse“ zum Einsatz von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung im Bergwerk Haus Aden / Monopol. Hinsichtlich der anorganisch-chemischen Aspekte werden die hydrogeochemischen Wechselwirkungen zwischen (i) eingebrachten bergbaufremden Reststoffen, (ii) Konditionierungsmaterialien, (iii) vorhandenen wässrigen Lösungen und (iv) Gesteinen im Kontakt zu den übrigen Phasen unter den In-situ-Bedingungen (Temperatur, Druck, Ionenstärke der wässrigen Lösung) dargelegt. In diese Darstellung wird auch die Stabilität der in den Versatzbereichen eingebrachten Komponenten und der dort natürlicherweise vorhandenen Stoffe unter den In-situ-Bedingungen (Temperatur, Druck, Ionenstärke der wässrigen Lösung) einbezogen. Stabilität bezieht sich dabei auf das Abbindeverhalten der Reststoffe in der Bruchhohlraumverfüllung (BHV), mechanische Fragen hingegen werden durch das IFM (Prof. [redacted]) und hydrogeochemische Fragen durch thermodynamische Berechnungen von Prof. [redacted] bearbeitet.

Die hydrogeochemischen Prozesse sind räumlich und zeitlich zu betrachten. Für den unmittelbaren Bereich der Bruchhohlraumverfüllung wird das Stoffinventar aus den Abschlussberichten des Versatzbetriebs ermittelt. Schwerpunkt des LFH ist die Hydrogeochemie des Nahfeldes, also das durch bergmännisches Auffahren der Grube aufgelockerte und durch Grubenwetter und Betriebswasser unmittelbar beeinflusste Gebirge und insbesondere die aufgelockerten Schichten im unmittelbaren Hangenden und Liegenden der Bruchhohlraumverfüllung mit den umgebenden Schichten von ca. 50 bis 100 m um die Bruchhohlraumverfüllung. Federführend werden vom LFH die hydrogeochemischen Wechselwirkungen zwischen (i) den aus der Zone mit Wässern austretenden Stoffen, (ii) den mineralischen Feststoffen der im Nahfeld anstehenden Gesteine und (iii) den dort vorhandenen Wässern (entweder Haftwässer in noch nicht vollständig gefluteten Bereichen oder freies, mobiles Tiefengrundwasser) mit ihren hydrogeochemischen Milieus unter In-situ-Bedingungen zusammengestellt und in einem zweiten Schritt bewertet.

Hier ist eine sekundäre Fixierung und/oder potenzielle Demobilisation von Stoffen (Umverteilung von Stoffen, die in den aus der ersten Zone austretenden Wässern gelöst sind, an die im Nahfeld anstehenden Gesteine) zu berücksichtigen. Andererseits ist aber auch eine Mobilisation von Stoffen aus den im Nahfeld anstehenden Gesteinen heraus in diejenigen mobilen Tiefengrundwässer möglich, die mit aus der ersten Zone austretenden Wässern kontaminiert sind. Dadurch könnten sich die hydrogeochemischen In-situ-Milieus ändern (betrifft u.a. Ionenstärke, pH-Wert, Redoxverhältnisse), welche die Mobilität der Stoffe kontrollieren.

In zeitlicher Entwicklung werden Prozesse in der Flutungsphase der BHV, einer Übergangsphase mit bereichsweise wechselnden Richtungen des hydraulischen Gradienten – also auch einem möglichen Stofftransport in das Fernfeld – und einer Dauerphase mit Haus Aden / Monopol als hydraulischem Zwangspunkt durch dauerhafte Grubenwasserhebung betrachtet.

Ferner werden hydrogeochemische Informationen für die hydrogeologische Systemanalyse (ahu AG) und die Modellierung des Fernfeldes, dem unverritzten Gebirge, durch delta h (Prof. [redacted]) sowie daraus abgeleitete Vorschläge für die Bewertung und für ein zukünftiges Monitoring bereitgestellt.

2 Grundwasser in der Kreide

Im zu betrachtenden Bereich wird das gefaltete Grundgebirge von Deckgebirge des Münsterländer Kreidebeckens und auflagernden quartären Gesteine bedeckt. Das Grundwasser im Deckgebirge ist in zwei Stockwerke einzuteilen, die durch Tonmergel- und Mergelsteine des Coniac bis unteren Mittelsanton, die traditionell als „Emscher Mergel“ zusammengefasst werden, getrennt sind. Die Gesteinsdurchlässigkeit der „Emscher Mergel“ ist in diesem Gebiet als sehr gering bis äußerst gering einzustufen, ihre Mächtigkeit berträgt im Betrachtungsgebiet ca. 200 m.

Die Auflockerungszone der „Emscher Mergel“ und die quartären Ablagerungen bilden das erste, von meteorischem Grundwasser erfüllte, Grundwasserstockwerk. Das zweite Grundwasserstockwerk, unter den Gesteinen des „Emscher Mergels“, umfasst Kalksteine, Kalkmergelsteine, Kalksandsteine und Mergelsteine des Cenoman und Turons. Die Basis bildet ein geringmächtiges Transgressionskonglomerat, hier Essener Grünsand.

Bereits im Teufenbereich der „Emscher Mergel“ steigt der Stoffinhalt der Grundwässer stark an. Die Wässer im Turon-Cenoman-Grundwasserleiter sind Salzwässer mit Stoffgehalten deutlich über 1.000 mg/L (z.B. Michel 1983). Erst entlang des Südrandes des Münsterländer Kreidebeckens erfüllen junge, meteorische Süßwässer dieses Grundwasserstockwerk (z.B. Michel 1997).

Wedewardt (1995) hat im Rahmen seiner Untersuchungen im Betrachtungsgebiet je eine Probe aus Bergwerk Monopol, Schacht Werne 3 (bei ca. -370 m NHN) und Bergwerk Haus Aden, Schacht 2 (bei ca. -330 m NHN), die beide dem Turon entstammen, analysiert und für diese Proben Stoffgehalte von 52.000 mg/L und 18.000 mg/L bestimmt.

Neuere Daten wurden von der RAG an Grundwassermessstellen erhoben, die im Jahr 2002 errichtet wurden und im „Emscher Mergel“ und im Turon verfiltert sind. Näheres ist im Detailbericht 1 (ahu AG) ausgeführt. Es sei hier noch einmal festgehalten, dass entsprechend den RAG-Analysen im „Emscher Mergel“ bereits bei geringen Teufen von 45 m hohe Stoffgehalte über 10.000 mg/L (siehe Grundwassermessstelle Ost 2.2, Tab. 1) auftreten. Auch im Turon werden sehr hohe Gehalte bis 23.000 mg/L (siehe Grundwassermessstelle Ost 4.2, Tab. 1) bestimmt. Die Messstelle Ost 1.1 weist sehr geringe Stoffgehalte auf, weil sie bereits in der südlichen Süßwasserzone des Turon-Grundwasserleiters, in der dieser ohne überdeckende Gesteine zu Tage tritt, verfiltert ist.

Die Analysen der RAG und die zwei Proben von Wedewardt bestätigen die wissenschaftliche Kenntnis zum Auftreten von salinarem Grundwasser im Deckgebirge und zeigen an, dass der Betrachtungsraum auch aktuell in der salinaren Zone des zweiten Grundwaserstockwerkes liegt (siehe auch Detailbericht 1).

Tab. 1: Grundwassermessstellen in der Kreide (Daten aus Beprobungen 2014/2015 der RAG); nach Detailbericht 1 (ahu AG)

Messstelle	Teufe [m]	Verfiltertes Gestein	Chloridgehalt [mg/L]
Ost 2.2	45	Emscher Mergel	10.000 - 12.000
Ost 3.1	200	Emscher Mergel	13.000 - 15.000
Ost 4.1	180	Emscher Mergel	13.000 - 15.000
Ost 1.1	70	Turon	30 - 55
Ost 2.1	165	Turon	11.000 - 13.000
Ost 4.2	335	Turon	23.000

3 Tiefengrundwasser

Tiefengrundwasser ist das Grundwasser, das bereits vor dem Auffahren der Bergwerke (BW) in den Klüften und Poren des Steinkohlengebirges vorhanden war und aufgrund der weiträumigen Überdeckung durch gering durchlässige Schichten nicht unmittelbar durch Zusickerung aus der Grundwasserneubildung ergänzt wird. Es sickert auch heute noch dem BW zu und wird nach einer Flutung langfristig das Wasser sein, das mit der Bruchhohlraumverfüllung (BHV) in Kontakt kommt. Dieses Tiefengrundwasser ist immer hoch mineralisiert und die Mineralisation nimmt mit der Teufe zu.

Um die Wechselwirkungen der eingebrachten bergbaufremden Versatzstoffe mit dem Tiefengrundwasser prognostizieren und beurteilen zu können, ist es notwendig die hydrochemischen Eigenschaften des Tiefengrundwassers spezifisch für das Bergwerk und die Teufe zu ermitteln. Der so bestimmte Chemismus der Tiefengrundwässer ergibt zudem eine Anfangsbedingung für die hydrochemischen Modellierungen (Detailbericht 4).

Die Daten des seit dem Jahr 2008 auf Initiative des Landesamtes für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz durchgeführten Grubenwassermonitorings können für diese Aufgabenstellung nicht verwendet werden, da sie aufgrund der anderen Zielsetzung die Zusammensetzung des gehobenen Grubenwassers beschreiben (s. Kap. 4.3.2).

3.1 Datenerfassung und Literatirrecherche

Generell wurde folgende Arbeitsweise zur Ermittlung des Tiefengrundwassers in Form der hydrogeochemischen Hintergrundwerte angewendet:

In einem ersten Schritt wurden alle bei der BR Arnsberg verfügbaren und durch das Ministerium und die RAG zur Verfügung gestellten Unterlagen, DMT Berichte, veröffentlichte wissenschaftliche Arbeiten etc. gesichtet und in Form von Fotographien, Scans, Kopien etc. als digitale Bildelemente oder im portable document format (PDF) erfasst.

Die Unterlagen wurden hinsichtlich ihrer Verwertbarkeit im Hinblick auf die hydrogeochemische Systembeschreibung spezifisch für den Bereich des Bergwerkes Haus Aden / Monopol und teufenspezifisch geprüft. Die für die Beurteilung der hydrochemischen Fragestellungen relevanten, vorhandenen Analysen wurden händisch in ein Excel-Format überführt, so dass diese nun für weitere Auswertungen digital zur Verfügung stehen.

Parallel dazu wurde eine Literaturrecherche mit dem Ziel unabhängige, ergänzende Daten zu ermitteln, durchgeführt. Es wurden die Originaldaten, soweit verfügbar nochmals einer eigenen Auswertung unterzogen. Es wurden besonders die folgenden Arbeiten berücksichtigt:

Michel (1964)

Auf Anregung von H. Karrenberg wurde Anfang der 1960er Jahre die Hydrogeologie und Hydrochemie des Tiefengrundwassers in Nordrhein-Westfalen großräumig untersucht. Ergebnisse dieser Untersuchungen insbesondere zum Ruhrgebiet wurden in einem Sonderband der Zeitschrift der Deutschen Geologischen Gesellschaft im Jahr

1964 publiziert. Darin dokumentierte Michel (1964) tabellarisch die Hauptbestandteile der Wässer und legt eine regionale Typisierung fest. Im Tiefengrundwasser betragen die Konzentrationen des dominierenden Anions Chlorid zwischen 1.000 mg/L und 200.000 mg/L und nehmen mit der Teufe zu. Neben den Hauptkationen Natrium, Calcium undMagnesium und Natrium enthält die Veröffentlichung auch Angaben zum Auftreten von Barium in sulfatarmen Grundwässern und dem, zum Teil mit diesem vergesellschafteten, Strontium.

Puchelt (1964)

Die Arbeit von Puchelt (1964) im selben Sonderband (s.o.) enthält Analysedaten, die im Rahmen der Untersuchung „Zur Geochemie des Grubenwassers im Ruhrgebiet" erhoben wurden. Es handelt sich dabei um 98 Grubenwasserproben, die in Zechen im gesamten Ruhrgebiet entnommen wurden.

„Die Probenahme erstreckte sich nach Möglichkeit auf alle in den einzelnen Gruben anfallenden Wässer, wobei auf die Erfassung der Zuflüsse auf den einzelnen Sohlen und damit aus verschiedenen stratigraphischen Horizonten besonderer Wert gelegt wurde." (S. 168)

Analysiert wurden neben physiko-chemischen Parametern (Temperatur, pH-Wert, spez. el. Leitfähigkeit, Abdampfdichte, Dichte) Alkali- und Erdalkalikationen und auf der anionischen Seite Halogne, Alkalinität und Sulfat.

Machbarkeitsstudie (Jäger et al. 1990)

Eine umfangreichere hydrochemische Datenaufnahme zum Tiefengrundwasser erfolgte erst wieder im Rahmen der Untersuchungen zur Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Versatzmaterialien. Quellen, der in der Machbarkeitsstudie ausgewerteten Daten, sind (Zitat 1):

- Archive der Westfälischen Berggewerkschaftskasse (heute DMT)
- Analysematerial aus veröffentlichter Literatur
- Eigene Untersuchungen an Grubenwässern (durch HIG und DMT analysiert)

Diese Analysedaten wurden in der Machbarkeitsstudie nach Lage und Teufe der Probenahme eingeordnet. Eine Archivierung der Daten erfolgte mit dem Programmcode Chemdat. Es handelt sich dabei um 2600 Analysen im Karbon und 1500 im Deckgebirge. Diese digitalen Daten standen für eine erneute Auswertung in dem hier vorliegenden Gutachten nicht zur Verfügung.

Die Datenauswahl (Machbarkeitsstudie) gestaltet sich schwierig, da bei der Probennahme nicht immer nachvollziehbar ist, ob es sich um Grundwässer, Betriebswässer oder Mischwässer handelt. Zudem bestehen zum Teil keine genauen Informationen zur Teufenlage der jeweiligen Probe. Die ausgewerteten Proben wurden außerdem nach vorher bestimmten Konzentrationsgrenzen in Grundwässer und Betriebswässer eingeteilt. In der Folge wurden nur noch Wässer in diesen Konzentrationsbereichen betrachtet (Zitat 2).

Textzitat:

> *(1) „Für die Bearbeitung der hydrochemischen Fragestellung wurden die Archive der Westfälischen Berggewerkschaftskasse (jetzt DMT-Gesellschaft für Forschung und Prüfung mbH) ausgewertet. Außerdem wurde umfangreiches Analysenmaterial der verschiedenen Bergwerke und aus der veröffentlichten Literatur erfasst. Zusätzlich wurden im Rahmen dieser Studie eigene Untersuchungen an Grubenwässern bei der DMT und im Hygieneinstitut des Ruhrgebietes (Gelsenkirchen) durchgeführt."*
>
> *(2) „Die Auswertung des Datenmaterials wurde durch die erheblichen Qualitätsunterschiede der einzelnen Analysedaten erschwert. (…) Häufig war nicht ersichtlich, ob es sich bei den Proben um Grundwässer, um Betriebswässer oder um Mischwässer aus beiden handelt. (...) Nach der EDV-Eingabe der Analysedaten wurden Datenlisten ausgedruckt, aufgrund derer eine Vorauswahl zwischen echten Grundwässern und wahrscheinlichen Betriebswässern getroffen wurde, indem für Chlorid und Sulfat für bestimmte Tiefen-Intervalle Unter- und Obergrenzen der Konzentrationen entsprechend der für diese Tiefen zu erwartende Werte festgelegt wurden. Für die weitere Betrachtung wurden nur Analysen herangezogen, die innerhalb dieses Konzentrationsbereiches lagen."*

Die Informationen, die in der Machbarkeitsstudie enthalten sind, wurden in Form von Tabellen zusammengestellt und durch Angaben aus der Literatur ergänzt (Anhang 1).

Klinger (1994)

Im DMT Bericht 23 zum „Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons" von Klinger (1994) werden teufenabhängige Konzentrationswerte der Hauptbestandteile der Grubenwässer des Ruhrkarbons aus Archivdaten der DMT angegeben. Weiterhin zitiert Klinger (1994) die entsprechenden Werte aus der Machbarkeitsstudie „Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen" von Jäger et al. (1990). Es wurden keine Angaben über die zu Grunde liegende Analytik gemacht.

Wedewardt (1995)

Bei den Analysedaten handelt es sich um Daten, die von Wedewardt (1995) im Rahmen seiner Untersuchung mithilfe eigener Grundwasserbeprobungen erhoben wurden. Die Ausarbeitung wurde als Dissertationsschrift an der Universität Bonn einem wissenschaftlichen Prüfungsverfahren unterzogen und danach als DMT-Bericht veröffentlicht. Zur Gewinnung der Proben sind auf den Seiten 32-34 des DMT-Berichtes von Wedewardt folgende Angaben gemacht:

„Die Proben stammen aus sämtlichen betriebenen Bergwerken aus Tiefen bis -1470 m NN (14 Bergwerke bzw. Verbundbergwerke, Stand 1994) und den Anlagen der Zentralen Wasserhaltung (14 beprobte Anlagen) der Ruhrkohle Bergbau AG." (S. 32)

„Aus Bohrungen in das tiefere Deckgebirge (Tiefen von ca. -70 m NN bis -570 m NN) und ehemaligen oberflächennahen Bergwerksstollen wurden ebenfalls Wasserproben entnommen. Bei den Bohrungen wurden die Wasserproben durch Schöpfen mit einer Schöpfbüchse und durch Pumpen gewonnen. Um an das reine Formationswasser zu

gelangen, mußte zunächst die Bohrspülung aus dem Bohrloch entfernt werden." (S. 32)

„ „Oberstes Ziel bei der Beprobung untertage war es, eine möglichst sichere Einstufung der Zuflußstellen als reine geogene Tiefenwässer vornehmen zu können. Dabei wurde zusätzlich auf eine möglichst weitgestreute regionale und stratigraphische Verteilung der Probenpunkte geachtet." (S. 33)

„Bevorzugte Zuflußstellen waren Wasseraustritte direkt aus dem Gebirge ohne langen Kontakt mit der Grubenluft, während z.B. Proben aus einer Wassersaige bereits einen veränderten Chemismus aufweisen können." (S. 33)

Es stehen insgesamt 190 Vollanalysen von den verschiedenen Beprobungslokalitäten, die den oben genannten Kriterien entsprechen, zur Verfügung (Wedewardt 1995).

3.2 Auswahl von Tiefengrundwässern

Die vorliegenden Wasseranalysen und deren Nachvollziehbarkeit im Hinblick auf die Probenahme wurden hinsichtlich ihres Informationsgehaltes bezüglich des geogenen Ursprungs und damit auf die Verwertbarkeit zur Beschreibung des Tiefengrundwassers, das dem Grubengebäude zufließt, geprüft.

Als primäre Datenquellen für Aussagen über die Hydrochemie der Tiefengrundwässer wurden Puchelt (1964) und Wedewardt (1995) identifiziert. Puchelt (1964) enthält keine Angaben zum Bergwerk Haus Aden / Monopol, für die weitere Auswertung werden daher die Daten von Wedewardt (1995) verwendet. Sie werden als geogene Hintergrundwerte für die weiteren Betrachtungen herangezogen.

Von Wedewardt (1995) liegen gut dokumentierte Analysen von zutretendem, weitgehend unbeeinflusstem Tiefengrundwasser vor. Der untersuchte Parameterumfang bei Wedewardt (1995) ist deutlich größer als in anderen Studien.

Für die weiteren Betrachtungen kann deshalb ein Mittelwert der validierten Analysen für Betrachtungen des Fernfeldes verwendet werden („Wedewardt Mittelwert").

Für die Modellierung in der BHV und im Nahfeld kann auch eine für typisch erachtete Analyse verwendet werden. Die hydrochemischen Modellierungen (Detailbericht 4, Prof. [redacted]) erfolgte für Haus Aden / Monopol mit einem realen Tiefengrundwasser („Wedewardt Z2"). Zusätzlich wurde mit einem „verdünnten" Z2- Wasser modelliert, um den Einfluss der Tiefengrundwasserbeschaffenheit einzuschätzen.

Die verschiedenen Analyseverfahren, sind, sofern die für die Analyse genutzten Geräte genannt wurden, in Anhang 2 aufgeführt. Aufgrund der damals verfügbaren bzw. ausgewählten Analyseverfahren sind die hohen Nachweisgrenzen für alle Schwermetalle und Metalloide entstanden, die der Ermittlung von Hintergrundwerten für die Spurenstoffe aus diesem Datensatz entgegenstehen (Anhang 2).

Exkurs „RAG-Wasser“

In der Machbarkeitsstudie und vielen Studien aus der Zeit vor der Verbringung der Reststoffe wurden Elutionsversuche durchgeführt. Aus Gründen der Vergleichbarkeit wurde für weitere Studien ein standardisiertes, sog. RAG-Wasser, entwickelt. Die Ruhrkohle AG hat dieses Standard-Grubenwasser in Zusammenarbeit mit dem Landesumweltamt und der Ruhr-Universität Bochum definiert (Paas 1997). Wilke und Dartsch (1995) verweisen darauf, dass dessen Zusammensetzung *zwischen den beteiligten Stellen Mitte 1992 vereinbart wurde*. Dieses Wasser sollte den Hauptbestandteilen eines Tiefenwassers in der Tiefe der Bruchhohlraumverfüllungen (Teufe - 800 m) entsprechen. Allerdings enthält dieses RAG-Wasser nur eine Auswahl von Stoffen, u.a. keine Schwermetalle.

Detailbericht 4 (Prof. [redacted]) führt in den Vorstudien Ergebnisse hydrochemischer Modellierungen mit „RAG-Wasser“ aus, um den Einfluss dieser Wasserzusammensetzung nachzuvollziehen.

3.3 Teufenabhängigkeit der Parameter

Es wurde die Teufenabhängigkeit einzelner physiko-chemischer Messgrößen und Stoffe ausgewertet: Abdampfrückstand, pH-Wert, Temperatur, Gehalt an NaCl,, spezifische elektrische Leitfähigkeit und Dichte. Bis auf den pH-Wert nehmen alle Parameter mit der Teufe zu. Die Daten beziehen sich nur auf das Bergwerk Haus Aden. Zur Orientierung sind in den Diagrammen neben der Geländeoberkante, die Grenze Deckgebirge - Grundgebirge entsprechend dem Bohrprofil Grillo 4, der Teufenbereich BHV – die sich überwiegend im Teufenbereich -800 m NHN bis -920 m NHN befindet - und das Flutungsziel – 600 m NHN in der Wasserprovinz Haus Aden sowie – 670 m NHN in der Zentrale Wasserhaltung Haus Aden gemäß des Grubenwasserkonzeptes der RAG eingetragen.

3.3.1 Abdampfrückstand

Die Zusammensetzung der tiefen Grundwässer wird in der Mehrzahl der Untersuchungen durch das in seiner Zusammensetzung festgelegte RAG-Wasser repräsentiert. Zur Orientierung ist in der Darstellung des Teufenverlaufs des Abdampfrückstandes das RAG-Wasser durch eine Linie markiert (Abb. 3). Gleichfalls wurde der als Stoffmassenkonzentration bestimmte Abdampfrückstand der in Haus Aden beprobten Grundwässer als Anteil oder Vielfaches des Abdampfrückstandes des RAG-Wassers dargestellt.

Wenige Proben haben einen mit Bezug auf die Beprobungsteufe zu geringen Abdampfrückstand. Sie sind nachstehend durch gelbe Rauten markiert. Hierfür gibt es drei mögliche Ursachen:

- Die Beziehung Abdampfrückstand zur Teufe hat eine sehr große Streuung.
- An den konkreten Probenahmestellen ist eine Beprobung von dem Bergwerk zusetzendem Tiefengrundwasser ohne Vermischung mit Betriebswasser nicht gelungen.

- Das beprobte Tiefengrundwasser entstammt einem höheren geologischen Niveau und ist im Nahfeld des Bergwerkes, das durch das bergmännische Auffahren gestört ist, in ein tieferes Niveau gesickert, bevor es in das Grubenbauwerk eingetreten ist und beprobt werden kann. Herkunftsteufe und Beprobungsteufe sind dann nicht identisch. Ganz in diesem Sinne schreibt Wedewardt (1995: 33): *„Unsicherheiten bei der Beurteilung der Herkunft sind hierbei nicht auszuschließen, da die möglichen Fließwege nicht immer mit Sicherheit zu rekonstruieren sind."*

In der Retrospektive kann keine Klärung zwischen diese drei Ursachen getroffen werden. Sie werden in diesem Gutachten als Proben eingestuft, die nicht repräsentativ für die Stoffkonzentrationen der Grundwässer im unverritzten Gebirge (Fernfeld) sind. Deshalb werden sie für die weiteren Betrachtungen auch nicht berücksichtigt.

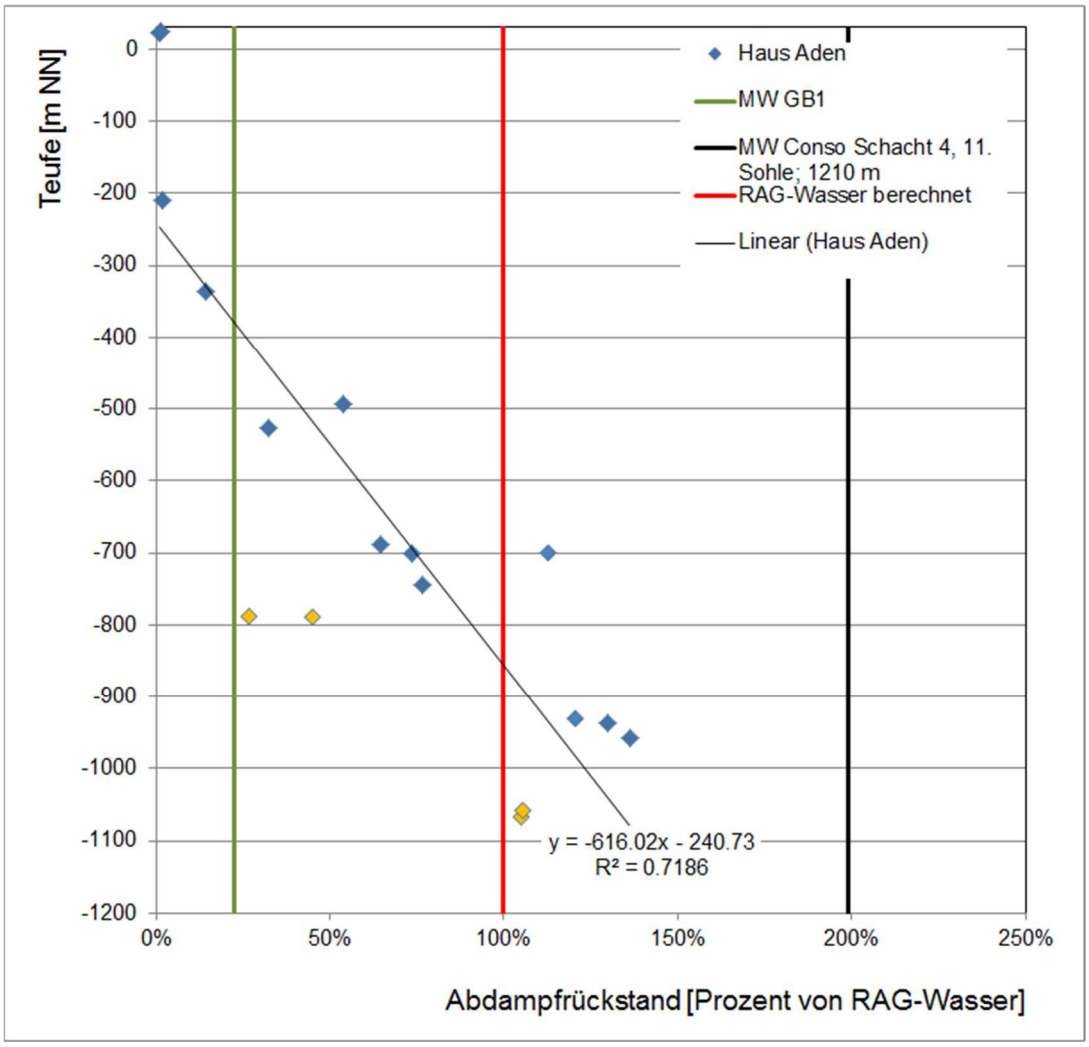


Abb. 3: Tiefenabhängige Verteilung der Abdampfrückstände für das BW Haus Aden / Monopol (Wedewardt 1995) im Vergleich mit den mittleren Abdampfrückständen für die Grubenwasseranalysen von Gb1 (RAG), des Grundwassers von Consolidation (Schacht 4, 11. Sohle; 1.210 mNHN; Jäger et al. 1990) und dem berechneten Abdampfrückstand des RAG-Wassers (s.o.) (gelb = nicht repräsentative Proben, da zu geringer Abdampfrückstand)

3.3.2 pH-Wert

Die pH-Werte (Abb. 4) liegen bis zu einer Teufe von - 600 m NHN zwischen 7,24 und 7,69 (alkalische Grundwässer). Mit zunehmender Teufe sinken die Werte in den leicht sauren Bereich bis ca. pH 6.0 ab. Einige Proben weisen deutlich niedrigere Werte auf. (Minimalwert von 4,78 (- 931 mNHN)). Diese sauren pH-Werte sind die Folge der Belüftung des Gesteins durch das Grubengebäude. Natürlich im Gestein enthaltene Sulfidminerale werden oxidiert und setzen Säure, Sulfat, Eisen und weitere Spurenstoffe (Ammonium, Mangan, Kupfer, Zink) frei (Nahfeld). Im unverritzten Gebirge (Fernfeld) fehlt die Belüftung als antreibendes Moment für die Sulfidoxidation. Den Bedingungen im Fernfeld entsprechen die Proben mit pH-Werten zwischen 6,0 und 7,6.

Wenige Proben weisen pH-Werte auf, die nicht den in den jeweiligen Beprobungsteufen zu erwartenden Werten entsprechen. Sie sind nachstehend durch gelbe Rauten markiert und werden in diesem Gutachten als Proben eingestuft, die entsprechend obiger Argumentation nicht repräsentativ für die Stoffkonzentrationen der Grundwässer im unverritzten Gebirge (Fernfeld) sind.

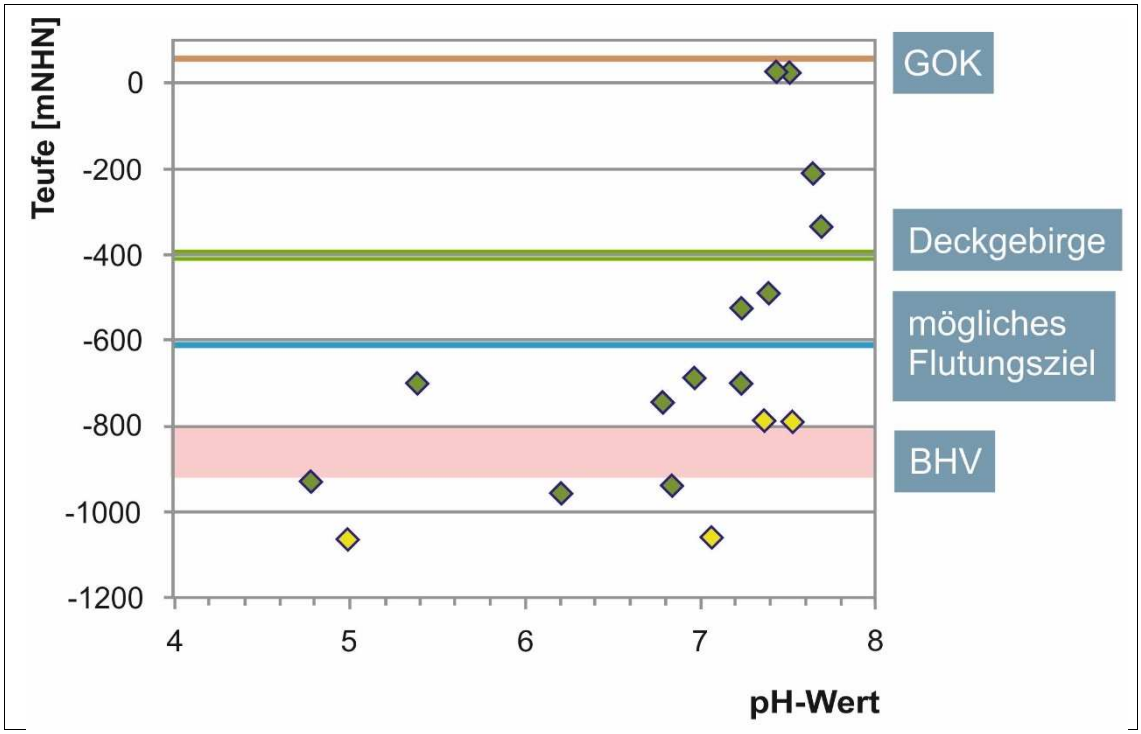


Abb. 4: Tiefenabhängige Verteilung des pH-Wertes, BW Haus Aden / Monopol (gelb = nicht repräsentative Proben) (erstellt aus den Analyseergebnissen von Wedewardt 1995)

3.3.3 Temperatur

Der Temperaturverlauf mit zunehmender Teufe zeigt – dem natürlichen geothermischen Gradienten entsprechend - einen Temperaturanstieg (Abb. 5). Auch Proben, die in vorangegangenen Abschnitten als nicht repräsentativ für die Beprobungsteufe eingestuft wurden, passen mehrheitlich in den Verlauf. Anders als die in der Herkunftsteufe ererbten chemischen Eigenschaten, passt sich die Temperatur schnell den Bedingungen in der Beprobungsteufe an. Im Teufenabschnitt der BHV herrschen Temperaturen zwischen 35 und 45 °C.

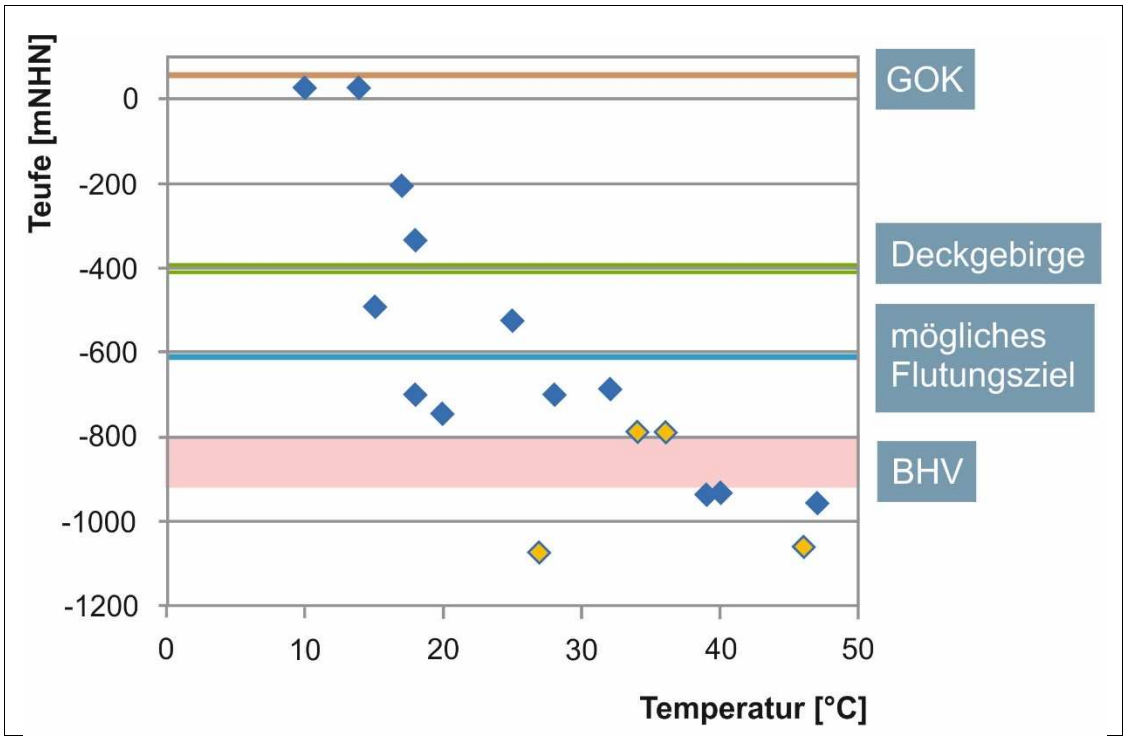


Abb. 5: Tiefenabhängige Verteilung der Temperatur, Haus Aden / Monopol (gelb = nicht repräsentative Proben) (erstellt aus den Analyseergebnissen von Wedewardt 1995)

3.3.4 Gehalt an NaCl

Der NaCl-Verlauf zeigt mit zunehmender Teufe einen deutlichen Anstieg (Abb. 6). Da es sich um die Hauptverbindung in den Wässer handelt wederholt dies den Teufenverlauf des Abdampfrückstandes.

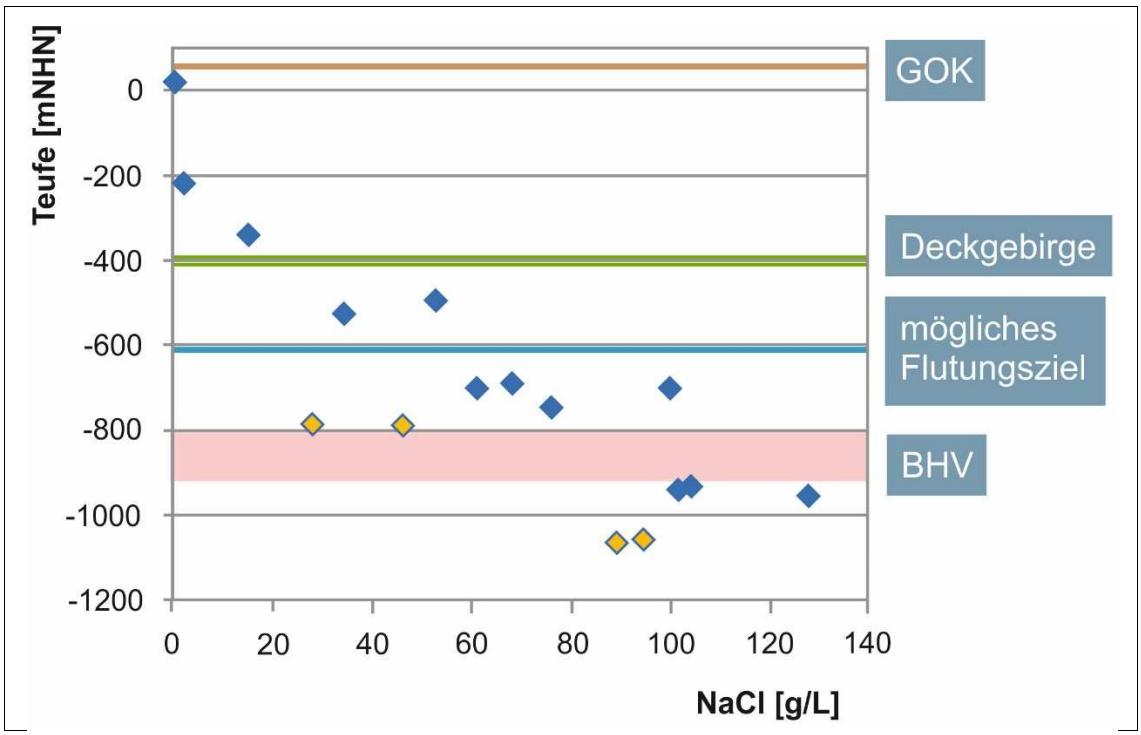


Abb. 6: Teufenabhängige Verteilung der NaCl-Konzentration, Haus Aden / Monopol (gelb = nicht repräsentative Proben) (erstellt aus den Analyseergebnissen von Wedewardt 1995)

3.3.5 Spezifische elektrische Leitfähigkeit

Der Verlauf der spezifischen elektrischen Leitfähigkeit zeigt, entsprechend des Abdampfrückstands- und NaCl-Verlaufs, mit zunehmender Teufe einen Anstieg (Abb. 7).

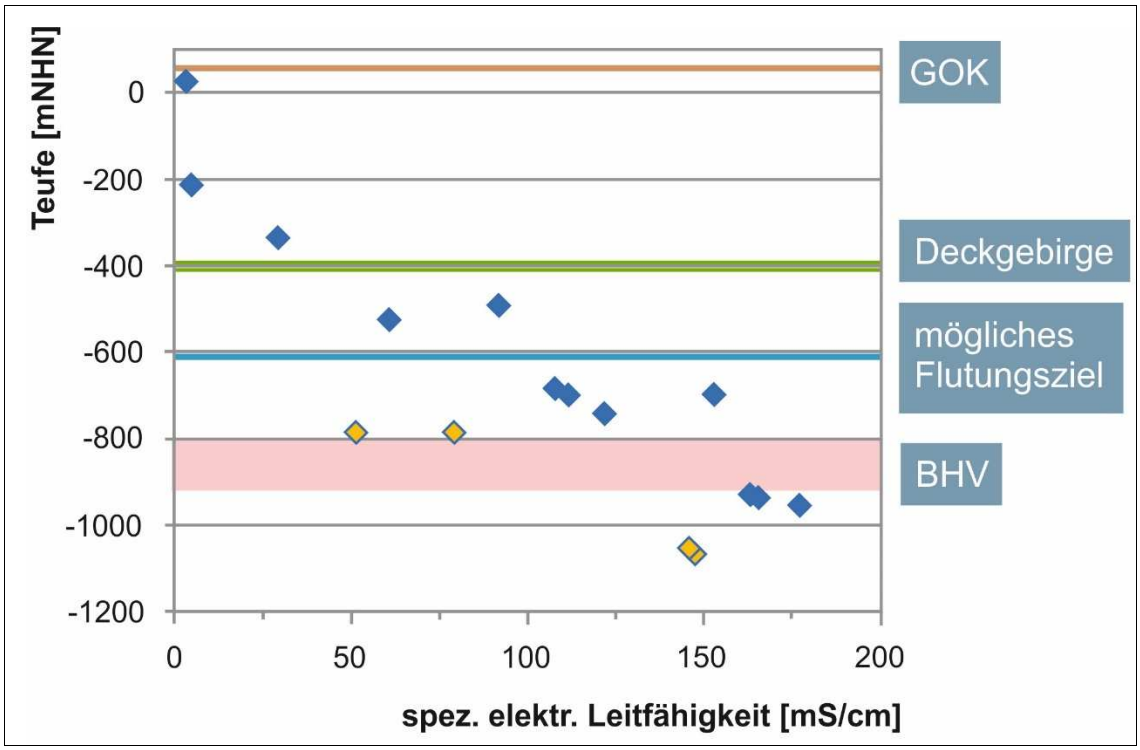


Abb. 7: Tiefenabhängige Verteilung der spezifischen elektrischen Leitfähigkeit (bezogen auf 25 °C), Haus Aden / Monopol (gelb = nicht repräsentative Proben) (erstellt aus den Analyseergebnissen von Wedewardt 1995)

3.3.6 Dichte

Die teufenabhängige Verteilung der Dichte und der spezifischen elektrischen Leitfähigkeit sind gekoppelt an die teufenabhängige Verteilung des Abdampfrückstandes sowie der dominierenden Ionen Chlorid und Natrium (in Abb. 6 als Steinsalz (NaCl) angegeben), die andere Wasserinhaltsstoffe in der Regel um mehr als zehnfach in der Konzentration übersteigen.

Auffällig ist der Dichtesprung zum Deckgebirge. Vor Allem im Bereich der BHV sind die Dichten relativ hoch (Abb. 8):

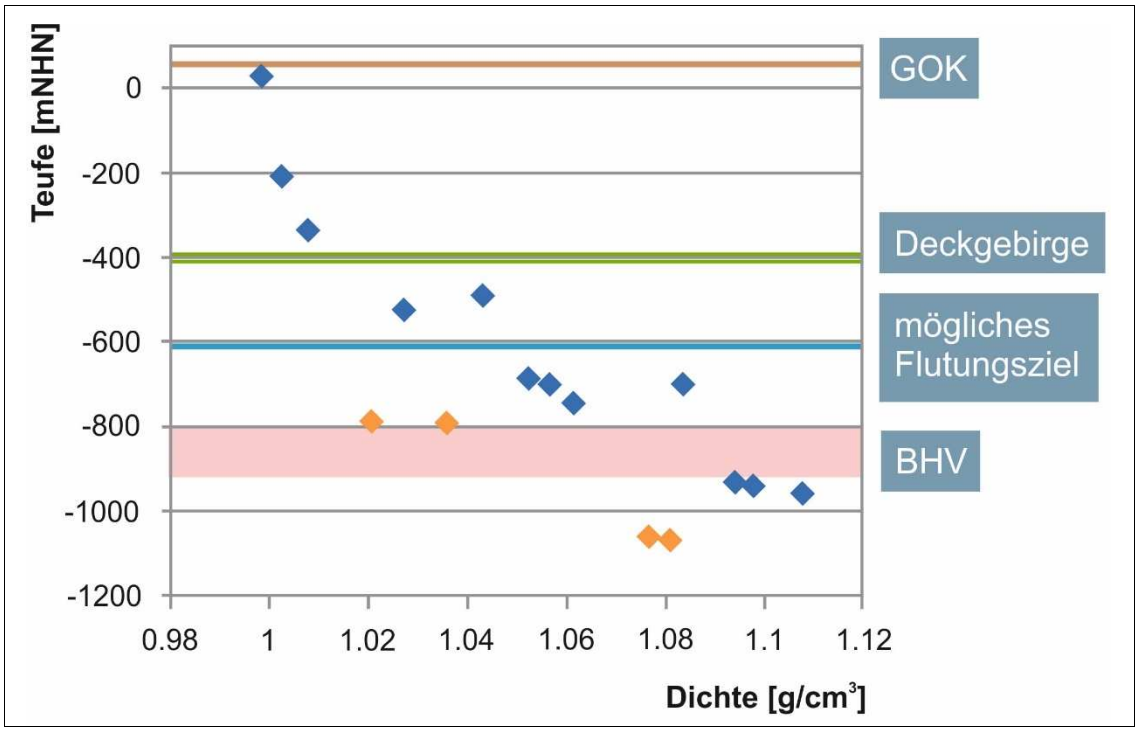


Abb. 8: Teufenabhängige Verteilung der Dichte, Haus Aden / Monopol (gelb = nicht repräsentative Proben) (erstellt aus den Analyseergebnissen von Wedewardt 1995)

3.4 Chemische Zusammensetzung des Tiefengrundwassers im Bereich der BHV

Zur Ermittlung der mittleren Zusammensetzung des Tiefengrundwassers im BW Haus Aden / Monopol wurden die vorhandenen untertägigen Analysen im Bereich der Teufe der Bruchhohlraumverfüllung hinsichtlich Min/Max-Werten und als Durchschnitt tabellarisch (Tab. 2) zusammengestellt. Für Spurenstoffe können nur die damaligen sehr hohen Nachweisgrenzen aufgrund des gewählten Analyseverfahrens angegeben werden.

Hierbei wurden vor allem solche Proben ausgewählt, die möglichst repräsentativ für die Teufe -700 bis -900 mNHN sind. Einzelne Proben scheinen bei Zugrundelegung des Stoffinhalts in einer Beprobungsteufe entnommen zu sein, die nicht der Herkunftsteufe entspricht. Sie haben z.B. einen zu geringen Abdampfrückstand. Im Nahfeld des Grubenbauwerkes kann Tiefenwasser unter vadosen Bedingungen im verritzten Gebirge in größere Teufen fließen. Obwohl die Berpobungsstelle „ordentlich“ aussieht, setzt der Grube dann ein Wasser zu, das genetisch einem anderen Niveau zuzurechnen wäre (siehe auch Diskussion eingangs Kap. 3.3)

Tab. 2: Mittlere Tiefengrundwasserzusammensetzung im BW Haus Aden/Monopol in den Teufen der Bruchhohlraumverfüllungen mit bergbaufremden Reststoffen (Der Mittelwert der einzelnen Parameter wurde aus 7 Proben aus Teufen von -689 bis -957 mNHN nach Wedewardt, 1995 berechnet.)

		Mittelwerte	Minimum	Maximum
Temperatur (in situ)	°C	32	18	47
pH-Wert		6,3	4,8	7,2
spez. elektr. Leitfähigkeit	µS/cm	142.957	108.100	177.400
Abdampfrückstand	mg/L	130.529	82.800	174.300
Dichte	g/cm³	1,079	1,053	1,108
freies CO_2	mg/L	28	18	35
aggressives CO_2	mg/L	12	10	14
Chlorid	mg/L	70.614	47.100	95.500
Iodid	mg/L	19	8	50
Bromid	mg/L	93	44	147
Sulfat	mg/L	63	63	63
Hydrogencarbonat	mg/L	87	2	269
Nitrat	mg/L	76	22	170
Ammonium	mg/L	29	2	46
Bor	mg/L	3	0	6
Silizium	mg/L	4	3	8
Lithium	mg/L	16,5	5,2	26
Natrium	mg/L	35.929	24.000	50.300
Kalium	mg/L	450	265	762
Magnesium	mg/L	3.136	648	13.808
Calcium	mg/L	5.581	2.150	9.090
Strontium	mg/L	566	414	883
Barium	mg/L	1.041	24	2.460
Aluminium	mg/L	0,7	< 0,5	1
Arsen	mg/L	< 0,005	< 0,005	< 0,005
Blei	mg/L	< 0,5	< 0,5	< 0,5
Cadmium	mg/L	< 0,05	< 0,05	< 0,05
Chrom	mg/L	< 0,05	< 0,05	< 0,05
Eisen	mg/L	22,8	< 0,005	53,0
Kupfer	mg/L	0,15	0,10	0,27
Mangan	mg/L	1,4	< 0,05	3,1
Molybdän	mg/L	< 0,05	< 0,05	< 0,05
Nickel	mg/L	< 0,05	< 0,05	< 0,05
Quecksilber	mg/L	< 0,001	< 0,001	< 0,001

		Mittelwerte	Minimum	Maximum
Selen	mg/L	< 0,005	< 0,005	< 0,005
Vanadium	mg/L	< 0,05	< 0,05	< 0,05
Zink	mg/L	0,5	< 0,05	1,9

Exkurs „Stickstoff im Tiefengrundwasser“

Nitratkonzentrationen bis 170 mg/L erscheinen zunächst für ein von anthropogenen Einflüssen freies Tiefengrundwasser sehr hoch. Hierbei muss auch Ammonium berücksichtigt werden, das im Redoxgleichgewicht mit Nitrat „ersatzweise“ die Stickstoffspezies sein kann. Das bedeutet ausgedrückt als Stickstoffkonzentrationen bis zu 40 bis 50 mg/L. Solche Konzentrationen sind in Tiefengrundwässern global festgestellt worden (z.B. Mannning & Hutcheon 2004, und darin angeführte Literatur). Quellen für Stickstoff in Tiefengrundwässern sind zum einen organische Materialien wie Kohlen, die 1-3 % Stickstoff enthalten können (z.B. Gurba & Ward 2000), und der Einbau von Ammonium in Tonmineralen, insbesondere Illit (Mannning & Hutcheon 2004). Die für das Tiefenwasser Haus Aden ermittelten Nitratkonzentrationen sind völlig im Einklang mit diesen Studien und kein Indiz für anthropogene Einflüsse.

Die Modellierung von Prof. Dr. [redacted] zur Stofffreisetzung (Detailbericht 4) wird mit dem Z2-Wasser aus Wedewardt (1995) durchgeführt (siehe Tab. 3 und Anhang 3). Somit wird für die Modellierung eine konkrete, interpretationsfrei vorliegende Analyse verwendet. Die oben gezeigte mittlere Zusammensetzung aus den Analysen von Wedewardt (1995) enthält die beschriebene Auswahl der Grubenwasseranalysen für die Berechnung des Mittelungsmaßes. Zwischen beiden Ansätzen sind die Unterschiede nicht so groß, dass grundsätzlich andere Ergebnisse bei einer Modellierung entstehen würden.

Das RAG-Wasser entspricht nur bedingt dem geogen in dieser Tiefe vorkommenden Wasser, wie die Auswertung der Daten (Wedewardt 1995) zeigt.

Tab. 3: Mögliche geogene Hintergrundzusammensetzungen des Tiefengrundwassers zur Modellierung (zusammengestellt nach Daten Wedewardt 1995 und Paas 1997)

Parameter	Einheit	Probe (Wedewardt 1995)	RAG-Wasser		Mittelwerte (Wedewardt 1995)		
		Z2	RAG	prozentuale Abweichung RAG bezogen auf Z2	MW	prozentuale Abweichung MW bezogen auf RAG	prozentuale Abweichung MW bezogen auf Z2
pH		6,84	7,10		6,45		
spez. elektr. Leitfähigkeit	µS/cm	165.200	141.000	15	131.488	-7	20
Abdampfrückstand	mg/L	166.200	127.920	23	119.183	-7	28
Chlorid	mg/L	86.200	78.000	10	64.613	-17	25
Hydrogencarbonat	mg/L	62	60	3	107	78	-72
Natrium	mg/L	40.000	46.000	-15	32.863	-29	18
Kalium	mg/L	426	390	8	394	1	8
Magnesium	mg/L	2.200	1.020	54	2.772	172	-26
Calcium	mg/L	9.090	2.000	78	5.305	165	42
Strontium	mg/L	475	175	63	337	92	29
Barium	mg/L	2.460	275	89	796	190	68

3.5 Bewertung und Diskussion der Ergebnisse

Ziel dieses Kapitels ist es eine quantitative, für die Modellierung verwendbare Aussage zur Tiefengrundwasserzusammensetzung im Bereich der BHV in Haus Aden / Monopol zu treffen. Auch wenn viele Literaturstellen richtig von einem hochsalinaren Tiefengrundwasser ausgehen, ermöglichen nur wenige Arbeiten eine in der Retrospektive nachvollziehbare Bewertung der Probenahme.

Die Wahl der Beprobungsstelle ist naheliegender Weise schwierig, da vom Grubengebäude aus repräsentative Proben für das unverritzte Gebirge gewonnen werden sollen. Nicht mehr nachvollziehbar ist, warum nicht versucht wurde, an ausgewählten Lokalitäten Bohrungen mit den in Gruben verfügbaren Geräten in das Unverritzte abzusetzen, um Wasserproben mit einem sicheren Teufenbezug zu gewinnen.

Die systematischste Bearbeitung, die zum größten Primärdatensatz führte, wurde von Wedewardt (1995) geleistet. Aus dieser läßt sich eine vernünftige Teilkohorte für Haus Aden / Monopol extrahieren.

Bei genauer Auswertung ergibt sich eine systematische Teufenabhängigkeit der durch den Salzgehalt gesteuerten Parameter (Abdampfrückstand, Dichte, etc.) für Haus Aden / Monopol. Dies weicht von den von Wedewardt (1995) für den Gesamtdatensatz getroffenen Aussagen ab. Wedewardt enthält die umfänglichste Analyse von Halb- und

Schwermetallen. Aus heutiger Sicht sind die Nachweisgrenzen in den analytisch schwierigen, hochsalinaren Wässern zu hoch. Der Ansatz aus dieser Auswertung Hintergrundwerte für ein Monitoring der Metalle zu erhalten, ist für einige Metalle, insbesondere Blei und Cadmium aufgrund dieser hohen Nachweisgrenzen aus dem Datensatz von Wedewardt (1995) nicht umsetzbar.

4 Grubenwasser

Grubenwasser ist das Wasser, das untertägig gefasst wird und eine Mischung aus Tiefengrundwasser und Betriebswasser ist.

Exkurs Betriebswasser

Die Hauptursache für die geringen Leitfähigkeiten mancher Grubenwässer ist die Vermischung der den Bergwerken zusetzenden Tiefengrundwässer mit dem Betriebswasser. Als Betriebswasser (z.B. zur Staubbekämpfung) wurden große Mengen von v.a. Trinkwasser eingesetzt, dass sich dann mit den hoch mineralisierten, zusetzenden Tiefengrundwässern vermischte und wieder an die Tagesoberfläche gepumpt wurde. Gerade sehr geringe Leitfähigkeiten von Grubenwasserproben zeigen deshalb, dass es sich eben nicht um eine Zusickerung aus dem Deckgebirge handelt, sondern um eine Vermischung vor Ort mit dem eingesetzten Betriebswasser. Der Anteil des Betriebswassers ist dabei erheblich, wie zwei Beispiele zeigen (s. Tab. 4).

In Kap. 2 wurde bereits ausgeführt, dass im Betrachtungsgebiet die Grundwässer des für eine Zusickerung relevanten, zweiten Grundwasserstockwerkes schon in geringen Teufen salinar sind. Sie haben daher keinen verdünnenden Einfluss auf das Tiefengrundwasser.

Tab. 4: Verhältnis Betriebswasser zu gehobenem Grubenwasser (Daten RAG, e-mail 09.03.2016)

	Wasserbrauch (Mittelwert letzte 5 a)	Gehobenes Grubenwasser	Anteil Betriebswassser am Grubenwasser
Prosper-Haniel	3 Mio. m^3/a	4 Mio. m^3/a	75 %
Ibbenbüren	1,9 Mio.m^3/a	2,6 Mio. m^3/a	73 %

4.1 Datenerfassung

Aus dem BW Haus Aden / Monopol liegen aus der Zeit der Bruchhohlraumverfüllung Analysen von Grubenwässern vor. Analog verfügbare Daten wurden händisch in Excel-Tabellen digitalisiert.

Seitens der RAG wurden aktuelle Grubenwasseranalysen durch die RAG vom gehobenen Grubenwasser vor der Einleitung digital zur Verfügung gestellt. Da es sich hierbei um Mischwässer handelt, sind diese Analysen von untergeordneter Bedeutung.

2016 wurde eine untertägige Probennahme durch das LANUV im BW Haus Aden / Monopol vorgenommen. Davon stammte eine Probe von einem Wasserzutritt aus der Deckenfirste und die beiden anderen aus kleinen Pumpensümpfen. Weitere Wasserzutritte wurden bei dieser einen Maßnahme nicht beobachtet.

4.2 Auswertung der Analysen

4.2.1 Untertägige Grubenwasserproben aus der Zeit der Bruchhohlraumverfüllungen

Entsprechend den Nebenbestimmungen der Sonderbetriebspläne wurden vom Bergbautreibenden an drei Stellen je Bauhöhe, die mit bergbaufremden Material versetzt wurde, mehrfach Wasserproben genommen und die Analysewerte den Aufsichtsbehörden mit den Abschlussplänen mitgeteilt.

Aus den vorliegenden Unterlagen konnte die Lage der Entnahmestellen mit Ausnahme von 1/3, 2/3, 16/3, 17/3, 31/1 und 31/2 bestimmt werden. Gb 16/1 und Gb 17/1 sind identisch. Eine Übersichtsdarstellung der ermittelten Grubenwasserentnahmestellen und deren Position im Bezug zur Bruchhohlraumverfüllung im BW Haus Aden / Monopol zeigt die Abbildung. 9.

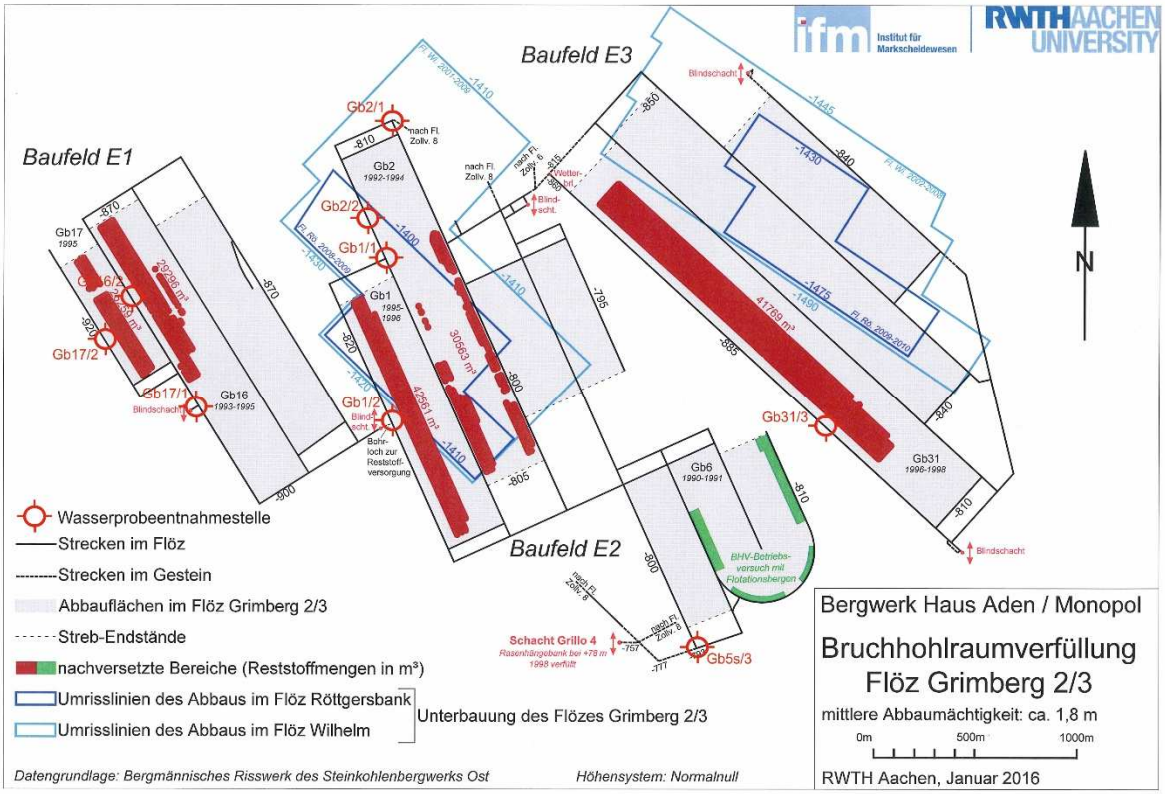


Abb. 9: Lage der Bauhöhen, Bereiche mit Bruchhohlraumverfüllung und Grubenwasserentnahmestellen im Flöz Grimberg 2/3, Baufelder E1 bis E3 des BW Haus Aden / Monopol (Probeentnahmepunkte hinzugefügt)

Aus den Abschlussberichten sind in nachfolgender Tabelle (Tab. 5) die Bezeichnungen der drei Wasserbeprobungsstellen je Bauhöhe zusammengestellt: Für Gb 2 sind wechselnde Bezeichnungen gegeben, aus denen nicht nachvollzogen werden kann, ob stets die gleiche Probenahmestelle verwendet worden ist.

Über den Aufbau der Entnahmestellen im Abbaubetrieb Gb 16 gibt ein Schreiben der RAG an das Bergamt Kamen (zitiert nach Gutachten Friedrich (2013), Anlage 9) Auskunft. Dort wird beschrieben, dass die Beprobung des Grubenwassers an den Entnahmestellen 16/1 und 16/2 aus den Steigleitungen heraus erfolgt. Entnahmestelle 16/1 erfasst dabei das gesamte Grubenwasser aus dem Bereich Gb 16, Entnahmestelle 16/2 das Grubenwasser aus der Bandstrecke. Aussagen über die Art der Entnahmestellen in den übrigen Abbaubetrieben liegen nicht vor.

Die Beprobungshäufigkeit war an Gb 2 mit nur vier Beprobungen und einem sehr großen zeitlichen Abstand zwischen 3. und 4. Beprobung aus gutachterlicher Sicht zu gering. Für die weiteren Beprobungen in den anderen Bauhöhen ist eine ca. monatliche Beprobung gewählt

Tab. 5: Bezeichnung der Beprobungsstellen zu den Bauhöhen nach den Abschlussberichten des Bergbautreibenden an die Aufsichtsbehörden

Bauhöhe	**Entnahmestelle 1**	**Entnahmestelle 2**	**Entnahmestelle 3**
Gb 1 (07/1995 - 05/1996)	Kopfstrecke - Eingang, nördliche Basis	Bandstrecke - ca. 20 m hinter Bohrloch	Abzweig südliche Basis Kopfstrecke Grimberg 3 Abzweig südliche Basis Kopfstrecke GB3 – Dieselraum
Gb 2 (06/1993 - 03/1994)	Kopfstr. Gb/2 Pumpenloch bei Station 460 m Damm Kopfstrecke 632 Damm Nr. 93/201 (60/278 alt) m. Basis Gb/Kopfstrecke Gb2	Kopfstr. Gb/2 Pumpenloch bei Station 1215,1 m Bandstrecke 632 Bandstrecke Grimberg 2, 2. Station	Kopfstr. Bandstr. Gb/2 Wassersammelbeh. 19.60 m nördlich von TP 9606 Pumpenbecken an C5 (vor Dieselraum) (05.07.1993) Abzweig südliche Basis Dieselraum Kopfstrecke Grimberg 3
Gb 16 (04/1994 - 12/1994)	Verbundstr. Blindsch. 40 zur Bandstr. Grimberg 16, 18 m östl. Mitte Blindschacht 40	Bandstr. Grimberg 16	Abzweig südl. Basis Dieselraum Kopfstrecke Grimberg 3
Gb 17 (01/1995 - 07/1995)	Gb. 17 Verb.-str. Blindschacht 40 zur Bandstr. Gb 16, 18 m östl. Mitte Blindschacht 40	Bandstr. Grimberg 17,7 m nördl. von TP 97009 bei Station 380m Bandstr. - ca. 20 m hinter Bohrloch	Abzweig südliche Basis Dieselraum Kopfstr. Grimberg 3
Gb 31 (12/1996 - 01/1998)	BLS 41 auf der 960 m Sohle, Aufschiebeseite	BLS 43 in der Haspelkammer	Kopfstr. am Pumpenbecken

Die Grubenwasserproben unterscheiden sich – je nach Probenahmeort – erheblich im Salzgehalt, was auf die unterschiedlichen Anteile an Betriebswasser und über das Grubengebäude zusickerndes Tiefengrundwasser hinweist.

Aus den Abschlussberichten sind für alle Beprobungsstellen die Ganglinien der Abdampfrückstände in Anhang 6 zusammengestellt. Exemplarisch werden nachstehend die Ganglinien für Gb 1/3 und Gb 16/1 (Entnahmestelle identisch mit Gb 17/1) gezeigt.

Die Ganglinie Gb 1/3 (Abb. 8) zeigt zunächst geringe Werte von 5 – 10 g/L, die in späterer Zeit auf Werte um 150 g/L ansteigen. Die Entnahmestelle ist zunächst überwiegend von Betriebswasser und mit Fortschreiten des Abbaus und Versatzes von dem Bergwerk zusetzendem Tiefengrundwasser gekennzeichnet. Ihre Lage konnte für die Darstellung in Abbildung 9 nicht ermittelt werden. Sie steht für weitere Entnahmestellen die teilweise bis überwiegend Tiefengrundwasser erfassen.

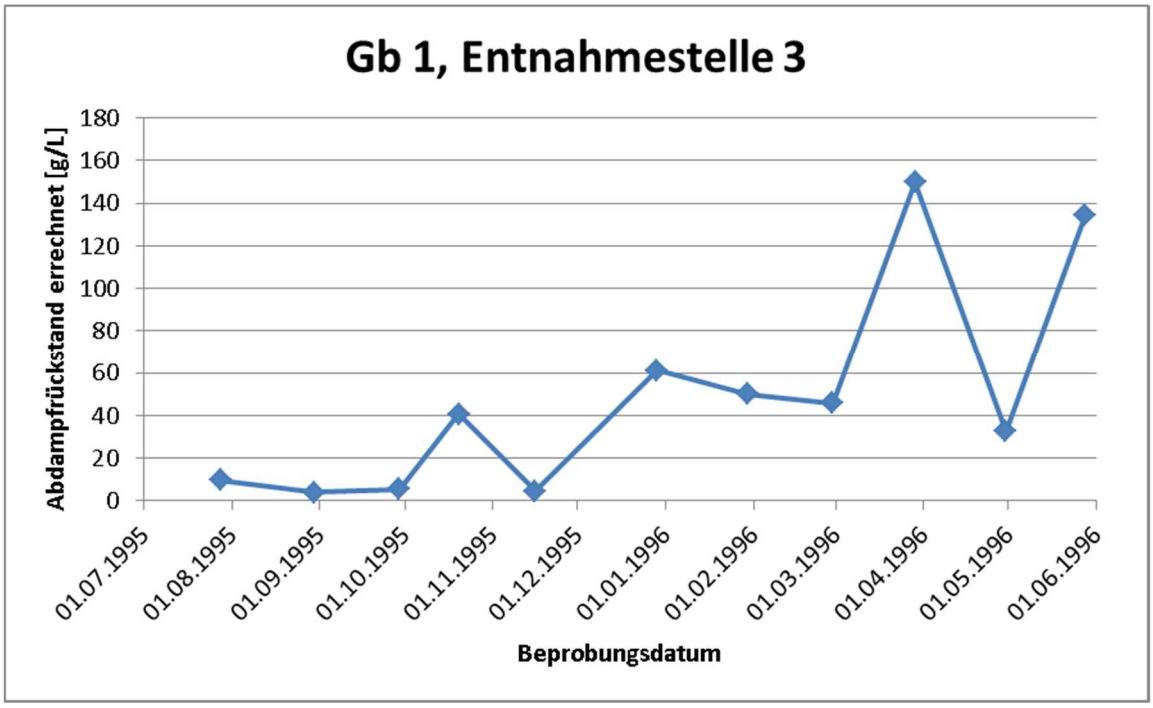


Abb. 10: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle Gb 1/3 (Datengrundlage: Abschlussberichte RAG); in Abb. 7 nicht gezeigt, da exakte Lage nicht dokumentiert

Die Ganglinie Gb 16/1 (Abb. 11) zeigt Werte von wenigen bis 40 g/L Abdampfrückstand. Sie steht für die Mehrheit der von Betriebswasser bestimmten Entnahmestellen. Für dies ist belegt, dass die Beprobung aus einer Steigleitung als Mischprobe erfolgte. Beschreibung und Ganglinien lassen aus sicht des Gutachters vermuten, dass dies für die Mehrzahl der Entnahmestellen gilt.

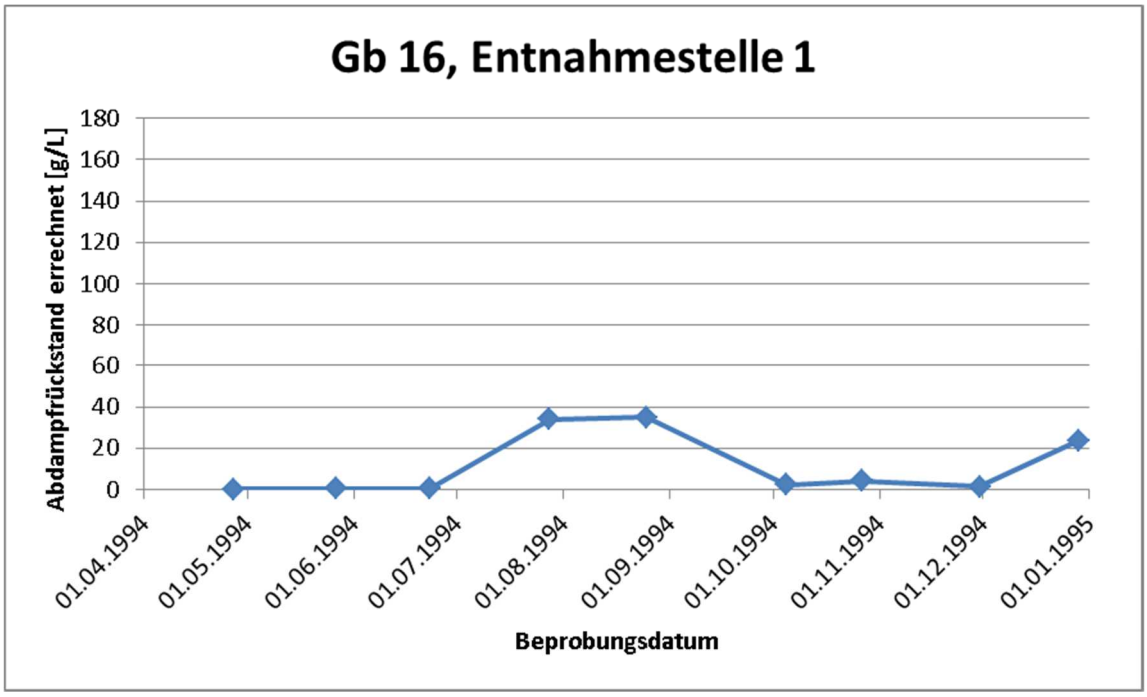


Abb. 11: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle Gb 16/1, (Datengrundlage: Abschlussberichte RAG); Lage in Abb. 7 als 17/1 markiert

Tabelle 6 git eine Zusamenfassung der Wertespanne der Abdampfrückstände für alle Bauhöhen mit bergbaufremden Versatzmaterial (in der Einheit der Abschlussberichte), die die große Spannweite der Werte deutlich macht. Die Maximalwerte sind die in dieser Teufe nach Wedewardt (1995) zu erwartenden Abdampfrückstände für Tiefengrundwassser.

Die geringen Medianwerte unterstreichen noch einmal, dass die Mehrzahl der entnommenen Wasserproben Betriebswasser sind, das mit Minimalwerten von 0,15 g/L teilweise ohne jede Veränderung z.B. durch Kontakt mit Firste, Sohle oder Stroß wieder gehoben wird.

Vergleichbar zum Abdampfrückstand zeigen auch die weiteren hydrochemischen Parameter eine große Spannbreite, wie es exemplarich für Gb 1 summarisch für die drei Entnahmestellen in Tabelle 6 gezeigt ist. Neben Minimal- und Maximalwert und dem arithmetischen Mittelwert ist auch der Medianwert angegeben, der als robustes Mittelungsmaß aufgrund der Datenstruktur das geeignete Maß ist.

Tab. 6: Abdampfrückstände in den Grubenwasserproben in Haus Aden (Datenquelle: Abschlussberichte RAG)

Abdampfrück-stand	Median [mg/L]	Mittelwert [mg/L]	Min [mg/L]	Max [mg/L]	Proben-anzahl	Beprobungszeit-raum
Gb 1: gesamt	**1.711**	**20.956**	**191**	**149.923**	**33**	**07/1995 - 05/1996**
Entnahmestelle 1	344	779	204	1.711	11	07/1995 - 05/1996
Entnahmestelle 2	1.583	13.139	191	50.242	11	07/1995 - 05/1996
Entnahmestelle 3	40.611	48.949	4.092	149.923	11	07/1995 - 05/1996
Gb 2: gesamt	**12.280**	**23.322**	**484**	**89.857**	**12**	**06/1993 - 03/1994**
Entnahmestelle 1	14.835	30.490	2.432	89.857	4	06/1993 - 03/1994
Entnahmestelle 2	17.964	17.388	8.603	25021	4	06/1993 - 03/1994
Entnahmestelle 3	5.175	22.087	484	77514	4	06/1993 - 03/1994
Gb 16: gesamt	**1.775**	**20.234**	**189**	**161.491**	**25**	**04/1994 - 12/1994**
Entnahmestelle 1	2.214	11.315	237	35.028	9	04/1994 - 12/1994
Entnahmestelle 2	4.365	11.838	192	33.979	7	06/1994 - 12/1994
Entnahmestelle 3	881	35.683	189	161.491	9	04/1994 - 12/1994
Gb 17: gesamt	**9.206**	**29.154**	**157**	**120.195**	**21**	**01/1995 - 07/1995**
Entnahmestelle 1	3.364	40.89	936	9.206	7	01/1995 - 07/1995
Entnahmestelle 2	2.844	12.787	157	33.403	7	01/1995 - 07/1995
Entnahmestelle 3	65.944	70.588	9.609	120.195	7	01/1995 - 07/1995
Gb 31: gesamt	**44.399**	**57.585**	**292**	**154.884**	**42**	**12/1996 - 01/1998**
Entnahmestelle 1	3.271	23.734	292	152.014	14	12/1996 - 01/1998
Entnahmestelle 2	109.129	103.171	23.036	154.884	14	12/1996 - 01/1998
Entnahmestelle 3	42.906	45.850	300	88.576	14	12/1996 - 01/1998

Die bergbaufremden Versatzmaterialien enthalten insbesondere hohe Konzentrationen der Schwermetalle Blei, Cadmium und Zink. In Tabelle 8 sind daher die Konzentrationsspannen für die 5 Bauhöhen für diese drei Schwermetalle und ergänzend Nickel dargestellt. Tabelle 7 zeigt eine große Bandbreite für diese vier Schwermetalle. Die weiteren untersuchten Schwer- und Halbmetalle (Arsen, Chrom (VI und gesamt), Kupfer und Quecksilber sind nicht nachgewiesen bzw. mit niedrigen, unauffälligen 10er Mikrogramm je Liter bestimmt worden.

Die Medianwerte der vier Schwermetalle sind gering. Die detaillierte Auswertung der Abschlussberichte zeigt diesen geringen Konzentrationsniveaus aufsitzende einzelne Extremwerte, die bei Cadmium bis 4,2 mg/L, bei Blei bis 0,53 mg/L und bei Zink bis 118 mg/L betragen können. Diese Einzelwerte treten isoliert auf und korrelieren nicht miteinander und auch nicht mit dem Salzgehalt respektive Abdampfrückstand oder weiteren hydrochemischen Parametern.

Tab. 7: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb1 (1995 bis 1996, Datengrundlage: RAG)
Für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet. Die Mittelwerte haben daher eine Tendenz zu zu großen Werten.

Parameter	Einheit	Mittelwert	Median	Max	Min
Abdampfrückstand	mg/L	20.956	1.711	149.923	191
spez. elektr. Leitfähigkeit	µS/cm	27.363	3.400	> 150.000	365
Dichte	g/mL	1,013	1,001	1,103	1,000
pH-Wert	-	7,6	7,6	8,3	6,9
Natriumchlorid	mg/L	15.865	1.141	121.242	23
Chlorid	mg/L	12.508	936	92.000	27
Bromid	mg/L	45	3,6	205	< 0,3
Sulfat	mg/L	341	50	1.990	9,4
Hydrogencarbonat	mg/L	128	125	240	63
Ammonium	mg/L	9,3	0,8	49	< 0,02
Natrium	mg/L	6.243	449	47.696	9
Kalium	mg/L	214	11	1.065	3
Magnesium	mg/L	268	22	1.923	5,3
Calcium	mg/L	1.234	154	7.116	41
Strontium	mg/L	41	6,9	442	< 1
Barium	mg/L	33	< 5	741	< 1
Arsen	mg/L	0,004	0,005	0,01	< 0,001
Blei	mg/L	0,052	0,022	0,529	< 0,001
Cadmium	mg/L	0,005	< 0,001	0,031	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,015	0,002	0,05	< 0,001
Chrom VI	mg/L	< 0,010	< 0,010	< 0,010	< 0,010
Kupfer	mg/L	0,043	0,012	0,42	< 0,001
Nickel	mg/L	0,037	0,013	0,355	< 0,001
Quecksilber	mg/L	0,001	< 0,001	0,002	< 0,001
Zink	mg/L	2,9	1,2	32	< 0,02

Zur Zeit der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Versatzmaterialien wurde den Ursachen dieser vereinzelten Extremwerte nicht nachgegangen. Zumindest nicht in einer in den vorliegenden Akten dokumentierten Weise.

In der Retrospektive kann aus dem ausgewerteten Datensatz „BW Haus Aden / Monopol“ keine Ursache für diese vereinzelten Extremwerte ermittelt werden. Möglicherweise gelingt dies an einer größeren Datenkohorte.

Die Abschlussberichte des Bergbautreibenden zu den Bauhöhen stellen fest, dass „zu keinem Zeitpunkt ein Austritt von Sickerwasser festgestellt“ wurde. Aufgrund der Eigenschaften des Versatzmaterials (s. Kap. 5), insbesondere den Abbinde- und Erhärtungseigenschaften, ist ein Wasseraustritt aus dem Versatzmaterial auch nicht zu erwarten. Die vereinzelten Schwermetallextremwerte sind aufgrund der Struktur des Datensatzes Haus Aden / Monopol keine Indikation für eine Schwermtetallfreisetzung aus dem bergbaufremden Versatzmaterial.

Tab. 8: Bandbreiten der Konzentrationen im Grubenwasser von Chlorid und ausgewählten Schwermetallen über den gesamten Verbringungszeitraum (Datenquelle: Quartals- und Abschlussberichte der RAG)

	Nickel [mg/L]		Blei [mg/L]		Cadmium [mg/L]		Zink [mg/L]	
	Bereich	**Median**	**Bereich**	**Median**	**Bereich**	**Median**	**Bereich**	**Median**
Gb1	0,001 bis 0,355	0,013	< 0,001 bis 0,529	0,002	< 0,001 bis 0,031	< 0,001	< 0,02 bis 32	1,2
Gb2	0,002 bis 0,122	0,004	0,003 bis 0,094	0,011	< 0,001 bis 0,011	< 0,001	0,31 bis 20	2,2
Gb16	< 0,001 bis 0,340	0,010	< 0,001 bis 0,100	0,010	< 0,001 bis 0,020	< 0,001	0,13 bis 22	1,2
Gb17	< 0,001 bis 0,520	0,024	< 0,001 bis 0,529	0,040	< 0,001 bis 0,03	0,003	< 0,02 bis 32	2,8
Gb31	0,004 bis 0,638	0,031	0,005 bis 0,520	0,058	< 0,001 bis 4,20	0,013	< 0,02 bis 118	1,7
Bandbreite gesamt	< 0,001 bis 0,638	0,020	< 0,001 bis 0,529	0,028	< 0,001 bis 4,20	0,0015	< 0,02 bis 118	1,5

4.2.2 Übertägige Proben aus der Grubenwasserhebung Haus Aden 2008-2015

Im Folgenden werden die übertägigen Proben aus der Grubenwasserhebung vom Bergwerk Haus Aden von 2008 bis 2015 beschrieben. Es wurde bereits eingangs Kap. 3 angeführt, dass Daten dieses seit dem Jahr 2008 auf Initiative des Landesamtes für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz durchgeführten Grubenwassermonitorings nicht das Tiefengrundwasser charakterisieren.

Bei den am Schacht Haus Aden 2 geförderten Grubenwässern von derzeit im Mittel ca. 22 m^3/min handelt es sich im Wesentlichen um geringer mineralisierte Überleitungswässer aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm (Abb. 12). Hierbei handelt es sich um die ehemaligen Bergwerke Hansa, Gneisenau, Scharnhorst, Kurl und Kurl 1 (westlicher Bereich der Wasserprovinz Haus Aden). Der Abbau reichte hier sehr nahe an den Grundwasserleiter des Cenoman / Turon heran (Detailbericht 1).

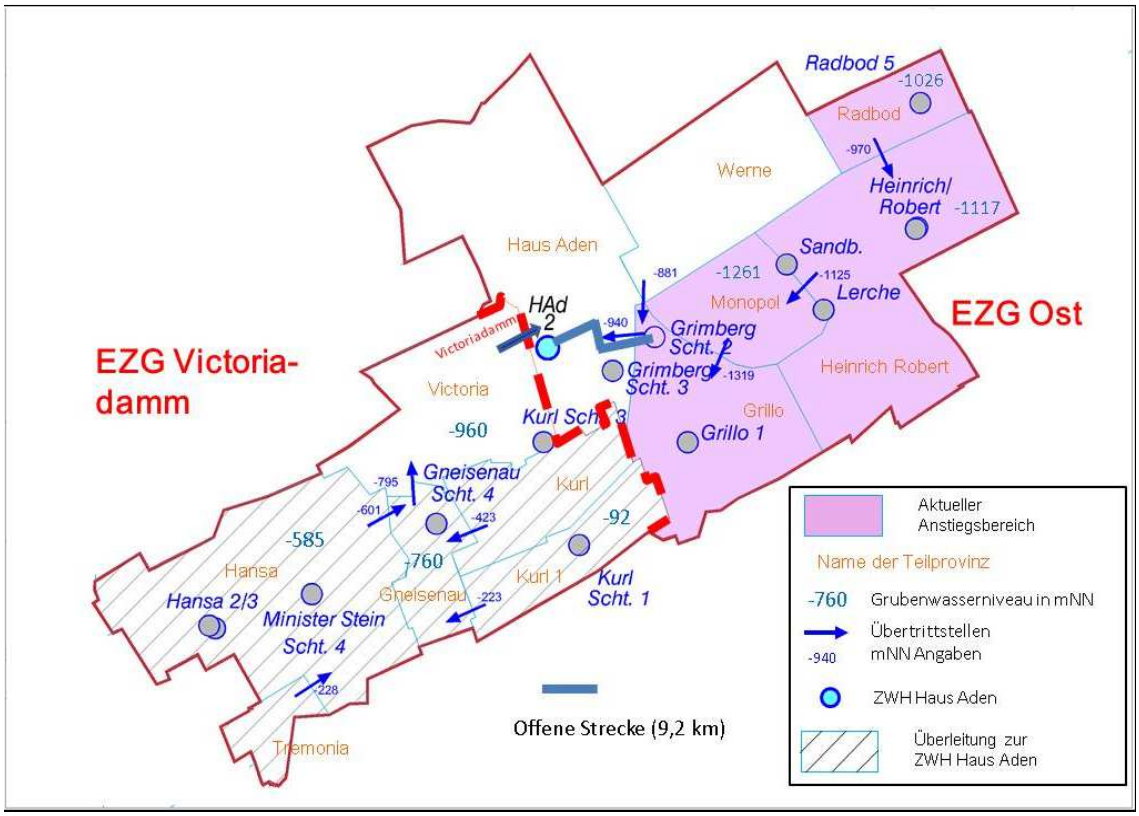


Abb.12: Teilprovinzen des Einzugsgebiet Victoriadamm, Einzugsgebiet Ost und Grubenwasserstände (Stand 2015, Abbildung RAG)

Im Bereich dieser Bergwerke sind die zum Deckgebirge hydraulisch trennenden Schichten des Essener Grünsand nicht vorhanden und/oder zu geringmächtig und/oder zu durchlässig. In der Folge strömen bis heute große Wassermengen aus dem hier auch sehr geringmächtigen Deckgebirge in das BW Scharnhorst.

Grubenwässer aus diesem Bereich sind daher sehr gering mineralisiert. Dementsprechend sind die mit dem Grubenwassermonitoring erfassten, gehobenen Grubenwässer von 2008 bis 2015 nicht repräsentativ für die Grubenwässer aus der Zeit der Verbringung bergbaufremder Versatzmaterialien im BW Haus Aden / Monopol.

Aus den vorliegenden Daten zu insgesamt 44 Proben wurden statistischen Kennwerte berechnet, die in Tabelle 9 abgebildet sind. Abbildung 13 zeigt zusätzlich die Ganglinie des Abdampfrückstandes, der sich bei 8 g/L eingestellt hat.

Tab. 9: Gehobene Grubenwässer von BW Haus Aden von 2008 bis 2015 (Daten: RAG)
Für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet.

Parameter	Einheit	Mittelwert	Median	Max	Min
Wassertemperatur	°C	27,1	27,4	28,7	23,5
Abdampfrückstand	mg/L	9.162	8.965	13.133	5.121
spez. elektr. Leitfähigkeit	µS/cm	19.339	15.100	181.000	12.400
Dichte	g/cm³	1,005	1,005	1,008	0,994
pH-Wert	-	7,5	7,5	8,1	6,9
Natriumchlorid	mg/L	7.693	7.378	10.998	5.992
Chlorid	mg/L	5.133	5.045	7.570	2.320
Bromid	mg/L	14	9	228	4
Sulfat	mg/L	158	151	334	16
Hydrogencarbonat	mg/L	590	585	929	348
Nitrit-Stickstoff	mg/L	0,062	0,04	0,33	< 0,01
Nitrat-Stickstoff	mg/L	0,4	0,3	2,3	< 0,3
Ammonium	mg/L	2,2	1,9	7,8	0,35
Bor	mg/L	1,1	1,1	1,7	0,49
Parameter	**Einheit**	**Mittelwert**	**Median**	**Max**	**Min**
Natrium	mg/L	2.991	2.901	4.327	1.453
Kalium	mg/L	33	31	75	22
Magnesium	mg/L	111	108	158	64
Calcium	mg/L	342	346	507	3,4
Strontium	mg/L	26	25	37	15
Barium	mg/L	2,2	2,0	3,9	0,5
Blei	mg/L	0,01	0,01	0,02	< 0,01
Cadmium	mg/L	0,001	0,001	0,02	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,01	0,01	0,02	< 0,01
Eisen	mg/L	0,57	0,55	1,1	< 0,1
Kupfer	mg/L	0,01	0,01	0,02	< 0,01
Mangan	mg/L	0,3	0,2	3,6	0,1
Nickel	mg/L	0,01	0,01	0,03	< 0,01
Zink	mg/L	0,057	0,03	0,2	< 0,01
TOC	mg/L	2	2	5	< 1
DOC	mg/L	2	2	4	< 1

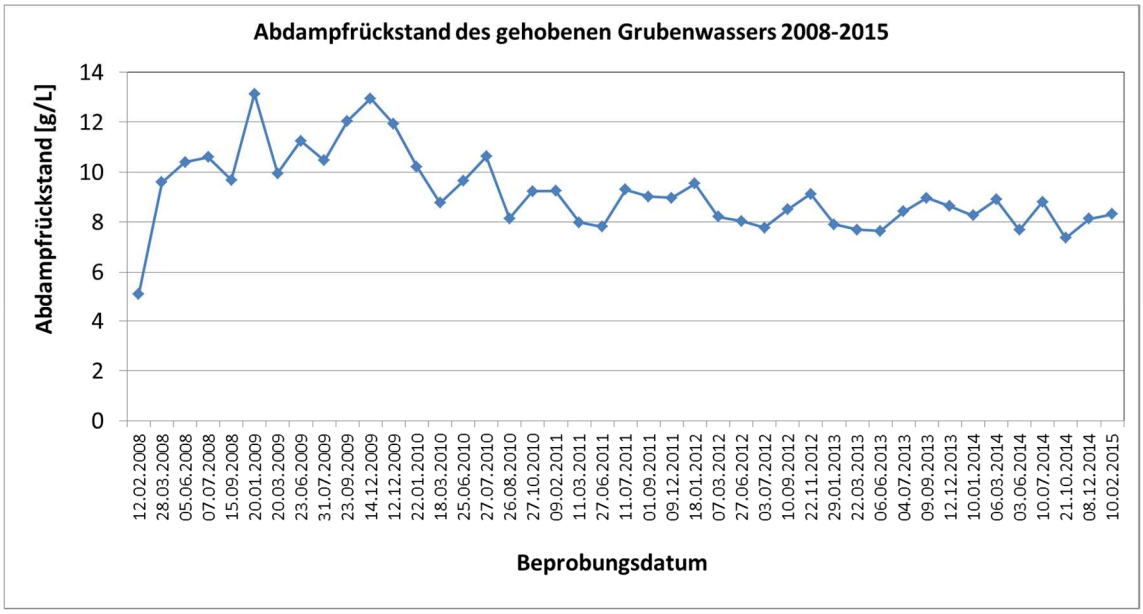


Abb. 13: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes in Proben der Wasserhebung im Bergwerk Haus Aden von 2008 bis 2015

4.2.3 Aktuelle untertägige Probenahme

Am 18.02.2016 erfolgte eine Befahrung des Bergwerks Haus Aden / Monopol u.a. mit einer Beprobung von drei Wasserstellen durch das LANUV. Die drei Beprobungsstellen werden vom LANUV wie folgt beschrieben:

18/1: Nebenwasserhaltung Bunkersohle bei -960 m, ca. 1,5 m Überstau hinter dem Damm, viel Wasser

18/3: zusitzendes Grundwasser aus der Firste, ca. -920 m

18/6: wenig Wasser aus Becken am Damm 2657, Einzugsgebiet hinter dem Damm, ca. -900 m

Die Beprobungspunkte sind in Abb. 12 zur Dokumentation dargestellt.

Die drei Proben haben eine sehr ähnliche Zusammensetzung (Tab. 10) mit etwa hälftigem Salzgehalt im Vergleich zum erwarteten Tiefengrundwasser (s. Kap. 3) und sehr geringen (Schwer-)Metallkonzentrationen. Probe 18/3 kennzeichnet ein dem Bergwerk aus dem im Zuge des früheren Bergwerksbetriebes (teil-)entwässerten Gebirge zusitzendes Wasser, das mit Stilllegung des Bergwerkes auch die Zusammensetzung der Wässer in den Wassersammelstellen (18/1 und 18/6) bestimmt.

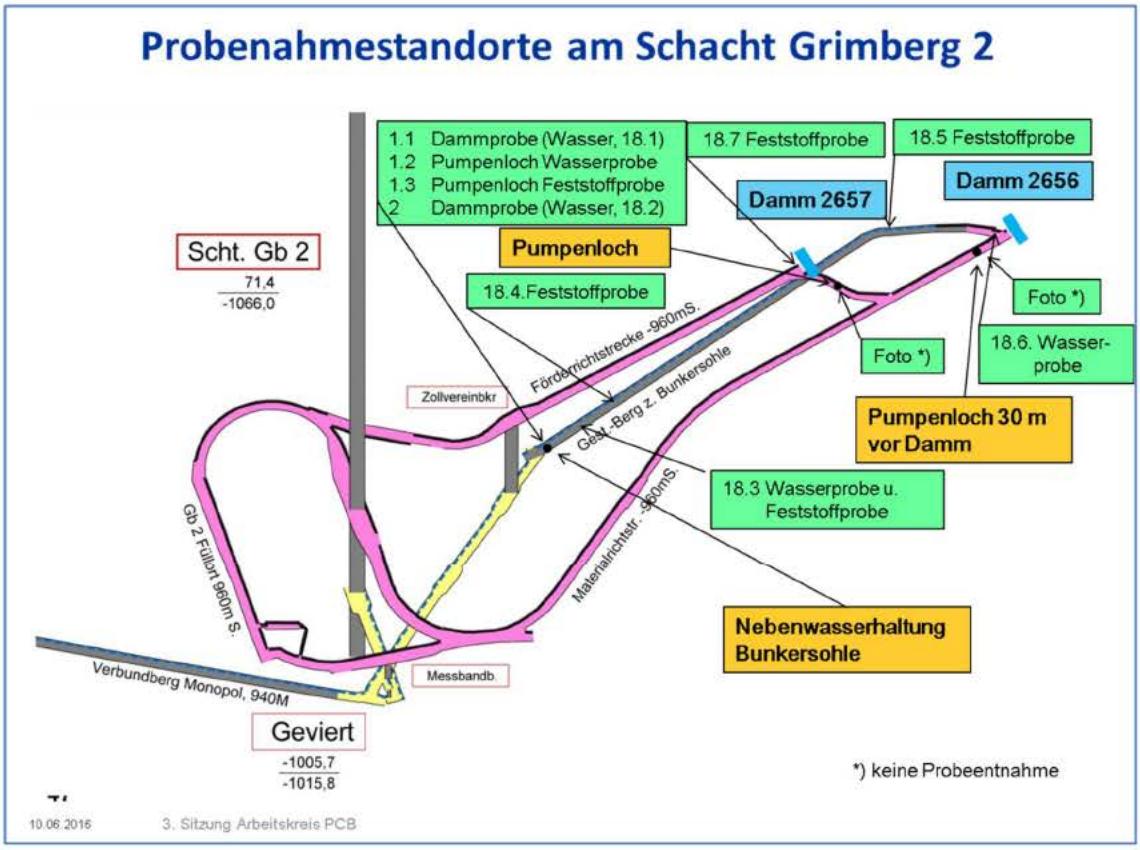


Abb. 14: Lage der drei Wasserbeprobungsstellen (18/1, 18/3 und 18/6) der Berpobungsmaßnahme 18.02.2016 im Schachtbereich Grimberg 2 (Quelle LANUV)

Tab. 10: Grubenwasseranalysen von der Beprobung im Bergwerk Haus Aden / Monopol vom 18.02.2016

		16-04454-01	**16-04455-01**	**16-04456-01**
		Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/1)	**Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/3)**	**Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/6)**
		18.02.2016	**18.02.2016**	**18.02.2016**
pH-Wert	-	6,6	7,1	6,8
spez. elektr. Leitfähigkeit	µS/cm	96.600	90.800	76.500
Chlorid	mg/L	46.000	44.000	34.000
Sulfat	mg/L	13	420	310
Stickstoff, gesamt	mg/L	20	19	22
Ammonium-Stickstoff	mg/L	19	14	16
Nitrit-Stickstoff	mg/L	0,18	0,5	< 0.02
Nitrat-Stickstoff	mg/L	n.b.	n.b.	n.b.
Bor	mg/L	1,1	1,3	1,1
Natrium	mg/L	26.000	23.000	18.000

		16-04454-01	16-04455-01	16-04456-01
		Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/1)	Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/3)	Haus Aden / Schacht Grimberg (Probe 18/6)
		18.02.2016	18.02.2016	18.02.2016
Kalium	mg/L	380	530	450
Magnesium	mg/L	830	970	790
Calcium	mg/L	3.300	3.600	2.900
Strontium	mg/L	150	160	130
Barium	mg/L	99,0	0,86	0,77
Aluminium	mg/L	< 0,1	0,11	< 0,1
Arsen	mg/L	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Blei	mg/L	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Cadmium	mg/L	< 0,005	< 0,005	< 0,005
Chrom (gesamt)	mg/L	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Eisen	mg/L	1,10	0,37	8,60
Kobalt	mg/L	0,007	< 0,005	< 0,005
Kupfer	mg/L	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Mangan	mg/L	1,30	2,40	3,40
Molybdän	mg/L	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Nickel	mg/L	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Vanadium	mg/L	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Zink	mg/L	0,42	0,75	0,89

4.3 Bewertung und Diskussion der Ergebnisse

Da der Ansatz aus dem Datensatz von Wedewardt (1995) Hintergrundwerte für ein Monitoring der (Schwer-)Metalle zu erhalten, aufgrund der damals sehr hohen Nachweisgrenzen insbesondere Blei und Cadmium nicht umsetzbar ist, wurden weitere Datensätze, die zur Chemie der Grubenwässer erhoben wurden bzw. werden, ausgewertet.

Entsprechend den Nebenbestimmungen der Sonderbetriebspläne wurden vom Bergbautreibenden an drei Stellen je Bauhöhe, die mit bergbaufremden Material versetzt wurde, mehrfach Wasserproben genommen.

Die Mehrzahl der entnommenen Wasserproben sind Betriebswasser, das mit Minimalwerten von 0,15 g/L teilweise ohne jede Veränderung z.B. durch Kontakt mit Firste, Sohle oder Stroß wieder gehoben wird.

Die Medianwerte der vier Schwermetalle Blei, Cadmium, Zink und Nickel sind gering. Weitere untersuchte Schwer- und Halbmetalle (Arsen, Chrom (VI und gesamt), Kupfer und Quecksilber sind nicht nachgewiesen bzw. mit niedrigen, unauffälligen 10er Mikrogramm je Liter bestimmt worden.

Die detaillierte Auswertung der Abschlussberichte zeigt diesen geringen Konzentrationen von Blei, Cadmium, Zink und Nickel aufsitzende, einzelne Extremwerte, die bei Cadmium bis 4,2 mg/L, bei Blei bis 0,53 mg/L und bei Zink bis 118 mg/L betragen können. Diese Einzelwerte treten isoliert auf und korrelieren nicht miteinander und auch nicht mit dem Salzgehalt respektive Abdampfrückstand oder weiteren hydrochemischen Parametern.

Zur Zeit der Bruchhohlraumverfüllung mit bergbaufremden Versatzmaterialien wurde den Ursachen dieser vereinzelten Extremwerte nicht nachgegangen. Zumindest nicht in einer in den vorliegenden Akten dokumentierten Weise.

In der Retrospektive kann aus dem ausgewerteten Datensatz „BW Haus Aden / Monopol“ keine Ursache für diese vereinzelten Extremwerte ermittelt werden. Möglicherweise gelingt dies an einer größeren Datenkohorte.

Die Abschlussberichte des Bergbautreibenden zu den Bauhöhen stellen fest, dass „zu keinem Zeitpunkt ein Austritt von Sickerwasser festgestellt“ wurde. Aufgrund der Eigenschaften des Versatzmaterials (s. Kap. 5), insbesondere den Abbinde- und Erhärtungseigenschaften, ist ein Wasseraustritt aus dem Versatzmaterial auch nicht zu erwarten. Die vereinzelten Schwermetallextremwerte sind aufgrund der Struktur des Datensatzes Haus Aden / Monopol keine Indikation für eine Schwermtetallfreisetzung aus dem bergbaufremden Versatzmaterial.

Es wurde bereits eingangs Kap. 3 angeführt, dass Daten dieses seit dem Jahr 2008 auf Initiative des Landesamtes für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz durchgeführten Grubenwassermonitorings nicht das Tiefengrundwasser charakterisieren.

Bei den am Schacht Haus Aden 2 geförderten Grubenwässern von derzeit ca. 22-24 m^3/min handelt es sich im Wesentlichen um geringer mineralisierte Überleitungswässer aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm.

5 Versatzmaterialien

Zwischen der Mitte der 1980er Jahre und dem Jahr 2006 wurden 1,6 Mio. t bergbaufremde Abfälle (v. a. industrielle Massenreststoffe, Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände) in 11 Bergwerken (BW) des Ruhrgebietes als Versatz eingebracht.

Das damalige Landesamt für Wasser und Abfall (LWA) ging im Jahr 1991 davon aus, dass jedes Jahr 3 bis 6 Mio. t Abfälle anfallen würden, die unter Tage verbracht werden könnten (LWA, S. I/79 Kurzfassung).

Von den 1,6 Mio. t Abfällen bzw. Reststoffen waren ca. 578.000 t besonders überwachungsbedürftige Abfälle gemäß Abfallgesetz (AbfG 1986), die gemäß dem Prinzip des vollständigen Einschlusses in drei Bergwerken zum Nachversatz genutzt wurden. Die nicht überwachungsbedürftigen Abfälle gemäß AbfG 1986, wie Aschen aus der Kohleverbrennung, wurden in acht Bergwerken nach dem Prinzip der immissionsneutralen Verbringung verbracht (ca. 1 Mio. t).

5.1 Datenerfassung und Literaturrecherche

- Machbarkeitsstudie (1990)
- Analysen der Versatzmaterialien bei der Verbringung (Abschlussberichte von Bergwerk Haus Aden / Monopol)
- Weitere Literaturrecherche

Die analogen Daten aus der Machbarkeitsstudie (Jäger et al. 1990) und die Analysen der Versatzmaterialien bei der Verbringung (Abschlussberichte von BW Haus Aden / Monopol) wurden digitalisiert (Excel-Tabellen), damit die Daten einer erweiterten Auswertung unterzogen werden können.

Eine Literaturrecherche zu den im Zeitraum der Verbringung durchgeführten wissenschaftlichen Studien, bei denen die Eignung der Reststoffe (auch Bergematerial) als sekundäre Rohstoffe (z.B. in der Baustoffindustrie) und u.a. die hydraulischen und puzzolanischen Eigenschaften der verbrachten Versatzmaterialien untersucht wurden, ist durchgeführt wurden. Ziel ist es, durch zusätzliche Daten hinsichtlich chemisch-mineralogischer Zusammensetzung, Korngröße, Hydratationsverhalten und Festigkeitsentwicklung für die thermodynamischen Modellrechnungen und das Mobilitätsverhalten genauere Annahmen treffen zu können.

Darüber hinaus wurde internationale Literatur von Versatzmaterialien und Erfahrungen zum Stoffverhalten nach dem Versatz gesichtet und ausgewertet.

5.2 Metallinventar der bergbaufremden Versatzmaterialien

5.2.1 Machbarkeitsstudie

Chemische Stoffanalysen zu generell möglichen einzulagernden Versatzmaterialien wurden in der Machbarkeitsstudie von Jäger et al. (1990) durchgeführt. Dabei wurden Filterstäube und Rückstandsgemische aus Müllverbrennungsanlagen (MVA), Rückstände aus kommunaler Klärschlammverbrennung, Rückstände aus Lack- und Ölschlammverbrennung, Gießereialtsande, Gipsschlämme und Strahlmittelrückstände in die Untersuchung einbezogen.

Die Untersuchungen umfassten insgesamt 22 Proben, die mit dem Königswasseraufschluss analysiert wurden, wobei nur 20 Proben auf Quecksilber und 12 Proben auf Thallium untersucht wurden. Alle anderen aufgeführten Elemente wurden in allen 22 Proben analysiert (Tab.11).

Tab. 11: Chemische Stoffanalysen der untersuchten Reststoffe (Auswahl von Proben der Abfallgruppen I bis VII aus Band 3 der Machbarkeitsstudie). Analyse im Königswasseraufschluss (Jäger et al. 1990)

	Anzahl d. Proben	Minimum [mg/kg]	Median [mg/kg]	Maximum [mg/kg]
Arsen	22	0,4	7,4	190
Blei	22	3,3	407	13.700
Cadmium	22	<0,55	9,7	265
Chrom	22	3	117	755
Kupfer gesamt	22	3,2	150	1.100
Quecksilber	20	<0,1	0,5	1.094
Thallium	12	<1	0,3	6,2
Zink	22	14	2.787	19.800
Zinn	22	<5	25	5.930

5.2.2 Abschlussberichte

Die Datengrundlage für die aufgeführten Zahlen stellen die Massenaufstellungen von HMVA-Filterstaub und RAA-Schlämme in den Abschlussberichten der RAG dar (Tab. 12).

Eine Unterscheidung der Materialien erfolgte anhand der RSN-Nummer und der vorhandenen Beschreibungen („Flotationsberge“).

Tab. 12: Verbrachte Reststoffe und RAA-Schlämme in den einzelnen Bauhöhen (Datenquelle: Quartals- und Abschlussberichte der RAG)

Bauhöhe *Abrechnungstag	**HMVA Filterstaub [t]**	**RAA Schlämme [t]**	**Verbrachte Masse [t]**
Gb1 *11.06.1996	17.636	23.438	41.074
Gb2 *24.03.1995	5.184	23.933	29.118
Gb16 *06.01.1995	13.004	16.974	29.725
Gb17 *21.07.1995	11.105	13.623	24.302
Gb31 *18.02.1998	15.360	27.509	42.869
∑	62.289	105.477	167.088

Die Tabelle 13 gibt die angelieferten Massen an RAA-Schlämmen, KW-Filterstaub und Flotationsbergen am Abrechnungsdatum je Verbringungsort an. Die Berechnung dieser Daten erfolgte durch das Aufsummieren der angelieferten Massen der Erzeuger sortiert nach RSN-Nr. und Verbringungsstandort.

Tab. 13: Massenbilanzierung RAA-Schlamm, andere Materialien (Datenquelle: Quartals- und Abschlussberichte der RAG)

Bauhöhe *Abrechnungstag	RAA-Schlamm [t] (RSN: 31613)	RAA-Schlamm [t] (RSN: 31620)	KW-Filterstaub [t] (RSN: 31314)	Flotations-berge [t]	∑
Gb1 *11.06.1996	4.354	16.357	-	2.728	23.439
Gb2 *24.03.1995	4.363	19.725	25	-	24.113
Gb16 *06.01.1995	3.922	12.518	-	535	16.975
Gb17 *21.07.1995	2.576	9.831	-	1.216	13.623
Gb31 *18.02.1998	6.089	20.511	-	909	27.509
∑	21.304	78.942	25	5.388	105.659

Die Bandbreite der anorganischen Belastungen der verbrachten Reststoffe auf Grundlage der Auswertung der Abschlussberichte bei der BR Arnsberg zeigt Tabelle 14 (Eluate). Außer den in Tabelle 14 dargestellten Parametern wurden im Eluat noch regelmäßig untersucht: CSB, Calcium, Mangan, Fluorid, Sulfat und Phosphat.

Tab. 14: Bandbreiten der Belastungen der verbrachten Reststoffe mit Schwermetallen und Chlorid (Datenquelle: Quartals- und Abschlussberichte der RAG)

Bandbreiten – Konzentrationen im Eluat DEV S4*								
	Pb [mg/L]	**Cd [mg/L]**	**Cr [mg/L]**	**Cu [mg/L]**	**Mn [mg/L]**	**Hg [mg/L]**	**Zn [mg/L]**	**Chlorid [mg/L]**
Gb1	0,028 – 121	< 0,001 - 60	< 0,001 - 3,5	< 0,001 - 0,6	< 0,001 - 5,2	< 0,001 - 0,1	< 0,01 - 510	28 - 38.750
Gb2	0,019 – 78	< 0,001 - 0,014	< 0,001 - 0,914	0,003 - 0,2	< 0,001 - 0,014	< 0,001 - 0,002	0,085 - 9,1	1.064 – 16.340
Gb16	0,05 – 22	< 0,001 -35	< 0,05 - 2,6	0,014 - 0,1	< 0,001 - 6,8	< 0,001	0,03 - 411	17 – 9.540
Gb17	0,051 – 177	< 0,001 - 0,197	0,003 - 1,5	< 0,001 - 0,388	< 0,001 - 0,014	< 0,001 - 0,007	0,05 - 3,6	41 - 26.840
Gb31	0,4 – 16	0,006 - 43	< 0,001 - 0,38	0,015 - 0,06	< 0,001 - 6,2	< 0,001 - 0,002	0,04 - 392	3970 - 29.160
Bandbreite Gesamt	0,028 – 177	< 0,001 - 60	< 0,001 - 3,5	< 0,001- 0,6	< 0,001 - 6,8	< 0,001- 0,1	< 0,01- 510	17- 38.750

* damalige Eluatuntersuchung gemäß DIN 38414 - DEV S4 (Feststoff-/Flüssigkeits-Verhältnis 1 : 10, Verwendung von destilliertem Wasser als Elutionsmittel, 24 Stunden Schütteln)

Die Tabelle 15 zeigt das Stoffinventar vom HMVA-Filterstaub für alle Bauhöhen. Hierbei wurden zunächst die drei Schwermetalle Blei, Cadmium und Zink ausgewertet, die im Rahmen der Machbarkeitsstudie als besonders kritisch eingestuft worden waren, und die in großen Massen in den Reststoffen enthalten sind. In der Summe sind dies 1.743 t Schwermetalle, davon ist das meiste Zink (1.321 t, 76 %), gefolgt von Blei (403 t, 23 %) und Cadmium (19 t, 1 %). In der Regel waren das auch die einzigen Parameter, die im Feststoff untersucht wurden. Weitere Metalle wie Vanadium, Molybdän, Antimon, Barium, Strontium und Arsen wurden nur in sieben Analysen für die Bauhöhe Gb 2 im Zeitraum Juli 1993 bis Januar 1994 untersucht.

Tab. 15: Verbrachtes Reststoffinventar des HMVA-Filterstaubs im BW Haus Aden / Monopol (gem. Auswertung Quartals- und Endberichte der RAG durch LFH)

Parameter	**Gb 1**	**Gb 2**	**Gb 16**	**Gb 17**	**Gb 31**	**Summe**
	Masse i. Tr. [t]	**Masse i. Tr. [t]**	**Masse i. Tr. [t]**	**Masse i. Tr. [t]**	**Masse i. Tr. [t]**	**Masse i. Tr. [t]**
Blei	110	39	69	41	144	**403**
Cadmium	4	2	3	4	6	**19**
Zink	293	132	268	149	479	**1.321**
Summe	**407**	**173**	**340**	**194**	**629**	**1.743**

i. Tr. = in der Trockenmasse

Vorgehen zur Abschätzung des Reststoffinventars

Zur möglichst genauen Abschätzung der in den Bauhöhen verbrachten Blei-, Cadmium- und Zinkmassen wurden die vorliegenden Filterstaubanalysen (Königswasseraufschluss) und die Auflistung der verbrachten Filterstaub-Massen aus den Abschlussberichten verwendet. Die Berechnung der verbrachten Massen an Pb, Cd und Zn erfolgte für jede Ursprungslokalität bzw. für jeden Erzeuger einzeln. Die Verknüpfung von Analytik und verbrachter Filterstaub-Masse erfolgte über die im Analyseprotokoll und in der Mengenauflistung genannten Erzeugernummern. Zum Teil lag jedoch in machen Analyseprotokollen keine Erzeugernummer vor. In diesen Fällen erfolgte die Zuteilung über den Ursprungsort. In einem Einzelfall wurde zusätzlich zur Erzeugernummer noch zwischen „Filterstaub“ und „Gemisch“ unterschieden. Lagen mehrere Analysen für einen Erzeuger vor, so wurden die Ergebnisse der Analytik gemittelt.

Die Berechnung der verbrachten Masse an Pb, Cd und Zn erfolgte nach (hier Beispiel Blei):

$$x \ \frac{mg_{Blei}}{kg_{Filterstaub}} \times y \ kg_{Filterstaub} \ = z \ mg_{Blei}$$

x: gemessene Konzentration [mg/kg]

y: verbrachte Filterstaub-Masse [kg] bzw. [t]

z: verbrachte Masse an Pb [mg] bzw. [t]

Für die weitere Betrachtung wurden die für Gb 2 in den Abschlussberichten der RAG vorliegenden Filterstaub-Analysen, das heißt die genannten 7 Metallanalysen und 4 weitere Analysen, bei denen jedoch nur die Blei-, Cadmium- und Zink-Gehalte untersucht wurden, gemittelt. Die mittleren Metallgehalte der Filterstäube, welche im Abbaubetrieb Gb 2 verbracht wurden, sind in Tabelle 16 aufgeführt.

Die vollständige Analyse der in den Filterstäuben enthaltenen Metalle zeigt, dass sowohl Zink als auch Blei mit mittleren Gehalten von 22.510 mg/kg bzw. 6.586 mg/kg und 59,5 % bzw. 17,4 % Anteil am mittleren Gesamtmetallgehalt von 37.808 mg/kg, die dominierenden Metalle sind. Cadmium hat einen mittleren Gehalt von 415 mg/kg und einen Anteil von 1,1 %. Barium, Zinn sowie Kupfer haben einen Anteil am gesamt enthaltenen Metall von circa 5 %. Der Anteil von Antimon und Chrom gesamt liegt bei circa 2 %. Die übrigen analysierten Metalle haben Anteile < 1 %.

Arsen hat einen mittleren Gehalt von 79 mg/kg und einen Anteil von 0,21 %, der mittlere Gehalt von Quecksilber liegt bei 6 mg/kg und der Anteil beträgt 0,02 %. Somit haben sowohl Arsen als auch Quecksilber im Hinblick auf ihren Anteil an den gesamt in den Filterstäuben von Gb 2 enthaltenen Metallen eine untergeordnete Bedeutung.

Tab. 16 Mittlere Metallgehalte der in Gb 2 verbrachten Filterstäube (Metall-Analytik aus dem Zeitraum 07-1993 bis 01-1994; Ausnahme: Blei, Cadmium und Zink wurden von 07-1993 bis 04-1994 analysiert)

Parameter	Einheit	Mittelwert	Anteil [%]
Zink	mg/kg i. Tr.	22.510*	59,5
Blei	mg/kg i. Tr.	6.586*	17,4
Barium	mg/kg i. Tr.	2.106	5,6
Zinn	mg/kg i. Tr.	1.879	5,0
Kupfer	mg/kg i. Tr.	1.714	4,5
Antimon	mg/kg i. Tr.	872	2,3
Chrom gesamt	mg/kg i. Tr.	694	1,8
Cadmium	mg/kg i. Tr.	415*	1,1
Strontium	mg/kg i. Tr.	300	0,79
Bor	mg/kg i. Tr.	289	0,76
Nickel	mg/kg i. Tr.	207	0,55
Arsen	mg/kg i. Tr.	79	0,21
Vanadium	mg/kg i. Tr.	44	0,12
Lithium	mg/kg i. Tr.	42	0,11
Kobalt	mg/kg i. Tr.	40	0,10
Selen	mg/kg i. Tr.	20	0,05
Quecksilber	mg/kg i. Tr.	6	0,02
Thallium	mg/kg i. Tr.	3	0,01
Beryllium	mg/kg i. Tr.	2	0,004
Summe		37.808	100

*Mittelwert über Analysezeitraum 07/93 – 04/94

5.2.3 RAA-Schlämme

Aus den Protokollen der Abschlussberichte konnten keine Massenangaben für Pb, Cd, Zn und andere Inhaltsstoffe, welche ggf. mit dem RAA-Schlamm eingebracht wurden, ermittelt werden. Deshalb wurde versucht über eine Literaturrecherche Hinweise auf die Zusammensetzung von RAA-Schlämmen aus der Verbringungszeit zu erhalten. Es liegen jedoch bislang keine auswertbaren Daten vor.

Bei den RAA-Schlämmen handelte es sich um Reststoffe aus der Abwasseraufbereitung bei der Rauchgasentschwefelung aus der Kohleverbrennung (Abb. 15): Gipsschlämme und verunreinigte Gipsschlämme.

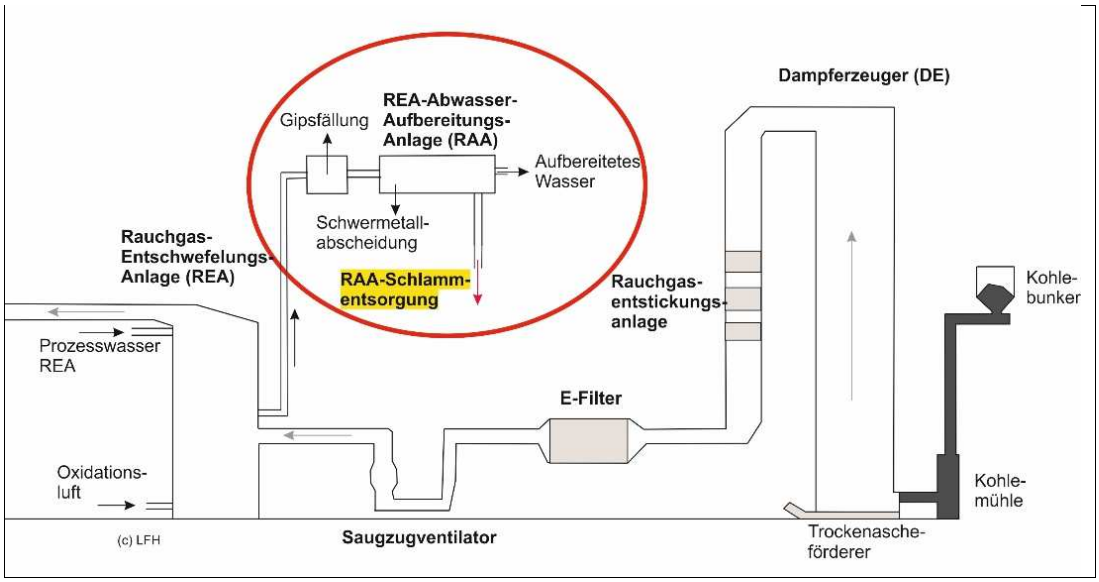


Abb. 15: Entstehung von RAA-Schlämme im Kraftwerk

In Bezug auf die chemische Zusammensetzung der RAA-Schlämme gibt es ein Defizit an Analyseergebnissen. Diesbezüglich wurden mit Unterstützung des Ministeriums an die wichtigsten Erzeuger der RAA-Schlämme herangetreten, um Analyseergebnisse aus der Zeit der Verbringung zu den RAA-Schlämmen zu erhalten, damit eine Mengenbilanzierung der verbrachten Stoffe und des daraus ggf. abzuleitenden Freisetzungspotenzials erfolgen kann. Die gelb markierten Kraftwerke in der Tabelle 17 wurden im projektbegleitenden Arbeitskreis zur Anfrage ausgewählt. Dazu liegen derzeit keine neuen Erkenntnisse vor.

Im projektbegleitenden Arbeitskreis erfolgte der Hinweis, dass mglw. die Anträge an die Bez. Regierung Detmold zur Verbringung der RAA-Schlämme des Kraftwerks Veltheim Informationen zur chemischen Zusammensetzung der Schlämme enthalten. Aus der Literatur ist bekannt, dass große Schwankungsbreiten der Zusammensetzung der RAA-Schlämme u.a. in Abhängigkeit der Zusammensetzung der eingesetzten Stoffe und der Anlagentechnik auftreten (siehe Tab. 17). Es können die dargestellten Werte aus diesem Grund nicht einfach auf andere Anlagen und Zeiträume übertragen werden. Bisher liegen den Gutachtern keine weiteren Daten vor (30.08.2016).

In Tabelle 18 sind die Spannbreiten der chemischen Zusammensetzung der Trockensubstanz von RAA-Schlämme aufgelistet. Der Gipsgehalt ($CaSO_4$ * 2 H_2O) liegt bei 15 bis 90 M.-%.

Tab. 17: Erzeuger von den im Bergwerk Haus Aden / Monopol verbrachten RAA-Schlämmen (Datenquelle: Quartals- und Abschlussberichte der RAG)

Erzeuger	Erzeugernr.	RSN	Bauhöhe Grimberg	Summe verbrachte Masse je Erzeuger [t]	Anteil an Gesamt-masse [%]
KW Hamburg/Wedel	A56000057	31613	1, 2, 16, 17, 31	5.725,61	5,4
KM Hamburg/Hafen	B10107A00	31613	1, 2, 16, 17	815,54	0,8
Stadtwerke Bremen / Hafen	D1111761	31613	1, 16, 17, 31	1.562,69	1,5
Stadtwerke Bremen / Hafen	D1111761	31620	2	1.088,92	1,0
KW Voerde/West	E1706066	31620	1, 2, 16, 17, 31	22.627,87	21,4
KW Herne	E9160274	31620	1, 2, 16, 17, 31	21.937,05	20,8
KW Lünen	E9784033	31620	1, 2, 16, 17, 31	13.197,83	12,5
GKW Weser/Veltheim	E77023102	31620	1, 2, 16, 17, 31	14.365,61	13,6
HKW Reuter/Berlin	L21010760	31620	1, 31	1.341,49	1,3
HKW Reuter/Berlin-West	L21010760	31620	1, 31	1.051,60	1,0
KW Mannheim	H19006500	31613	1, 2, 16, 17, 31	7.451,05	7,1
KW Bayer AG Uerdingen	E1140051	31613	1, 2, 16, 17, 31	958,12	0,9
Henkel KG aA	E11100017	31620	1, 2, 16, 31	359,22	0,3
KW Rostock	M03E00327	31620	1, 16, 17, 31	1.998,99	1,9
KW Heyden	E77023005	31613	2	910,73	0,9
KW Heyden	E77023005	31620	16	733,22	0,7
KW Wilhelshafen	CUE001000	31613	2, 16, 17	1.778,35	1,7
KW Siersdorf/KW Filterstaub	E3580065	31314	2	25,18	0,02
KW Hamburg/Tiefstack	B10117A00	31620	31	239,80	0,2
VKR KW Scholven	E5130525	31613	31	2.101,42	2,0
BW Prosper/Haniel Flotationsberge	-	-	1, 16, 17, 31	5.387,88	5,1
			Summe	10.5658,17	100,0

Gelb markierte Kraftwerke wurden im projektbegleitenden Arbeitskreis als relevant für das Inventar der BHV aufgrund ihres Anteils an der verbrachten Reststoffmenge ausgewählt.

Tab. 18: Spannbreiten der chemischen Zusammensetzung der Trockensubstanz von RAA-Schlämme (VGB Kraftwerkstechnik 70(12), 1990)

Parameter	Formel	Einheit	Bandbreite
Aluminium	Al_2O_3	M.-%	0,1 – 16
Calcium	CaO	M.-%	30 – 50
Eisen	Fe_2O_3	M.-%	0,5 – 7
Kalium	K_2O	M.-%	1 – 10
Magnesium	MgO	M.-%	1 – 35
Natrium	Na_2O	M.-%	1 – 10
Silicium	SiO_2	M.-%	0,5 – 55
Chlorid	Cl^-	M.-%	0,5 – 8
Fluorid	F^-	M.-%	0,1 – 10
Sulfat	SO_4^{2-}	M.-%	25 – 45
Arsen	As	mg/kg	1 – 240
Blei	Pb	mg/kg	2 – 360
Cadmium	Cd	mg/kg	2 – 15
Chrom	Cr	mg/kg	3 – 210
Kupfer	Cu	mg/kg	1 – 305
Nickel	Ni	mg/kg	20 – 110
Quecksilber	Hg	mg/kg	5 – 70
Zink	Zn	mg/kg	50 – 4000

5.3 Hausmüllverbrennungsaschen (HMVA)-Zusammensetzung und Mineralphasen in den Aschen

Die versetzten Materialien wurden nicht hinsichtlich ihrer Mineralphasen der Schwermetalle analysiert, die generelle stoffliche Zusammensetzung des angelieferten Materials ist hingegen bekannt (s. Tab. 15, 16 und 18) und wurde ausgewertet. Für eine Beurteilung der Mobilität und Stofffreisetzung bei Laugungsversuchen ist die Kenntnis zu vorliegenden Materialphasen als Ausgangspunkt entscheidend. Ebenso muss betrachtet werden, dass sich mit dem Aushärten des Versatzmaterials neue stabile Mineral-

phasen während des Abbindeprozesses bilden (s. Kap. 5.4). Aus der nationalen sowie der internationalen Literatur sind Untersuchungen zu der Elementzusammensetzung und der Mineralogie von Hausmüllverbrennungsaschen, sowohl in der Zeit des Versatzes in den 80er und 90er Jahren als auch später, bekannt und wurden ausgewertet (Lima et al. 2008; Wan et al. 2006; Van der Sloot et al. 2001; Van Herck et al. 2000; Andac & Glasser 1999; Birkel 1997; Gutmann et al. 1996; Artelt et al. 1993; US EPA 1981).

Die hier gezeigten Ergebnisse einer Literaturrecherche sollen zeigen, wie die internationale Forschung das Thema HMVA behandelt und zu welchen Ergebnissen die Forschung kommt. Eine genaue Modellierung für den betrachteten Standort bedarf einer umfassenderen Berechnung der Phasengleichgewichte der vorliegenden Mineralphasen. Diese Analyse von Herrn van Berk befindet sich in dem entsprechenden Detailbericht. Hier gezeigte Aussagen beziehen sich nicht auf eigene Daten des LFH, sondern auf die Fachliteratur, die zur Einordnung der Untersuchungsergebnisse des Konsortiums in einen internationalen Kontext notwendig sind. Dabei können die Ergebnisse aufgrund der Besonderheiten des jeweiligen Einzelfalls auch voneinander abweichen.

Die Zusammensetzung der HMVA in ihrer Mineralogie, Stoffzusammensetzung und insbesondere die Schwermetallkonzentration hängen von den eingesetzten Stoffen resp. Abfallart aber auch maßgeblich von der Auswahl des Verbrennungsprozesses/-verfahrens ab. Diese sind zeitlich und regional für jede Verbrennungsanlage, in einem gewissen Schwankungsbereich, spezifisch und dadurch untereinander schwer vergleichbar (Birkel 1997; Gutmann et al. 1996; Knissel 1991; Haus der Technik 1987).

Die sich daraus ergebenden deutlichen Unterschiede in der Zusammensetzung der Reststoffe zur Verwertung führen dazu, dass nur eine genaue Analyse des wirklich verbrachten Materials eine realistische Massenbilanz zur Bewertung des Gefährdungspotentials erlaubt. Solche Daten liegen für die HMVA in Haus Aden vor. Der Vergleich dieser Bandbreite der HMVA-Zusammensetzungen in Deutschland mit der internationalen Literatur dient der Einordnung der Stoffe in das globale Gesamtbild der HMVA-Verbringungen. Dazu werden international beschriebene Zusammensetzungsbereiche dargestellt (Tabelle 19).

Die Tabelle zeigt, dass die in Haus Aden verbrachten HMVA in ihrer Elementzusammensetzung über die Zeit hinweg Verbrennungsaschen aus der Schweiz, Gutmann et al. 1996 und Schlumberger und Bühler 2013, entsprechen. International zeigt auch der Vergleich mit Aschen aus Taiwan, dass die Zusammensetzungen sich in ähnlichen Konzentrationsbereichen befinden. Die Übertragbarkeit dieser bezüglich aus der Literatur vorliegenden Messdaten ist nicht uneingeschränkt, da nicht zu allen Elementen in den jeweiligen Studien Analysen gemacht wurden. Das Referenzmaterial zur Bewertung von Müllverbrennungsaschen in Taiwan (BCR No. 176) liegt sogar deutlich über den real gemessenen Elementkonzentrationen in den verbrachten HMVA.

Tab. 19: Zusammenstellungen von HMVA-Zusammensetzungen im internationalen und zeitlichen Vergleich

Messungen des Anliefermaterials Haus Aden		Beispiel zweier Filterstäube vor Verglasung (Gutmann et al. 1996)		Standardmaterial für Filterstäube und an Proben gemessene Werte (Huang et al. 2007)		Aktuelle Min. und Max. Werte von Müllverbrennungsanlagen in der Schweiz (Schlumberger und Bühler 2013)	
Element	**Mittelwerte [mg/kg i. Tr.]**	**Typ 1 [mg/kg]**	**Typ 2 [mg/kg]**	**BCR No. 176 [mg/kg]**	**Proben-werte [mg/kg]**	**Min. [mg/kg]**	**Max. [mg/kg]**
Silber	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	30	60
Aluminium	n.a.	79.000	20.000	101.600	14.500	25.000	45.000
Arsen	79	n.a.	n.a.	93	61,3	20	120
Bor	289	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Barium	2.106	1.450	650	3.910	390	50	200
Beryllium	2	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Kohlenstoff	n.a.	2.800	23.000	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Calcium	n.a.	142.000	314.000	88.000	243.000	100.000	250.000
Cadmium	415*	310	n.a.	470	160	150	1.000
Chlor	n.a.	55.000	160.000	n.a.	n.a.	40.000	150.000
Kobalt	40	10	n.a.	n.a.	n.a.	20	100
Chrom (gesamt)	694	600	270	863	70,3	100	500
Kupfer	1.714	930	340	1.302	610	1.500	5.000
Fluor	n.a.	4.600	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Eisen	n.a.	24.000	5.100	21.300	3.700	18.000	55.000
Quecksilber	6	20	n.a.	n.a.	n.a.	0	3
Kalium	n.a.	36.000	28.000	450.000	37.300	30.000	60.000
Lithium	42	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Magnesium	n.a.	15.300	12.000	218.000	7.900	2.000	18.000
Mangan	n.a.	950	450	1.390	310	400	900
Molybdän	n.a.	170	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Natrium	n.a.	30.000	44.000	430.000	43.000	25.000	70.000
Nickel	207	120	30	124	310	60	300
Phosphor	n.a.	6.300	2.400	n.a.	n.a.	1.000	8.000
Blei	6.586*	8.000	3.100	109.000	29.500	7.000	25.000
Schwefel	n.a.	27.000	9.200	446.000	3.900	30.000	150.000
Antimon	872	1.180	370	412	480	700	5.000
Selen	20	n.a.	n.a.	41	160	n.a.	n.a.
Silizium	n.a.	136.000	121.000	n.a.	n.a.	50.000	100.000
Zinn	1.879	3.200	720	n.a.	n.a.	800	3.000

Messungen des Anliefermaterials Haus Aden		Beispiel zweier Filterstäube vor Verglasung (Gutmann et al. 1996)		Standardmaterial für Filterstäube und an Proben gemessene Werte (Huang et al. 2007)		Aktuelle Min. und Max. Werte von Müllverbrennungsanlagen in der Schweiz (Schlumberger und Bühler 2013)	
Element	**Mittelwerte [mg/kg i. Tr.]**	**Typ 1 [mg/kg]**	**Typ 2 [mg/kg]**	**BCR No. 176 [mg/kg]**	**Proben-werte [mg/kg]**	**Min. [mg/kg]**	**Max. [mg/kg]**
Strontium	300	230	390	462	430	n.a.	n.a.
Thallium	3	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
Titan	n.a.	10.100	3.600	n.a.	n.a.	2.500	5.000
Vanadium	44	87	30	100	10,3	n.a.	n.a.
Zink	22.510*	24.000	6.000	258.000	8.800	20.000	120.000
Zirkonium	n.a.	100	70	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.

n. a.: nicht angegeben
* relevante Schwermetalle in Haus Aden

Für die Freisetzung von Schwermetallen aus HMVA ist zum einen die Konzentration in der HMVA maßgeblich. Im Verbringungsmaterial sind darüber hinaus auch die Mischung mit den weiteren Versatzstoffen, die Schwermetallmobilität unter gegebenen Umweltbedingungen sowie der generelle Anteil des verbrachten Volumens am ehemaligen Hohlraumvolumen maßgeblich. So macht das verbrachte Reststoffvolumen nur 2-5 % des Volumens der Bruchzone aus. Dies führt nochmals zu einer geringeren Konzentration im Hinblick auf den Flutungsprozess.

Die Mobilisierbarkeit der Schwermetalle wird in der BHV auch von den vorliegenden Mineralphasen beeinflusst. Darüber hinaus wird das Laugungsverhalten der Reststoffe durch Druck, pH und Temperaturbedingungen bestimmt und es lässt sich ein Zusammenhang zwischen pH-Wert und mobilisiertem Anteil der Ausgangszusammensetzung herstellen (Van Herck et al. 2000).

Einen Überblick über typische Minerale in den HMVA verschafft die Röntgendiffraktometrie der Verbrennungsaschen. Hierzu wurde umfangreich die vorliegende Literatur ausgewertet.

Tabelle 20 führt die nachgewiesenen Mineralphasen in Aschen aus der Hausmüllverbrennung auf, um ganz generell die möglichen Mineralphasen in den verbrachten HMVA zu zeigen.

Tab. 20: Verschiedene Untersuchungen zu den Mineralphasen in Filteraschen

Mineralphasen in Filteraschen (Birkel 1997)			
Hauptphasen		Nebenphasen und Spuren	
neu gebildetes Glas		Gips	$CaSO_4 * 2\ H_2O$
Kohlenstoff, Graphit			$K_4Na_4Zn_2Fe_2(SO_4)_9$
Quarz	SiO_2		$(K, Na)_2(Pb, Ca, Zn)(SO_4, Cl_2)_2$
Anhydrit	$CaSO_4$		$ZnCl_2 * 4\ Zn(OH)_2$
Bassanit	$CaSO_4 * 0{,}5\ H_2O$		$CaCl_2 * Ca(OH)_2 * H_2O$
	$(K, NA)_2SO_4$	Hämatit	Fe_2O_3
	$(K, Na)_2\,(Ca, Pb, Zn)_2\,(SO_4)_3$	Magnetit	Fe_3O_4
Halit	NaCl	Rutil, Anatas	TiO_2
Sylvin	KCl	Ilmenit	$FeTiO_3$
		Ulvöspinell	Fe_2TiO_4
		Cuprit	Cu_2O
		Portlandit	$Ca(OH)_2$
		Fluorit	CaF_2
		Blei, Kupfer, Eisen	Pb, Cu, Fe
Häufige Minerale in Flugaschen (Lima et al. 2008)		Minerale in Kehrrichtverbrennung, Schweiz (Artelt et al. 1993)	
Korund	Al_2O_3	Sylvin	KCl
Anhydrit	$CaSO_4$	Halit	NaCl
Kalzit	$CaCO_3$	K-Zn-Chlorid	K_2ZnCl_4
Hämatit	Fe_2O_3	Anglesit	$PbSO_4$
Sylvin	KCl		
Arkanit	K_2SO_4		
Magnesit	$MgCO_3$		
Forsterit	Mg_2SiO_4		
Halit	NaCl		
Quartz	SiO_2		

Tabelle 20 zeigt, dass in den Filterstäuben aus der Hausmüllverbrennung im Wesentlichen Chloride, Sulfate und Karbonate nachgewiesen wurden. Sulfate und Karbonate sind für das Langzeitverhalten des Verbringungsmaterials wichtig, da die Karbonate beispielsweise zur Pufferung des pH-Wertes beitragen. Die zementähnlichen Abbindeeigenschaften der BHV werden unter anderem durch den Portlandit und die Sulfate in der HMVA gesteuert. Durch das Vorhandensein dieser Minerale bilden sich bei der Verfestigung des Materials verschiedene CSH-Phasen und Ettringit, die zum Aushärten des Versatzmaterials führen.

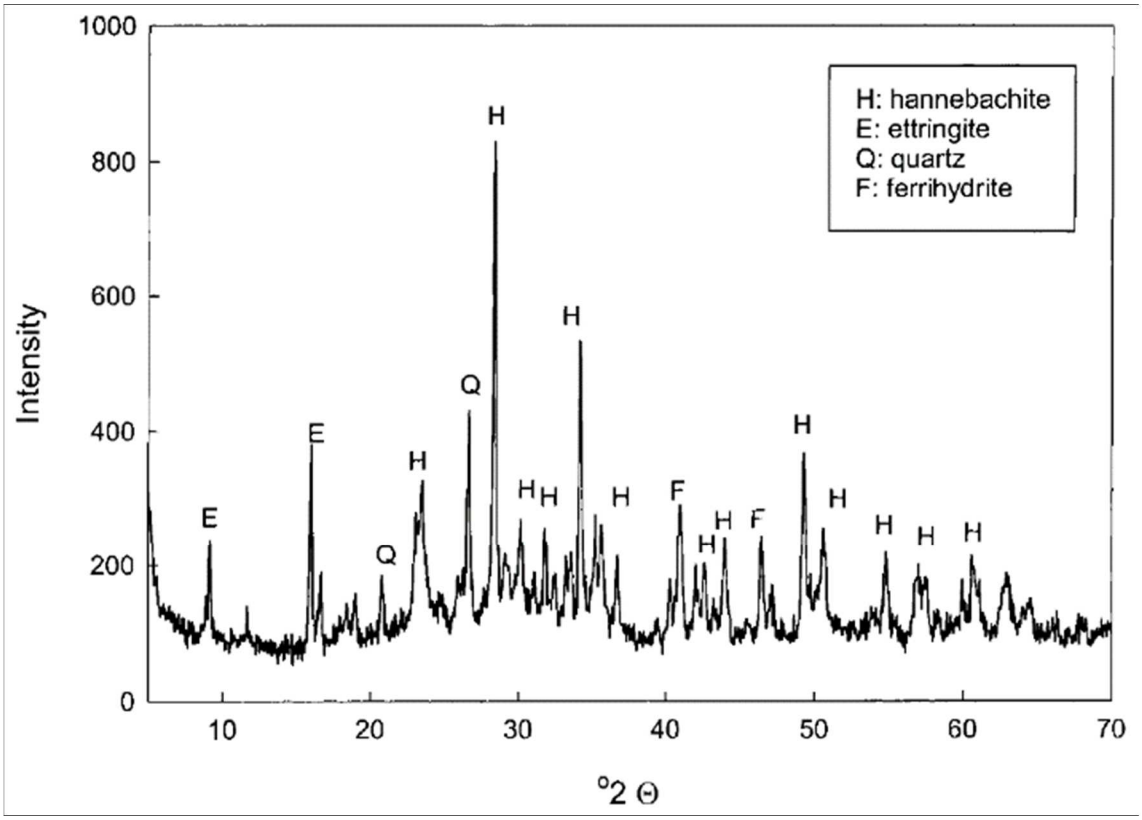


Abb. 16: Röntgendiffraktometrie Analyse gewonnener Kerne in die verbrachten Reststoffe (Hußmann und Klee 2001)

Die einzelnen Mineralphasen sind jeweils unter bestimmten Umgebungsbedingungen stabil und gehen bei veränderten Bedingungen in andere Minerale über oder gehen ggf. bei Kontakt mit Wasser in Lösung. Erst dann ist grundsätzlich eine Mobilisierung von Schwermetallen möglich. Da sich aber nicht alle Minerale umwandeln und eine Umwandlung bzw. Lösung nur teilweise erfolgt, kann unter bestimmten pH-Verhältnissen nur ein Teil der Schwermetalle mobilisiert werden.

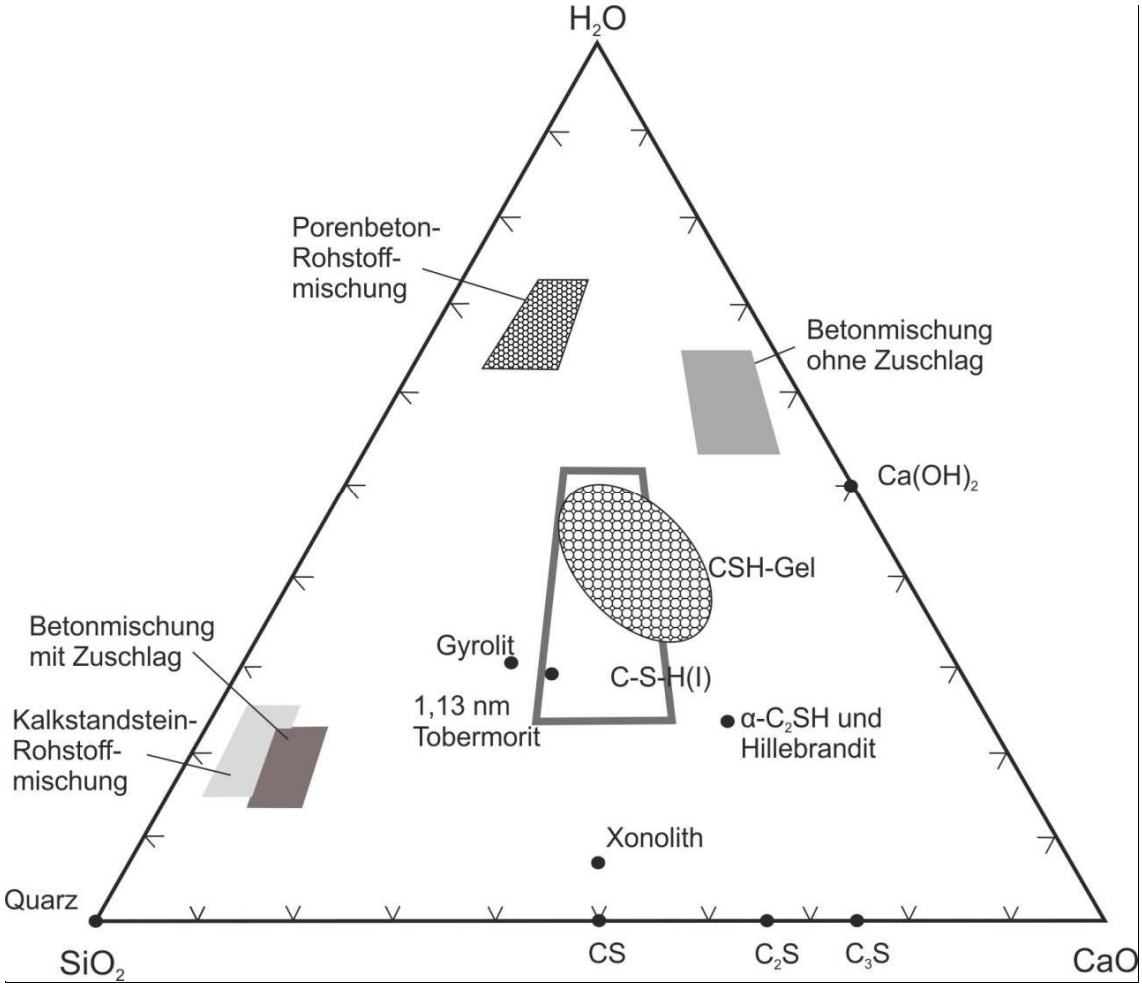


Abb. 17: Technische CSH-Phasen (Darstellungsart angepasst nach VDZ 2002)

5.4 Zustand der Bruchhohlraumverfüllung

Die Reststoffe wurden nach einem patentierten Verfahren (Ruhrkohle Montalith GmbH 1992; DE 4207182 A1), aus einem Gemisch aus Wasser, RAA-Schlämmen und HMVA angesetzt und als pastöse Masse nach unter Tage mittels Pumpen verbracht.

Für die Risikobewertung ist der Zustand der BHV wichtig und die Frage, ob das Material noch als Suspension oder erhärtet vorliegt von großer Relevanz.

Generell gibt es drei denkbare Szenarien, was mit der verbrachten Reststoffsuspension im Bruchhaufwerk passiert sein könnte:

- Im Bruchhaufwerk liegt die Suspension wie eingebracht vor (freies Wasser).
- Die Suspension ist verdichtet und ausgehärtet (Wasser wurde eingebunden).

- In den Poren/Klüften/Hohlräumen im Bruchhaufwerk liegt die Suspension verteilt und ausgehärtet vor.

- Aus den Reststoffen hat sich ein monolithischer Block gebildet.

Um den Prozess der Verbringung genauer verstehen zu können, ist es notwendig zu wissen, wie der Bruchhohlraum bei der Verfüllung ausgesehen hat. In Abbildung 18 ist eine Aufnahme von Bruchhaufwerk im Nachgang zur Abbautätigkeit zu sehen. In dieses lose Haufwerk mit Hohlräumen zwischen den einzelnen Verbruchblöcken, wird eine mit dem angemischten Beton aus dem Hausbau vergleichbare Suspension in das Haufwerk eingeleitet. Dort verteilt sich diese in den Hohlräumen des Haufwerks, wodurch die BHV nicht als Monolith vorliegen kann, sondern die Poren und Klüfte des Verbruchs ausfüllt.



Abb. 18: Aufnahme von Bruchhaufwerk (DMT 1992)

Zur generellen Erläuterung der Prozesse und der daraus resultierenden Stoffeigenschaften, die beim Abbinden eines hydraulischen Bindemittels zu erwarten sind, hier anhand des allgemein bekannten Baustoffs Beton veranschaulicht. Beton wurde ausgewählt, da er, entsprechend der BHV, aus mehreren abbindenden Komponenten besteht. Die Bestandteile sind Zement, der dem BHV Material entspricht, einer Gesteinskörnung (früher Zuschlag), die hier dem Bruchhaufwerk entspricht und dem Zugabewasser (früher Anmachwasser), das dem Wasser in der Suspension entspricht.

Das Wasser in diesem Gemisch ist entscheidend, da durch Wasserzugabe das Bindemittel reagiert und nach einiger Zeit durch Mineralneubildung verbunden mit der Bindung des Wassers in neuen Mineralphasen erhärtet (VDZ 2002).

Das Erhärten setzt sich aus sich aus mehreren Prozessen zusammen. Zunächst steift das Gemisch an. Dies geschieht kurzfristig im Sekundenbereich, je nach eingestellter Aushärtedauer des jeweiligen Gemischs. Über das Wasser zu Zement Verhältnis (w/z) kann die Geschwindigkeit des Prozesses bestimmt werden. Nach dem Ansteifen beginnt der Beton zu erstarren. Dieser Vorgang kann von 0,5 Tagen bis zu einer gezielten Anzahl an Tagen dauern, was durch die Auswahl des Zements und die Anmischung des Betons eingestellt werden kann. Das Erhärten bezeichnet damit insgesamt den Übergang von Frischbeton zu Festbeton und ein Beton kann durch Mineralumwandlungen im Bindemittel auch noch nach Jahren weiter an Festigkeit gewinnen (VDZ 2002), was die in Abbildung 19 dargestellten Mineralumwandlungen zeigen.

Um die verschiedenen Zementmischungen in ihren Eigenschaften auf einen gemeinsamen Parameter beziehen zu können, wird die Normfestigkeit nach 28 Tagen gemessen. Hatte das Gemisch zu wenig Wasser führt dies zu einem Austrocknen und zu einem übermäßigen Schwinden. Den Grund für die 28 Tage als Referenzrahmen zeigt Abbildung 17, da nach 28 Tagen die wesentlichen Mineralneubildungen oder Umwandlungen stattgefunden haben. Wie das Diagramm zeigt (Abb. 17), bilden sich die für die Festigkeit entscheidenden Calciumsilicathydrate (CSH-Phasen) (Mineralbildungen) erst einige Stunden nach der Anmischung. Mit dem Anwachsen dieser Phasen verringert sich die Porosität und auch die Permeabilität des entstehenden Steins. Wie abgebildet verändert sich das Mineralgefüge im Betonstein und damit auch dessen Festigkeit (VDZ 2002).

Wie oben bereits beschrieben, wird die noch pastöse Masse während der BHV in das Bruchhaufwerk eingebracht. Durch den Eintrag über eine Schleppleitung am Boden der jeweiligen Bauhöhe, drückt sich im Porenraum und in den Klüften des Gesteinshaufwerks auch ein Teil des verbrachten Materials nach oben.

Genauer wird der Vorgang der Bruchholraumverfüllung in Abbildung 20 gezeigt. Der Streb baut die Kohle ab und zieht eine Schleppleitung hinter dem Abbau her, die im Verbruchbereich die Reststoffe einbringt, die die Hohlräume ganz oder zum Teil verfüllen. Labordaten aus der Zeit der Verbringung legen nahe, dass die k_f-Werte im Bereich der BHV sehr niedrig sind und denen von Grundwassergeringleitern entsprechen.

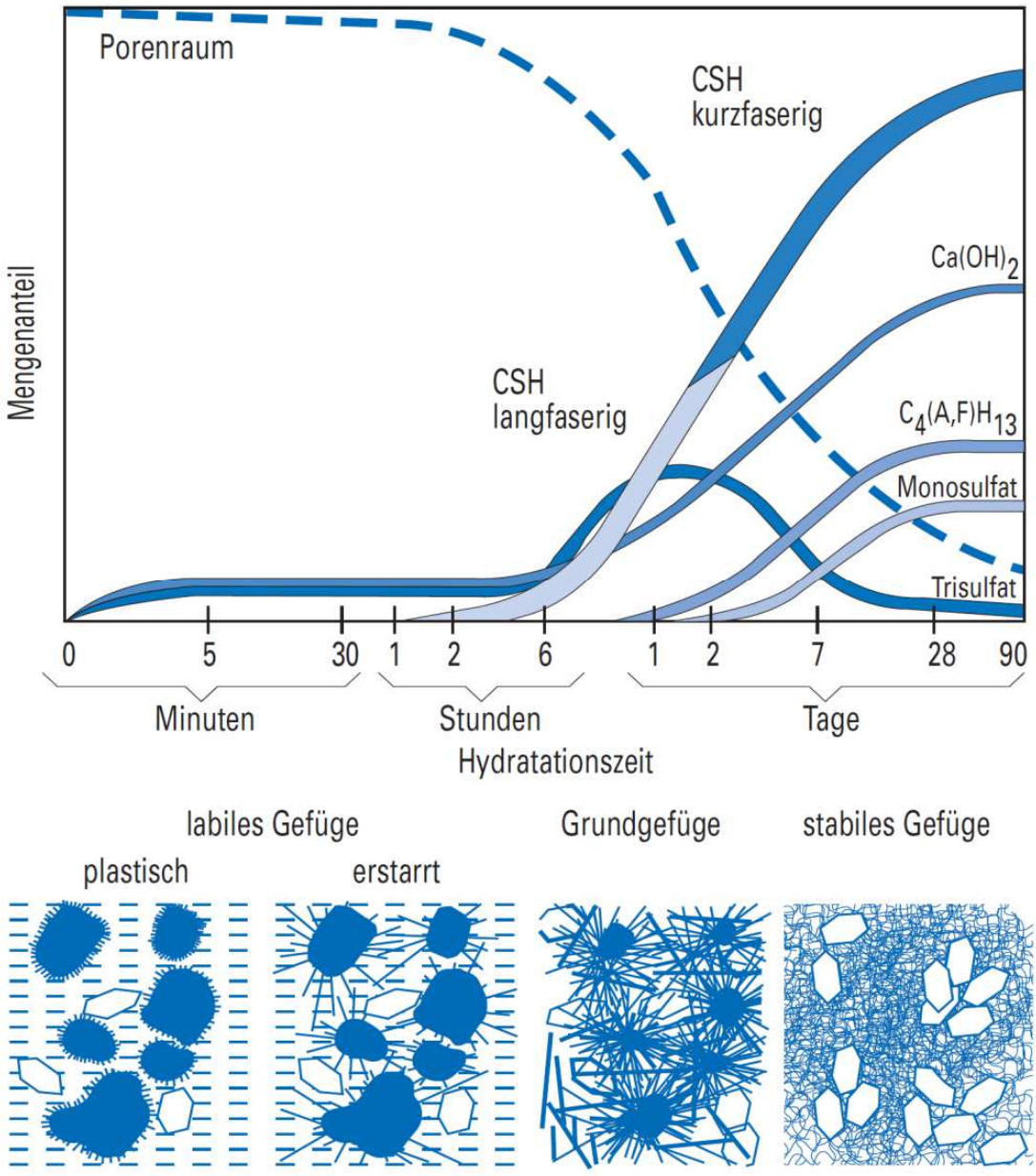


Abb. 19: Kristallwachstum beim Abbinden von Zement (VDZ 2002)

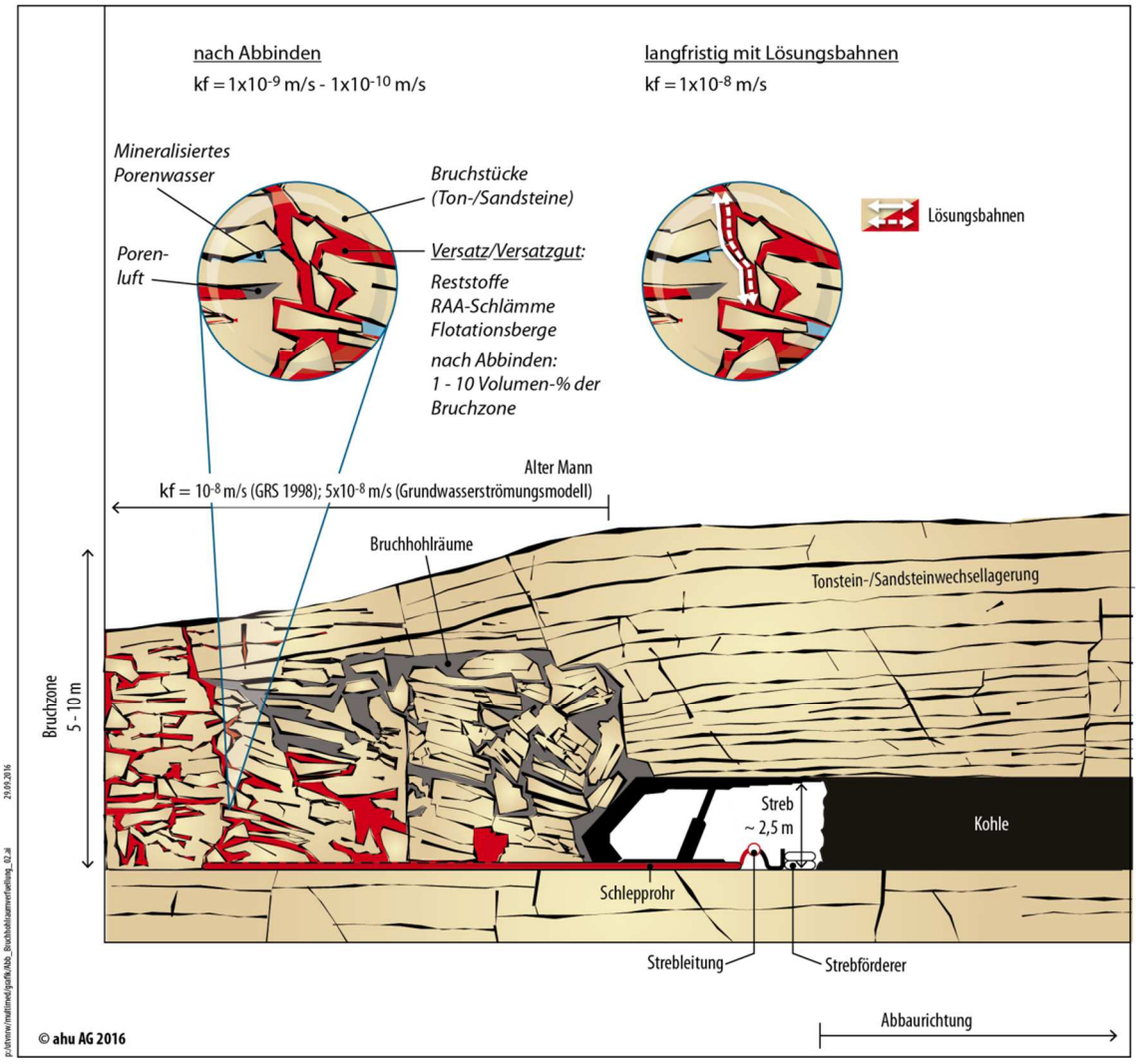


Abb. 20: Schematische Darstellung des Verbundes zwischen Abbaubetrieb und BHV (ahu 2016)

In Bezug auf die Ausgangsfrage dieses Kapitels auf die Festigkeit der BHV zeigt sich an Abbildung 18, dass die BHV kein monolithischer Block ist und es liegt nahe, dass das Bindemittel die verbrochenen Steinblöcke verkittet. Es muss, wie in Abbildung 20 zu sehen, davon ausgegangen werden, dass die Verkittung mit Bindemittel nur in einem Teil des Bruchhaufwerks vollständig ist und es auch Bereiche ohne BHV-Material in den Hohlräumen gibt. Grundsätzlich ergibt sich durch das Verbringungsverfahren, dass die Füllung der Hohlräume von unten nach oben abnimmt. Damit ist auch die Sohle des Abbaufeldes am ehesten durchgehend zementiert. Die Verfüllung mit Suspension nimmt mit der Steighöhe ab und wird maximal bis ca. 10 m Höhe nachweisbar sein, da das die angenommene Verbruchhöhe im Alten Mann ist.

Durch diese Zementierung des Haufwerks soll es zu einer Verringerung der Bergsenkung an der Erdoberfläche kommen. Dazu muss die Suspension durch ihr Aushärten das Bruchgefüge stützen. Das ist bei 2 bis 5 % des Volumens und der beschriebenen Verteilung der Zementierung hier nicht abschließend zu klären.

Um die Verfestigung der BHV abzuschätzen, müssen neben diesen qualitativen Überlegungen weitere Indizien vorliegen, die eine Erhärtung nahelegen.

Aktuell gibt es keine Proben des damals verbrachten Materials. Diese müssten sehr aufwendig bergmännisch gewonnen werden, deshalb wurden bisher keine neuen Proben genommen. Rückstellproben hätten, wenn es sie gäbe, keinen Wert bzw. würden keinen Erkenntnisgewinn bringen. Nach über 20 Jahren im Lager/Archiv würden solche Proben nicht mehr die Eigenschaften aus der Zeit der Reststoffverbringung aufweisen.

Hydraulische Bindemittel (Zement) können zudem auch nach Jahren und Jahrzehnten noch Festigkeitszuwächse aufweisen. Zudem würden solche Proben aus verschiedenen Gründen die Situation unter Tage nicht exakt wiedergeben:

- Es gibt keine Rückstellproben der eingebrachten Reststoffe.
- Ausgangsstoffe sind auch nicht repräsentativ, weil die Reststoffe nur 2-5 % der Bruchzone ausmachen und die Reststoffe auch mit ihren Nebengesteinen reagieren
- In der BHV herrschen höhere Drücke, Temperaturen und es sind hoch salinare Porenwässer zu erwarten.
- Zu den Möglichkeiten einer aktuellen Beprobung durch übertägige oder untertägige Bohrungen wurden im Zwischenbericht Aussagen getroffen. Diese Bohrungen würden ca. 3 Jahre dauern.
- Die Bohrkerne ermöglichen lediglich eine punktuelle Information, da sie nur einen nicht repräsentativen Einblick in die BHV darstellen. Ihre Übertragbarkeit auf andere Lokalitäten ist als gering zu bewerten. Bei den bereits erfolgten Bohrungen in die BHV in Walsum, die zu dem Zeitpunkt noch besser zugänglich war, wurde in einem Falle ein nur gering verfüllter Bereich angetroffen.

Vor der Einbringung der BHV in die Bergwerke, gab es umfangreiche Untersuchungen zu deren Aushärteverhalten und auch zum Verfahren der Untertageverbringung von Reststoffen. Dieses Kapitel wird darstellen wie damalige Prüfkörper aussahen und welche Hinweise es insgesamt auf den Aggregatzustand der BHV gibt. Diese Laboranalysen und auch Vergleiche mit internationalen Verbringungen von Reststoffen zum Versatz nach unter Tage wurden die vorliegenden Daten aus der Zeit der BHV nochmals ausgewertet. Dazu gibt es verschiedene Quellen:

- Forschungsberichte zur Entwicklung eines Verfahrens zur unter Tage Verbringung von Reststoffen, Ergebnisse von Laborversuchen zur Aushärtung im Vorfeld der Verbringung, Überprüfung der Aushärtung im Bergwerk, Ergebnisse von Kontrollbohrungen,
- Störfälle während des Betriebs,
- internationale Literatur und Studien zum Thema der Erhärtung bzw. der Nutzbarkeit von HMVA und weiteren Filteraschen in der Zementherstellung, der Verbringung oder anderen Nutzungsmöglichkeiten (Recycling),
- Bildung von CSH-Phasen und entstehenden pH-Werten (Literatur).

Es gibt umfangreiche Literatur aus dem Bereich der Betontechnik, die das Aushärteverhalten von HMVA, Filterstäuben mit Zement oder ohne Zement und viele weitere Kombinationsmöglichkeiten auswerten. Hier wird, um sich nicht zu weit vom Thema zu entfernen, nur die Basisliteratur betrachtet. Daraus lassen sich aber die Grundzüge der Zementzusammensetzung und die wesentlichen chemischen Reaktionen, die zu einem Aushärten führen, erklären (VDZ 2002). Da es sich bei Filterstäuben oft um Materialien handelt, die die für Zementzuschlagstoffe wichtigen puzzolanischen Eigenschaften besitzen. Dadurch werden die in der Steinkohle verbrachten Reststoffe in anderen Industriezweigen als Rohstoff eingesetzt, was einer stofflichen Verwertung entspricht (Recycling) (Lin 2005; Van der Sloot et al. 2001; Traber et al. 2000; Shehata et al. 1999; Ubbriaco & Calabrese 1998).

5.4.1 Forschungsberichte, Laborversuche und Überprüfung der Erhärtung

Bevor die BHV begann, wurden zur Klärung möglicher Gefährdungen und der Prüfung der technischen Machbarkeit eine Machbarkeitsstudie in Auftrag gegeben, die auf Grundlage des Standes der Technik der damaligen Zeit die Eigenschaften der Reststoffgemische bei Verbringung, die Pumptechnik und den Abbauprozess betrachteten. Besondere Aufmerksamkeit galt in den Berichten der Sicherheit der BHV gegenüber dem Austrag von Schadstoffen (Jäger et al. 1990). Im Nachgang zu diesen Untersuchungen und auch als Überprüfungen des Verfahrens während der Laufzeit, wurden mehrere Berichte erstellt (EU 1999; Thein 1996; Thein & Klingel 1994, 1993, Thiehofe 1991).

In den Vorberichten wurden verschiedene Reststoffgemische getestet, um das Verfahren in die Umsetzungsphase bringen zu können und auf diese Testergebnisse wird im weiteren Verlauf auch eingegangen. Es kam zudem die Frage auf, ob ein „Nachmischen“ der verfüllten Stoffgemische eine Erkenntnis zum Zustand der BHV liefern könnte. Die synthetische Erzeugung von Versatzmaterial aus heute vorliegenden Ausgangsstoffen ist nicht zielführend, da sich die technischen Prozesse bei der Verbrennung von fossilen Brennstoffen und Hausmüll sehr stark verändert haben und auch die Zusammensetzung der Brennstoffe nicht mehr die gleiche ist. Damit wären die erzielten Ergebnisse nicht repräsentativ für die eigentlich verbrachten BHV-Materialien. Zudem sind keine Vollanalysen der Versatzmischungen überliefert und damit deren mineralogische Zusammensetzung ebenfalls nicht bekannt. Eine Reproduktion des alten Materials ist daher fachlich fundiert nicht möglich.

Ein „Nachmischen“ der Reststoffgemische wäre denkbar, ist aber nicht möglich, da die heutigen HMVA und RAA in ihrer Zusammensetzung aufgrund des Fortschrittes in der Verbrennungstechnik nicht mehr mit alten Aschen vergleichbar sind (Haus der Technik 1987, Patent 1992). Zudem müssten die Bedingungen von unter Tage im Labor simuliert werden (Druck, Temperatur, Tiefengrundwasser, Reststoffe nur 2% der Bruchhohlraumverfüllung etc.).

Als Teil der Untersuchungen einer möglichen unter Tage Verbringung, gab es auch ein vom Bundesministerium für Forschung gefördertes Projekt zur Entwicklung eines Verfahrens zur Verbringung von Kraftwerksabgängen in Bergwerken (Thiehofe 1991). Ein von der Europäischen Kommission gefördertes Projekt bezog sich auf das Verfahren der Verbringung von über Tage aus und mündete in dem von der RAG 1992 angemeldete Patent des Verbringungsverfahrens (DMT 1994; Patent DE19924207182 1992).

In diesen Forschungsprojekten wurden Laborversuche zum Aushärteverhalten durchgeführt, die in den Abbildungen 21 und 22 gezeigt werden. Im Labor ist das Reststoffgemisch vollständig ausgehärtet.

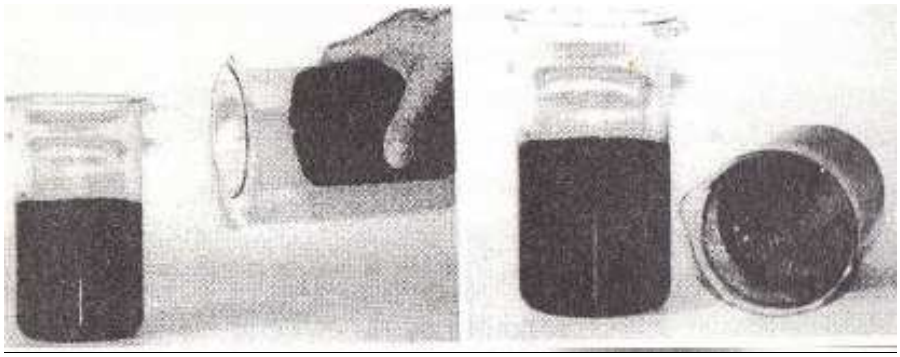


Abb. 21: Typisches Versatzgut mit den geforderten thixotropen Eigenschaften und hohem Feststoffgehalt (Steinkohlenbergbauverein Essen 1988)

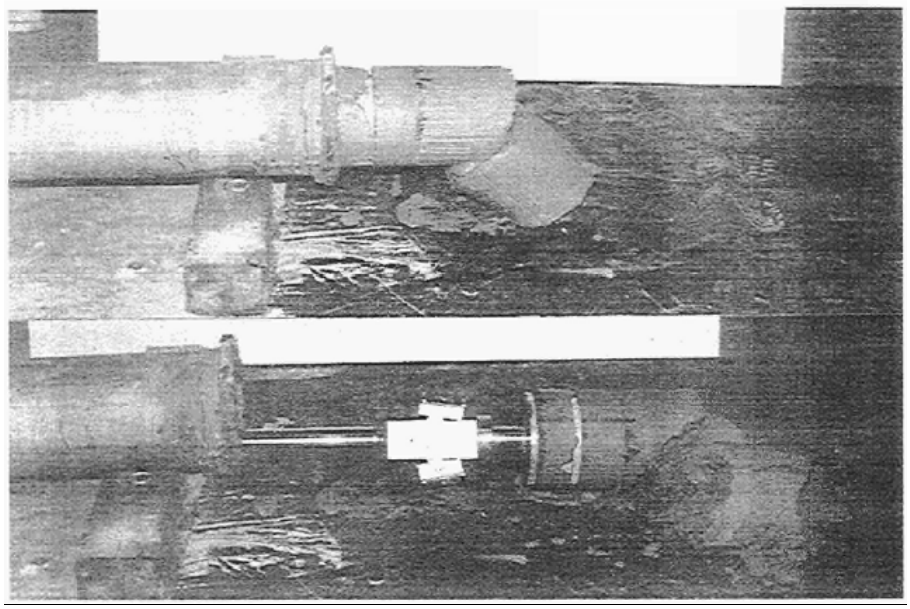


Abb. 22: Herausdrückvorgang mit Rohrreinigungsgerät (Steinkohlenbergbauverein Essen 1988)

Es zeigte sich, dass das Problem beim Pumpen nach unter Tage das zu schnelle Erstarren des Reststoffgemisches war. Daher wurden mittels Viskosimetern die Eigenschaften der jeweiligen Suspensionsgemische überwacht und mittels adäquater Zusammensetzung oder Verzögerern das Ansteifen und Aushärten eingestellt (siehe Störfälle). In weiteren Untersuchungen zu den Versuchsmischungen zeigte sich, dass Blöcke aus Versatzmaterial (Abb. 23) während des Versuchs erhärteten. Somit ist die generelle latent hydraulische Eigenschaft des Versatzmaterials nachgewiesen gewesen und es gibt keinen Grund das für die BHV nicht anzunehmen.

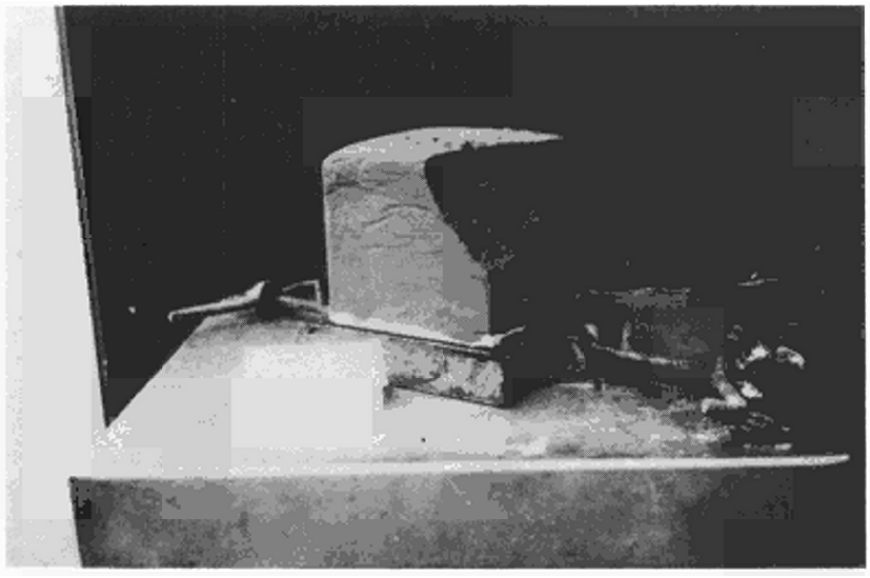


Abb. 23: Würfel aus EFA-Wasser-Gemisch (Mez et al. 1999)

5.4.2 Überprüfung der Erhärtung in der BHV

Diese Überprüfung des Aushärteverhaltens wurden in den Bergwerk Walsum und Consolidation Großversuche u.a. zur Untersuchung des Verhaltens der verbrachten Reststoffe durchgeführt. Dazu wurden auch Untersuchungen durchgeführtt, die auf Bundes- und europäischer Ebene gefördert wurden und einer Überprüfung durch die Förderer unterlagen:

- Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägigen Bruchhohlräumen (Thiehofe/RAG 1991, gefördert mit Mitteln des BMFT 0326416 B),

- Wissenschaftliche Begutachtung und labortechnische Untersuchungen zum technischen Großversuch – Verbringung vom MVA-Reststoffen als hydraulischer Nachversatz auf der Schachtanlage Consolidation (Wilke & Skrzyppek 1993),

- Qualitätssicherungsprogramm Walsum (Wilke & Dartsch 1995).

Wie bereits erwähnt, handelt es sich bei der Verbringung der Reststoffe um ein Gemisch, das als pastöse Masse nach unter Tage verbracht wurde. In seinen Aushärteeigenschaften entsprach das Reststoffgemisch dem von Zement (Aubert et al. 2004; Remond et al. 2002). Vom gesamten Volumen der ehemaligen offenen Strecke steht nur ein kleiner Teil (2 %) zur Verbringung zur Verfügung. Im Wesentlichen liegt ein zunächst aufgelockertes Haufwerk vor, das recht schnell durch den Gebirgsdruck wieder verfestigt wird und kaum Porosität aufweist.

Zur Überprüfung des Aushärtens wurde in die BHV in Bauhöhe EF43, BW Walsum, im Herbst 1988 eine ca. 170 m lange Erkundungsstrecke aufgefahren. Aufgrund der Gebirgsfestigkeit der BHV erfolgte dies im Sprengvortrieb (Thiehofe/RAG 1991).

Die dort angetroffene Ortsbrust (Abb. 24) zeigte eine verfestigte, künstliche Verfüllung der Bruchhohlräume. Hier wurde ein typisches Bild ausgewählt, es liegen aber noch verschiedene andere Aufnahmen vor, die die verfestigte BHV zeigen.



Abb. 24: Nahaufnahme einer Ortsbrust im Bergwerk Walsum. Gefüge aus Bruchbergen und Füllstoff nach Einbau über Schlepprohr (Steinkohlenbergbauverein Essen 1988, Thiehofe 1991)

Weiterhin wurden im BW Walsum zwei Jahre nach der Verbringung die BHV von unten in einem Trockenbohrverfahren angebohrt, um den Abbindeprozess näher zu untersuchen (Wilke & Dartsch 1995). Das im BW Walsum erbohrte Material war kein monolithischer, zementierter Kern, sondern es wurde ein nicht standfestes, trocken siebbares Material erbohrt, das als Nebengesteinsbruchstücke und vermutetem Versatzmaterial bestand.

Die festgestellten, geringen Schwermetallgehalte in diesem Material ließen es fraglich erscheinen, ob überhaupt die eingebrachten HMVA-haltigen Versatzstoffe angebohrt wurden. Dies ist insofern nicht verwunderlich, als die eingebrachten Versatzstoffe nur sehr geringe Volumenprozente eines Auflockerungsbereichs ausmachen. In den Abschlussberichten wurden die erreichten verpressten Mengen mit 0,1 bis 0,5 m^3 je m^2 Verpressbereich angegeben. Bei einem Auflockerungsbereich in Höhe von 10 m entspräche das nur einem Volumenanteil von 1 bis 5 %; bei einem Auflockerungsbereich in Höhe von 5 m wären es 2 bis 10 %.

Wilke & Skrzyppek (1993) berichten, dass über zwei Bohrungen im BW Consolidation, Bauhöhe 143 des Flözes Ernestine, die 5 Monate nach Einbringen eines Nachversatzes mit bergbaufremden Versatzmaterial und einem Monat nach Unterbauung die BHV erstellt wurden, keine Spülung in die BHV verpresst werden konnte.

Dieser Bericht, der hier der Vollständigkeit halber angeführt wird, ergibt keine Kenntnis zum Zustand des Versatzmaterials, v.a. ob es erhärtet war.

5.5 Überschusswasser

Zement kann eine Wassermenge von etwa 40 % seiner Masse binden (Wasserzementwert 0,40). Weist ein Zementleim einen höheren Wasserzementwert auf, so wird das nicht mehr vom Zement gebundene Wasser mit Überschusswasser bezeichnet (Aus: http://baulexikon.beuth.de/UEBERSCHUSSWASSER.HTM=)

Überschusswasser kann bei einer Phasentrennung beim Transport oder Versatz bei ungünstiger Einstellung der Suspensionseigenschaften auftreten. In wenigen Einzelfällen zu Zeiten der Großversuche BW Walsum bei Vorversuchen, die 1985/86 zur generellen Entwicklung einer Verbringungstechnik und damit verbundenen Anforderungen an die Suspension durchgeführt wurden, wurde Überschusswasser beobachtet. Im Nachhinein bei Betriebsstörungen (Abschlussberichte Grimberg), und in der aufgefahrenen Erkundungsstrecke (Walsum) wurden jedoch keine Indizien auf Überschusswasser festgestellt. Andere Versuche im Labor zur Optimierung des Verbringungsverfahrens und die Störfälle zeigen, dass das Problem eher eine zu schnelle Erstarrung des Gemischs war.

Der Feuchtegehalt einer BHV wurde beim Auffahren einer Erkundungsstrecke 04.10-2.12.1988 im Verfüllbereich des 3. Großversuchs 21.03-06.04.1988 Flöz EF (Bh. 44) Bergwerk Walsum (Thiehofe | Ruhrkohle AG, 1991; BMFT 0326416 B) bestimmt. Das Versatzmaterial bestand aus 30 % Flotationsberge und 70 % EFA. Es wurden 0.9 – 1,23 m³ Suspension je m² abgebauter Flözfläche entsprechend einem Verfüllungsgrad von 65-89% eingebracht. Das Gefüge aus verkeilten Bruchbergen und mit Füllstoff versetzten Zwischenräumen soll 6 Monate nach dem Versatz so fest gewesen sein, dass für den Vortrieb gesprengt werden musste. Es wurden festgestellt: *„Das für die hydraulische Förderung und das Verpressen auf 25 – 30 Gew. % Wasser angereicherte Gemisch war weitgehend entwässert und standfest. Schlammreste wurden nicht festgestellt. Restwassergehalte des Füllgutes bewegten sich zwischen 12 und 18 %; die ehemals trockenen Bruchberge hatten eine Feuchte zwischen 3,0 und 5,5 %.“* Und „Da während der Injektionsphase und in dem Zeitraum bis zur Auffahrung der Erkundungsstrecke keine Überschusswasseraustritte beobachtet werden, ist davon auszugehen, dass dieses vom Bruchhaufwerk und dem Nebengestein aufgenommen wurde.“

5.6 Störfälle während des Betriebs

Besondere Vorkommnisse und die getroffenen Maßnahmen gemäß dem Sonderbetriebsplan für die Reststoffverwertung als Nachversatz zur Bruchhohlraumverfüllung im Sinne des § 74 Abs. 3 BbergG sind in folgenden Unterlagen dokumentiert:

- Abschlussberichte der Abbaubetriebe Gb 1, Gb 2, Gb 16, Gb 17 und Gb 31
- Sachstandsberichte (Zeitraum: 03.1993 – 02.1998)

Die Auswertung der Berichte hinsichtlich der bei der Verbringung der Versatzmaterialien dokumentierten betriebsbedingten Störungen hat Folgendes ergeben:

In den vorliegenden Unterlagen sind sechs betriebsbedingte Störungen während des Zeitraums der Verbringung des Bruchhohlraumversatzes für Haus Aden / Monopol nach Aktenlage der Abschlussberichte dokumentiert (01.07.1993, 09.08.1993, 04.11.1993, 10.11.1994, 19.05.1995, 19.06.1995). In der übernommenen Aktenlage „Sachstandsberichte“ werden für den Zeitraum 01/95 bis 08/95 drei Betriebsstörungen genannt. Von diesen drei Betriebsstörungen wird eine als von der *schlechten Aufmischung der RAA-Schlämme im Mischer durch unbemerkten Ausfall von Zerkleinerungsmessern* beschrieben. Die Ursache entspricht dem Sachstandsbericht vom 10.11.1994. Die Gutachter ordnen diesen Sachstandsbericht der Betriebsstörung vom 10.11.1994 zu. Die übernommene Aktenlage *Abschlussberichte* weist für die Betriebsstörungen 19.05.1995 und 19.06.1995 zwei Vorberichte aus. Im zweiten Vorbericht wird als Datum der Betriebsstörung vom 19.06.1995 der 20.06.1995 angegeben. Aus der Beschreibung der Betriebsstörungen geht schlüssig hervor, dass dies der gleiche Fall ist. Die Gutachter bewerten nach Abgleich der Texte den Sachstand nach Lage Abschlussbericht als den korrekten.

Festgestellt wurden die betriebsbedingten Störungen anhand eines Anstiegs des Drucks in der Rohrleitung, in einem Fall durch die Auffindung eines geringen Austritts von Suspension durch ein Materialversagen (Rohrschuh) im Rahmen einer Befahrung.

Die Behebung der betriebsbedingten Störungen erfolgte über eine abschnittsweise Öffnung der Rohrleitung. Mit Ausnahme des Falls, der aufgrund eines Materialversagens eingetreten war, konnte die Rohrleitung nur durch Entfernen des verfestigten Materials durch gezieltes untertägiges Anpumpen, in einem Fall durch Aufbohren der gesamten verstopften Rohrleitung, behoben werden.

Die eingestellte Viskosität hatte sich erhöht bis hin zu einem vollständig festen Materialverbund. Die betriebsbedingten Störungen und deren Beseitigung sind gut dokumentiert.

Alle Störfälle sind mit einer genauen Beschreibung im Anhang 7 tabellarisch aufgelistet.

Nach folgender Auswertung haben sie keinen Einfluss auf die beschriebenen Mengenanteile von Reststoffen in der Bruchhohlraumverfüllung:

Gemäß der Tabelle 13 wurden in den Bauhöhen Gb 1, Gb 2, Gb 16, Gb 17 und Gb 31 insgesamt 62.289 t HMVA-Filterstaub sowie 105.477 t RAA-Schlamm, d.h. eine Materialgesamtmasse von 167.088 t, verbracht.

Den Beschreibungen der Betriebsstörungen in den Abschlussberichten der Abbaubetriebe bzw. der Sachstandsberichte zufolge kam es lediglich bei zwei der sechs Betriebsstörungen zu Materialaustritten.

Bei der Betriebsstörung am 01.07.1993 im Abbaubetrieb Gb 2 kam es zum Austritt von 3 m³ bis 5 m³ Material sowie zu weiteren Materialaustritten im Verlauf der Störfallbehebung, die jedoch in den vorliegenden Berichten nicht weiter quantifiziert werden. Die Materialaustritte wurden, sofern dies möglich war, aufgefangen und dem Verarbeitungsprozess erneut zugeführt. Vier Stellen, an denen die Materialaustritte nicht restlos entfernt werden konnten, wurden durch Torkretieren versiegelt, so dass es hier zu geringen Verlusten an Material im Hinblick auf die Gesamtbilanz gekommen ist (Tab. 21).

Tab. 21: Zusammenfassung der Daten zu den Störfallberichten

Sachstandsberichte		Abschlussberichte	
01.07.1993	Gb 2	01.07.1993	Gb 2
09.08.1993	Gb 2	09.08.1993	Gb 2
04.11.1993	Gb 2	04.11.1993	Gb 2
10.11.1994	Gb 16 („Zerkleinerungsmesser“)	10.11.1994	Gb 16 („Zerkleinerungsmesser“)
01/95 - 08/95	3 Betriebsstörungen (1x „Zerkleinerungsmesser“)	19.05.1995*	Gb 17
		19.06.1995*	Gb 17

Bei der Betriebsstörung am 04.11.1993, ebenfalls im Abbaubetrieb Gb 2, traten insgesamt 2 m³ Material aus. In diesem Fall wird in den Berichten beschrieben, dass die Materialaustritte „ordnungsgemäß entsorgt“ wurden. Ob das Material dem Verarbeitungsprozess wieder zugeführt wurde geht aus den Berichten nicht hervor, so dass es in diesem Fall möglich ist, dass das Material aus dem Verbringungsprozess und somit aus der Gesamtbilanz herausfällt.

Das Austrittsvolumen der beiden Fälle beläuft sich folglich, soweit dies aus den Akten hervorgeht, auf ein Gesamtvolumen von insgesamt etwas mehr als 7 m³. Um nun die Relevanz dieses Volumens im Vergleich mit der verbrachten Gesamtmasse an Filterstaub und RAA-Schlamm zu überprüfen, wurde das Verhältnis zwischen diesen beiden Werten gebildet.

Hierzu wurde als ausgetretenes Volumen ein Wert von 7 m³ angenommen, d.h. die Relevanz-Überprüfung erfolgt unabhängig davon, ob das ausgetretene Material dem Verbringungsprozess wieder zugeführt wurde oder nicht. Zusätzlich wurde sowohl für den Filterstaub als auch für den RAA-Schlamm eine Feststoffdichte von 2500 kg/m³ angenommen, um die verbrachten Massen in ein Volumen überführen zu können. Der Wert für die Feststoffdichte wurde in Anlehnung an Messwerte aus den Abschlussberichten der RAG abgeschätzt. Eine Verhältnisbildung aus diesen Werten ergibt, dass circa 0,01 % des verbrachten Materialgesamtvolumens im Rahmen von Betriebsstörungen ausgetreten ist. Dieser Anteil kann daher als nicht relevant angesehen werden.

5.7 Auswertung nationaler und internationaler Literatur zum Thema BHV, insbesondere dem Aggregatzustand

Über die Machbarkeitsstudie von 1990 und damit verbundene Literatur hinaus, gibt es eine Reihe von Veröffentlichungen zur Nutzung von Bergwerken zur Verbringung von Reststoffen. Es werden verschiedene Reststoffarten, Bergwerkstypen sowie Verbringungsarten und –zielsetzungen geprüft und bewertet. So gibt es aus der Zeit der BHV Veröffentlichungen des Sachverständigenrates für Umweltfragen zur generellen Möglichkeit einer Verbringung von Reststoffen nach unter Tage, der dieses für einen guten Ansatz zur Lösung des Abfallproblems hält und ähnliche Auflagen wie der Betriebsplan

der BHV vorsieht (Wilke 1991). Im gleichen Jahr wurde auch eine Einschätzung zur Verbringung in Salzbergwerken vom Sachverständigenrat veröffentlicht, der vergleichbar einen Versatz oder eine Ablagerung dort für durchführbar hält sowie Sicherheitsauflagen definiert (Herrmann 1991). Des Weiteren wird 1998 noch die generelle Untertageverbringung von Reststoffen in verschiedenen Gesteinsformationen wissenschaftlich betrachtet (Herrmann & Röthemeyer 1998). In einer weiteren Veröffentlichung aus dem Jahr 2007 wird eine Verbringung nach unter Tage als einzige Möglichkeit langfristig sicher Gefahrstoffe zu verbringen, angesehen. Betrachtet werden dort insbesondere die Steinkohlebergwerke und Salzbergwerke im Vergleich, wobei über Tage Deponien grundsätzlich als nicht langzeitsicher eingestuft werden (tausende Jahre) (Öko-Institut e. V. 2007).

Die Steinkohlenbergwerke in Nordrhein-Westfalen sind nicht die einzigen Orte, an denen Reststoffe untertage verbracht wurden. In England wurde seit 1965 in der Walsall Wood Colliery chemischer Abfall verbracht (Franklin & Dusseault 1991), in Südafrika wurde ein Verfahren zur Abschätzung des Gefährdungspotential von Reststoffen zur Verbringung eingeführt, um dort Reststoffe sicher unter Tage verbringen zu können (Kortnik 2003). In Slowenien wurden in einem ehemaligen Blei-Zink Bergwerk Reststoff zum Versatz nach dem im Ruhrgebiet angewendeten Verfahren verbracht. Auch dort wurde ein Multibarrieren-System als Sicherung des eingelagerten Materials diskutiert. Aktuelle Daten zu diesem Projekt liegen allerdings nicht vor. Die Annahmen, das Vorgehen, die Erwartungen und ersten Ergebnisse passen jedoch zu den Erfahrungen aus dem Ruhrgebiet (Bajzelj & Kortnik 1997).

Hier soll als Beispiel die Verbringung von Reststoffen in einem Steinkohlebergwerk in Ohio (USA) besonders erwähnt werden, da nach der Verbringung die BHV wiederholt untersucht wurde. Zunächst wurden nach 1-2 Jahren Kerne gewonnen. Zu dieser Zeit war das Material noch nicht erstarrt, es gab lediglich Indizien für eine Erhärtung. Nach 2-3 Jahren war das Material erhärtet (Taerakul et al. 2004, Lamminen et al. 2001). Dieses Beispiel zeigt, dass die Prozesse des Erstarren und Erhärtens je nach Eigenschaften der Materialien auch einen längeren Zeitraum benötigen können. Die wenigen Untersuchungen in den NRW-Bergwerken weisen deutlich kürzere Zeiten auf. Im Ergebnis findet aber auch in dem in USA untersuchten Bergwerk auf der Skala der BHV eine Erhärtung statt.

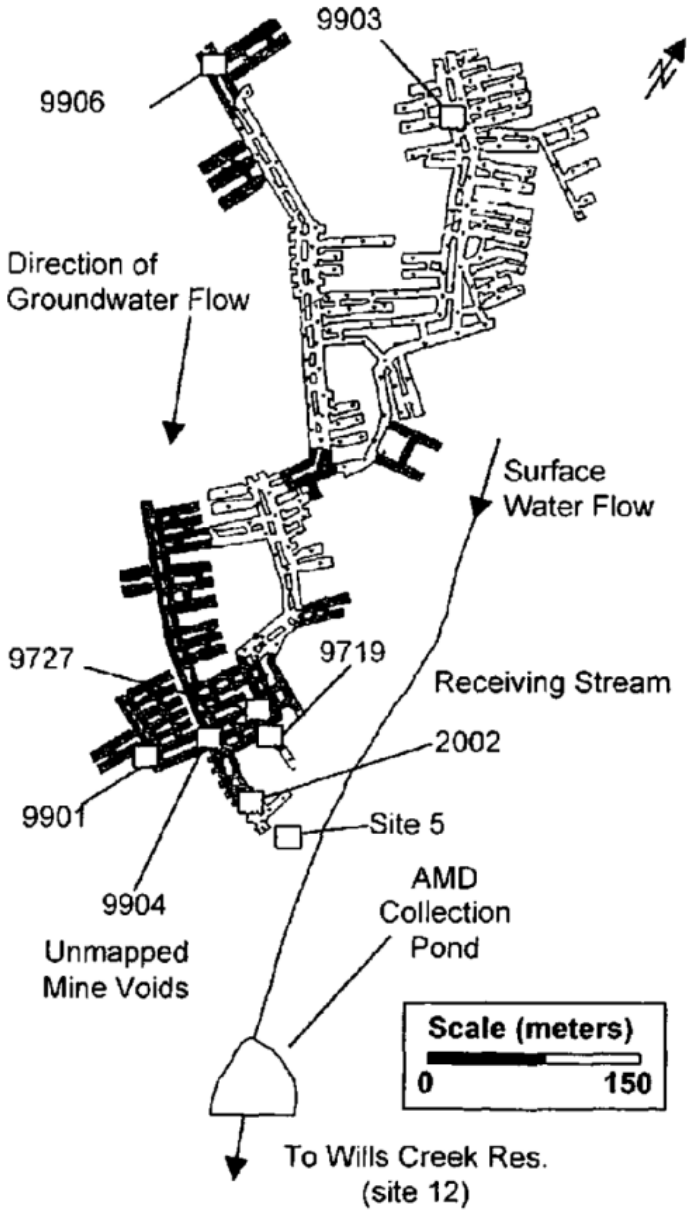


Abb. 25: Lage der Reststoffe in einem Steinkohlenbergwerk in Ohio, USA (Lamminen et al. 2001)

Neben den Praxisbeispielen und Erfahrungen anderer Reststoffverbringungen nach unter Tage gibt es grundlegende Literatur zum Verhalten von Zement und zementähnlichen Stoffen beim Aushärten. So gibt es Studien, die zeigen, dass sich die Aushärtung von Zement durch die Zugabe von HMVA verzögern kann, das Gemisch aber durch die sich bildenden Gipsphasen eine hohe Festigkeit erreicht (Ubbríaco und Calabrese 1998). Eine Steuerung des Erstarrungsprozesses durch Zugabe von Verbrennungsaschen ist möglich. Generell hängen die Dauer des Aushärtens und die Festigkeit des entstehenden Betonsteins von den sich bildenden Mineralphasen ab (Abb. 26 und 27).

Die Abbildungen 26 und 27 zeigen diese Entwicklung beispielhaft von der ersten Bildung von CSH-Phasen nach drei Stunden bis hin zum festen Mineralgefüge nach 28 Tagen mit modernen Untersuchungsmehtoden, wie dem Environmental Scanning Electron Microscope. Mit zunehmendem Kristallwachstum schließen sich Poren und die Permeabilität sinkt. Gleichzeitig steigt die Festigkeit des entstehenden festen Erstarrungskörpers. Das passiert bei der BHV vergleichbar in den entstandenen Bruchhohlräumen im Verbruchbereich und damit stabilisiert die „anthropogene Kluftfüllung“ das Gefüge ähnlich einer natürlichen Quarzader im „natürlichen“ Gestein.

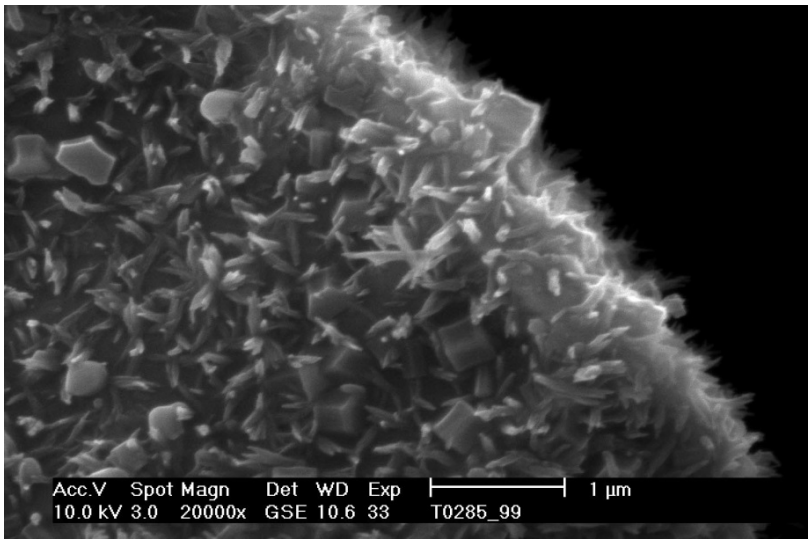


Abb. 26: ESEM-Aufnahme (Environmental Scanning Electron Microscope) von Zementstein nach 3 Stunden Hydratation (Erstarren)
Sichtbar sind erste nadelige CSH-Primärkristallite und noch kurzstengelige prismatische Ettringitkristalle (VDZ 2002).

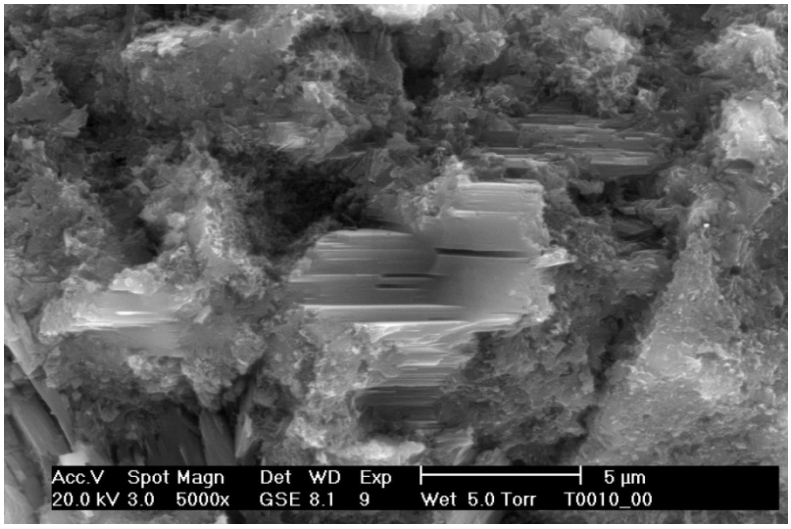


Abb. 27: ESEM-Aufnahme (Environmental Scanning Electron Microscope) von Zementstein nach 28 Tagen Hydratation (Erhärten)
Sichtbar sind jetzt das dichte CSH-Gefüge und bankige Calciumhydroxidkristalle (VDZ 2002).

In der Zementindustrie wird aufgrund der positiven Eigenschaften von Verbrennungsaschen auf den Abbindungsprozess gezielt mit Aschenzugabe gearbeitet. So zeigt sich in Abbildung 28, dass sich Poren ohne Verbindung zu anderen Poren bilden (dead end poren), wodurch eine Durchströmung des Materials nicht mehr möglich ist. Zudem können Kristalle der neu gebildeten CSH-Phasen in diese Hohlräume hineinwachsen und so zur Verfestigung des Materials beitragen. (Yu 2015; Fu et al. 2002).

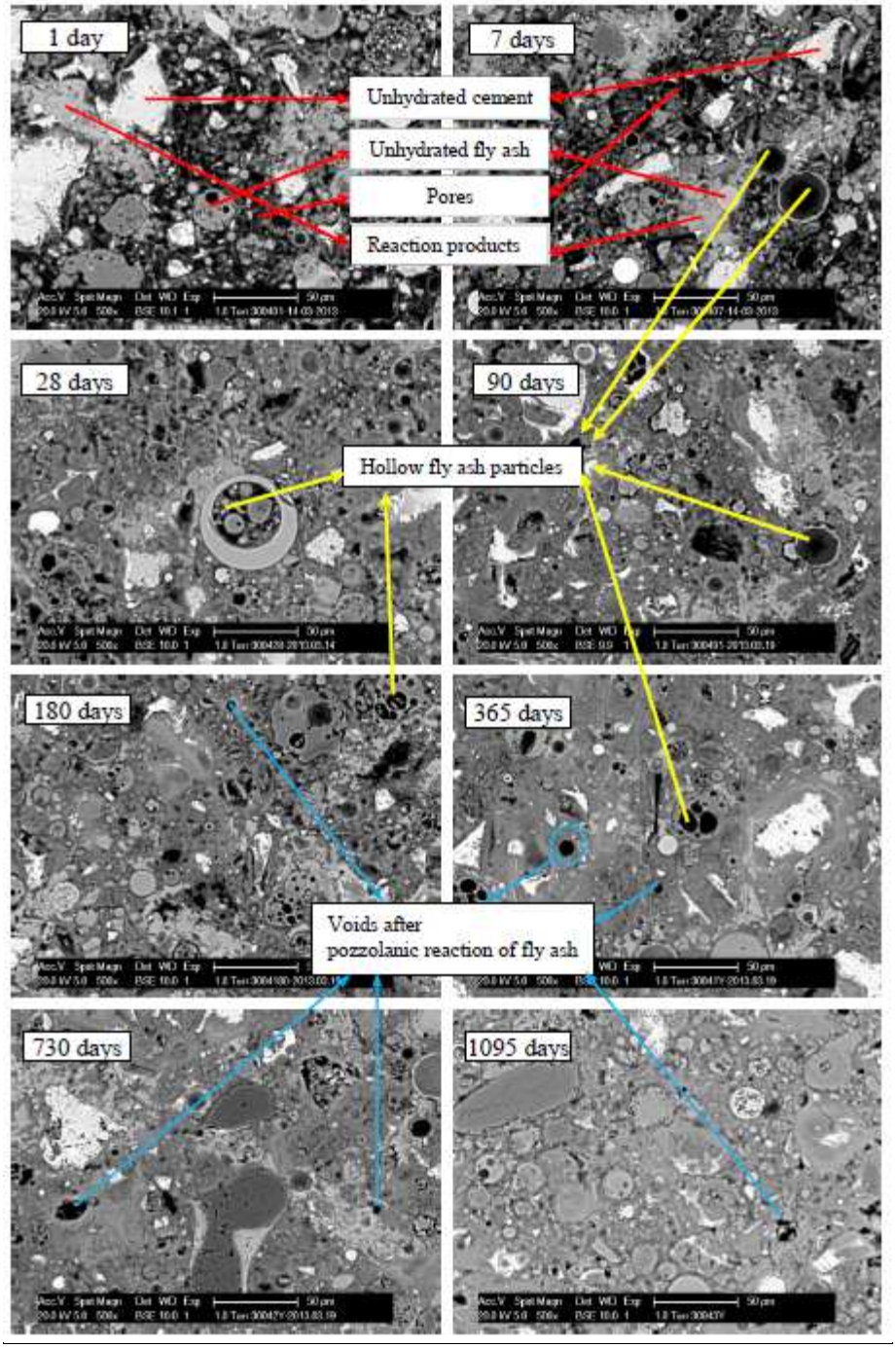


Abb. 28: Mikroskopische Aufnahmen des Porenraumes mit CSH-Phasen, die den Porenraum verschließen (Yu 2015)

Dieser zusätzliche Platz für Kristallwachstum von Ettringit und Calciumhydroxid erhöht die Festigkeit und die geringere Permeabilität sorgt dafür, dass keine Fluidströmung im Porenraum diesen Prozess stört (Fu et al. 2002).

5.8 Zusammenfassende Bewertung und Diskussion der Ergebnisse

Im Bergwerk Hausw Aden / Monopol wurden ca. 170.000 t bergbaufremdes Versatzmaterial verbracht. Dies sind HMVA und Schlämme aus der Abwasseraufbereitung bei der Rauchgasentschwefelung (RAA-Schlämme). Es handelt sich also nicht um REA-Gips, auch wenn das Hauptmineral auch der RAA-Schlämme Gips ist. Andere Versatzstoffe, wie Kraftwerksfilterstäube und Flotationsberge sind in diesem Bergwerk von sehr geringer Bedeutung.

Das Schwermetallinventar für die erste Bauhöhe Gb2 ist für den Zeitraum 07/93 − 01/94 vollständig dokumentiert. Ab April 1994 wurden an den zu verbringenden Versatzmaterialien für die Bauhöhe Gb2 ebenso wie für die weiteren vier Bauhöhen (Gb1, Gb16, Gb17 und Gb31) Feststoffanalysen nur noch auf Blei, Cadmium und Zink durchgeführt, die bei der Bauhöhe Gb2 fast 80 % der untersuchten Stoffe ausgemacht haben. Die Eluate der zu verbringenden Versatzstoffe wurden durchgehend auf alle Schwermetalle untersucht (S4-Schüttelversuche). Mit den HMVA wurden rund 1.700 t der genanten drei Schwermetalle in Haus Aden / Monopol verbracht.

In Bezug auf die chemische Zusammensetzung der RAA-Schlämme gibt es ein Defizit an Analysenergebnissen. Bei den RAA-Schlämmen handelt es sich um Gipsschlämme und verunreinigte Gipsschlämme. Die Recherche nach dem Schwermetallinventar ist noch nicht abgeschlossen.

Zur damaligen Zeit wurden nach Angabe der Abschlussberichte Rückstellproben genommen, die heute nicht mehr vorhanden sind. Die eingestellten Rezepturen für die Verbringung in die Bauhöhren wurden durch Prüfkörper auf ihre Viskosität überprüft.

Zum Zustand der Versatzstoffe, inbesondere ihre Verteilung im Bruchhaufwerk und ihr Aggregatzustand, sind im BW Haus Aden / Monopol keine direkten Untersuchungen durchgeführt worden. Daher wurden Ergebnisse aus aufgetretenen Störfällen, Laborversuchen, aus der materialwissenschaftlichen Literatur und Untersuchungen zum Aggregatzustand in anderen Bergwerken ausgewertet.

- Die ausgewerteten Störfälle zeigen, dass die verbrachten Reststoffe sich nicht entmischt haben und die Störfälle eingetreten sind, weil die Reststoffe bereits „zu steif“ waren.

- Alle den Gutachtern bekannten internationalen Untersuchungen zu dem Thema zeigen eine Erhärtung.

- Beim Erhärten erfolgt ein Kristallwachstum, das die Durchlässigkeit erheblich verringert (dead end Poren).

- Die Überprüfung von Thiehofe (1991) im BW Walsum (Auffahren einer Erkundungsstrecke in die BHV im Sprengvortrieb) zeigt eindeutig eine Erhärtung. Bei einer in Wilke & Dartsch (1995) beschriebenen Bohrung in den nachversetzten Bruchhohlraum in Walsum wurde vermutlich kein Reststoff angetroffen.

- Es gibt keine Indizien, die ein „Nicht-Erhärten“ nahelegen würden.

- Die thermodynamischen Modellierungen und die damaligen hydrochemischen Untersuchungen zeigen die Bildung von „Zementmineralien“ und einen hohen pH-Wert.

Ein Auftreten von Überschusswasser ist unwahrscheinlich und wurde bei der Verbringung auch nie beschrieben. Die verschiedenen, verbrachten HMVA-RAA-Mischungen haben entsprechend unterschiedliche Wasseransprüche. Viskosität und Abbindeverhalten wurden vor Verbringung in Standardversuchen (Rohrviskosimeter und Ausbreitmaß) überprüft, da Überschusswasser die Transporteigenschaften der Suspensionen ungünstig verändert (Sedimentation) und das Risiko von Betriebsstörungen steigert.

Moderne Untesuchungsverfahren belegen das Wachstum neugebildeter Minerale beim Abbindevorgang und das Verschließen des Porenraumes, die mit der Bildung von „dead end“ Poren einhergeht. Dadurch wird auch die Auflösung der gut wasserlöslichen Salze, die im Versatzmaterial enthalten sind, behindert, wenn die BHV mit Tiefengrundwasser oder einem ansteigenden Grubenwasser in Kontakt kommt. Erst mit einer längerfristigen Umkristallisation (siehe Detailbericht 4) werden auch diese Salze an- und aufgelöst.

In der hydrochemischen Modellierung (s. Detailbericht 4) erfolgte eine sehr schnelle Lösung der Salze im Kontakt mit einem Tiefen- oder Grubenwasser, da diese mikroskaligen Strukturen nicht berücksichtigt werden. Dies bedeutet die Betrachtung der BHV unter ungünstigen Bedingungen als - bezogen auf diesen Aspekt – „worst case“ Untersuchung.

6 Nebengesteine

Die Nebengesteine der mit Reststoffen verfüllten Bruchhohlräume spielen eine essentielle Rolle, wenn es um den Verbleib der Schadstoffe in diesem Bereich geht. Eine mögliche Freisetzung wird zum Beispiel durch eine hohe Plastizität, ein hohes Sorptionsvermögen und eine geringe Durchlässigkeit der umgebenden Gesteine deutlich verzögert.

6.1 Datenerfassung und Literaturrecherche

Es wurden die folgenden Gutachten hinsichtlich Zusammensetzung der Nebengesteine ausgewertet:

- Machbarkeitsstudie von Jäger et al. (1990),
- Dissertation von Klinger (1994),
- Dissertation von Paas (1997),
- GRS-Bericht (Baltes, 1998).

6.2 Art der Nebengesteine

Charakteristisch für die zyklische Gliederung (Zyklotheme) der flözführenden Schichten des Oberkarbons sind **Wurzelböden**, die aus mehr oder weniger durchwurzelten Ton- bis Siltsteinen aufgebaut sind und eine Mächtigkeit von bis zu 1,5 m erreichen. Sie bilden meist das Liegende der Kohlenflöze, die inkohlte, durch Anstieg des Grundwasserspiegels gebildete Torfablagerungen darstellen (Roeschmann, 1962). Wurzelböden stellen lediglich einen geringen Anteil an der Gesamtmächtigkeit dar.

Die meisten bekannten **Kohlenflöze** besitzen eine Mächtigkeit von weniger als 50 cm. Wenige werden über 2 m mächtig und erreichen in Einzelfällen Mächtigkeiten von bis zu 4 m. Etwa 75 Flöze gelten als abbauwürdig. Die Flöze sind nicht homogen aufgebaut, sondern bestehen entsprechend ihres Inkohlungsgrades aus Abschnitten unterschiedlicher Mineral-Zusammensetzung. Die höchsten Flözdichten bei gleichzeitig dominierender feinklastischer Sedimentation treten in den Bochumer und Essener Schichten auf.

Die Flöze werden von überwiegend feinkörnigen Sedimenten überlagert, die unter lagunären Sedimentationsbedingungen zur Ablagerung gelangten (Holl & Schaefer, 1992). Im Steinkohlenbergbau werden diese in wechselnden Anteilen tonig-siltigen bis feinsandigen Ablagerungen unter dem Begriff **Schieferton** zusammengefasst, wobei reine Tonsteine selten sind. In dieser dominierenden Lithofazies der kohleführenden Schichten des Oberkarbons dominieren Mineralkörner der Siltfraktion. Eine tektonische Schieferung tritt nicht auf. Der Ausdruck beschreibt den Zerfall der Gesteine entlang von Schichtflächen. Der Anteil an der Schichtmächtigkeit beträgt von den Sprockhöveler bis zu den Essener Schichten über 60% und von den Horster bis zu den Dorstener Schichten etwa 50%.

Die Schiefertone werden in "coarsening upward"-Sequenzen von **Sandsteinen** überlagert. Diese werden von Holl & Schaefer (1992) als Deltafrontsandsteine interpretiert, die in ein limnisch-fluviatiles Milieu überleiten. Häufig treten auch konglomeratische Bereiche auf. In den Sandsteinen sind als Aufarbeitungshorizonte vielfach Pflanzenhäcksel und kohlige Horizonte eingelagert. Die Gesteine kommen in lateraler Ausdehnung und mit stark wechselnden Mächtigkeiten im gesamten Ruhrkarbon vor. Sandsteinpakete mit Mächtigkeiten von über 20 m finden sich überwiegend in den Sprockhöveler, Wittener, Horster und höheren Dorstener Schichten (Hahne & Schmidt, 1982). Der Anteil der Sandsteine an der Gesamtmächtigkeit wechselt in den verschiedenen Schichtstufen. Die sogenannten Bochumer und Essener Schichten sind überwiegend schiefrig (Sandsteinanteil ca. 25% (Jäger et al. 1990)), während in den älteren Sprockhöveler und Wittener Schichten sowie in jüngeren Abfolgen (Horster und Dorstener Schichten) Sandsteine etwas häufiger eingelagert sind (Sandsteinanteil ca. 50% (Jäger et al. 1990)).

Karbonatische Tone (**Toneisensteine**) stellen bankweise oder in Form von Konkretionen schichtweise auftretende diagenetische Neubildungen von mehr oder weniger durch Ton verunreinigten Karbonaten dar, welche in untergeordneter Verbreitung auftreten (Jäger et al., 1990).

Die Nebengesteine der Kohle im Ruhrkarbon setzen sich nach Jäger et. al (1990) entsprechend mit abnehmender Häufigkeit wie folgt zusammen:

- Tonsteine (± siltig-feinsandige Tonsteine (Schieferton-Sandschieferton)
- Silt-Sandsteine
- Sandsteine und Konglomerate
- ± kohlige Ton-Siltsteine (Wurzelböden)
- ± karbonatische Tone (Toneisensteine)

Die stark schwankenden vertikalen und horizontalen Verteilungen der einzelnen Gesteinsfazies machen eine Angabe des quantitativen Mineralbestandes für die einzelnen Typen schwierig. Einen repräsentativen Querschnitt durch das Liegend- und Hangendmaterial liefert das anfallende Bergematerial. So ergibt sich nach Schmidt u. Schöpel (1984) aus der Untersuchung von Waschbergen des westdeutschen Steinkohlebergbaus auch, dass Gesteine mit hohem Tonmineralanteil überwiegen, während Sandsteine mit hohem Quarz/Feldspat-Gehalt im Vergleich mengenmäßig in den Hintergrund treten.

6.3 Zusammensetzung der Nebengesteine

Nach Klinger (1994) wurde eine Abschätzung der Mineralanteile in Gew.-% in den Gesteinen des flözführenden Ruhrkarbons auf der Basis der chemischen Zusammensetzung und röntgenographischen Untersuchungen vorgenommen (Tab.22):

Tab. 22: Abschätzung der Mineralzusammensetzung nach Klinger (1994) auf Basis der chemischen Zusammensetzung und der röntgenographischen Untersuchung

Mineral	Tonstein	Flotations-berge	Siltsteine	Sandsteine	Wurzelboden	Kohle
Illit	38	37	33	13	51	0
Clorit	4	3	3	3	2	0
Kaolinit	4	5	4	7	5	6
Summe Tonminerale	**46**	**45**	**40**	**23**	**58**	**6**
Feldspat	5	3	4	10	2	0
Quarz	26	19	40	58	18	0
Pyrit	0,3	2,6	0,1	0,1	1	3
Siderit	8,3	0	5,1	5,4	0,7	0
Ankerit/ Dolomit	0	6,7	0	0	0	3
C org.	3,2	13,2	0,8	0,2	8,1	59
Summe	**89**	**90**	**90**	**97**	**88**	**71**

Tonminerale und Quarz bilden in wechselnden Anteilen die Hauptbestandteile der Gesteine. Wurzelböden weisen den höchsten und Sandsteine nach der Kohle den geringsten Tonmineralgehalt auf. Die Tonmineralgehalte sind, überwiegend in Abhängigkeit von der Illitführung, in der Reihenfolge Wurzelböden >Tonstein >Siltstein >Sandstein >Kohle verteilt. Die Karbonatgehalte der Gesteine liegen nur mit wenigen Prozentanteilen (0 - 8,3%) der Gesteinsbestandteile fast ausschließlich als Siderit vor. Der Pyrit macht meist weniger als ein Prozent aus, jedoch sind im Mittel 80% des Gesamtschwefels an Pyrit gebunden (Klinger 1994).

Wedewardt (1995) analysierte die Nebengesteine auf ihre elementaren Bestandteile (Tab. 2). Die elementare chemische Zusammensetzung spielt eine Rolle bei der Differenzierung von geogenen Schwermetallen und Schwermetallen aus den untertage verbrachten Reststoffen (Anhang 8).

7 Literatur

AbfG (1986): Gesetz über die Vermeidung und Entsorgung von Abfällen (Abfallgesetz – AbfG). – Bundesgesetzblatt, Jahrgang 1986, Teil I, Nr. 44: 1410-1420; Bonn.

Andac, M. & Glasser, F. P. (1999): Long-term leaching mechanisms of Portland cement-stabilized municipal solid waste fly ash in carbonated water. – Cement and Concrete Research, 29, 2, 2: 179–186; Amsterdam (Elsevier).

Artelt, H. M., Greinacher, E. & Meyer, G. (1993): Schwermetall- und chloridhaltige Filterstäube. I. – Phasenanalysen und Modellversuche zum Recycling. – Journal für praktische Chemie, 335: 255-261; Leipzig (Johann Ambrosius Barth).

Aubert, J. E., Husson, B. & Vaquier, A. (2004): Use of municipal solid waste incineration fly ash in concrete. – Cement and Concrete Research, 34: 957-963; Amsterdam (Elsevier).

Bajželj, U.; Kortnik, J. (1997): Use of Multi-Barrier Water-Proofing System for the Construction of Underground Waste Deposits. In: *IMWA Proceedings*, S. 451-462.

Baltes, B. (Hrsg.) (1998): Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein. – Abschlußbericht (Hauptband) GRS-140: 150 S.; Köln (Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH).

Baulexikon Beuth: http://baulexikon.beuth.de/UEBERSCHUSSWASSER.HTM=

BBergG (1980): Bundesberggesetz (BBergG). – Stand vom 31.08.2015: 79 S.

Birkel, B. (1997): Chemisch-mineralogische Untersuchungen an einer Müllverbrennungsflugasche. – Studienarbeit: 54 S. + Anhang; Aachen (Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen).

Dillmann; O. O. (1998): Der Ruhrsandstein. – Naturstein, 53, 12: 62-67, 11 Abb.; Ulm.

DMT (1992): Ergänzendes Bildmaterial zu Thiehofe, B. (1991): Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume – Teilvorhaben I: Ruhrkohle Niederrhein AG, Bergwerk Walsum.

DMT (1994): – Verfüllung des Bruchhohlraumes und anderer abgeworfener Grubenbaue mit Flugasche und anderen feinkörnigen Abfallprodukten durch hydraulische Förderung vom Tage aus. – technische forschung kohle, Bericht EUR 14907 DE: 182 S.; Luxemburg (Europäische Kommission).

Europäische Kommission (Hg.) (1999): Optimierung des pneumatischen Transports unter besonderer Berücksichtigung der veränderten Fördereigenschaften durch den Einsatz von Reststoffen : Infrastruktur und Verwaltung des Grubenbetriebs Bericht. Infrastruktur und Verwaltung des Grubenbetriebs. Luxemburg (Technische Forschung Kohle, EUR 17961 DE), zuletzt geprüft am 04.02.2016.

Franklin, J. A. & Dusseault, M. B. (1991): Rock Engineering Applications. – 251 S.; New York, NY (McGraw-Hill, Inc.) – ISBN 0-07-021889-7.

Friedrich, H. (2013): Die Risiken und langfristigen Umweltauswirkungen des untertägigen Versatzes von gefährlichen hochtoxischen Sonderabfällen in den Bergwerken der Steinkohle von NRW. – Gutachterliche Stellungnahme: 346 S., 25 Anl..

Fu, X., Wang, Z., Tao, W., Yang, C., Hou, W., Dong, Y. & Wu, X. (2002): Studies on blended cement with a large amount of fly ash. – Cement and Concrete Research, 32, 7: 1153-1159; Amsterdam (Elsevier).

Gurba, L. W. & Ward, C. R. (2000): Elemental composition of coal macerals in relation to vitrinite reflectance, Gunnedah Basin, Australia, as determined by electron microprobe analysis.- Int. J. Coal Geology, 44: 127-147.

Gutmann, R., Wieckert, C. & Vonmont, H. (1996): Verglaste Filterstäube aus Müllverbrennungsanlagen – Schmelzverfahren, Prozeßführung und chemische Analyse. – UWSF – Z. Umweltchem. Ökotox., 8, 4: 187-196; Landsberg (ecomed verlagsgesellschaft AG & Co. KG).

Hahne, C., Schmidt, R. & Müller, W. (1982): Die Geologie des Niederrheinisch-Westfälischen Steinkohlengebirges. – 106 S.; Essen (Glückauf).

Haus der Technik e. V. (1987): Stand der Rauchgasreinigungstechnik. – Haus der technik-Vortragsveröffentlichungen, 538: 114 S.; Essen (Vulkan Verlag).

Herrmann, A. G. (1991): Die Untergrund-Deponie anthropogener Abfälle in marinen Evaporiten. – Materialien zur Umweltforschung, 18: 121 S., Metzler-Poeschel, Stuttgart.

Herrmann, A. G. & Röthemeyer, H. (1998): Langfristig sichere Deponien – Situation, Grundlagen, Realisierung. – 464 S., Springer, Berlin.

Huang, S.-J., Chang, C.-Y., Mui, D. T., Chang, F.-C., Lee, M.-Y. & Wang, C.-F. (2007): Sequential extraction for evaluating the leaching behavior of selected elements in municipal solid waste incineration fly ash. – Journal of Hazardous Materials, 149, 1: 180-188; Amsterdam (Elsevier).

Hußmann, J. & Klee, H. (2001): Versatz im Steinkohlenbergbau. – Abfallentsorgung im Bergbau unter Tage (1. Kolloquium zum Bergbau und Umweltschutz in Aachen), Heft 88 der Schriftenreihe der GDMB: 31-38; Clausthal-Zellerfeld (GDMB – Gesellschaft für Bergbau, Metallurgie, Rohstoff- und Umwelttechnik).

Jäger, B., Obermann, P. & Wilke, F. L. (1990): Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen. – „Machbarkeitsstudie“, Bd. 1-4: 795 S., 55 Zeichnungen als Anlage; Düsseldorf (im Auftrag des Landesamtes für Wasser und Abfall NRW).

Klinger, C. & Eckart, M. (2015): Boxmodell-gestützte Prognose zu Einleitwerten am Standort Haus Aden bei Flutung der Wasserprovinz Ost. – 7 S.; Essen (DMT).

Klinger, C. (1993): Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons. – Dissertation: 170 S., 78 Abb., 40 Tab.; Bonn (Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn).

zeitgleich erschienen in:

Klinger, C. (1994): Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons. – DMT-Berichte aus Forschung und Entwicklung, 23: 170 S., 78 Abb., 40 Tab.; Bochum (DMT).

Knissel; W. (1991): Die Nutzung von Grubenräumen für den Umweltschutz. – Glückauf, 127, 15/16: 692-698; Essen (VGE Verlag).

Kortnik, J. (2003): Backfilling waste material composites environmental impact assessment. – The Journal of the South African Institute of Mining and Metallurgy, July/August 2003: 391-396; Johannesburg (SAIMM – South African Institute of Mining and Metallurgy).

Lamminen, M., Wood, J., Walker, H., Chin, Y.-P., He, Y. & Traina, S. J. (2001): Effect of Flue Gas Desulfurization (FGD) By-Product on Water Quality at an Underground Coal Mine. – Journal of Environmental Quality, 30, 4: 1371-1381; Madison (ACSESS – Alliance of Crop, Soil, and Environmental Science Societies).

Landesamt für Wasser und Abfall (1991): Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen – Kurzfassung. – LWA Materialien Nr. 2/91: 73 S.; Düsseldorf (Landesamt für Wasser und Abfall NRW).

Lima, A. T., Ottosen, L. M., Pedersen, A. J. & Ribeiro, A. B. (2008): Characterization of fly ash from bio and municipal waste. – Biomass and Bioenergy, 32: 277-282; Amsterdam (Elsevier).

Lin, K.-L. (2005): The influence of municipal solid waste incinerator fly ash slag blended in cement pastes. – Cement and Concrete Research, 35(5): 979-986.

Manning, D. A. C. & Hutcheon, I. E. (2004): Distribution and mineralogical controls on ammonium in deep groundwaters.- Appl. Geochemistry, 19(9): 1495-1503.

Mez, W., Krämer, U., Hollinderbäumer, E., Rinnerberger, B. & Schauenburg, W. (1999): Verfüllung des Bruchhohlraumes und anderer abgeworfener Grubenbaue mit Flugasche und anderen feinkörnigen Abfallprodukten durch hydraulische Förderung vom Tage aus. – technische forschung kohle, Abschlußbericht EUR 17955 DE: 118 S.; Luxemburg (Europäische Kommission).

Michel, G. (1964): Betrachtungen zur Hydrochemie des tiefen Grundwassers im Ruhrgebiet. – Zeitschrift der Deutschen Geologischen Gesellschaft, 116: 161-166; Hannover (Deutsche Geologische Gesellschaft).

Michel, G. (1983): Die Sole des Münsterländer Kreide-Beckens.-N. Jb. Geol. Paläont. Abh., 166: 139-159; Stuttgart.

Michel, G. (1997): Mineralwässer und Thermalwässer, Allgemeine Balneogeologie. Lehrbuch der Hydrogeologie, 7.- XI + 398 S.: Berlin (Borntraeger).

Öko-Institut e.V. (Hrsg.), Dehoust, G., Küppers, P., Neles, J., Schüler, D. & Schmidt, G. (2007): Methodenentwicklung für die ökologische Bewertung der Entsorgung gefährlicher Abfälle unter und über Tage und Anwendung auf ausgewählte Abfälle. – Forschungsvorhaben: 428 S.; Darmstadt (Öko-Institut e.V.).

Paas, N. (1997): Untersuchungen zur Ermittlung der geochemischen Barriere von Gesteinen aus dem Umfeld untertägiger Versatzräume im Steinkohlenbergbau des Ruhrkarbons. – Dissertation: 234 S., 105 Abb., 43 Tab.; Bonn (Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn).

zeitgleich erschienen in:

Paas, N. (1997): Untersuchungen zur Ermittlung der geochemischen Barriere von Gesteinen aus dem Umfeld untertägiger Versatzräume im Steinkohlenbergbau des Ruhrkarbons. – DMT-Berichte aus Forschung und Entwicklung, 54: 234 S., 105 Abb., 43 Tab.; Bochum (DMT).

Patent (1992): Verfahren und Einrichtung zum Versetzen der Hohlräume von Grubenbauen (1992). Angemeldet durch Ruhrkohle Montalith GmbH am 06.03.1992. Anmeldenr: DE19924207182. Veröffentlichungsnr: DE 4207182 A1.

Puchelt, H. (1964): Zur Geochemie des Grubenwassers im Ruhrgebiet. – Zeitschrift der Deutschen Geologischen Gesellschaft, 116: 167-203; Hannover (Deutsche Geologische Gesellschaft).

RAG (1993-1998): Sachstandsberichte zu BW Haus Aden/Monopol - Bruchhohlraumverfüllung. – (unveröffentl.); Herne (Ruhrkohle Bergbau AG).

RAG (1995-1998): Quartals- und Abschlussberichte zu den Abbaubetrieben Grimberg 1, 2, 16, 17 und 31, BW Haus Aden Monopol. – (unveröffentl.); Herne (Ruhrkohle Bergbau AG).

Remond, S., Pimienta, P. & Bentz, D. P. (2002): Effects of the incorporation of Municipal Solid Waste Incineration fly ash in cement pastes and mortars I. Experimental study. – Cement and Concrete Research, 32: 303-311; Amsterdam (Elsevier).

Roeschmann, G. (1992): Die Entstehung der Wurzelböden und kaolinischen Kohlentonsteine des Ruhrkarbons, - Fortschritte in der Geologie von Rheinland und Westfalen, Bd. 3: 497-524, Geologisches Landesamt Nordrhein-Westfalen, Krefeld.

Ruhrkohle Montalith GmbH (1992): Verfahren und Einrichtung zum Versetzen der Hohlräume von Grubenbauen. – Patentanmeldung, Nr: DE19924207182.

Schlumberger, S. & Bühler, J. (2013): Metallrückgewinnung aus Filterstäuben der thermischen Abfallbehandlung nach dem FLUREC-Verfahren. – Abfallverbrennung und Metallurgie: 377-396.

Schmidt, R. & Schöpel, M. (1984): Die Abgänge des Steinkohlenbergbaus. Verwitterungs- und Lösungsvorgänge im Bergematerial, dargestellt an Lysimeteruntersuchungen. – Mitt. Westf. Berggewerkschaftskasse, 54: 338 S.; Bochum.

Shehata, M. H., Thomas, M. D. A. & Bleszynski, R. F. (1999): The effects of fly ash composition on the chemistry of pore solution in hydrated cement pastes. - Cement and Concrete Research, 29: 1915-1920.

Spickernagel (1988) → aus Machbarkeitsstudie (dort kein Literaturverzeichnis hinterlegt)

Steinkohlenbergbauverein Essen (1988): Verfüllung des Bruchhohlraumes und anderer abgeworfener Grubenbaue mit Flugasche und anderen feinkörnigen Abfallprodukten durch hydraulische Förderung vom Tage aus. – technische forschung kohle, Bericht EUR 11721 DE: 108 S.; Luxemburg (Kommission der Europäischen Gemeinschaften).

Taerakul, P., Lamminen, M., He, Y., Walker, H. Y., Traina, S. J. & Whitlatch, E. (2004): Long-Term Behavior of Fixated Flue Gas Desulfurization Material Grout in Mine Drainage Environments. – Journal of Environmental Engineering, Vol. 130, No. 7: 816-823; Reston, VA (ASCE – American Society of Engineers).

Thein, J. (1996): Gutachterliche Stellungnahme zum Gutachten von Dipl. Geol. Zimmer bezüglich der Reststoffverbringung in den Baufeldern E3 und E4 des Bergwerkes Haus Aden/Monopol. - Rheinische Friedrich-Wilhelms Universität Bonn, -S., Bonn.

Thein, J. & Klingel, R. (1994): Gutachtliche Stellungnahme zur Einhaltung der Anforderungsbedingungen f. d. Prinzip des vollst. Einschlusses bei der gepl. Verbring. von Reststoffen in die Abbaue von Flöz Grimberg 2/3 im Baufeld E 1 der Bergwerkes Haus Aden/Monopol, Betriebsbereich Monopol, der Ruhrkohle AG. – Rheinische Friedrich-Wilhelms Universität Bonn, -11S., Bonn.

Thein, J. & Klingel, R. (1993): Gutachtlicher Stellungnahme zur Übertragbarkeit der geologischen und hydrogeologischen Randbedingungen der "Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlebezirk zur Untertageverbringung von Abfall und Reststoffen" (Machbarkeitsstudie) für die grundwasserverträgliche Verbringung von Reststoffen auf den linksrheinischen Teil des Abbaufeldes "Walsumer Horst-Altfeld" des Bergwerkes Walsum der Ruhrkohle AG. – Rheinische Friedrich-Wilhelms Universität Bonn, -11S., Bonn.

Thiehofe, B. (1991): Entwicklung und Erprobung eines Verfahrens für das Einbringen feinkörniger Aufbereitungs- und Kraftwerksabgänge in untertägige Bruchhohlräume – Teilvorhaben I: Ruhrkohle Niederrhein AG, Bergwerk Walsum. – Forschungsbericht 0326416 B, Energieforschung und Energietechnologien: 96 S.; Bonn (Bundesministerium für Forschung und Technologie).

Traber, D., Jacobs, F., Mäder, U. & Eggenberger, U. (2000): Einsatz von Sekundärstoffen im Beton - technische und ökologische Anforderungen. – Betonwerk und Fertigteil-Technik: 1-15.

Turekian, K.K. & Wedepohl, K.H. (1961). Distribution of the elements in some major units of the earth's crust.- Geological Society of America, Bulletin 72: 175-192; Washington.

Ubbrìaco, P. & Calabrese, D. (1998): Solidificationand stabilization of cement paste containing fly ash from municipal solid waste. – Thermochimica Acta, 321: 143-150; Amsterdam (Elsevier).

US EPA (1981): Chemical speciation of flue gas desulfurization sludge constituents. – 334 S.; Cincinnati, OH (US Environmental Protection Agency).

van der Sloot, H. A., Kosson, D. S. & Hjelmar, O. (2001): Characteristics, treatment and utilization of residues from municipal waste incineration. – Waste Management, 21, 8: 753-765; Amsterdam (Elsevier).

van Herck, P., van der Bruggen, B., Vogels, G. & Vandecasteele, C. (2000): Application of computer modelling to predict the leaching behaviour of heavy metals from MSWI fly ash and comparison with a sequential extraction method – Waste Management, 20: 203-210; Amsterdam (Elsevier).

Verein Deutscher Zementwerke e.V (VDZ). (2002): Zement-Taschenbuch. – 792 S., Verlag Bau + Techni GmbH, Düsseldorf.

VGB Technische Vereinigung der Großkraftwerksbetreiber (Hg.) (1997): Bau und Betrieb von Aufbereitungsanlagen für REA-Produkte. – VGB-Richtlinie, 2: 146 S., Verlag technisch-wissenschaftlicher Schriften, Essen.

Wan, X., Wang, W., Ye, T., Guo, Y. & Gao, X. (2006): A study on the chemical and mineralogical characterization of MSWI fly ash using a sequential extraction procedure. – Journal of Hazardous Materials, 134, 1-3: 197-201; Amsterdam (Elsevier).

Wedewardt, M. (1995): Hydrochemie und Genese der Tiefenwässer im Ruhr-Revier. – Dissertation: 250 S., 60 Abb., 10 Tab, 2 Anl.; Bonn (Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn).

zeitgleich erschienen in:

Wedewardt, M. (1995): Hydrochemie und Genese der Tiefengewässer im Ruhr Revier. – DMT-Berichte aus Forschung und Entwicklung, 39: 250 S., 60 Abb., 10 Tab, 2 Anl.; Bochum (DMT).

Wilke, F. L. & Dartsch, B. (1995): Endbericht über die Koordinierung und wissenschaftliche Begleitung des „Qualitätssicherungsprogrammes zur Verifizierung des in der Machbarkeitsstudie formulierten vollständigen Einschlusses der in den Bruchhohlraum eingebrachten Reststoffe“. – Bericht im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH: 87 S.; Berlin (Institut für Bergbauwissenschaften, Technische Universität Berlin).

Wilke, F. L. & Skrzyppek, J. (1993): Wissenschaftliche Begutachtung und labortechnische Untersuchungen zum technischen Großversuch – „Verbringung von MVA-Reststoffen als hydraulischer Nachversatz auf der Schachtanlage Consolidation“. – Bericht im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH: 36 S., 2 Anl.; Berlin (Institut für Bergbauwissenschaften, Technische Universität Berlin).

Wilke, F. L. (1991): Untertageverbringung von Sonderabfällen in Stein- und Braunkohleformationen. – Materialien zur Umweltforschung, 19: 114 S., Metzler-Poeschel, Stuttgart.

Yu, Z. (2015): Microstructure Development and Transport Properties of Portland Cement-fly Ash Binary Systems – in view of service life predictions. – PhD-Thesis: 182 S.; Delft (Technische Universität Delft).

Weiterführende Literatur

Abanades, S., Flamant, G., Gagnepain, B. & Gauthier, D. (2002): Fate of heavy metals during municipal solid waste incineration. – Waste Management & Research, 20, 1: 55-68; Wien (ISWA – International Solid Waste Association).

BBodSchV (1999): Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV). – Stand vom 31.08.2015: 34 S..

Bedbur, E. (1993): Die Grenzen der Anwendungsmöglichkeiten der FREUNDLICH-Adsorptions-Konstanten K_{Fr} und N zur Beschreibung der Chemikaliensorption. – Meyniana, 45: 1-8; Kiel.

Benjamin, M. M. & Leckie, J. O. (1981): Multiple-Site Adsorption of Cd, Cu, Zn and Pb on amorphous iron oxyhydroxide. – Journal of Colloid and Interface Science, 79: 209-221; San Diego, CA.

Browning, E. (1969): Toxicity of industrial metals. – 2nd Ed.: 383 S.; London (Butterworths).

Christensen, T. H. (1987): Cadmium soil sorption at low concentrations: VI. A model for zinc competition. – Water, Air, and Soil Pollution, 34: 305-314.

Crannell, Bradley S.; Eighmy, T.Taylor; Krzanowski, James E.; Eusden, J.Dykstra; Shaw, Elisabeth L.; Francis, Carl A. (2000): Heavy metal stabilization in municipal solid waste combustion bottom ash using soluble phosphate. In: *Waste Management* 20 (2-3), S. 135-148. DOI: 10.1016/S0956-053X(99)00312-8.

Davis, J. A. & Leckie; J. O. (1978): Surface ionization and complexation at the oxide/water interfaces: 3. Adsorption of anions. – J. Coll. Interf. Sci., 74: 32-43; San Diego, CA.

DIN 38414-4 (1984): Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung. Schlamm und Sedimente (Gruppe S): Bestimmung der Eluierbarkeit mit Wasser (S4). – 12 S.; Berlin (Beuth).

Godt, J., Scheidig, F., Grosse-Siestrup, C., Esche, V., Brandenburg, P., Reich, A. & Groneberg, D. A. (2006): The toxicity of cadmium and resulting hazards for human health. – Journal of Occupational Medicine and Toxicology, 1, 22: 6 S.; London (BioMed Central).

Johnson, C. A., Kaeppeli, M., Brandenberger, S., Ulrich, A. & Baumann, W. (1999): Hydrological and geochemical factors affecting leachate composition in municipal solid waste incinerator bottom ash – Part II. The geochemistry of leachate from Landfill Lostorf, Switzerland. – Journal of Contaminant Hydrology, 40: 239-259; Amsterdam (Elsevier).

Kida, A., Noma, Y. & Imada, T. (1996): Chemical speciation and leaching properties of elements in municipal incinerator ashes. – Waste Management, 16, 5/6: 527-536; Amsterdam (Elsevier).

Kirby, C. S.; Rimstidt, J. D. (1994): Interaction of municipal solid waste ash with water. In: *Environmental Science & Technology* 28 (3), S. 443–451. DOI: 10.1021/es00052a016.

Kirby, C. S.; Rimstidt, J. D. (1993): Mineralogy and Surface Properties of Municipal Solid Waste Ash. In: *Environmental Science & Technology* (27), S. 652–660.

Kottke, Bernd (2008): Sickerwasserprognose für den Baustoff Stahlwerksschlacke zur Abschätzung der potentiellen Grundwasserkontamination. – Dissertation: 196 S.; Bochum (Fakultät für Geowissenschaften, Ruhr-Universität Bochum).

Länderausschuss Bergbau (2006): Technische Regeln für den Einsatz von Abfällen als Versatz. – 21 S..

LAWA (Hrsg.) (2004): Ableiten von Geringfügigkeitsschwellen für das Grundwasser. – 33 S.; Düsseldorf (Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA)).

Martin, H. W.; Kaplan, D. I. (1996): Temporal Changes in Cadmium, Thallium, and Vanadium Mobility in Soil and Phytoavailability under Field Conditions.- Water, Air and Soil Pollution, 101: 399-410.

McBride, M. B. (1999): Chemisorption and precipitation reactions. – Handbook of Soil Science (ed. M. E. Summer): B/265-B302; Boca Reton, FL (CRC Press).

Michel, G. (1965): Zur Mineralisation des tiefen Grundwassers in Nordrhein-Westfalen, Deutschland. – Journal of Hydrology, 3: 73-87; Amsterdam (North-Holland Publishing Co.).

Navarro-Pedreno, J.; Almendro-Candel, M. B.; Jordán-Vidal, M. M.; Mataix-Solera, J.; García-Sánchez, E. (2003): Mobility of cadmium, chromium, and nickel through the profile of a calcisol treated with sewage sludge in the southeast of Spain. In: *Environmental Geology* 44 (5), S. 545-553. DOI: 10.1007/s00254-003-0790-5.

Oberverwaltungsbericht NRW (1997): Beschluss vom 18.07.1997 in dem verwaltungsgerichtlichen Verfahren des Bund für Umwelt und Naturschutz Deutschland, Landesverband Nordrhein-Westfalen e.V. gegen das Bergamt Kamen.

Saar, R. A.; Weber, J. H. (1980): Lead(II)-Fulvic Acid Complexes. Conditional Stability Constants, Solubility, and Implications for Lead(II) Mobility. – Environmental Science & Technology, 14, 7: 877-880; Washington, D.C. (American Chemical Society).

Salt, D. E., Prince, R. C., Pickering, I. J. & Raskin, I. (1995): Mechanisms of Cadmium Mobility and Accumulation in Indian Mustard. – Plant Physiol., 109: 1427-1433; Rockville, MD (American Society of Plant Biologists).

Sandifer, Richard D.; Hopkin, Stephen P. (1996): Effects of pH on the toxicity of cadmium, copper, lead and zinc to Folsomia candida Willem, 1902 (Collembola) in a standard laboratory test system. In: *Chemosphere* 33 (12), S. 2475-2486. DOI: 10.1016/S0045-6535(96)00348-7.

Serclérat, I., Moszkowicz, P. & Pollet, B. (2000): Retention mechanisms in mortars of the trace metals contained in Portland cement clinkers. – Waste Management, 20: 259-264; Amsterdam (Elsevier).

Tan, L. C., Choa, V. & Tay, J. H. (1997): The influence of pH on mobility of heavy metals from municipal solid waste incinerator fly ash. – Environmental Monitoring and Assessment, 44: 275-284.

Thein, J., Veerhoff, M. & Klinger, C. (1997): Geochemische Barrieren bei Versatzbergwerken im Fels. – In: Matschullat, J., Tobschall, H. J. & Voigt, H.-J. [Hrsg.]: Geochemie und Umwelt: 227-243; Berlin (Springer).

Thein, J. & Veerhoff, M. (2001): Langzeitsicherer Versatz mit bergbaufremden Abfällen im Festgestein. – Abfallentsorgung im Bergbau unter Tage (1. Kolloquium zum Bergbau und Umweltschutz in Aachen), Heft 88 der Schriftenreihe der GDMB: 171-191; Clausthal-Zellerfeld (GDMB – Gesellschaft für Bergbau, Metallurgie, Rohstoff- und Umwelttechnik).

Umweltbundesamt (UBA) 2013: Wasserwirtschaft in Deutschland – Teil 2: Gewässergüte. – 116 S.; Bonn (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit).

Umweltbundesamt (UBA) 2015: Nationale Trendtabelle für die Berichterstattung atmosphärischer Emissionen (Schwermetalle) 1990-2013. – Excel-Sammelmappe, Entstand vom 03.02.2015; Dessau (Umweltbundesamt). https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/376/dokumente/emissionsentwicklung_1990_-_2013_fuer_schwermetalle.xlsx, Zitationsdatum: 19.07.2016.

VDEW-VGB-Gemeinschaftsausschuß „Reststoffe und Abfälle“ (1990): Verwertungskonzept für Reststoffe aus Kohlekraftwerken (ergänzt durch Öl-, Gas-, Kern- und Wasserkraftwerke) – Teil III: Rückstände aus der Wasser- und Abwasseraufbereitung. – VGB Kraftwerkstechnik 70, Heft 12: 1033-1040; Essen (VGB).

Veerhoff, M. & Kemski, J.(1997): Barrieren im Umfeld von Versatzbereichen im Ruhrkarbon. – Studie unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus dem FuE-Vorhaben „Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein“ im Auftrag der Ruhrkohle Montalith GmbH: 23 S.; Bonn (Kemski, Klingel & Veerhoff – Partnerschaft beratender Geologen).

Verein Deutscher Zementwerke (VDZ) (Hrsg.) (2002): Zement-Taschenbuch 2002. – 844 S.; Düsseldorf (Verlag Bau+Technik GmbH) – ISBN 3-7640-427-4.

Vig, K., Megharaj, M., Sethunathan, N. & Naidu, R. (2003): Bioavailability and toxicity of cadmium to microorganisms and their activities in soil: a review. – Advances in Environmental Research, 8, 1: 121-135; Amsterdam (Elsevier).

Voegelin, A., Vulava, V. M. & Kretzschmar, R. (2001): reaction-based model describing sorption and transport of Cd, Zn, and Ni in an acidic soil. – Environmental Science and Technology, 35: 1651-1657.

Voegelin, A. & Kretzschmar, R. (2003): Modelling sorption and mobility of cadmium and zinc in soils with scaled exchange coefficients. – European Journal of Soil Science, 54: 387-400; Oxford (Blackwell Publishing Ltd.).

Wang, Kuen-Sheng; Chiang, Kung-Yuh; Lin, Kae-Long; Sun, Chang-Jung (2001): Effects of a water-extraction process on heavy metal behavior in municipal solid waste incinerator fly ash. In: *Hydrometallurgy* 62 (2), S. 73-81. DOI: 10.1016/S0304-386X(01)00186-4.

Wilkens, B. J., Brummel, N. & Loch, J. P. G. (1998): Influence of pH and zinc concentration on cadmium sorption in acidic, sandy soils. – Water, Air, and Soil Pollution, 101: 349-362.

Wu, H.-Y. & Ting, Y.-P. (2006): Metal extraction from municipal solid waste (MSW) incinerator fly ash – Chemical leaching and fungal bioleaching. – Enzyme and Microbial Technology, 38, 6: 839-847; Amsterdam (Elsevier).

Zehl, K. (2005): Schwermetalle in Sedimenten und Böden unter besonderer Berücksichtigung der Mobilität und deren Beeinflussung durch Sauerstoff. – Dissertation: 142 S.; Jena (Friedrich-Schiller-Universität Jena).

ANHANG 1 (Jäger et al. 1990)

Tab. A1-1: Maxima der teufenabhängigen Konzentrationswerte ausgewählter Ionen

Bestand-teile	Maximalwert [mg/L]	Bemerkung
Na^+	60.000	stetige Zunahme mit der Teufe; Konzentrationsgradient bis -600 m NHN sehr steil
Ca^{2+}	4.000-5.000	starke Konzentrationsstreuung in tieferen Bereichen
Mg^{2+}	1.000-2.000	steiler Anstieg mit der Teufe; deutliches Maximum zwischen -600 m und -1000 m NHN
K^+	100-1.000	starke teufenunabhänigeg Streuung
Cl^-	60.000-100.000	starker Anstieg mit der Teufe, bis zu maximalen Werten ab -650 m NHN; tiefer keine Zunahme mehr
SO_4^{2-}	Keine Angabe	Konzentrationen streuen stark über die Teufe, Maximum zwischen -500 m NN und -750 m NHN, zu geringeren und größeren Teufen Abnahme der Konzentration
HCO_3^-	Keine Angabe	deutliche Abnahme mit der Teufe

Tab. A1-2: Mediane in den oberen Deckschichten (0-150 m) für Chlorid und Sulfat

Bestandteile	**Medianwert [mg/L]**
Cl^-	40
SO_4^{2-}	60-180

Tab. A1-3: Schwermetallgehalte in gemessenen Tiefenwasserproben

Bestandteil	**Mittelwerte der Schwermetall-konzentrationen aus fünf geo-genen Grundwässern (ca. -920 m NHN) aus dem westlichen rechtsrheinischen Revier [mg/L]**	**Schwermetallkonzentrationen des für Elutio-nen benutzten Tiefengrundwassers [mg/L]**
Pb	0,11	0,13
Zn	0,15	3,75
Cu	0,036	0,08
As	0,001	0,001
Cd	0,03	0,005

Tab. A1-4: Konzentrationsintervalle in Abhängigkeit von der Teufe für Chlorid

Konzentrationsintervalle [mg/L]	Teufenbereiche [m]
< 1.000	
1.000-10.000	-450
10.000-50.000	-600
>50.000	-1.500

Tab. A1-5: Konzentrationsintervalle in Abhängigkeit von der Teufe für Sulfat

Konzentrationsintervalle [mg/L]	Teufenbereiche [m]
50-300	
60-180	
250-800	-500
300-1.500	-750
250-900	-1000
150-600	-1300

Tab. A1-6 Mittlere mineralogische Zusammensetzung des Nebengesteins im Ruhrkarbon

Mineral	**Minimalgehalt [%]**	**Maximalgehalt [%]**	**Mittlerer Gehalt [%]**
Illit	41	66	57
Kaolinit	1	25	10
Chlorit	1	5	< 2
Summe Tonminerale	59	73	69
Quarz	11	27	17
Feldspat	1	4	< 2
Siderit	1	4	< 2
Dolomit	0	5	1
Kalzit	0	1	< 1
Pyrit	Spuren	9	< 3
Schwerminerale	Spuren	9	< 3
Kohle	3	17	7

Tab. A1-7: Elementkonzentrationen bestimmt aus der Waschberge im Vergleich zur allgemeinen Geochemie von Tonsteinen

Element	Minimalgehalt	Maximalgehalt	Mittlerer Gehalt	Tonsteine Turekian und Wedepohl (1961)
Si [%]	19,4	24,7	22	27,3
Al [%]	9,3	11,9	10,7	8
Fe [%]	2,27	3,88	2,94	4,72
Ti [%]	0,66	0,87	0,76	0,46
Mn [%]	0,03	0,1	0,05	0,09
Ca [%]	0,19	0,85	0,47	2,21
Mg [%]	0,79	1,13	0,91	1,5
Na [%]	0,25	1,49	0,88	0,96
Kohle [%]	3,43	3,96	3,7	2,66
S (gesamt) [%]	0,26	1,25	0,74	0,24
S (Sulfid) [%]	0,14	0,79	0,49	
Ba (ppm)	390	570	500	580
Sr (ppm)	83	138	114	300
Zn (ppm)	80	300	135	95
Pb (ppm)	31	61	40	20
Cu (ppm)	37	62	47	45
Cr (ppm)	130	190	145	90
As (ppm)	4,3	48	20,4	13
Cd (ppm)	0	0,13	0,07	0,3

Tab. A1-8: Kationenaustauschkapazitäten von Mineralen, die im Nebengestein häufig zu finden sind

Mineral	KAK [mmol(eq)/100 g]
Quarz	0,6 - 5,3
Feldspat	1,0 - 2,0
Kaolinit	3 - 15
Illit	10 - 40
Chlorit	10 - 40
Montmorillonit	70 - 150

Tab. A1-9: Ergebnisse der Versuche zur Schwermetallmobilität durch Eluation

Betrachtete Elementdesorption an Rea-Salze aus MVA	Destilliertes Wasser	Cl-Grubenwasser
Pb	135 mg/L	212 mg/L
Zn	stärkere Eluation	
Cd	kaum mobilisiert	kaum mobilisiert
Adsorption nach 24 Tagen aus einer Lösung in Kontakt mit Schiefertonen		
Pb	21 mg/L	54 mg/L
Zn	0,4 - 4,7 mg/L	Nachweisgrenze
Cd	gleichbleibend	gleichbleibend

Tab. A1-10: Zusammensetzung des Eluationswassers auf Basis von Messdaten eines Tiefengrundwassers der Zeche Consolidation

Parameter	Einheit	Messwert
Trübung		sehr schwach trübe
Farbe		schwach gelblich
Geruch		dumpfig
Abdampfrückstand	[mg/L]	254.878,00
Glührückstand	[mg/L]	116.708,00
TOC	[mg/L]	7,80
spez.elektr. Leitfähigkeit	[mS/cm]	> 200
pH-Wert		5,57
Säurekapazität $K_{S\,8,2}$	[mmol/L]	0,00
Säurekapazität $K_{s\,4,3}$	[mmol/L]	1,80
Redoxspannung	[mV]	-177,00
O_2-Gehalt	[mg/L]	< 0,2
CSB	[mg/L]	29,00
Cl^-	[mg/L]	150.000,00
SO_4^{2-}	[mg/L]	< 5
NH_4^+	[mg/L]	75,10
F^-	[mg/L]	0,08
B^-	[mg/L]	0,25
Na^+	[mg/L]	75.750,00
K^+	[mg/L]	1.678,00
Ca^{2+}	[mg/L]	10.825,00
Mg^{2+}	[mg/L]	1.335,00

Parameter	Einheit	Messwert
Li^+	[mg/L]	195,00
Sr	[mg/L]	490
Ba	[mg/L]	13,2
Fe	[mg/L]	65,5
Mn	[mg/L]	7,35
Zn	[mg/L]	7,35
Cd	[mg/L]	0,01
Pb	[mg/L]	0,20
As	[mg/L]	< 0,001
Sb	[mg/L]	< 0,001
Th	[mg/L]	n.a.
Sn	[mg/L]	< 0,1

Tab. A1-11: Vor-Ort-Messungen der 6 Chargen des Tiefenwassers (Zeche Consolidation, 1210 m Tiefe), die in den Eluationsversuchen der Machbarkeitsstudie verwendet wurden

Charge	1	2	3	4	5	6
pH-Wert	5,51	5,48	5,49	5,5	5,51	5,52
spez. elektr. Leitfähigkeit	200.500	200.720	200.685	200.410	200.690	200.700
Redoxspannung	-178	-172	-192	-156	-165	-168
O_2-Gehalt	< 0,2	< 0,2	0,2	< 0,2	< 0,2	0,2

ANHANG 2 (Analytik)

Nachweisgrenzen:

Außer diesen groben Angaben zu Maximalwerten und Tiefenverläufen werden auch Nachweisgrenzen der chemischen Analysen für einige Stoffe angegeben (Tab. A1-1).

Tab. A2-1: Nachweisgrenze für ausgewählte Ionen, Verbindungen und Elemente (Jäger et al. 1990, Bd. 2)

Elemente/Ionen	Nachweisgrenze [mg/L]
Al	0,1
Be	0,002
Co	0,01
Cr	0,01
CN^-	0,01
Ni	0,05
Pb	0,05
PO_4^{3-}	0,03
Sb	0,001
Se	0,001
Sn	0,1
SO_3	1
V	0,05
TOC	0,1
EOX	0,02
KW	0,1
PCDM	0,001

Diese Nachweisgrenzen gelten für die chemischen Analysen beim Hygieneinstitut Gelsenkirchen. In Bd. 3 der Machbarkeitsstudie wird allerdings bei der Analyse des für die Eluationen des Versatzmaterials genutzten Lösungswasser genauer auf die Nachweisgrenzen der Laboranalytik eingegangen. Auch das Lösungswasser wurde durch das Hygieneinstitut Gelsenkirchen analysiert (Tab. A2-2).

Tab. A2-2: Nachweisgrenzen des HIG (Jäger et al., 1990, Bd. 3, S. 99 ff) im Vergleich mit den Nachweisgrenzen nach Wedewardt (1995)

Es werden in der Machbarkeitsstudie keine umfangreicheren Aussagen zu den Nachweisgrenzen getroffen, weshalb bei gleich bleibendem Analyselabor die in Tabelle 1.2 aufgeführten Werte als allgemeingültig für die gesamte Studie betrachtet werden.

Parameter	**Jäger et al. (1990)**			**Wedewardt (1995)**	
	Meßmethode	**Meßgerät**	**Nachweisgrenze [mg/L] oder Einheit angegeben**	**Methodenhinweis**	**Nachweisgrenzen [mg/L]**
Farbe	DIN 38 404-C1-1				
Geruch	DEV B 1/2				
Temperaturn (° C)	DIN 38 404-C4			in situ	
Wassergehalt	DIN 38 414-S2				
Gesamttrockenrückstand	DIN 38 409-H1				
Abdampfrückstand	DIN 38 409-H1			gravimetrisch (bei 105°C)	
Glührückstand	DIN 38 409-H1				
spez. elektr. Leitfähigkeit (µS/cm)	DIN 38 404-C8	Potentiometer	10	elektrometrisch im Labor	
pH-Wert	DIN 38 404-C5	Potentiometer		elektrometrisch im Labor	
Säurekapazität (mmol/L)	DIN 38 409-H7-1/2	Titrimeter	0,1		
freies CO2				volumetrische (Säure/Base-Titration)	
kalkaggressives CO_2				Heyer-Versuch (Marmorpulver) mit anschließender Säure/Base-Titration	
Redoxspannung	DIN 38 404-C6	Potentiometer			
O_2	DIN 38 408-G21	Titrimeter	0,1		

Parameter	Jäger et al. (1990)			Wedewardt (1995)	
	Meßmethode	Meßgerät	Nachweisgrenze [mg/L] oder Einheit angegeben	Methodenhinweis	Nachweisgrenzen [mg/L]
Cl^-	DIN 38 405-D1-2	Titrimeter	10	ionenchromatographisch	
SO_4^{2-}	DIN 38 405-D5-2	Gravimetrisch	5	ionenchromatographisch	<5
SO_3^-	DEV D6 1/2	Titrimeter	0,1		
S^{2-}	DEV D7	Photometer	0,03		
PO_4^{3-}	DIN 38 405-D11-2	Photometer	0,03		
NO_3^-	photom.Na-Sal.	Photometer	0,5	ionenchromatographisch	
NO_2^-	DIN 38 405-D10	Photometer	0,005		
NH_4^+	elektrometrisch	Ionenmeter	0,05	photometrisch (mit Salicylat und Hypochlorit gemäß DIN 38406, Teil 5)	
F^-	DIN 38 406-E22	Ionenmeter	0,005		
Br^-		Ionen-chromatograph		potentiometrisch (Titration)	
B	DIN 38 406-E22	ICP-OIS	0,01	ICP-AES	
CN^- (ges.)	DIN 38 405-D13-1	Photometer	0,01		
CN^- (l. fr.)	DIN 38 405-D13-2	Photometer	0,01		
Na^+	DIN 38 406-E22	ICP-OIS	0,1	ICP-AES	
K^+	DIN 38 406-E22	ICP-OIS	0,5	ICP-AES	
Mg^{2+}	DIN 38 406-E22	ICP-OIS	0,05	ICP-AES	
Ca^{2+}	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,1	ICP-AES	
Li^+	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,05	ICP-AES	<0,1

Parameter	Jäger et al. (1990)			Wedewardt (1995)	
	Meßmethode	Meßgerät	Nachweisgrenze [mg/L] oder Einheit angegeben	Methodenhinweis	Nachweisgrenzen [mg/L]
Sr	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	
Ba	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	
Al	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,1	ICP-AES	<0,5
Sb	DIN 38 405-D18	AAS-Hydridsystem	0,001		
As	DIN 38 405-D18	AAS-Hydridsystem	0,001	Hydrid- und Kaltdampf AAS	<0,005
Be	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,002		
Pb	DIN 38 406-E6-1	Flammen-AAS	0,05	Graphitrohr-AAS;	<0,5
Pb, alternativ	DIN 38 406-E6-3	Graphitrohr-AAS	0,005		
Cd	DIN 38 406-E19-1	Flammen-AAS	0,005	Graphitrohr-AAS;	<0,05
Cd, alternativ	DIN 38 406-E19-3	Graphitrohr-AAS	0,0005		
Cr (ges.)	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	<0,05
Cr (ges.), alternativ	DIN 38 406-E10-2	Graphitrohr-AAS	0,005	Graphitrohr-AAS	
Cr IV	DIN 38 405-D24	Photometer	0,01		
Fe	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,1	ICP-AES	<0,5(für -210 mNN <0,1)
Fe, alternativ	DIN 38 406-E19-1	Flammen-AAS	0,01		
Mn	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	<0,05
Mn, alternativ	DIN 38 406-E19-1	Flammen-AAS	0,01		
Co	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01		
Co, alternativ	DIN 38 406-E19-3	Flammen-AAS	0,01		
Cu	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	Graphitrohr-AAS	
Cu, alternativ	DIN 38 406-E19-3	Graphitrohr-AAS	0,01		

Parameter	Jäger et al. (1990)			Wedewardt (1995)	
	Meßmethode	Meßgerät	Nachweisgrenze [mg/L] oder Einheit angegeben	Methodenhinweis	Nachweisgrenzen [mg/L]
Ni	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,05	ICP-AES	<0,05
				Graphitrohr-AAS	
Ni, alternativ	DIN 38 406-E19-3	Graphitrohr-AAS	0,005		
Hg	DIN 38 406-E12-3	Kaltdampf-AAS	0,0002	Hydrid- und Kaltdampf AAS	<0,001
Se	DIN 38 406-D23	AAS-Hydridsystem	0,001	Hydrid- und Kaltdampf AAS	<0,005
Th	DIN 38 406-E6-3	AAS L´vov-Plattf.	0,01		
V	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	<0,05
				Graphitrohr-AAS	<0,05
Zn	DIN 38 406-E22	ICP-OES	0,01	ICP-AES	
Zn, alternativ	DIN 38 406-E8-1	Flammen-AAS	0,01		
Sn	DIN 38 406-E22	ICP-OIS	0,5		
TOC	DIN 38 409-H3	IR-CO_2-Detektor	0,1		
KW	DIN 38 409-H18	IR-Gerät	0,1		
Phenol-Index o.Dest.	DIN 38 409-H16-1	Photometer	0,01		
Phenol-Index n.Dest.	DIN 38 409-H16-2	Photometer	0,01		
Polycyclen	LWA Schriftenreihe "Abfallwirtschaft NRW", Nr. 13, 1987	HPLC (Gradientenelution mit CH_3OH/THF; 30 °C	0,000001		
LHKW	DIN 38 407-F4	GC-FID	0,001		
PCB	DEV F2	GC ECD	0,00001		
PCDM	zus. m. PCB	GC ECD	0,001		
EOX	DIN 38 409-H8	Photometer	0,02		
CSB	DIN 38 409-H41	Titrimeter	15		

Parameter	Jäger et al. (1990)			Wedewardt (1995)	
	Meßmethode	Meßgerät	Nachweisgrenze [mg/L] oder Einheit angegeben	Methodenhinweis	Nachweisgrenzen [mg/L]
Si				angegeben wir das Verfahren für gelöste Kieselsäure: photometrisch (mit Molybdän gemäß DIN 38405)	
HCO_3^-				voumetrische (Säure/Base-Titration)	
I^-				potentiometrisch (Titration)	
Mo				ICP-AES	<0,05
				Graphitrohr-AAS	

ANHANG 3:

Tab. A3-1: Analytik zu Haus Aden aus dem DMT Bericht 39 „Hydrochemie und Genese der Tiefenwässer im Ruhr-Revier Wedewardt (1995)

Probe		Z1	Z2	Z3	Z4	Z5	Z6	Z7	Z8	Z9
Datum		03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	08.03.1994	08.03.1994	09.03.1994	08.03.1994	08.03.1994
Entnahmeort		Haus Aden Scht 2; -940 m S; Fl. Karl / Blücher Untersuchungs-strep nach Westen, Damm	Haus Aden Scht 6 -940 m S Untersu-chungsboh-rung nach Westen	Haus Aden Scht 2 -680m S Hautqu St 5876	Haus Aden Scht 2 -680 m S BS H202	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 6	Haus Aden Scht Victoria 1/2	Haus Aden Scht 2 - 825mS, RS nach Osten, Damm 8250026
R-Wert		2607608	26074448	2606095	2606028	2609554	2609554	2607495	2606731	2607307
H-Wert		5724442	5724620	5726350	5726470	5721652	5721652	5274558	5721113	5721078
Teufe	mNHN	-931	-938	-689	-745	-336	-493	-526	-700	-788
Temperatur (in situ)	°C	40	39	32	20	18	15	25	28	36
pH		4,78	6,84	6,97	6,79	7,69	7,39	7,24	5,39	7,37
Leitfähigkeit	µS/cm	163500	165200	108100	121800	292200	91700	60700	153000	51400
Abdampfrückstand	mg/L	154200	166200	82800	97800	18520	68660	41540	144200	34200
Dichte	g/mL	1,0941	1,0976	1,0525	1,0615	1,008	1,0431	1,0272	1,0838	1,0207
Zufluß	L/min	10-15	1-2	10		5	1	20	30-40	60-100
freies CO_2	mg/L	28	26	35	32	7	18	26	21	20
aggressives CO_2	mg/L		<1						14	
Na^+	mg/L	41000	40000	26900	30000	5990	20800	13600	39300	11100
K^+	mg/L	762	426	366	372	66	260	170	439	154
Ca^{2+}	mg/L	7640	9090	2150	2630	310	2270	852	5660	903
Mg^{2+}	mg/L	13808	2200	648	805	124	679	319	1330	355

Probe		Z1	Z2	Z3	Z4	Z5	Z6	Z7	Z8	Z9
Datum		03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	08.03.1994	08.03.1994	09.03.1994	08.03.1994	08.03.1994
Entnahmeort		Haus Aden Scht 2; -940 m S; Fl. Karl / Blücher Untersuchungs-strep nach Westen, Damm	Haus Aden Scht 6 -940 m S Untersu-chungsboh-rung nach Westen	Haus Aden Scht 2 -680m S Hautqu St 5876	Haus Aden Scht 2 -680 m S BS H202	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 6	Haus Aden Scht Victoria 1/2	Haus Aden Scht 2 - 825mS, RS nach Osten, Damm 8250026
Sr	mg/L	557	475	468	555	98	764	251	611	127
Ba	mg/L	1710	2460	500	599	12	119	43	737	80
NH_4^+	mg/L	37	45	39	5,5	<0,05	20	18	30	9,3
B	mg/L	1,66	0,81	5	6	3,6	5	5,2	2	3,5
Si	mg/L	7,5	3,9	5,3	5,4	4,1	4,4	5,5	2,9	6,3
Cl^-	mg/L	83200	86200	47100	54900	10100	39000	23700	76400	19800
SO_4^{2-}	mg/L	<5	<5	<5	<5	23	15	11	<0,5	7
HCO_3^-	mg/L	2	62	269	151	528	137	421	5	371
NO_3^-	mg/L	27	36	24	170	66	31	30	22	22
I^-	mg/L	17	7,9	16	7,9	3,2	5,3	5,5	11	4,4
Br^-	mg/L	120	147	44	50	13	54	22	90	25
Al	mg/L	0,6	<0,5	0,6		<0,5	<0,5	<0,5	1	<0,5
As	mg/L	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005
Cd	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Cr	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Cu	mg/L	0,11	0,27	0,1		0,14	0,13	0,12	0,12	0,13
Fe	mg/L	18	35	1,4		<0,5	<0,5	<0,5	51	4,1
Hg	mg/L	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001
Li	mg/L	22	13	15		2,9	8,2	7,5	19	5

Probe		Z1	Z2	Z3	Z4	Z5	Z6	Z7	Z8	Z9
Datum		03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	03.03.1994	08.03.1994	08.03.1994	09.03.1994	08.03.1994	08.03.1994
Entnahmeort		Haus Aden Scht 2; -940 m S; Fl. Karl / Blücher Untersuchungs-strep nach Westen, Damm	Haus Aden Scht 6 -940 m S Untersu-chungsboh-rung nach Westen	Haus Aden Scht 2 -680m S Hautqu St 5876	Haus Aden Scht 2 -680 m S BS H202	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 2	Haus Aden Scht 6	Haus Aden Scht Victoria 1/2	Haus Aden Scht 2 - 825mS, RS nach Osten, Damm 8250026
Mn	mg/L	2,2	1,2	<0,05		<0,05	0,21	0,06	3,1	0,22
Mo	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Ni	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Pb	mg/L	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5
Se	mg/L	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005
V	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Zn	mg/L	0,36	<0,05	<0,05	1,9	<0,05	3	<0,05	<0,05	<0,05
Tritium	TU			1,8				3,7	1,5	
Deuterium	promill	-26		-46,5	-43,8	-50	-36,7	-52,3	-26,2	-45,6
Sauerstoff-18	promill	-2,63		-5,97	-5,34	-7,36	-4,7	-7,39	-3,1	-6,67

Tab. A3-2: Fortsetzung Analytik zu Haus Aden aus dem DMT Bericht 39 „Hydrochemie und Genese der Tiefenwässer im Ruhr-Revier Wedewardt (1995)

Probenbezeichnung		Z10	Z11	Z12	Z13	Z14	Z15	Z16	Z17
Datum		08.03.1994	09.03.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	05.05.1994
Entnahmestelle		Haus Aden Scht 2 -825 m S RS nach Osten, Bohrloch nach BS 401	Haus Aden Scht 2 BS 425	Haus Aden Scht 2-940mS GB nach Fl Sonnenschein Bohrloch zur Bandstr. S52	Haus Aden Scht 2 Victoria	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3 -1060mS RS Fl Karl	Haus Aden 1000 mS, Bandstr Robert/Albert RO 64 nach N St630
r-Wert		2606916	2610631	2611483	2607622	2609409	2609409	2609266	2607448
h-Wert		5721105	5722361	5721618	5721386	5718532	5718532	5718620	5726260
Tiefe	mNN	-789	-700	-1058	23	25	-210	-1067	-957
Temperatur (in situ)	°C	34	18	46	14	10	17	27	47
pH		7,53	7,24	7,07	7,51	7,44	7,65	4,99	6,21
spez . el. Leitfähigkeit	µS/cm	79100	111700	146400	2120	2640	4520	147100	177400
Abdampfrückstand	mg/l	57560	94200	134900	1384	1912	2612	134300	174300
Dichte	g/ml	1,0358	1,0567	1,0766	0,9986	0,9986	1,0026	1,081	1,1076
Zufluß	l/min	4-5	-10-20	1-2	50	10-20	4	1-2	
freies CO_2	mg/L	14	18	17	8	9	5	42	35
aggressives CO_2	mg/L								9,7
Na	mg/L	18200	24000	37200	109	202	832	35100	50300
K	mg/L	231	265	672	5,3	11	12	18	517
Ca	mg/L	1740	4270	5770	266	302	125	7040	7630
Mg	mg/L	829	1720	935	17	46	28	1800	1440
Sr	mg/L	192	883	192	7,8	19	11	182	414
Ba	mg/L	2	24	258	<0,5	<0,5	<0,5	1,1	1260
NH4	mg/L	0,48	2,4	31	<0,05	0,09	0,28	29	46

Probenbezeichnung		Z10	Z11	Z12	Z13	Z14	Z15	Z16	Z17
Datum		08.03.1994	09.03.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	05.05.1994
Entnahmestelle		Haus Aden Scht 2 -825 m S RS nach Osten, Bohrloch nach BS 401	Haus Aden Scht 2 BS 425	Haus Aden Scht 2-940mS GB nach Fl Son-nenschein Bohrloch zur Bandstr. S52	Haus Aden Scht 2 Victoria	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3 -1060mS RS Fl Karl	Haus Aden 1000 mS, Bandstr Ro-bert/Albert RO 64 nach N St630
B	mg/L	2,9	0,48	1,1	<0,05	<0,05	<0,05	1	2,2
Si	mg/L	4,1	3,5	4,8	7,6	5,1	5,1	3,5	2,9
Cl	mg/L	32500	51000	72300	157	437	1110	72500	95500
SO4	mg/L	576	63	16	456	475	284	1220	<5
HCO3	mg/L	160	74	60	294	258	442	2	45
NO3	mg/L	34	90	110	2,4	11	0,13	110	160
J	mg/L	6,6	23	27	1,3	1,4	1,2	11	50
Br	mg/L	37	93	133	0,35	0,88	1	149	107
Al	mg/L	0,6	0,8	0,8	<0,5				0,8
As	mg/L	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005
Cd	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Cr	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Cu	mg/L	0,11	0,12	0,15	0,11	0,14	0,12	0,11	0,24
Fe	mg/L	1,2	<0,5	9	0,6	0,8	<0,1	36	53
Hg	mg/l	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001	<0,001
Li	mg/L	7	5,2	16	<0,1	0,1	0,4	0,4	26
Mn	mg/L	2	1,2	1,5	<0,05	<0,05	<0,05	8	2,1
Mo	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Ni	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Pb	mg/L	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5

Probenbezeichnung		Z10	Z11	Z12	Z13	Z14	Z15	Z16	Z17
Datum		08.03.1994	09.03.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	12.04.1994	05.05.1994
Entnahmestelle		Haus Aden Scht 2 -825 m S RS nach Osten, Bohrloch nach BS 401	Haus Aden Scht 2 BS 425	Haus Aden Scht 2-940mS GB nach Fl Sonnenschein Bohrloch zur Bandstr. S52	Haus Aden Scht 2 Victoria	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3	Haus Aden Scht Kurf 3 -1060mS RS Fl Karl	Haus Aden 1000 mS, Bandstr Robert/Albert RO 64 nach N St630
Se	mg/L	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	<0,005	0,005
V	mg/L	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05
Zn	mg/L	<0,05	0,36	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	<0,05	0,31
Tritium	TU								
Deuterium	promill	-43,9	-22						
Sauerstoff 18	promill	-5,94	-2,56						

ANHANG 4

Aus dem DMT Bericht 23 zum „Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons“ von Klinger 1994 stammen die in Tabelle A2-1 aufgeführten teufenabhängigen Konzentrationswerte der Hauptbestandteile der Grubenwässer des Ruhrkarbons. Sie wurden aus Archivdaten der DMT gewonnen und stellen die gemittelten Gehalte aller mit Teufenangaben versehenen Proben dar. Auch die Werte aus Tabelle A2-2 stammen aus dem DMT Bericht 23, allerdings zitiert Klinger die entsprechenden Werte aus einer „Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen“ von Jäger, Obermann und Wilke (1990). Es wurden keine Angaben über die zu Grunde liegende Analytik gemacht.

Tab. A4-1: Teufenabhängige Hauptelementverteilung (Klinger 1994)
Die Werte stellen die gemittelten Gehalte aller mit Teufanangaben versehenen Proben dar.

Teufe [m]	Na^+ [mg/L]	Ca^{2+} [mg/L]	Mg^{2+} [mg/L]	K^+ [mg/L]	Fe [mg/L]	Mn [mg/L]	Sr [mg/L]	Ba [mg/L]	Cl^- [mg/L]	SO_4^{2-} [mg/L]	HCO_3^- [mg/L]	pH
40-300	2230	200	80	65	5	2,5	1,4	36	3940	720	600	7,4
300-600	10030	940	430	190	6	4,4	167	385	17600	1240	354	6,9
600-800	33410	2580	935	433	22	1	660	1183	56170	1260	236	6,9
800-900	41530	3410	970	600	39	1	162	412	49960	498	310	6,9
900-1000	37700	3630	1030	376	26	1,7	230	434	66780	534	156	6,9
1000-1400	54970	5070	1370	550	22	1,1	810	1350	85970	90	120	6,6

Tab. A4-2: Metallgehalte eines geogenen Chloridwassers nach Jäger et al. 1990 (zitiert nach Klinger, 1994)

Bestandteil	Gehalt	Probenort
	[mg/L]	
Pb	0,13	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Zn	3,7	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Cu	0,08	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Cr	<0,01	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Ni	<0,05	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Cd	<0,005	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
As	<0,001	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
Hg	<0,0002	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle
V	0,1	Schachtanlage Consolidation; Schacht 4, 11. Sohle

ANHANG 5

Tab. A5-1: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb 1 (1995 bis 1996, Datengrundlage: RAG); für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< bzw. > Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet

Parameter	Einheit	Mittelwert	Max	Min
Absetzbare Stoffe nach 2h	mL/L	0,9	6,5	< 0,1
Abfiltrierbare Stoffe	mg/L	147	950	7
Abdampfrückstand errechnet	mg/L	20956	149923	191
spez. el. Leitfähigkeit	µS/cm	27363	> 150000	365
Dichte	g/mL	1,013	1,103	1,000
pH-Wert	-	7,6	8,3	6,9
Säurekapazität bis pH 8,2	mmol/L	0,00	0,16	0,00
Säurekapazität bis pH 4,3	mmol/L	2,10	3,93	1,04
Summe Erdalkali (errechnet)	mg/L	1572	9849	47
Natriumchlorid (errechnet)	mg/L	15865	121242	23
Ammonium	mg/L	9,3	49	< 0,02
Natrium	mg/L	6243	47696	9
Kalium	mg/L	214	1065	3
Calcium	mg/L	1234	7116	41
Magnesium	mg/L	268	1923	5,3
Barium	mg/L	33	741	< 1
Strontium	mg/L	41	442	< 1
Zink	mg/L	2,9	32	< 0,02
Kupfer	mg/L	0,043	0,42	< 0,001
Arsen	mg/L	0,004	0,01	< 0,001
Blei	mg/L	0,052	0,529	< 0,001
Cadmium	mg/L	0,005	0,031	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,015	0,05	< 0,001
Chrom VI	mg/L	< 0,010	< 0,010	< 0,010
Nickel	mg/L	0,037	0,355	< 0,001
Quecksi ber	mg/L	0,001	0,002	< 0,001
Chlorid	mg/L	12508	92000	27
Bromid	mg/L	45	205	< 0,3
Sulfat	mg/L	341	1990	9,4
Hydrogencarbonat (errechnet)	mg/L	128	240	63
Carbonat (errechnet)	mg/L	0,3	10	0
Hydroxid (errechnet)	mg/L	0	0	0
Cyanid (gesamt)	mg/L	0,01	0,02	< 0,01
PCB-Summe aus 6 Isomeren (DIN)	µg/L	0,01	0,03	< 0,01
PCB gesamt (LAGA)	µg/L	0,05	0,15	< 0,05
PCDM-Gesamtgehalt	µg/L	0,1	1,1	< 0,1

Tab. A5-2: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb 2 (1993 bis 1994, Datengrundlage: RAG); für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< bzw. > Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet

Parameter	Einheit	Mittelwert	Max	Min
Absetzbare Stoffe n. 2h	mL/L	4	27	< 0,1
Abfiltrierbare Stoffe	mg/L	654	3336	< 5
Abdampfrückstand errechnet	mg/L	23322	89857	484
spez. el. Leitfähigkeit	µS/cm	31091	107100	909
Dichte	g/mL	1,013	1,057	1,000
pH-Wert	-	7,5	8,4	6,5
Säurekapazität bis pH 8,2	mmol/L	0,0	0,04	0,0
Säurekapazität bis pH 4,3	mmol/L	3,02	8,72	1,39
Summe Erdalkali(errechnet)	mg/L	1961	9107	100
Natriumchlorid (errechnet)	mg/L	17131	62160	130
Ammonium	mg/L	6,8	20	0,05
Natrium (errechnet)	mg/L	6739	24454	51
Kalium	mg/L	64	173	12
Calcium	mg/L	1529	7167	77
Magnesium	mg/L	405	1800	23
Barium	mg/L	< 5	< 5	< 5
Strontium	mg/L	27	140	< 5
Zink	mg/L	4,5	20	0,31
Kupfer	mg/L	0,015	0,051	0,005
Arsen	mg/L	0,002	0,006	< 0,001
Blei	mg/L	0,035	0,094	0,003
Cadmium	mg/L	0,003	0,011	< 0,001
Chrom	mg/L	0,003	0,009	< 0,001
Chrom VI	mg/L	0,004	< 0,010	< 0,001
Nickel	mg/L	0,036	0,122	< 0,002
Quecksi ber	mg/L	0,001	< 0,001	< 0,0005
Chlorid	mg/L	13700	55060	227
Bromid	mg/L	42	133	< 0,25
Sulfat	mg/L	747	1890	37
Hydrogencarbonat (errechnet)	mg/L	184	532	80
Carbonat (errechnet)	mg/L	0,2	2	0
Hydroxyd (errechnet)	mg/L	0	0	0
Sulfid	mg/L	2,2	6,6	< 0,02
Cyanid (gesamt)	mg/L	< 0,02	< 0,02	< 0,02
PCB-Summe aus 6 Isomeren (DIN)	µg/L	0,01	0,01	< 0,01
PCB gesamt (LAGA)	µg/L	0,05	0,05	< 0,05
PCDM-Gesamtgehalt	µg/L	< 0,1	< 0,1	< 0,1

Tab. A5-3: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb 16 (1994, Datengrundlage: RAG); für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< bzw. > Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet

Parameter	Einheit	Mittelwert	Max	Min
Absetzbare Stoffe nach 2h	mL/L	1,3	23	< 0,1
Abfiltrierbare Stoffe	mg/L	476	9400	< 5
Abdampfrückstand errechnet	mg/L	20234	161491	189
spez. el. Leitfähigkeit	µS/cm	23432	> 150000	322
Dichte	g/mL	1,013	1,107	1,000
pH-Wert	-	7,7	9,0	6,7
Säurekapazität bis pH 8,2	mmol/L	0,00	0,04	0,00
Säurekapazität bis pH 4,3	mmol/L	2,73	6,94	1,48
Summe Erdalkali(errechnet)	mg/L	1341	11710	43
Natriumchlorid (errechnet)	mg/L	16089	126471	15
Ammonium	mg/L	5,6	44	< 0,02
Natrium	mg/L	6330	49753	6
Kalium	mg/L	53	335	2
Calcium	mg/L	1001	8640	38
Magnesium	mg/L	271	2360	5
Barium	mg/L	35	510	< 5
Strontium	mg/L	43	460	< 5
Zink	mg/L	3,7	22	0,13
Kupfer	mg/L	0,028	0,05	< 0,001
Arsen	mg/L	0,002	0,004	< 0,001
Blei	mg/L	0,022	0,1	< 0,001
Cadmium	mg/L	0,011	0,2	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,019	< 0,05	< 0,001
Chrom VI	mg/L	< 0,010	< 0,010	< 0,010
Nickel	mg/L	0,07512	0,34	< 0,001
Quecksi ber	mg/L	< 0,001	< 0,001	< 0,001
Chlorid	mg/L	12059	99620	22
Bromid	mg/L	32	178	< 0,25
Sulfat	mg/L	349	1770	0,02
Hydrogencarbonat (errechnet)	mg/L	166	423	88
Carbonat (errechnet)	mg/L	0,1	2	0
Hydroxid (errechnet)	mg/L	0	0	0
Cyanid (gesamt)	mg/L	0,01	< 0,02	< 0,01
PCB-Summe aus 6 Isomeren (DIN)	µg/L	0,01	0,02	< 0,01
PCB gesamt (LAGA)	µg/L	0,06	0,1	< 0,05
PCDM-Gesamtgehalt	µg/L	0,1	0,1	< 0,1

Tab. A5-4: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb 17 (1995, Datengrundlage: RAG); für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< bzw. > Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet

Parameter	Einheit	Mittelwert	Max	Min
Absetzbare Stoffe nach 2h	mL/L	0,7	5,0	< 0,1
Abfiltrierbare Stoffe	mg/L	218	1380	8
Abdampfrückstand errechnet	mg/L	29154	120195	157
spez. el. Leitfähigkeit	µS/cm	38198	140100	302
Dichte	g/mL	1,018	1,080	1,000
pH-Wert	-	7,5	8,3	6,9
Säurekapazität bis pH 8,2	mmol/L	0,01	0,16	0,00
Säurekapazität bis pH 4,3	mmol/L	2,03	3,14	1,19
Summe Erdalkali(errechnet)	mg/L	2873	18070	33
Natriumchlorid (errechnet)	mg/L	20525	87871	35
Ammonium	mg/L	11	46	< 0,02
Natrium	mg/L	8076	34568	18
Kalium	mg/L	162	650	3
Calcium	mg/L	2388	16000	30
Magnesium	mg/L	373	2190	3
Barium	mg/L	52	500	< 5
Strontium	mg/L	64	410	< 5
Zink	mg/L	5,8	32,0	< 0,02
Kupfer	mg/L	0,106	1,5	0,002
Arsen	mg/L	0,001	0,002	< 0,001
Blei	mg/L	0,074	0,529	< 0,001
Cadmium	mg/L	0,006	0,03	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,010	< 0,05	< 0,001
Chrom VI	mg/L	< 0,010	< 0,010	< 0,010
Nickel	mg/L	0,060	0,52	< 0,001
Quecksi ber	mg/L	< 0,001	< 0,001	< 0,001
Chlorid	mg/L	17767	75000	21
Bromid	mg/L	46	159	< 0,25
Sulfat	mg/L	202	817	< 5
Hydrogencarbonat (errechnet)	mg/L	123	192	73
Carbonat (errechnet)	mg/L	0,5	10	0
Hydroxid (errechnet)	mg/L	0	0	0
Cyanid (gesamt)	mg/L	0,01	0,02	< 0,01
PCB-Summe aus 6 Isomeren (DIN)	µg/L	0,01	0,03	< 0,01
PCB gesamt (LAGA)	µg/L	0,06	0,15	< 0,05
PCDM-Gesamtgehalt	µg/L	0,2	0,8	< 0,1

Tab. A5-5: Grubenwässer von BW Haus Aden / Monopol von Gb 31 (1996 bis 1998, Datengrundlage: RAG); für die Berechnung des Mittelwertes wurde in den Fällen, bei denen der gemessene Wert "< bzw. > Nachweisgrenze" ist, der Wert der Nachweisgrenze verwendet

Parameter	Einheit	Mittelwert	Max	Min
Absetzbare Stoffe nach 2h	mL/L	1,1	9	< 0,1
Abfiltrierbare Stoffe	mg/L	283	1796	< 5
Abdampfrückstand errechnet	mg/L	57585	154884	292
spez. el. Leitfähigkeit	µS/cm	69774	> 150000	567
Dichte	g/mL	1,037	1,105	1,000
pH-Wert	-	7,2	8,2	5,6
Säurekapazität bis pH 8,2	mmol/L	0,00	0,00	0,00
Säurekapazität bis pH 4,3	mmol/L	2,24	3,78	0,40
Summe Erdalkali(errechnet)	mg/L	4394	12588	58
Natriumchlorid (errechnet)	mg/L	40746	121448	86
Ammonium	mg/L	14,6	38	< 0,02
Natrium	mg/L	16029	47777	34
Kalium	mg/L	250	1560	3,1
Calcium	mg/L	3203	8990	51
Magnesium	mg/L	952	2830	7
Barium	mg/L	51	486	< 1,0
Strontium	mg/L	188	687	< 1,0
Zink	mg/L	13,4	118	< 0,02
Kupfer	mg/L	0,035	0,11	0,002
Arsen	mg/L	0,005	0,04	< 0,001
Blei	mg/L	0,125	0,52	0,005
Cadmium	mg/L	0,214	4,2	< 0,001
Chrom (gesamt)	mg/L	0,020	0,08	< 0,001
Chrom VI	mg/L	< 0,010	< 0,010	< 0,010
Nickel	mg/L	0,075	0,638	0,004
Quecksi ber	mg/L	< 0,001	< 0,001	< 0,001
Chlorid	mg/L	33243	95400	70
Bromid	mg/L	101	364	< 0,3
Sulfat	mg/L	328	1590	< 5
Hydrogencarbonat (errechnet)	mg/L	136	231	24
Carbonat (errechnet)	mg/L	0	0	0
Hydroxid (errechnet)	mg/L	0	0	0
Cyanid (gesamt)	mg/L	0,01	0,12	< 0,01
PCB-Summe aus 6 Isomeren (DIN)	µg/L	0,02	0,17	< 0,01
PCB gesamt (LAGA)	µg/L	0,09	0,85	< 0,05
PCDM-Gesamtgehalt	µg/L	0,1	0,5	< 0,1

ANHANG 6

Anhang 6 zeigt Ganglinien des Grubenwassesfür Bauhöhen, in denen bergbaufremdes Versatzmaterial verbracht worden ist. Die Daten zu den Grafiken wurden den Abschlussberichten zu den jeweiligen Bauhöhen entnommen und beruhen auf Angaben des Bergbautreibenden gegenüber den Aufsichsbehörden. Die Beprobung von je drei Stellen auf die Zusammensetzung des Grubenwassers erfolgte aufgrund der Nebenbestimmungen der Sonderbetriebspläne.

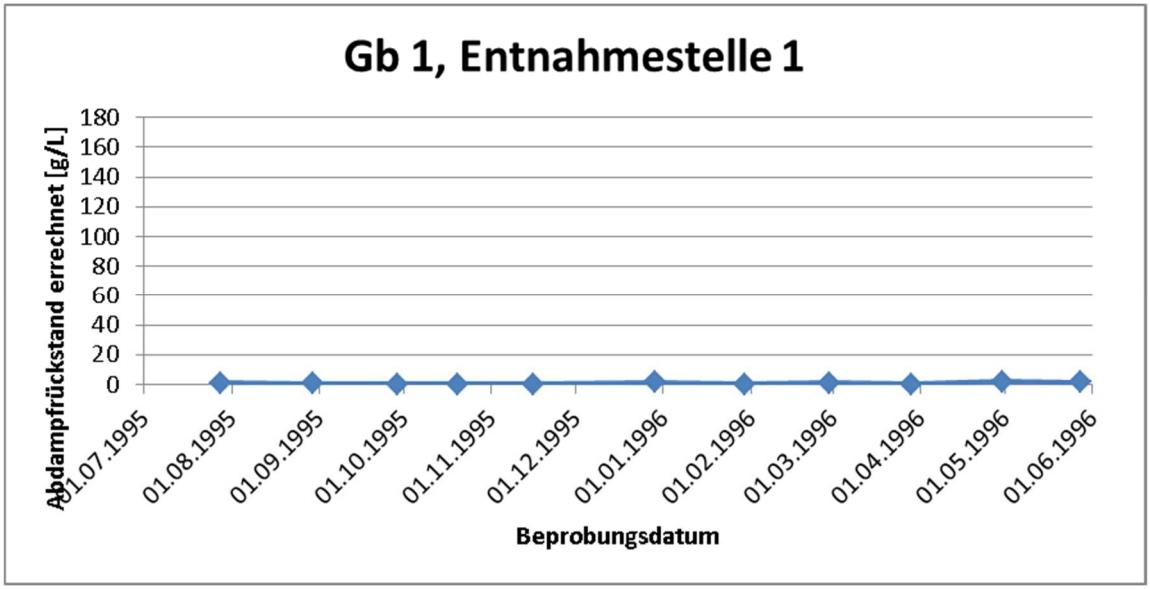


Abb. A6-1: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 1, Gb 1 (Datengrundlage: RAG)

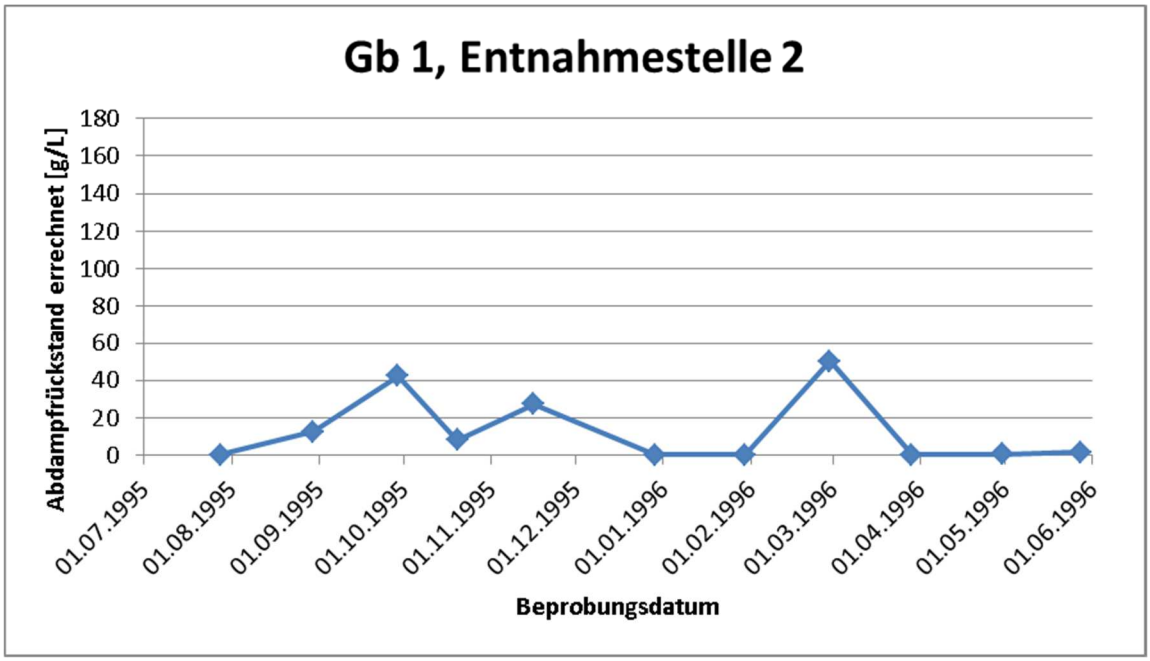


Abb. A6-2: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 2, Gb 1 (Datengrundlage: RAG)

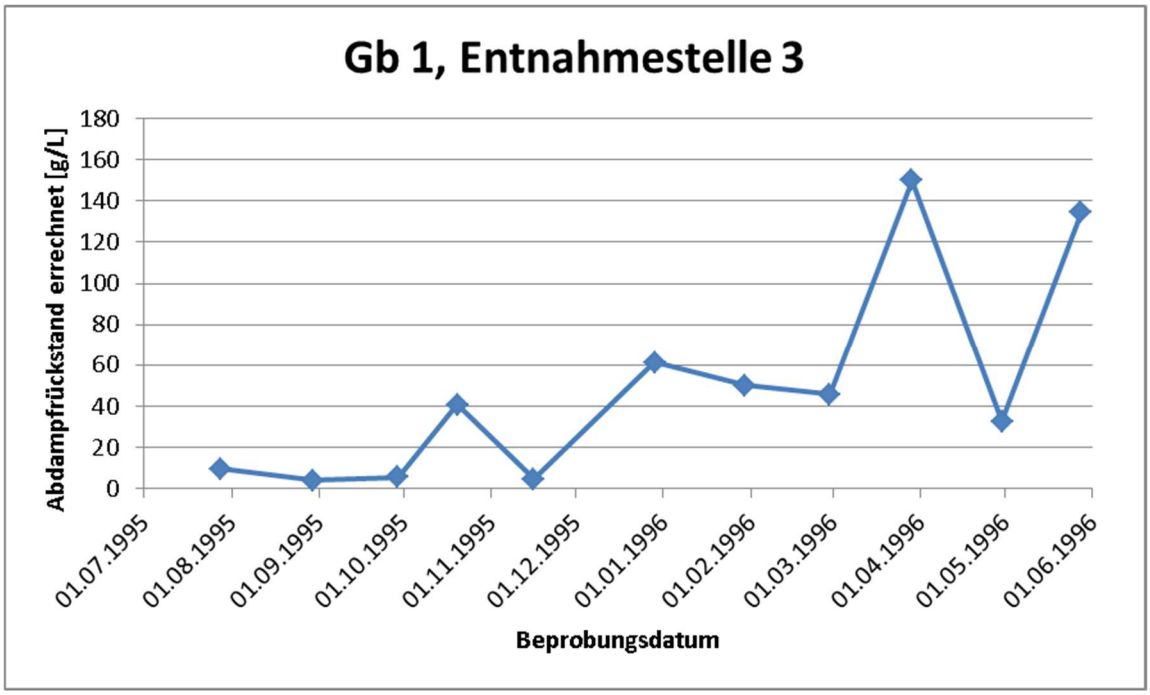


Abb. A6-3: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 3, Gb 1 (Datengrundlage: RAG)

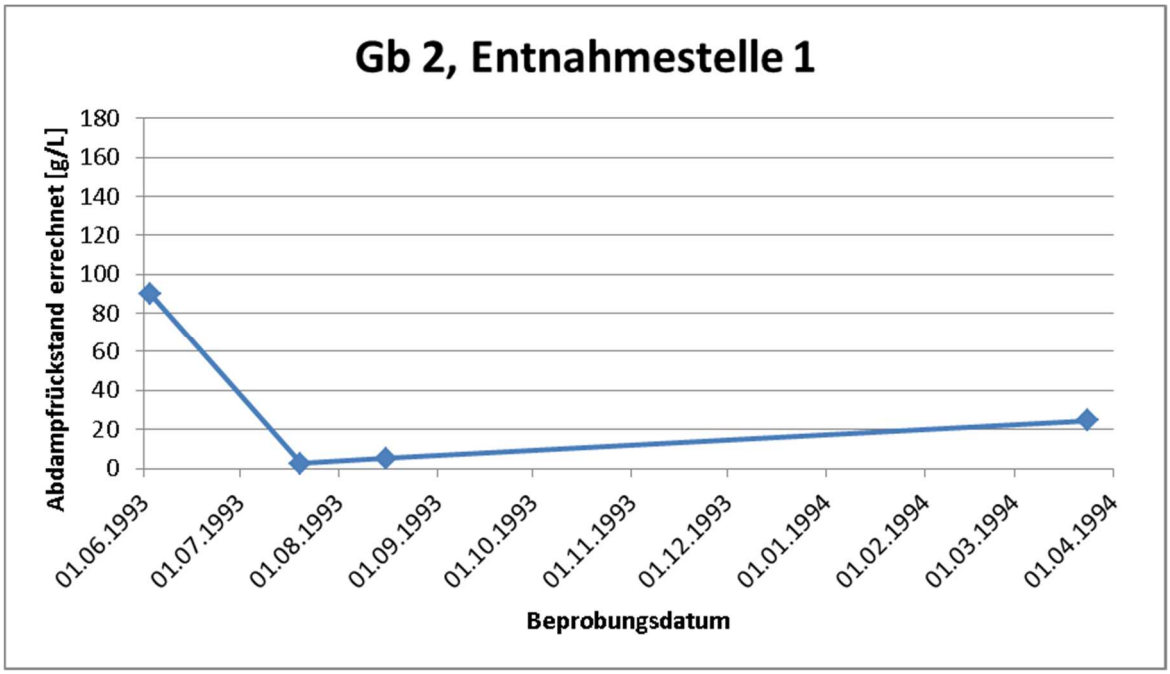


Abb. A6-4: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 1, Gb 2 (Datengrundlage: RAG)

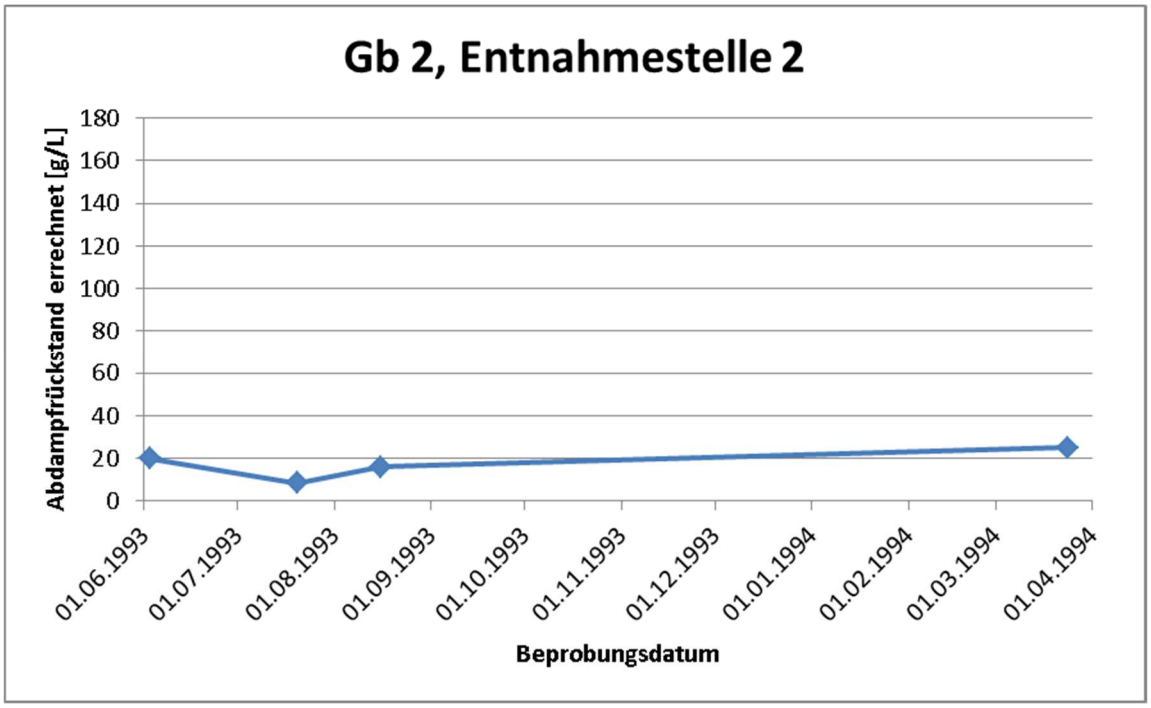


Abb. A6-5: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 2, Gb 2 (Datengrundlage: RAG)

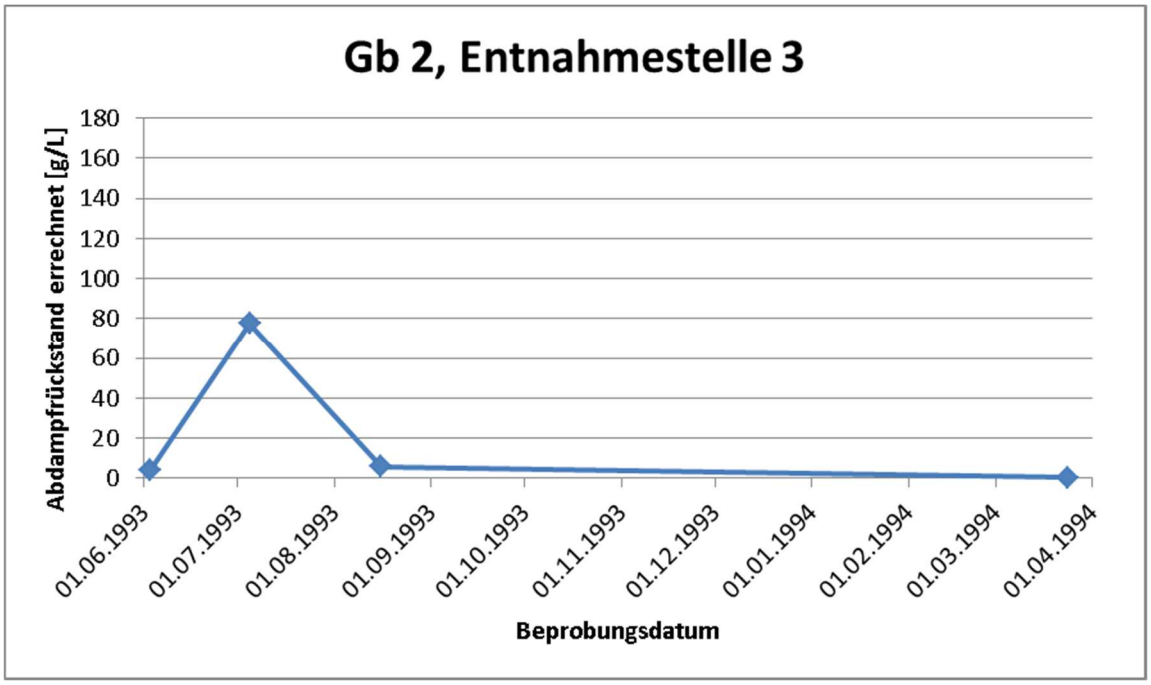


Abb. A6-6: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 3, Gb 2 (Datengrundlage: RAG)
Die Bezeichnung der Beprobungsstellen ist nicht eindeutig und nicht konsistent; aus Sicht des Gutachters wurde die Probe vom 05.07.1993 an nicht vergleichbarer Stelle bezüglich der übrigen Proben genommen.

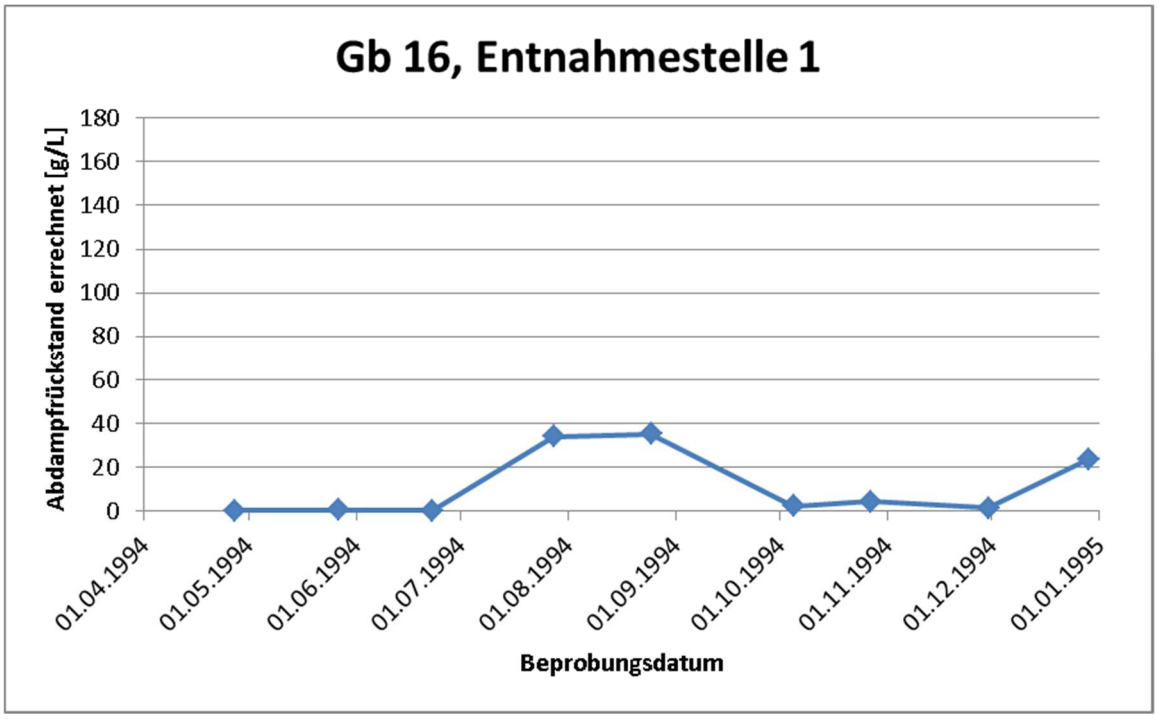


Abb. A6-7: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 1, Gb 16 (Datengrundlage: RAG)

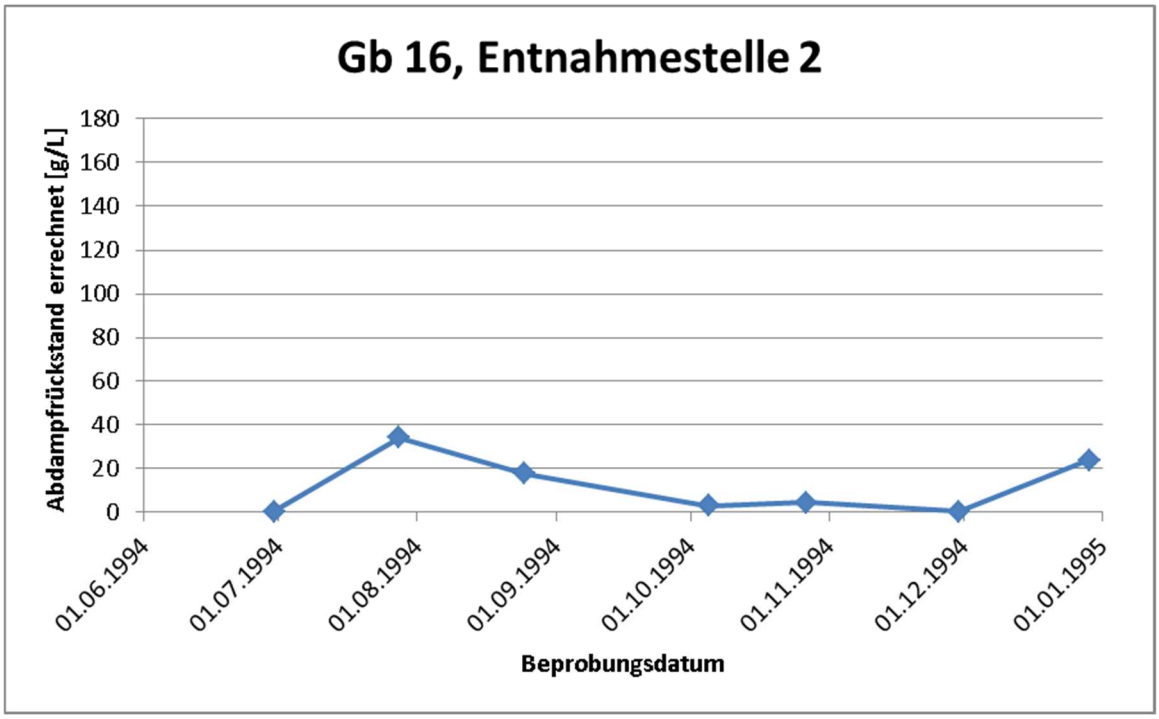


Abb. A6-8: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 2, Gb 16 (Datengrundlage: RAG)

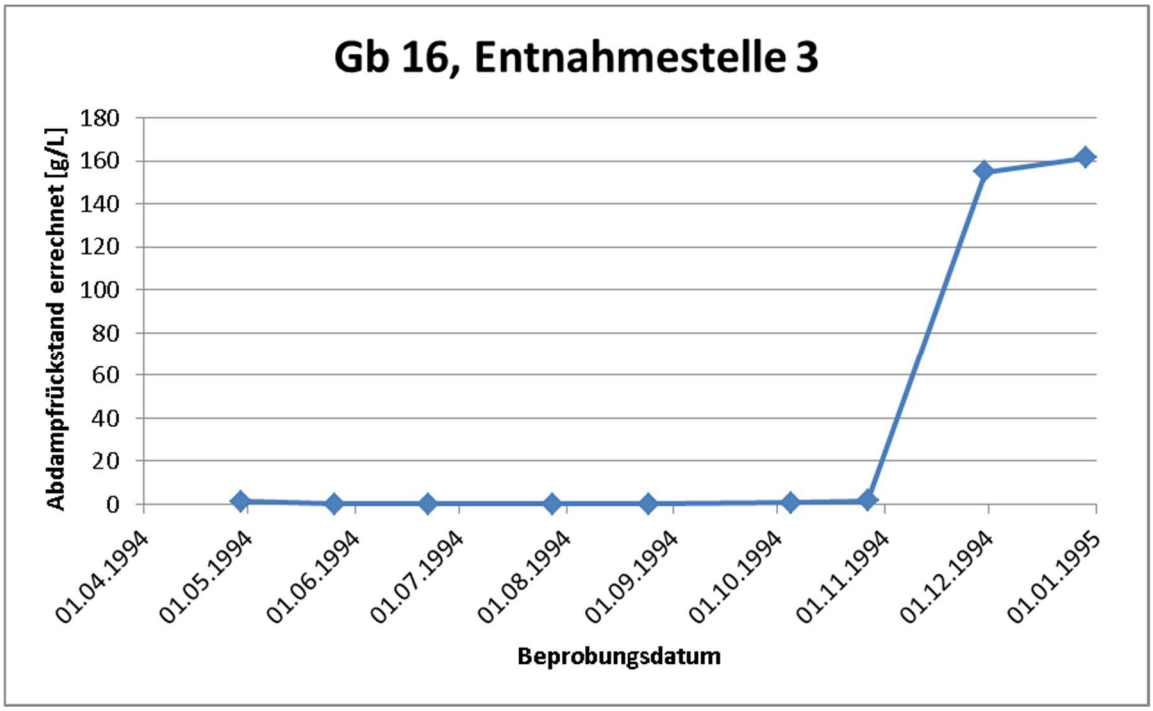


Abb. A6-9: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 3, Gb 16 (Datengrundlage: RAG)

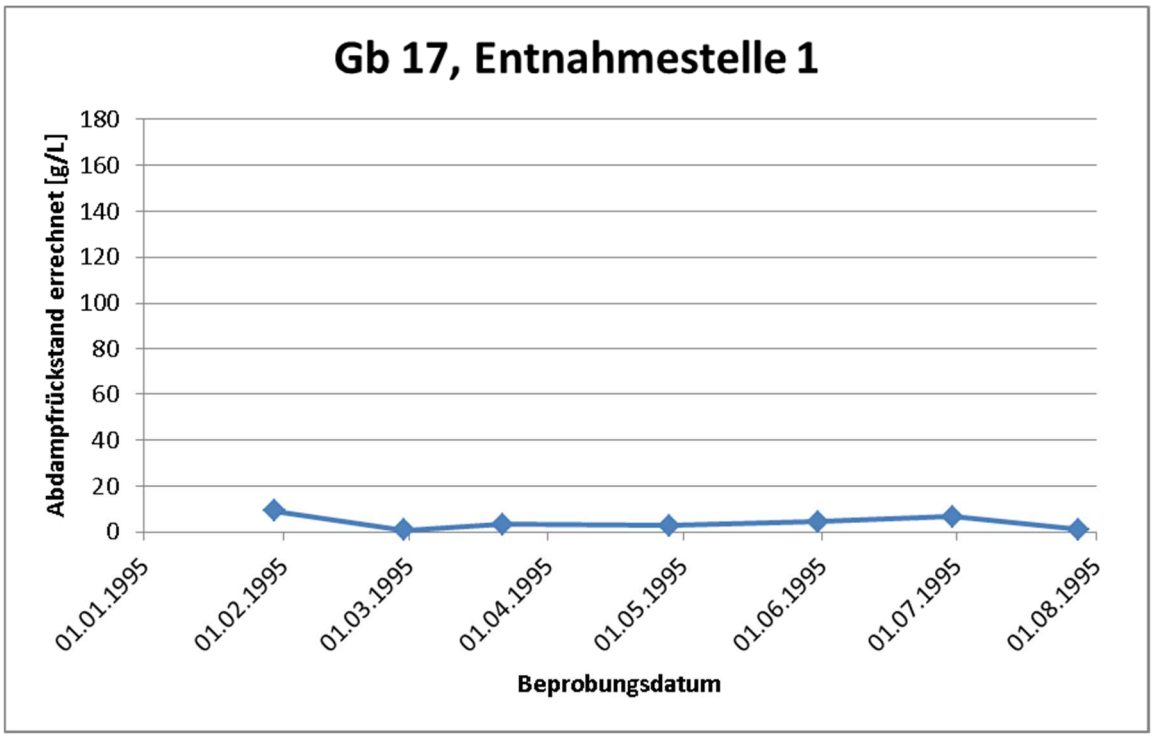


Abb. A6-10: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 1, Gb 17 (Datengrundlage: RAG)

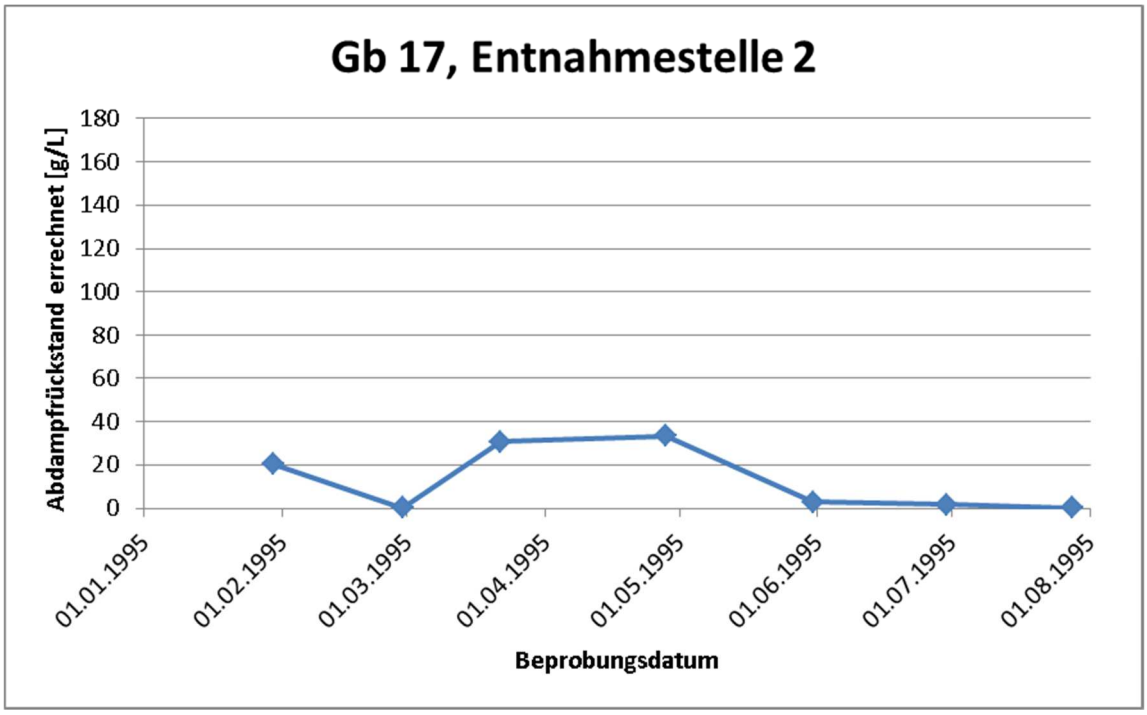


Abb. A6-11: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 2, Gb 17 (Datengrundlage: RAG)

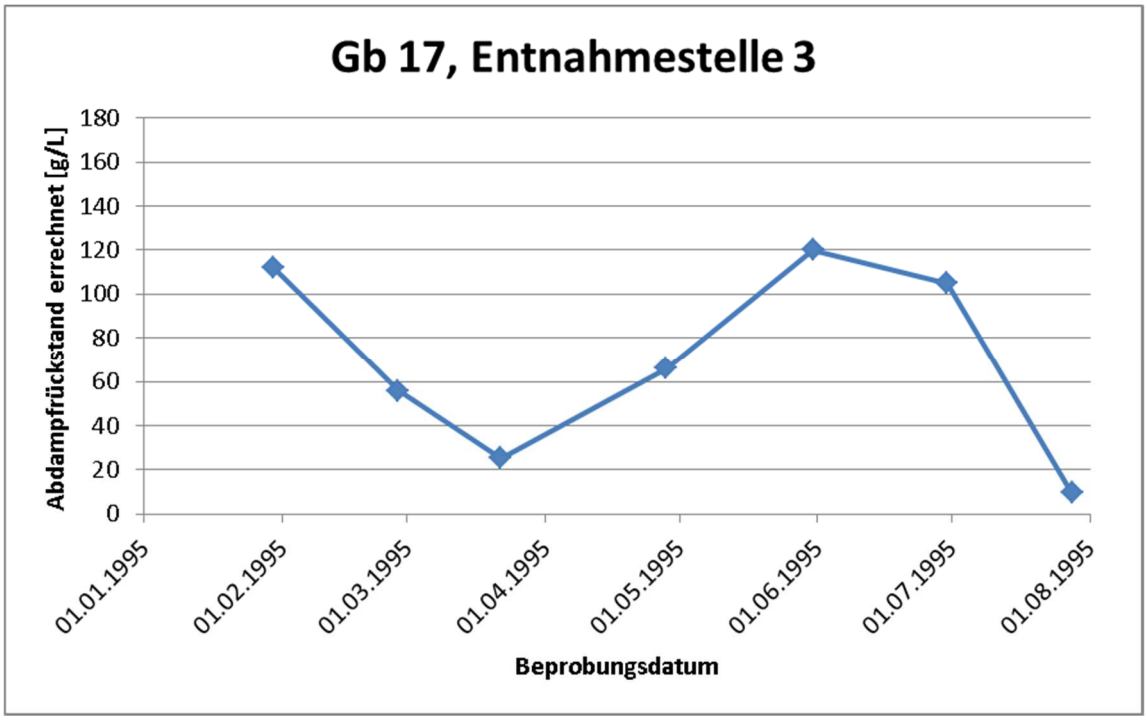


Abb. A6-12: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 3, Gb 17 (Datengrundlage: RAG)

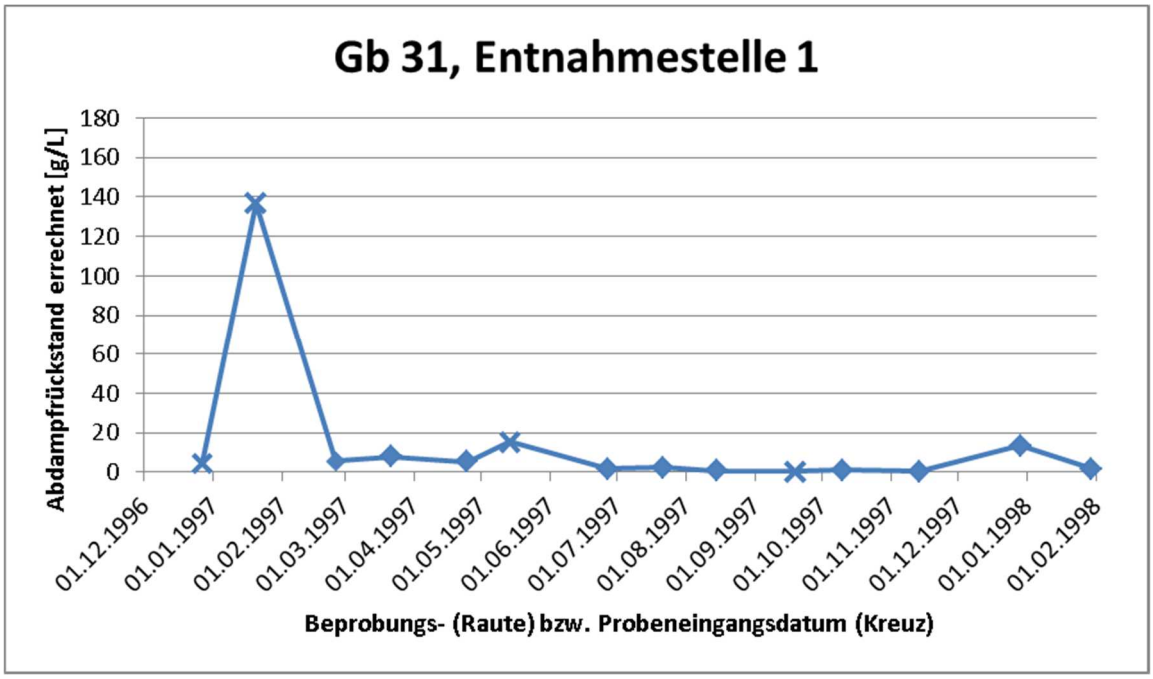


Abb. A6-13: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 1, Gb 31 (Datengrundlage: RAG)
Aus Sicht des Gutachters wurde die Probe vom 20.01.1997 an einer abweichenden Beprobungsstelle oder unter nicht repräsentativen Bedingungen entnommen.

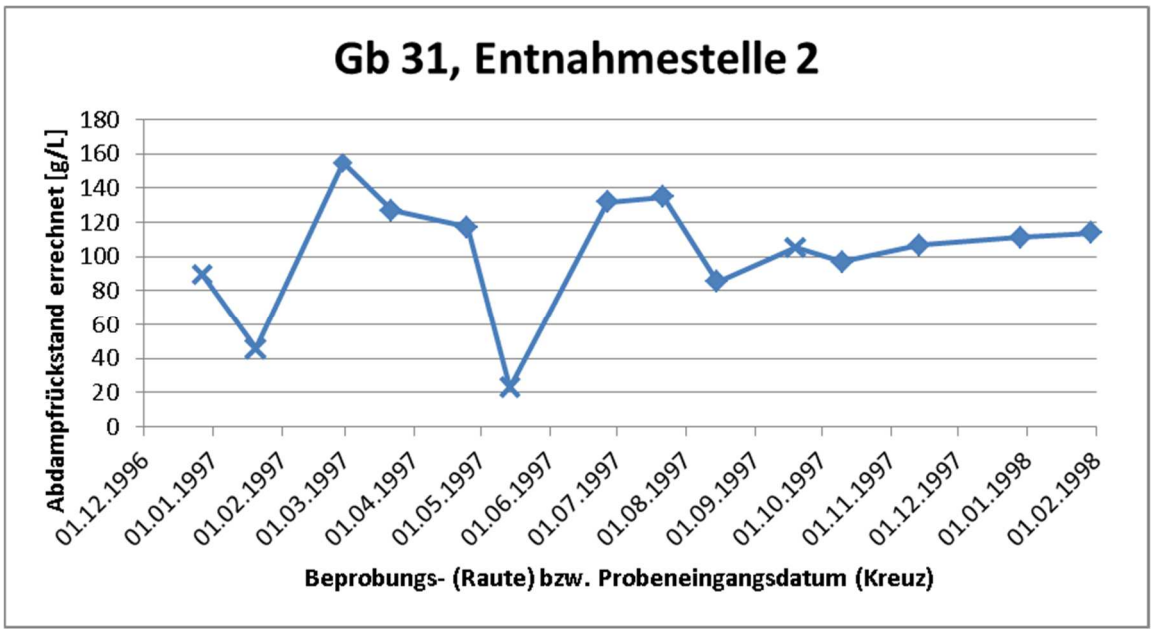


Abb. A6-14: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes an der Entnahmestelle 2, Gb 31 (Datengrundlage: RAG)
Aus Sicht des Gutachters wurden die Proben vom 20.01. und 14.05.1997 an einer abweichenden Beprobungsstelle oder unter nicht repräsentativen Bedingungen entnommen.

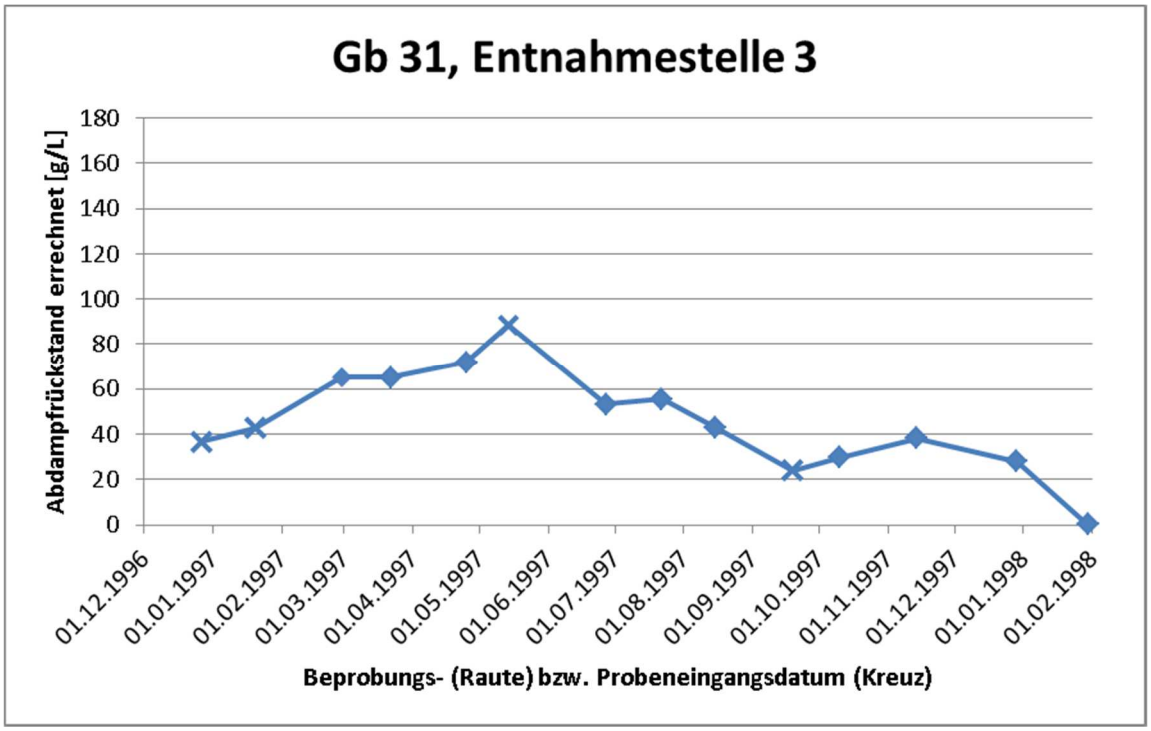


Abb. A6-15: Zeitlicher Verlauf des Abdampfrückstandes der Entnahmestelle 3, Gb 31 (Datengrundlage: RAG)

ANHANG 7

Tab. A7-1: Beschreibungen der Betriebsstörungen (Datengrundlage: Abschlussberichte und Sachstandsberichte der RAG

Datum	Abbau-betrieb	Ort des Störfalls	Volumen des Material-austritts	Material-beschaffenheit	Art und Ursache des Störfalls	Maßnahmen zur Behebung des Störfalls
01.07.93	Gb 2	-760 m Sohle, ca. 100 m von Schacht Grillo 4 entfernt	ca. 3 – 5 m³ Materialaustritte während der Störfallbehebung	Feststoff- Wasser-Gemisch (100% HMVA Iserlohn)	1) Undichtigkeit am Flanschanschluss der Berstscheibe 2) Wiederaufnahme des Pumpbetriebs nach Austausch des Rohrstücks und des Rohrleitungsinhalts (Austausch mit Gemisch aus RAA, HMVA Würzburg und Wasser) durch Viskositätsanstieg nach längerer Pumppause aufgrund technischer Probleme nicht möglich	• Austausch des Rohrstücks und zweimaliger Austausch des Rohrleitungsinhalts (beim zweiten Austausch wurde das Material durch ein RAA-Wasser-Gemisch ersetzt) • Materialaustritte wurden in Spezialcontainern aufgefangen und dem Verarbeitungsprozess erneut zugeführt • An 4 Stellen konnten die Materialaustritte nicht restlos entfernt werden. Diese Bereiche wurden durch Torkretieren versiegelt
09.08.93	Gb 2	schwerpumpbarer Bereich in der Kopfstrecke Grimberg 1/2	kein Material-austritt	Feststoff-Wasser-Gemisch (90% MVA Würzburg, 10% RAA) und RAA-Gemisch	Wiederaufnahme d. Pumpbetriebs nach Pumpunterbrechung durch Viskositäts-anstieg nicht möglich	• Abschnittsweises Abpumpen des Rohrleitungsinhalts • Rohrleitungsinhalt wurde in den Bruchhohlraum gepumpt
04.11.93	Gb 2	Kopfstrecke Gb 2, in der Nähe des Strebeingangs; Schlepprohr 6	ca. 2 m³	Feststoff-Wasser-Gemisch (50% MVA, 50% RAA)	Druckabfall in der Rohrleitung durch Ansprechen der Berstscheibe	• Einstellung des Pumpbetriebs • Ordnungsgemäße Entsorgung des Austrittvolumens mittels Spezialcontainern
10.11.94	Gb 16	-760 m Sohle, Bereich Schacht Grillo 4	kein Material-austritt	Feststoff-Wasser-Gemisch (80% HMVA Hamm, 20% RAA)	• Druckanstieg in der Rohrleitung • Viskositätsanstieg durch unvollständige Aufmischung des RAA-Schlamms → Ausfall zweier Messerköpfe im Mischer	• Abpumpen des Rohrleitungsinhalts • Abgepumptes Material wurde dem Verarbeitungsprozess erneut zugeführt
19.05.95	Gb 17	Bereich der Bandstrecke Gb 16 bis zum Streb Gb 17, Bereich südliche Basis Baufeld Gb E1 und südliche Basis Gb Baufeld E2	kein Material-austritt	Feststoff-Wasser-Gemisch (35% KVA Hoechst, 35% HMVA Essen, 30% RAA)	Wiederaufnahme d. Pumpbetriebs nach Pumpunterbrechung durch Viskositäts-anstieg nicht möglich	• Abschnittsweises Abpumpen des Rohrleitungsinhalts • Nicht mehr pumpfähiges Material wurde in Spezialcontainern aufgefangen und dem Verarbeitungsprozess erneut zugeführt
19.06.95	Gb 17	Bereich der Bandstrecke Gb 1	kein Material-austritt	Feststoff-Wasser-Gemisch (80% KVA Bonn, 20% RAA)	Druckanstieg in der Rohrleitung durch Viskositätszunahme	Abschnittsweises Abpumpen des Rohrleitungsinhalts und Auffangen in Spezialcontainern

ANHANG 8

Tab. A8-1: Analysen der untersuchten Gesteine von Wedewardt (1995).

Probenbezeichung	Einheit	Sandstein (Oberkarbon)	Sandschiefer (Oberkarbon)	Tonmergelgestein (Emscher Mergel)	Kalkstein (Oberturon)	Kalkstein (Mittelturon)	Sandstein (Bochum Grünsand)	Kalkstein (Turon)	Sandstein (Essen Grünsand)
Glühverlust 500°	%	1,2	4,2	3,1	4,3	0,4	2	1,5	4,8
Glühverlust 1000°	%	2,9	8,2	21,8	27,4	39,5	12,3	28,9	9,8
F	%	<0,02	0,04	0,05	0,06	0,02	0,14	0,03	0,09
Br	%	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02
J	%	<0,001	<0,001	0,003	0,003	0,003	0,01	0,018	<0,001
S	%	<0,01	<0,01	<0,01	0,02	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01
CO3	%	0,22	1,83	18,4	23	35,4	7	27,7	2,71
Si	%	37,4	30	22,5	19,4	7	28,4	10,1	28,5
Al	%	5,5	10,3	5	3,6	1	2,2	3,2	2,9
Fe	%	2	4,6	2,7	1,7	0,6	7,3	2	10,5
Na	%	1,1	0,7	0,5	0,4	0,1	0,2	0,2	0,2
K	%	1,8	2,6	1,6	1,2	0,2	3,8	1,2	4,2
Ca	%	0,1	0,2	23,2	40	47,2	11,1	58,3	4,9
Mg	%	0,4	1	0,8	0,6	0,3	1,3	0,9	1,6
Sr	mg/kg	79	113	1.400	1.500	934	364	707	264
Ba	mg/kg	210	309	472	840	182	164	180	193
B	mg/kg	34	83	6.700	305	146	222	97	5.225
Cl	mg/kg	1.190	896	696	962	1.200	698	309	665
SO4	mg/kg	43	258	983	909	456	568	988	592

Probenbezeichung	Einheit	Sandstein (Oberkarbon)	Sandschiefer (Oberkarbon)	Tonmergelgestein (Emscher Mergel)	Kalkstein (Oberturon)	Kalkstein (Mittelturon)	Sandstein (Bochum Grünsand)	Kalkstein (Turon)	Sandstein (Essen Grünsand)
As	mg/kg	2	6	10	6	<1	4	1	18
Cd	mg/kg	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Cr	mg/kg	32	97	54	37	8	61	25	109
Cu	mg/kg	7	37	15	10	5	4	7	5
Hg	mg/kg	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1
Li	mg/kg	16	76	30	24	8	50	23	54
Mn	mg/kg	400	624	200	191	172	102	322	234
Mo	mg/kg	<1	1	2	<1	<1	<1	<1	<1
Ni	mg/kg	15	47	27	32	6	27	16	44
Pb	mg/kg	7	19	17	12	3	5	6	22
Se	mg/kg	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
V	mg/kg	38	122	83	50	11	80	41	170
Zn	mg/kg	41	112	80	41	12	52	25	60

[redacted]

GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCHHOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 4:

Modellierung anorganisch-hydrogeochemischer Prozesse und des Stofffreisetzungspotentials der Schwermetalle in der Bruchhohlraumverfüllung

Univ.-Prof. Dr. habil. [redacted]

Abgabe April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen (Dr. [redacted])

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof. Dr. [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau,
RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum: 16.07.2015

INHALT

0 Vorbemerkung 1

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1

0.2 Untersuchungsraum 2

1 Aufgabenstellung 4

2 Basis der damaligen Entscheidungen 10

3 Vorbemerkung 12

4 Art der für die Grundannahmen berücksichtigten anorganischen Stoffe und die aus Laborversuchen zur Schadstofffreisetzung aus den Rückständen hergeleiteten Grundannahmen der Basisgutachten 18

4.1 'Kernaussagen/Grundannahmen' 18

4.2 Bewertende Stellungnahme zu den ‚Kernaussagen bzw. Grundannahmen' mit einer Risikoeinschätzung in der ‚Gesamtsicht' 25

5 Semi-generische, chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeo-chemische Gleichgewichtsmodellierungen zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern 42

5.1 Löslichkeit einzelner Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit 46

5.2 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefen-grundwasser semi-generischer Beschaffenheit 50

5.3 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefen-grundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen 53

5.4 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefen-grundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtgung potentieller sekundärer Phasen und eines zunehmenden Wasser-zu-Feststoff-Verhältnisses 58

5.5 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefen-grundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung von Bleiphasen 69

5.6 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefen-grundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung von Bleiphasen und Mineralphasen der verstürzten Nebengesteine des Karbons 76

5.7 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs 84

5.7.1 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs – ‚RAG-Wasser' als semi-generisches Tiefen-grundwasser 84

5.7.2 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' – ‚RAG-Wasser' als semi-generisches Tiefengrundwasser und Zinkphasen als Bestandteile der mineralischen Rückstände 127

5.7.3 PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffrei-setzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms' 158

5.7.4 PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol': Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen und Modellerweiterungen 196

5.7.5 Einbeziehung von Cadmium und Quecksilber 209

5.7.6 Fazit aus den PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms' 213

6 Das Geosystem, soweit es für die Standort-unabhängige Beschreibung von Stofffreisetzungspotentialen relevant ist 217

6.1 Grundannahmen zum Geosystem 217

6.2 Bewertende Stellungnahme zu den Grundannahmen zum Geo-system 218

7 Die aus Laboruntersuchungen zur Ermittlung des Sorptionsverhaltens der Schwermetalle hergeleiteten ‚Grundannahmen und Kernaussagen' und deren Bewertung 220

8 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen in den Teilen des Geosystems und die Abbildung dieser Prozesse in den Modellen des Langzeitsicherheit-Tools 223

8.1 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen in den Porenräumen der versetzten Rückstände bei der Stofffreisetzung 223

8.2 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen bei der Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' 223

9 Für weitere Detailberichte anderer Projektarbeitsgruppen bereitgestellte Sachverhalte, Überlegungen und Einschätzungen 224

9.1 Chemische Beschaffenheit der Tiefengrundwässer im ‚Nahfeld' im Hinblick auf die Bewertung einer ‚immissionsneutralen Ablagerung' sowie auf eine Abgrenzung der chemischen Beschaffenheit der Tiefengrundwässer von der Beschaffenheit von Porenwässern, die aus den versetzten Rückständen in die Tiefengrundwässer des ‚Nahfelds' übertreten können 224

9.2 Bedeutung geohydraulischer Modellierungen für den Nachweis eines „vollständigen Einschlusses" der Rückstände und ihrer Stoffausträge aus den BHV-Bereichen 226

ABBILDUNGEN:

Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens 1

Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG) 3

Abb. 3: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_EinzelnePhasen' (mol/kgw) In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; der Stoffumsatz an Quarz und Calcit ist kleiner als 10^{-6} mol/kgw 49

Abb. 4: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' (mol/kgw) In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; oder die angegebene Molmenge bildet sich neu; Auflösung: mit negativen Stoffumsätzen; Neu-Bildung (Ausfällung): mit positiven Stoffumsätzen 52

Abb. 5: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' (mol/kgw) In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; oder die angegebene Molmenge bildet sich neu; Auflösung: mit negativen Stoffumsätzen; Neu-Bildung (Ausfällung): mit positiven Stoffumsätzen 57

Abb. 6: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an Quarz, Anhydrit und Gips sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. 65

Abb. 7: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses. Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Portlandit und Brucit sowie der

zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde (vgl. auch Abb. 6). 66

Abb. 8: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Portlandit und Brucit sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. 67

Abb. 9: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Massen an Wasser sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. 68

Abb. 10: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol. 73

Abb. 11: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol. 74

Abb. 12: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Blei-Konzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. mg/kgw: Milligramm pro Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser; nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw. 75

Abb. 13: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen (nähere Erläuterungen in der Tabelle 7) sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol (vgl. Abbildung 10) 81

Abb. 14: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Blei-Konzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw. 82

Abb. 15: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚500 Jahre'** 97

Abb. 16: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚1.000 Jahre'** 98

Abb. 17: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' -Zeitschritt **‚2.000 Jahre'** 99

Abb. 18: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** 100

Abb. 19: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚4.000 Jahre'** 101

Abb. 20: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚5.000 Jahre'** 102

Abb. 21: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** 103

Abb. 22: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚7.000 Jahre'** 104

Abb. 23: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'- Zeitschritt **‚8.000 Jahre'** 105

Abb. 24: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** 106

Abb. 25: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚500 Jahre'** 111

Abb. 26: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** 112

Abb. 27: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** 113

Abb. 28: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschnitt

‚500 Jahre' berechnete Verteilung der Bariumkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen 116

Abb. 29: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'- Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** 117

Abb. 30: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' - Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** 118

Abb. 31: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' Dargestellt sind die jeweiligen Massen an H_2O in den Zellen (Zelle_50: mittig in dem BHV; Zelle_44: am oberen Rand des BHV; Zelle_40: im unmittelbaren, abstromigen ‚Nahfeld' gegen die Zahl der Porenwasseraustausche in der ersten Zelle. 121

Abb. 32: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Zinkphasen (nähere Erläuterungen in der Tabelle 9) sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol. 132

Abb. 33: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Zink- und Bleikonzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw. 133

Abb. 34: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'- Zeitschritt **‚500 Jahre'** 144

Abb. 35: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines

Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚1.000 Jahre'** 145

Abb. 36: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'- Zeitschritt **‚2.000 Jahre'** 146

Abb. 37: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** 147

Abb. 38: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚4.000 Jahre'** 148

Abb. 39: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'- Zeitschritt **‚5.000 Jahre'** 149

Abb. 40: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** 150

Abb. 41: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'- Zeitschritt **‚7.000 Jahre'** 151

Abb. 42: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚8.000 Jahre'** 152

Abb. 43: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn' - Zeitschritt **‚9.000 Jahre'** 153

Abb. 44: Prinzipskizze zum Aufbau des BHV-Bereichs Das konzeptionelle Modell vereinfacht diesen inhomogenen Aufbau. 161

Abb. 45: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10' 186

Abb. 46: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 25.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_25' 187

Abb. 47: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 50.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche.

Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_50' 188

Abb. 48: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 100.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_100' 189

Abb. 49: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 15.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche und der entsprechenden Zeit (34 Jahre für einen Porenwasseraustausch). Eingabedatei „1D_15_34_Standard" 195

Abb. 50: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚halbierter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX0.5') 198

Abb. 51: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚auf ein Zehntel verminderter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX0.1') 200

Abb. 52: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX10') 201

Abb. 53: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚1,0 mol Kationenaustauschkapazität'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10KA') 203

Abb. 54: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs dargestellt (Modellierungsszenario ‚10,0 mol Kationenaustauschkapazität'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10KA10') 204

Abb. 55: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚mit Surface_Complexation'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10SC') 205

Abb. 56: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚mit calcitischen/sulfatischen RAA-Schlämmen'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10RAA') 207

Abb. 57: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚Verdünnt'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10_VerdZ2_B') 209

Abb. 58: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink-, Blei- und Cadmiumkonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von Anzahl der Porenwasseraustausche (Eingabedateien ‚1D_AdvektionDiffusion_10' und ‚1D_AdvektionDiffusion_10_Cd') 211

Abb. 59: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink-, Blei- und Cadmiumkonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs. Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat' 212

TABELLEN:

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten 2

Tab. 2: Batchmodell ‚Batch_EinzelnePhasen' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' einzelner Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung 47

Tab. 3: Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung 50

Tab. 4: Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen 54

Tab. 5: Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses 60

Tab. 6: Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Blei-Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses 69

Tab. 7: Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen, primärer Phasen verstürzter Nebengesteine und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses 77

Tab. 8: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons (‚1D_AdvektionDiffusion'). 85

Tab. 9: Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen, primärer Phasen verstürzter Nebengesteine und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses 128

Tab. 10: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons (‚1D_AdvektionDiffusion_Zn '). 135

Tab. 11: Tabellarischer Überblick über die geohydraulischen Parameter für den zu modellierende BHV-Bereich (*: noch zu definieren) 167

Tab. 12: Tabellarischer Überblick über den Aufbau des hydrogeochemischen 1D-Stofftransportmodells mit den geohydraulischen Parametern für den BHV-Bereich Alle Angaben gelten für die gesamte BHV-Modell-Fließstrecke, für eine räumlich homogene Verteilung und ohne zeitliche Änderung. Berechnet wird der advektiv-diffusive Stofftransport. 169

Tab. 13: Tabellarischer Überblick über die hydrogeochemischen Parameter für den zu modellierenden BHV-Bereich
Alle Angaben gelten für den gesamten BHV-Bereich und für eine räumlich homogene Verteilung. 172

Tab. 14: Tabellarischer Überblick über den Aufbau des hydrogeochemischen 1D-Stofftransportmodells mit den hydrogeochemischen Parametern Alle Angaben gelten für die gesamte BHV-Modell-Fließstrecke und für eine räumlich homogene Verteilung. Innerhalb eines Zeitschritts von 10 Jahren stellt sich für alle beteiligten das chemische Gleichgewicht so ein, wie es durch die chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten vorgegeben ist.
(*: Die vollständige Herleitung dazu findet sich im Text.) 174

Tab. 15: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für die Stofffreisetzung im BHV-Bereich und den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen auf einer Fließstrecke von 10 Metern durch diesen BHV-Bereich (Kommentierte Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10') 180

Tab. 16: ‚Quellterm' (ausschnittsweise) für die Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich N: Anzahl der Porenwasseraustausche der gesamten Fließstrecke; WFVkum: Kumulierte Wasser/Feststoff-Verhältnis; Konzentrationsangaben in mol/kgw, falls nicht anders angegeben Zusätzlich angegeben, hier jedoch als Platzgründen nicht dargestellt, sind neben den Konzentrationen von Lithium (Tracer), Blei und Zink die Konzentrationen von Aluminium, Barium, Karbonatkohlenstoff, Calcium, Chlorid, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat, Sulfid, Silizium, und Sr sowie der pe-Wert. 185

Tab. 17: Eingabedatei 1D_15_34_Standard 190

Tab. 18: Der mit der Eingabedatei „1D_15_34_Standard“ für das Standardszenario berechnete Quellterm (auszugsweise mit dem beginnenden Konzentration-Peak von Zn) N: Anzahl der Porenwasseraustausche der gesamten Fließstrecke von 15 Meter; Konzentrationsangaben in mol/kgw, falls nicht anders angegeben. Zusätzlich angegeben, hier jedoch als Platzgründen nicht dargestellt, sind neben den Konzentrationen von Lithium (Tracer), Blei und Zink die Konzentrationen von Aluminium, Barium, Karbonatkohlenstoff, Calcium, Chlorid, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat, Sulfid, Silizium, und Sr sowie der pe-Wert. 194

0 Vorbemerkung

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die ahu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte die in der Abb. 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z.T. über die in der Abb. 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

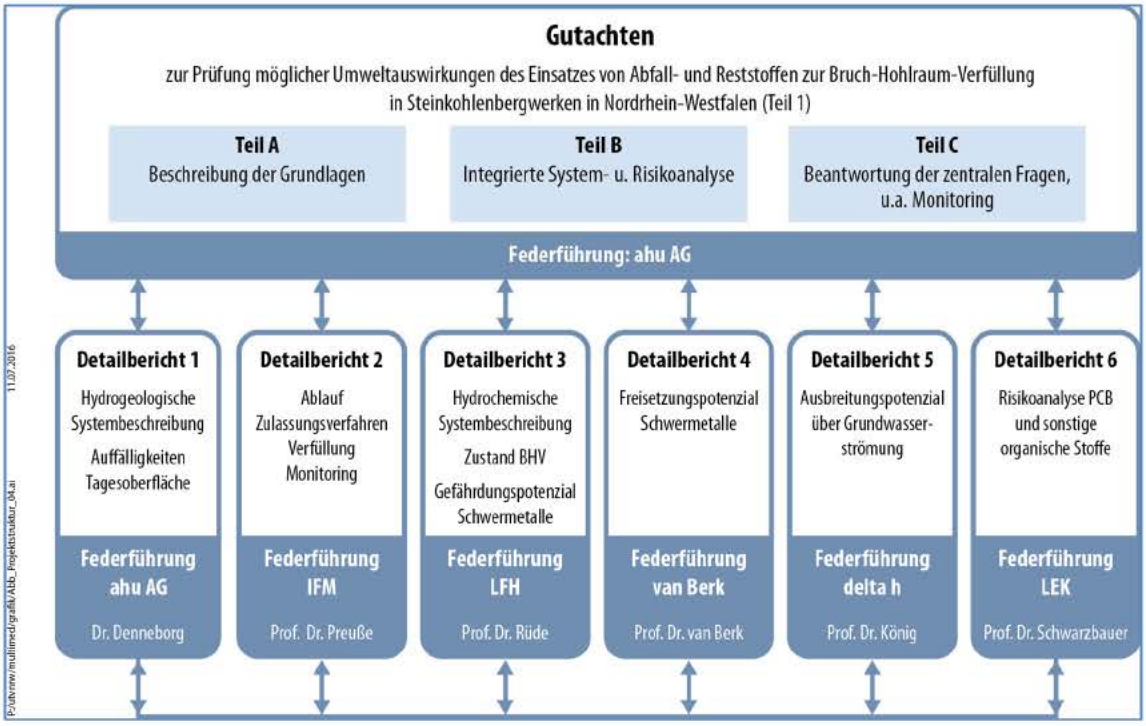


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u.a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten

Nr	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter / Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulassungs-verfahrens, der Bruch-hohlraumverfüllung und des Monitorings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahren und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfüllung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungspotential 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof. [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof. [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 4.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (private landwirtschaftliche Flächen westlich von Bergkamen) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abb. 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgt in einer Tiefe zwischen -800 mNHN und -920 mNHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind

noch zugänglich. Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

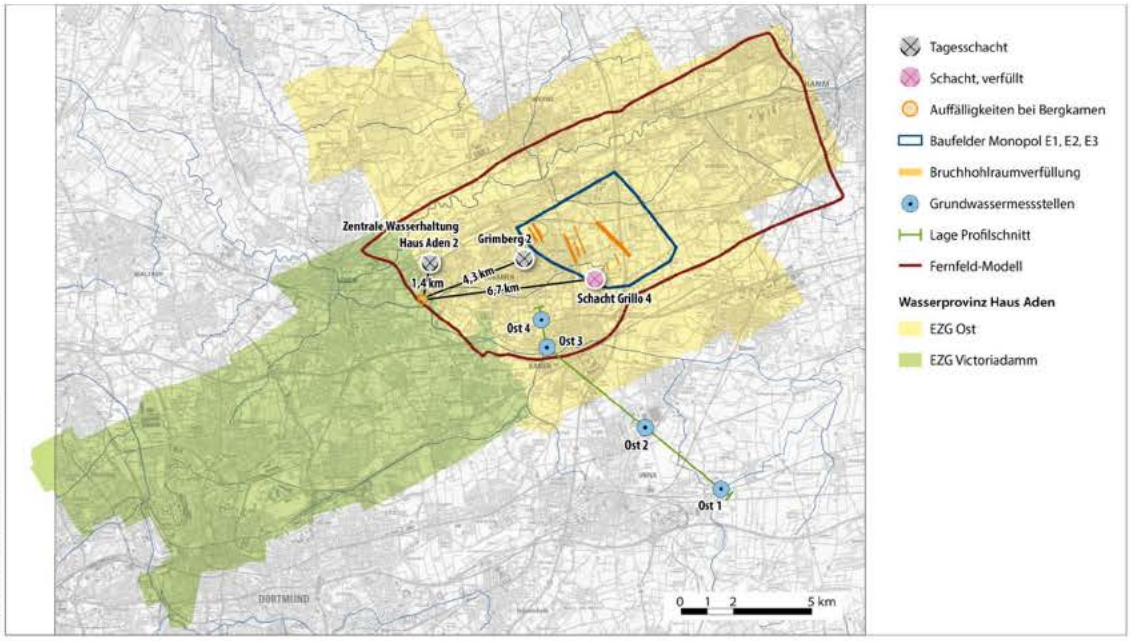


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 Aufgabenstellung

Die Grundannahmen bzw. Kernaussagen der sogenannten ‚Basisgutachten' zum Freisetzungspotential anorganischer Stoffe aus bergbaufremden Abfall- und Reststoffen (kurz: Reststoffe), welche die Basis der damaligen Entscheidungen zur Verbringung solcher Rückstände[1] in Grubenräume des Steinkohlebergbaus im Rheinisch-Westfälischen Revier (Bruchhohlraumversatz-Bereiche; kurz: BHV-Bereiche[2]) gewesen sind, sollen dargestellt und aus heutiger fachlicher Sicht bewertet werden.

Mit einer auf die Langzeitsicherheit[3] ausgerichteten Sichtweise wird der Bericht darüber hinaus – auf dem Stand der Wissenschaft – die hydrogeochemischen Prozesse beschreiben, die bei der Wechselwirkung zwischen den versetzten rückstandsbürtigen mineralischen Stoffen und den Tiefengrundwässern ausgelöst werden. Diese wurden von den ‚Basisgutachten' nicht explizit benannt und beschrieben. Es sind solche Prozesse, welche die Freisetzung der in diesem Zusammenhang relevanten Schwermetalle Blei, Zink und Cadmium kontrollieren.

Insofern ist dieser Bericht eine zentrale Grundlage für die spätere Risikoabschätzung, da zentrale Grundannahmen/Kernaussagen der ‚Basisgutachten' bewertet werden – auf der Basis von Methoden, die dem derzeitigen Stand der Wissenschaft entsprechen und quantitative Aussagen zur Freisetzung relevanter anorganischer Stoffe ermöglichen.

Die mit den ‚Basisgutachten' erbrachten Beiträge der damals (1991 bzw. 1998) an den ‚Basisgutachten' beteiligten Wissenschaftler zum damaligen Stand und zur Weiterentwicklung der wissenschaftlichen Erkenntnisse zum Thema ‚Freisetzungspotential anorganischer Stoffe aus bergbaufremden Rückständen und deren Mobilität im Nahfeld' sollen durch diese einseitig kritische Sichtweise und Wertung keineswegs geschmälert werden.

Der Teil 1 des Gutachtens bezieht sich auf die Bewertung des BHV im Bergwerk (BW) ‚Haus Aden/Monopol' gemäß dem Prinzip des vollständigen Einschlusses[4].

---

[1] Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen, Rückstandsgemische aus Müllverbrennungsanlagen und Flugaschen aus Steinkohlenfeuerungsanlage. Auf Rückstände aus der Lack- und Ölschlammverbrennung, auf Gießereialtsande, auf Strahlmittelrückstände und Gipsschlämme wird hier nicht eingegangen.

[2] Dazu gehören auch die verstürzten Nebengesteine der ausgekohlten Flöze.

[3] Die ‚Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen – Kurzfassung - reproduzierte Fassung (1991)' nennt in diesem Zusammenhang Zeiträume von mehr als Zehntausend Jahren. In dem hier vorliegenden Bericht sind damit Zeiträume in der Größenordnung von einigem Zehner bis zu einigen Tausend Jahren gemeint. Damit grenzt sich der Bericht von den Kurzzeit-Laborversuchen der ‚Basisgutachten' ab, mit denen das Stoffaustragsverhalten der Reststoffe über Zeiträume von meistens weniger als einigen Tagen bis Wochen untersucht wurde.

[4] Die Forderung danach, „die Abfälle und deren Stoffausträge von der Biosphäre weitgehend und dauerhaft fernzuhalten (Prinzip des dauerhaften Einschlusses)" entspricht dem Sicherheitsprinzip 4.1 ‚… Schadstoffe in den Abfällen müssen im einschlusswirksamen Gebirgsbereich konzentriert und eingeschlossen und damit möglichst lange von der Biosphäre ferngehalten werden', wie es in den ‚Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle' (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit; 2010) vorgegeben ist. Das Prinzip

„Das Prinzip des vollständigen Einschlusses erfordert, dass die in dem Versatzmaterial enthaltenen Schadstoffe dauerhaft unter Tage eingeschlossen und auf diese Weise von der Biosphäre[5] ferngehalten werden, so dass ihre Rückkehr zur Biosphäre nicht zu erwarten ist. Dies setzt voraus, dass sich eine möglichst vollständige Abschirmung des Versatzmaterials gegenüber dem Grundwasser (Lösungen und Laugen) erreichen lässt und ein Transport von Schadstoffen bis in die Biosphäre verhindert wird (LAB 1996)“.

Als zentrale Aufgabe zum Themenbereich ‚Stofffreisetzungspotential‘ sind den in den ‚Basisgutachten‘ dargelegten Grundannahmen zu den hydrogeochemischen Kurzzeit-Prozessen solche Argumente und Berechnungsergebnisse gegenübergestellt, mit denen sich die chemisch-thermodynamisch unabwendbare, langfristige Entwicklung[6] des Stofffreisetzungsverhaltens und der hydrogeochemischen Stabilität der bergbaufremden Rückstände in BHV-Bereichen einschätzen lässt.

Auf dem heutigen Stand der Wissenschaft werden dazu ausschließlich die in den ‚Basisgutachten‘ dokumentierten Daten und Informationen genutzt. Mit diesen Daten und Informationen werden semi-generische[7], chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichts- und Stofftransportmodelle zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern aufgebaut.

---

der „immissionsneutralen Ablagerung“ findet möglicherweise seine Entsprechung im Sicherheitsprinzip 4.2 ‚… dass Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus dem Endlager langfristig die aus der natürlichen Strahlenexposition resultierenden Risiken nur sehr wenig erhöhen“.

[5] Der Begriff ‚Biosphäre‘ ist im Kontext mit BHV-Maßnahmen nicht definiert. Wenn unter ‚Biosphäre‘ das oberflächennahe, nutzbare Grundwasser (Quartär, oberer Bereich der Kreide, Chloridkonzentrationen ca. 1.000 mg/l) verstanden wird, wird durch das Halten eines Grubenwasserstandes bei -600 mNHN, und damit noch unterhalb der Basis des Deckgebirges, nur über die Grubenwasserhebung und Einleitung in die Lippe ein hydraulischer Kontakt mit der ‚Biosphäre‘ hergestellt. Wenn unter ‚Biosphäre‘ auch das die BHV-Bereiche umgebende Karbon verstanden wird, ist diese Aussage dahingehend zu relativieren, das vor allem nach dem Zusammenbruch pH-Barriere in den BHV-Bereichen – mit dem Nachlassen der durch die versetzten Stoff ausgelösten, pH-erhöhenden Wirkung – eine langandauernde Freisetzung von Schwermetallen (Blei, Zink und Cadmium) in der Konzentrationsgrößenordnung von – in der Spitze – einigen Zehner mg/L erfolgt.

[6] Über einen Zeitraum von einigen Zehner bis zu einigen Tausend Jahren. Aus nahe liegendem Grund existieren dazu keine empirischen, beispielsweise aus Laborversuchen hergeleiteten Erkenntnisse aus den ‚Basisgutachten‘.

[7] Semi-generische Modelle sind vereinfachte Abbildungen realer Systeme, die in dieser Ausprägung ihrer Parameter zwar nicht konkret und Standort-bezogen existieren aber die wesentlichen Charakteristika und Parameter realitätsnah berücksichtigen.

Heutige und damalige Möglichkeiten der chemisch-thermodnamisch basierten Modellierung

Die hier im Bericht eingesetzten chemisch-thermodynamisch basierten, hydrogeochemischen Gleichgewichts- und Stofftransportmodelle zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern nutzen das Rechenprogramm PHREEQC des U.S. Geological Survey. Dessen Version 1.0 ist seit 1995 verfügbar, war aber nicht geeignet, den `Basisgutachtern' solche komplexen 1D-Stofftransportmodellierungen zu ermöglichen, wie sie für diesen Bericht durchgeführt wurden und notwendig sind. Zwar existierten in der Zeit, in der die ‚Basisgutachten' erarbeitet wurden, andere Modellierungswerkzeuge wie GEOCHEM (seit 1987) oder EQ6 seit (1979), doch waren auch diese Werkzeuge zur Zeit der Erarbeitung der ‚Basisgutachten' nicht nutzbar, um komplexe 1D-Stofftransportmodellierungen zu den hydrogeochemischen Stofftransportprozessen bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern zu berechnen.

Zwar wird in den ‚Basisgutachten' mehrfach darauf verwiesen, dass chemisch-thermodynamisch kontrollierte Löslichkeitsgleichgewichte zwischen Feststoffphasen und wässrigen Lösungen sowie andere Gleichgewichtsreaktionen der aquatischen Speziesverteilung die Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen bzw. das physikalisch-chemischen Verhalten der Rückstände bei deren Elution bzw. Auslaugung steuern können: „Das Szenario von Auflösung und Ausfällung von Stoffen wird von den element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften sowie von dem, auch durch die Zusammensetzung des Stoffgemischs selbst bedingten, chemischen Milieu der Lösungsphase und den Wechselwirkungen zwischen den gelösten Ionen und der Festsubstanz, Kontaktfläche, Kontaktzeit usw. bestimmt". „Alle theoretischen Beschreibungen dieser Reaktionen stellen durch die Reduzierung auf wenige Teilaspekte und Elemente immer Vereinfachungen gegenüber den komplexen realen Systemen dar, und können somit lediglich Anhaltspunkte zur Interpretation von Lösungsreaktionen bieten." Möglicherweise deshalb werden diese Erkenntnisse (zur „Auflösung und Ausfällung von Stoffen" und deren „element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften") in den ‚Basisgutachten' nicht zu quantitativen Aussagen, und zu praktisch nutzbaren Ergebnissen umgesetzt – insbesondere hinsichtlich langfristiger Entwicklungen der Stofffreisetzung. Das ist umso bemerkenswerter, da in den ‚Basisgutachten' selbst hinsichtlich der damit erarbeiteten, rein empirisch ermittelten Ergebnisse klar dargestellt wird, dass die angewandten „üblichen Labormethoden" (zur Einschätzung des Freisetzungspotentials bestimmter Stoffe durch kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuche), „seien es Batch- oder Perkolationsversuche mit hohen hydraulischen Gradienten und kurzen Reaktionszeiten, die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können. Hierzu sind sicherlich noch weitere Forschungsarbeiten sinnvoll und notwendig."

Rückblickend ist in diesem Zusammenhang festzustellen: Die zur Zeit der Erarbeitung der ‚Basisgutachten' zur Verfügung stehenden Modellierungswerkzeuge hätten von den ‚Basisgutachtern' genutzt werden können, um einfachste ‚Becherglas-/batch-Modelle' (nicht jedoch 1D-Stofftransportmodelle) zu rechnen, um so erstes aber grundlegendes Prozessverständnis zu erarbeiten.

„…": Wörtliche Zitate aus den ‚Basisgutachten'.

Die Ergebnisse solcher 1D-Stofftransportmodellierungen mit PHREEQC werden für den vorliegenden Bericht genutzt, um einen semi-generischen ‚Quellterm' zu errechnen, mit dem auf chemisch-thermodynamischer Grundlage abgeschätzt werden kann, wie sich die Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' bei dessen Durchströmung mit Tiefengrundwässern in der Zeit entwickeln wird und welche Stoffausträge dabei aus dem BHV-Bereich zu erwarten sind.

Für die Modellierungen zum BW ‚Haus Aden/Monopol' wird als Tiefengrundwasser ein in dieser Tiefe im BW ‚Haus Aden/Monopol' gemessenes Wasser verwendet (‚Wedewardt Z2 Wasser'). In Modellierungen, die als Vorstudien den Modellierungen zum BW ‚Haus Aden/Monopol' vorlaufend durchgeführt wurden, um allgemeines Prozessverständnis zu erarbeiten, wurde das sogenannte ‚RAG-Wasser' eingesetzt.

Als ‚Quellterm' für die numerische Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nahfeld' und ‚Fernfeld' des BHV-Bereichs, die vom Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft durchgeführt wird (s. Detailbericht 5), wird diejenige chemische Zusammensetzung des Porenwassers angegeben, die nach einer bestimmten Anzahl von Porenwasseraustauschen (PWA) am Ende der Fließstrecken des Tiefengrundwassers/Porenwassers durch den BHV-Bereich auftreten. Für die jeweils letzte Zelle auf den Fließstrecken des Tiefengrundwassers (zwischen 10 und 100 Meter Fließstrecke) als Porenwasser durch den BHV-Körper, aus dem dieses Porenwasser in den Grundwasserraum des unmittelbaren Nahfeldes übertreten wird, wird angegeben:

- die jeweilige Anzahl der Porenwasseraustausche N [-] (für PWA) im gesamten BHV-Bereich

- das dementsprechende kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) im gesamten BHV-Bereich, das sich mit der Anzahl der Porenwasseraustausche N kontinuierlich erhöht (weil kumuliert immer mehr Porenwasser durch den BHV-Bereich geströmt ist) und

- für die jeweilige Anzahl der Porenwasseraustausche N und das kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) die berechnete chemische Zusammensetzung des Porenwassers – einschließlich der pH-Werte und der Blei-der Zink- und der Cadmiumkonzentrationen.

Eine konkrete Zeit, über die sich das Stoffaustragsverhlten des BHV-Bereichs entwickelt, kann mit den hier durchgeführten PHREEQC 1D-Stofftransportmodellierungen nicht angegeben werden, da die einzelnen PWA nicht immer gleich lang sind. Zu Beginn – in der instationären Flutungsphase – dauert ein PWA der BHV-Bereiche nur wenige Wochen, da noch ein sehr hohes hydraulisches Gefälle zwischen dem bereits gefluteten Grubengebäude und dem BHV-Bereich besteht. Wenn sich stationäre Strömungsverhältnisse eingestellt haben, ist das hydraulische Gefälle wesentlich kleiner, und der einzelne PWA dauert wesentlich länger (Mittelwert 34 Jahre).

Der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft hat mit seinen Modellierungen zur instationären und 3D-Strömung des Tiefengrundwassers konkrete Abstandsgeschwindigkeiten berechnet. Damit ist es möglich, den PWA konkrete Zeitachsen zuzuordnen.

Bei ihren numerischen Modellierungen des sorptions-kontrollierten Stofftransports und für den Langzeitsicherheitsnachweis berücksichtigten die ‚Basisgutachten' die Schwermetalle Blei, Zink, Cadmium und Quecksilber. ‚Quellterme' für die numerischen Modellierungen des sorptions-kontrollierten Stofftransports, werden von der GRS lediglich für die Schwermetalle Blei, Zink und Cadmium angegeben. Diese Elemente stellen mit ca. 1.700 t auch die Hauptmasse der verbrachten Schwermetalle im BW ‚Haus Aden/Monopol' dar (Detailbericht 3).

Mit folgenden Parametern ist das Stofffreisetzungsverhalten der Reststoff-bürtigen Mineralphasen in den BHV-Bereichen des BW ‚Haus Aden/Monopol' bei den durchgeführten 1D-Stofftransportmodellierungen quantifiziert und als ‚Quellterm' an delta h übergeben worden

- der pH-Wert
- die Konzentrationen von Zink, Blei und Cadmium sowie
- die Konzentrationen von Aluminium, Barium, Carbonat-Kohlenstoff, Calcium, Chlorid, Eisen, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat- und Sulfid-Schwefel, Silizium und Strontium.

Für weitere Parameter bzw. Stoffe (z.B. weitere Schwermetallkonzentrationen) kann im Rahmen dieser Begutachtung kein ausreichend abgesichertes konzeptionelles Modell aufgebaut werden – als Grundlage für eine chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichts- und Stofftransportmodellierung zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern. Welche Stoffe hier relevant sein können, wird im Kapitel 5.7.5 beschreiben.

Falls weitere Parameter betrachtet werden sollten, wären folgende Informationen erforderlich:

- Art der chemisch-mineralogischen Bindungsform dieser Elemente in den Reststoffen

  Liegen sie primär, vor dem Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser z.B. als Karbonate vor, als Hydroxide, als Sulfate, als Chloride, als Hydroxo-Karbonate, als Hydroxo-Sulfate, als Hydroxo-Chloride vor; sind sie lediglich sorptiv an die Mineralphasen der Hauptbestandteile gebunden oder bilden sie damit Mischphasen?

- Jeweiligen Menge, mit der sie (in der unbekannten Bindungsform) im Reststoff-bürtigen Mineralphasengemisch vorhanden sind

- Jeweilige Art der chemisch-mineralogischen Bindungsform dieser Elemente, die sich bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern bilden können (potentielle sekundäre Phasen).

Der hier vorliegende Bericht wird einzelne der in den ‚Basisgutachten' dargelegten Sachverhalte und Aussagen[8] (‚Kernaussagen' bzw. ‚Grundannahmen')

- zur Stofffreisetzung aus den verbrachten bergbaufremden Rückständen in wässrige Eluate bzw. in die Tiefengrundwässer, welche die Hohlräume in den BHV-Bereichen füllen (Porenwässer) sowie

- zu den Stoffausträgen aus den mit Tiefengrundwässern/Porenwässern erfüllten Hohlräumen der BHV-Bereiche hinein in die Tiefengrundwässer des die BHV-Bereiche direkt umgebenden Gebirges (Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld')

darstellen und sie mit eigenen Überlegungen, Einschätzungen und chemisch-thermodynamisch basierten Modellierungen zu anorganisch-hydrogeochemischen Prozessen in diesem Geosystem konfrontieren.

[8] Wörtliche Zitate aus diesen ‚Basisgutachten' sind in „…" gesetzt. Um den Text dieses Berichts flüssig lesbar zu halten, wurde darauf verzichtet, auf jeweils einzelne dieser Quellen zu verweisen.

2 Basis der damaligen Entscheidungen

Die hier zu bewertenden ‚Kernaussagen/Grundannahmen' hinsichtlich anorganisch-hydrogeochemischer Prozesse der Stofffreisetzung und der Stoffausbreitung, welche die Basis der damaligen Entscheidungen bildeten sowie die Grundannahmen, auf die sich die Entwicklung eines Hilfsmittels zur Beurteilung der Sicherheit in der Langzeitphase (kurz: Langzeitsicherheits-Tool) stützt, sind in den folgend aufgeführten ‚Basisgutachten' dokumentiert.

Basis-Gutachten

- Machbarkeitsstudie: Jäger, B., Obermann, P. & F. L. Wilke (1990); Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall und Reststoffen; 3. Band: Kapitel III; 318 Seiten; im Auftrag des Landesamtes für Wasser und Abfall NRW, Düsseldorf.

- Kurzfassung der Machbarkeitsstudie: Jäger, B., Obermann, P. & F. L. Wilke (1990); Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen – Kurzfassung - reproduzierte Fassung; Herausgegeben vom Landesamt für Wasser und Abfall NRW, Düsseldorf.

- Abschlussbericht der DMT: DMT (1991); Verhalten von mobilisierten Schadstoffen in der Umgebung von Untertagedeponien; 170 Seiten. Zugänglich als DMT-Bericht aus Forschung und Entwicklung: Klinger, Ch. (1994); Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons; 170 Seiten; Bochum.

Hilfsmittel zur Beurteilung der Sicherheit in der Langzeitphase (Langzeitsicherheits-Tool; bei der Vorlage der GRS-Berichte war die BHV im BW ‚Haus Aden / Monopol' bereits abgeschlossen)

- GRS – 140: Baltes, B.; Hrsg., 1998; Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein. Abschlussbericht (Hauptband).

- GRS – 140/2: Baltes, B.; Hrsg., 1998; Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein. Abschlussbericht; Fachband 2; Geochemische Daten.

- GRS – 140/5: Baltes, B.; Hrsg., 1998; Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein. Abschlussbericht; Fachband 5; Methodenanwendung.

An der Erarbeitung dieser Grundannahmen waren folgende Fachleute aus unterschiedlichen Institutionen bzw. Unternehmen beteiligt:

- Prof. Dr. [redacted],
- Dipl.-Ing. [redacted],
- Prof. Dr. [redacted],
- Dipl.-Geol. [redacted],
- Prof. Dr. [redacted],
- Dipl.-Ing. [redacted],
- Dr. [redacted] und weitere Mitarbeiter der Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH/Köln,
- Dr. [redacted] und weitere Mitarbeiter der Deutschen Montan Technologie (DMT)/Essen,
- Prof. Dr. [redacted],
- Mitarbeiter der Ruhrkohle AG.

Nicht zu den mit dem vorliegenden Bericht zu bewertenden Basisgutachten gehört der GRS Bericht 182 (SODA; Datenbank zur Bestandsaufnahme und Bewertung geochemischer Informationen zum Verhalten von Abfallinhaltsstoffen im Deckgebirge einer UTD/UTV)[9]. Allerdings werden die damit vom ‚Basisgutachter' GRS vorgestellten wissenschaftlichen Ansätze, die in die Modellierung der GRS zur Stoffausbreitung eingehen, in diesem Bericht mit ihren ‚Kernaussagen/Grundannahmen' ebenfalls ausgewertet.

Zur Charakterisierung der Tiefengrundwässer, die in die mit dem vorliegenden Bericht erarbeiteten hydrogeochemischen Modellierungen zur Stofffreisetzung aus den BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' eingesetzt werden, sind für Tiefengrundwasseranalysen aus dem BW ‚Haus Aden/Monopol' (s. Detailbericht 3) herangezogen worden.

[9] Brasser, Th., J. Mönig, C. Scherschel und M. Verhoff (2002): Sorptionsdatenbank SODA, Datenbank zur Bestandsaufnahme und Bewertung geochemischer Informationen zum Verhalten von Abfallinhaltsstoffen im Deckgebirge einer UTD/UTV; GRS-Bericht GRS – 182; 116 Seiten.

3 Vorbemerkung

Die vorliegende Detailbericht und die Bewertung bezieht sich auf solche ‚Kernaussagen/Grundannahmen', die hinsichtlich der ‚Eignung von Steinkohlebergwerken zur Untertageverbringung von Abfall und Reststoffen' getroffen und in den zuvor genannten ‚Basisgutachten' dargestellt wurden[10]. Auf diese ‚Kernaussagen/Grundannahmen' stützt sich das mit den ‚Basisgutachten' entwickelte Langzeitsicherheits-Tool, das dazu entwickelt wurde, die Sicherheit von Bergwerken für die Untertageverbringung von bergbaufremden Rückständen in der Langzeitphase zu „demonstrieren".

In dem vorliegenden Detailbericht werden diese ‚Kernaussagen/Grundannahmen' (abgekürzt: ‚Kernaussagen') hinsichtlich anorganisch-hydrogeochemischer Prozesse zusammenfassend referiert. Zu ihnen wird unter Langzeitsicherheitsaspekten – in erster Linie vor dem Hintergrund des heutigen Kenntnisstandes und heutiger Methodik – bewertend Stellung genommen.

Die Bewertungsklassifikation ist: ‚sachgerecht und gültig', ‚nicht vollständig sachgerecht', ‚nicht nachgewiesen' und/oder ‚nicht gültig'. Dabei wird zunächst, in einem ersten Teil des Berichtes, auf der Grundlage des mit den ‚Basisgutachten' vorgelegten Erkenntnisstandes bewertend Stellung genommen. Auf der Grundlage von Modellierungsergebnissen zu chemisch-thermodynamischen Gleichgewichts- und Stofftransportberechnungen, die im Rahmen des hier vorliegenden Berichts durchgeführt wurden, kann dann, in einem weiteren Teil des Berichtes, eine nochmalige Bewertung der wichtigsten ‚Kernaussagen der Basisgutachten' erfolgen.

Um diese bewertende Stellungnahme eindeutig nachvollziehbar darstellen zu können, orientiert sich die Struktur des Textes der Stellungnahme an den Prozessabläufen hinsichtlich der Stofffreisetzung und der Stoffmobilität im Geosystem ‚Tiefengrundwasser im nahen und fernen Festgesteinsumfeld von Rückstands-verfüllten bergbaulichen Hohlräumen'.[11] Dabei wird die Stofffreisetzung aus den verbrachten bergbaufremden Rückständen in den BHV-Bereichen hinein in die Tiefengrundwässer, die als Porenwässer die Hohlräume in den BHV-Bereichen füllen, mit

- der Art der Stoffe,
- den Massenanteilen der aus den bergbaufremden Rückständen freisetzbaren Stoffe, bezogen auf ihre Masse in den verbrachten bergbaufremden Rückständen,
- den Stoffkonzentrationen in den die BHV-Bereiche füllenden Tiefengrundwässern in zeitlicher Entwicklung

betrachtet.

---

[10] Aussagen zur Verbringung bergbaufremder Rückstände in anderen Bergwerken (u.a. in Eisenerzbergwerken) sind nicht Gegenstand dieser Bewertung.

[11] An einigen Stellen des hier vorliegenden Berichts werden Wiederholungen einzelner Textpassagen notwendig.

Zu diesen Aspekten der Stofffreisetzung und Stoffmobilität im Geosystem werden jeweils zunächst einzelne, in den ‚Basisgutachten' dargelegte Sachverhalte und Aussagen mit ihren ‚Kernaussagen' abschnittsweise referiert. In den unmittelbar daran anschließenden Textpassagen desselben Abschnitts wird dazu bewertend Stellung genommen.

Weil in den ‚Basisgutachten' eine durchaus unterschiedliche fachliche Begrifflichkeit für einen bestimmten Sachverhalt verwendet wird, werden in diesem Detailbericht – so weit als möglich – diejenigen Fachbegriffe benutzt, die in den Berichten der GRS (kurz: ‚GRS-Berichte') benutzt wurden.

Abschnittsweise referiert und bewertet werden Darstellungen und Aussagen der ‚Basisgutachten' zu folgenden Aspekten der Stofffreisetzung und der Stoffmobilität[12].

1) Die Art der für die ‚Grundannahmen/Kernaussagen' berücksichtigten anorganischen Stoffe in den Rückständen und die aus Laborversuchen zur Schadstofffreisetzung aus den Rückständen hergeleiteten ‚Kernaussagen / Grundannahmen'.

2) Die ‚Kernaussagen/Grundannahmen' zum Geosystem.

3) Die aus Laboruntersuchungen zur Ermittlung des Sorptionsverhaltens der Schwermetalle (K_D- und K_{Fr}-Wert mit dem zugehörigen N-Werten) hergeleiteten ‚Kernaussagen/Grundannahmen'.

4) Die ‚Kernaussagen/Grundannahmen' zu den hydrogeochemischen Prozessen in den Teilen des Geosystems.

5) Die ‚Kernaussagen/Grundannahmen' zur Abbildung der hydrogeochemischen Prozesse in den Modellen des Langzeitsicherheit-Tools.

Insbesondere unter Langzeitsicherheitsaspekten werden dabei solche ‚Kernaussagen/Grundannahmen' berücksichtigt, welche

- die Prinzipien des ‚vollständigen Einschlusses' und/oder der ‚immissionsneutralen Verbringung' der bergbaufremden Rückstände sowie

- das physikalische und chemische Verhalten der bergbaufremden Rückstände in verschiedenen Betriebsphasen

betreffen.

Mit den ‚Kernaussagen/Grundannahmen" der ‚Basisgutachten' zur potentiellen Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen bzw. zum physikalisch-chemischen Verhalten der Rückstände zeigt sich anhand von kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen[13],

---

[12] Die Wiederholung ganzer Textpassagen aus soll der besseren Nachvollziehbarkeit der Argumentation im Zusammenhang dienen.

[13] Versuchsdauer: Meist 24 Stunden bis zu einigen Wochen oder Monaten. Untersuchte Massen an Rückständen: Meist im Bereich von Hunderten bis zu Tausenden Gramm. Auf die Art und Weise, wie diese Freisetzungs- bzw. Elutionsversuche (Batch- und Perkolations-Versuche) durchgeführt wurden, wird hier nicht eingegangen.

- dass bestimmte Stoffe in bestimmten Stoffkonzentrationen und mit bestimmten Massenanteilen aus den bergbaufremden Rückständen durch Elutionsversuche mit wässrigen Lösungen freigesetzt werden und

- dass bestimmte hydrogeochemische Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern ablaufen.

Das sind allerdings rein empirisch ermittelte Ergebnisse aus kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen, die insbesondere keine ‚extrapolierten' Aussagen zur langfristigen Entwicklung der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags (bis zu Jahrzehntausenden bzw. Hunderttausenden) zulassen. Zudem sind diese empirisch ermittelten Ergebnisse in den ‚Basisgutachten' nicht auf ihre Plausibilität und Gültigkeit hinsichtlich allgemein gültiger Stoffgesetze (wie der chemisch-thermodynamisch basierten Einstellung von chemischen Reaktionsgleichgewichten von Feststoffphasen und wässrigen Lösungen) ausgewertet und geprüft worden. Zwar wird in den ‚Basisgutachten' mehrfach darauf verwiesen, dass chemisch-thermodynamisch kontrollierte Löslichkeitsgleichgewichte zwischen Feststoffphasen und wässrigen Lösungen sowie andere Gleichgewichtsreaktionen der aquatischen Speziesverteilung die Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen bzw. das physikalisch-chemischen Verhalten der Rückstände bei deren Elution bzw. Auslaugung steuern können: „Das Szenario von Auflösung und Ausfällung von Stoffen wird von den element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften sowie von dem, auch durch die Zusammensetzung des Stoffgemischs selbst bedingten, chemischen Milieu der Lösungsphase und den Wechselwirkungen zwischen den gelösten Ionen und der Festsubstanz, Kontaktfläche, Kontaktzeit usw. bestimmt". „Alle theoretischen Beschreibungen dieser Reaktionen stellen durch die Reduzierung auf wenige Teilaspekte und Elemente immer Vereinfachungen gegenüber den komplexen realen Systemen dar[14], und können somit lediglich Anhaltspunkte zur Interpretation von Lösungsreaktionen bieten." Möglicherweise deshalb werden diese Erkenntnisse (zur „Auflösung und Ausfällung von Stoffen" und deren „element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften") in den ‚Basisgutachten' nicht zu quantitativen Aussagen, und zu praktisch nutzbaren Ergebnissen umgesetzt – insbesondere hinsichtlich langfristiger Entwicklungen der Stofffreisetzung.

Das ist umso bemerkenswerter, als in den ‚Basisgutachten' selbst hinsichtlich der damit erarbeiteten, rein empirisch ermittelten Ergebnisse klar dargestellt wird, dass die angewandten „üblichen Labormethoden" (zur Einschätzung des Freisetzungspotentials bestimmter Stoffe durch kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuche), „seien es Batch- oder Perkolationsversuche mit hohen hydraulischen Gradienten und kurzen Reaktionszeiten, die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können. Hierzu sind sicherlich noch weitere Forschungsarbeiten sinnvoll und notwendig."

[14] Allerdings ist es exakt diese Herangehensweise, die in den ‚Basisgutachten' – und hier lediglich rein qualitativ, verbal-argumentativ beschreibend und immer dort, wo es gerade für passend erachtet wird, genutzt wird.

In Kenntnis dieser Tatsachen machen die ‚Basisgutachten' – auf der Grundlage rein empirisch ermittelter Erkenntnisse und ohne ein quantitatives Prozessverständnis, das auf relevanten Stoffgesetzlichkeiten beruht – in ihrer Konsequenz weitreichende Aussagen zur Stofffreisetzung und zur Stoffausbreitung. Sie kennzeichnen die Natur der in den BHV-Bereichen lagernden bergbaufremden Rückstände als „innere geochemische Barriere" und als „effektive hydraulische Barriere", in der verschiedene, unvollständig bekannte und quantitativ nicht beschriebene Prozesse wie Mineralausfällungen sowie die Gebirgskompaktion zu einer Art Selbstverdichtung führen.

Nachdem die ‚Kernaussagen/Grundannahmen' der ‚Basisgutachten' zu der Art relevanter Stoffe und ihrer potentiellen Freisetzung referiert und bewertet sind, wird deshalb mit hydrogeochemischen numerischen Modellierungen diesem empirischen, beschreibenden Ansatz der kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuche ein wissenschaftlicher Ansatz gegenübergestellt, der auf den allgemein gültigen Stoffgesetzen der chemisch-thermodynamisch basierten Berechnung von chemischen Reaktionsgleichgewichten in wässrigen Lösungen beruht. Mit diesem Ansatz soll auf dem heutigen Stand von Wissenschaft und Praxis anhand vereinfachter, semi-generischer Systeme und mit den aus den ‚Basisgutachten' vorliegenden Daten gezeigt werden, dass „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen „nicht widerspiegeln können" (so die ‚Basisgutachten') allgemein gültigen und übertragbaren chemisch-thermodynamischen Berechnungen zugänglich sind. Es ist selbstverständlich, dass in der zur Verfügung gestellten Bearbeitungszeit für diesen hier vorliegenden Bericht lediglich anhand semi-generischer (und nicht detailliert Fall-spezifischer) Modellierungen Aussagen zum Stofffreisetzungsverhalten hergeleitet werden können (vgl. Abschnitt 1. ‚Aufgabenstellung'). Das ist umso deutlicher zu betonen, da das hydrogeochemische Verhalten der Rückstände – im Hinblick auf advektiv und diffusiv angetriebene Stoffausträge aus den BHV-Bereichen (‚Quelltermbeschreibung') – sowohl hydrogeochemische (Stofffreisetzung und Stoffkonzentration) als auch geohydraulische Implikationen (Veränderung der Permeabilität der versetzten Rückstände durch Auflösung/Stofffreisetzung) hat. Mehr noch, dabei prägen Interaktionen zwischen hydrogeochemischen und geohydraulischen Prozessen die zeitliche Entwicklung wesentlicher Zustandsgrößen des Systems ‚Rückstände in den BHV-Bereichen im Kontakt mit Tiefengrundwässern'.

Unter diesem Gesichtspunkt muss jede, an einer langfristigen Perspektive ausgerichtete Aussage dazu, wie sich die in den ‚Basisgutachten' angesprochenen hydrogeochemischen Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände „bei den vielfältigen geochemischen Prozessen" und die damit verbunden Auswirkungen[15] entwickeln werden, folgenden Sachverhalt berücksichtigen: Die bergbaufremden Rückstände bestehen zu mehr oder weniger großen Anteilen aus ‚mehr oder weniger gut' wasserlöslichen Feststoffen (meist zwischen einigen Gramm und wenigen Hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand)[16]. Das hydroge-

[15] Einschließlich der Auswirkungen auf die Porosität und die Durchlässigkeit der Rückstände für Grundwässer.

[16] Zusätzlich zu den ‚relativ gut wasserlöslichen' Feststoffphasen (wie Halit/NaCl und Sylvin/KCl) können sich auch Mineralphasen, die wie Quarz (Hauptbestandteil der Feststoffe in den Rückständen) als ‚relativ schlecht wasserlöslich' gelten, in größeren Mengen in solchen Porenwässern innerhalb der Rückstände lösen, wenn die Porenwässer erhöhte pH-Werte (ca. pH 10 bis 12) aufweisen. Hohe pH-Werte sind typisch für die wässrigen Eluate der Rückstände. Solche Reaktionen der Quarzlösung ähneln einem als Schädigungsmechanismus für Beton beschriebenen Prozess, der zu einer starken Beeinträchtigung der Dauerhaftigkeit von Beton-Feststoffkörpern führen kann, die u.a. aus

ochemische Verhalten der Rückstände hat – im Hinblick auf eine Stofffreisetzung in die Porenwässer und/oder auf einen Stoffaustrag aus bzw. mit diesen Porenwässern in das ‚Nahfeld'– sowohl hydrogeochemische als auch geohydraulische Aspekte und Implikationen. Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der versetzten Rückstände sind simultan ablaufende Reaktionen, die ein komplexes Netz ineinandergreifender hydrogeochemischer Reaktionen aufbauen („vielfältige geochemische Prozesse"), deren Entwicklungsrichtung chemisch-thermodynamisch kontrolliert wird. Von geohydraulischer Art sind die Veränderungen der Porosität und der Durchlässigkeit der versetzten Rückstände durch die hydrogeochemischen Reaktionen – insbesondere der Auflösung bei der Stofffreisetzung. Die beiden Teilprozesse sind in der Art miteinander gekoppelt, dass Stoffauflösungen (= Stofffreisetzung in die wässrige Lösung = Abnahme des Feststoffvolumens im Rückstand) zur Vergrößerung der Porosität und damit verbunden auch der Durchlässigkeit führen können; Ausfällungen von Stoffen (= Stoffdemobilisation aus in der wässrigen Lösung = Zunahme des Feststoffvolumens im Rückstand) dagegen können zu einer Verringerung von Porosität und Permeabilität führen – so die hier vertretene Sichtweise.

Insofern ist das chemisch-thermodynamisch kontrollierte Löslichkeitsverhalten der Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern – insbesondere unter dem Gesichtspunkt der langfristigen Prozessentwicklung – von entscheidender Bedeutung. Denn die aus den versetzten Rückständen (aus bzw. mit den Porenwässern) austretenden Stoffmassenströme ergeben sich aus

- den durch Löslichkeitsgleichgewichte und daran gekoppelten Gleichgewichten aquatischer Spezies kontrollierten Konzentrationen der aus den mineralischen Feststoffphasen freigesetzten Stoffe,

- den die versetzten Rückstände (in Abhängigkeit u.a. von der Durchlässigkeit) durchströmenden Volumenströmen an Tiefengrundwasser und

- den diffusiven Stoffmassenströmen in Abhängigkeit u.a. von Zeitdauer, den Konzentrationsgradienten und der Porosität/Tortuosität der durchströmten Rückstände, die sich in der Zeit ändern – in Abhängigkeit von den hydrogeochemischen Prozessen der Stoffauflösung/ Stoffausfällung.

Hinweise darauf, dass selbst bei Kurzzeit-Elutionsversuchen im Labor in durchströmten Säulen eine solche, sich auf die geohydraulischen Eigenschaften der Rückstände auswirkende Netto-Auflösung mineralischer Feststoffe aus den Rückständen abläuft, sind den ‚Basisgutachten' zu entnehmen: „Aufgrund der hohen" wasser-„löslichen Volumenanteile in den Reststoffproben treten häufig Randumläufigkeiten bzw. Ausspülungen im Probenkörper (solcher Perkolationsversuche mit durchströmten Säulen) auf …".

Portlandzement und SiO_2-haltige Phasen (wie Quarz) aufgebaut sind: die sogenannte ‚Alkali-Kieselsäure-Reaktion'. Dabei wird zunächst ‚Kieselsäure' aus SiO_2-haltigen Phasen (wie Quarz) mobilisiert/freigesetzt. Nachfolgend kann die ‚gelöste Kieselsäure' mit gelösten Alkali-Ionen reagieren, die in großer Menge u.a. aus dem in den Rückständen vorhandenen NaCl-Salz zur Verfügung stehen oder mit den Tiefengrundwässern antransportiert werden, und in Form (meist gelförmiger) Alkalisilikate ausgefällt werden.

Vor diesem risikorelevanten Hintergrund werden chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichtsmodellierungen zu den folgenden Fragen durchgeführt.

- Sind die mit den ‚Basisgutachten' nachgewiesenen mineralischen Bestandteile der Rückstände (primär vorhanden oder nach dem Kontakt mit wässrigen Lösungen neu gebildet) löslich in Tiefengrundwässern mit semi-generischer[17] Zusammensetzung?

- Welche Mengen dieser primären, potentiell instabilen Bestandteile der Rückstände lösen sich im Kontakt mit solchen Tiefengrundwässern auf?

- Welche Mengen von instabilen, mineralischen Bestandteilen der Rückstände lösen sich im (wiederholten) Kontakt mit solchen Tiefengrundwässern auf und wandeln sich in welche Mengen dabei neugebildeter, stabiler Mineralphasen um?

- Welche Nettobilanz der Molmengen aufgelöster und ausgefällter Mineralphasen ergibt sich bei wiederholtem Kontakt mit Tiefengrundwässern semi-generischer Zusammensetzung?

- Welche Stoffkonzentrationen (u.a. von Blei, einem der Stoffe von besonderer Relevanz) treten dabei in den Porenwässern innerhalb der BHV und in deren ‚Nahfeld' auf?

Solche Modellierungen sollen dazu beitragen, quantitatives Prozessverständnis zu erarbeiten, das auf relevanten Stoffgesetzlichkeiten beruht. Denn der Forschungsansatz der ‚Basisgutachten' ist rein empirischer Natur. Dessen Ergenisse

- führen zu keinem quantitativen Prozessverständnis,

- werden nicht mit Stoffgesetzlichkeiten verknüpft und

- sind deshalb nicht übertragbar.

[17] So nicht real existierend; aber realitätsnah und vereinfacht in der Zusammensetzung.

4 Art der für die Grundannahmen berücksichtigten anorganischen Stoffe und die aus Laborversuchen zur Schadstofffreisetzung aus den Rückständen hergeleiteten Grundannahmen der Basisgutachten

4.1 'Kernaussagen/Grundannahmen'

In den ‚Basisgutachten' werden diejenigen ‚Kernaussagen/Grundannahmen' dargestellt, die hinsichtlich des hydrogeochemischen Verhaltens solcher anorganischen Stoffe relevant sind, die potenziell aus den eingelagerten bergbaufremden Rückständen freigesetzt und ausgetragen werden können. Das betrifft zunächst (in diesem Abschnitt des vorliegenden Berichts) die Stofffreisetzung aus den in die BHV-Bereiche verbrachten bergbaufremden Rückständen in die Tiefengrundwässer/Porenwässer, die die Hohlräume in den BHV-Bereichen füllen werden

- mit der Art der Stoffe,
- mit den Massenanteilen der aus den bergbaufremden Rückständen freigesetzten Stoffe, bezogen auf ihre Masse in den verbrachten bergbaufremden Rückständen und
- mit den Stoffkonzentrationen in zeitlicher Entwicklung.

In die BHV-Bereiche des Bergwerks ‚Haus Aden/Monopol' sind folgende bergbaufremde Rückstände verbracht worden: vorwiegend Rückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen und kohlegefeuerten Kraftwerken/Feuerungsanlagen sowie geringere Mengen an Rückständen aus Klärschlammverbrennungsanlagen.

Als „vernachlässigbar" in Bezug auf eine „Qualitätsverschlechterung" der Tiefengrundwässer durch einen Stoffaustrag aus den versetzten Rückständen werden seitens der GRS-Berichte die rückstandsbürtigen anionischen Bestandteile („Hauptelemente wie z.B. Sulfat oder Chlorid") angesehen, weil die „Tiefenwässer" von Natur aus „hohe Salzgehalte" aufweisen.

Die Machbarkeitsstudie macht quantitative Angaben zur chemischen Zusammensetzung bergbaufremder Rückstände (u.a. Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen; Rückstandsgemische aus Müllverbrennungsanlagen; Rückstände aus der kommunalen Klärschlammverbrennung) auch hinsichtlich der Chlorid- und Sulfatgehalte, die zusammen die Größenordnung von einigen Gramm bis zu wenigen Hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand ausmachen. Während die Chloridkonzentrationen in wässrigen Eluaten der Rückstände bei kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Schüttel- und Säulenversuchen meist einige Zehner Gramm pro Liter Eluat (g/l) erreichen, liegen die Sulfatkonzentrationen in den Eluaten lediglich meist bei einigen wenigen g/l.

Mit unterschiedlich konzipierten, kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuchen zur Freisetzung von Stoffen aus verschiedenen bergbaufremden Rückständen („Flugaschen und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen") in unterschiedliche wässrige Lösungen unter unterschiedlichen Temperatur und Druckbedingungen zeigt auch der DMT-Abschlussbericht, dass Stoffe mit erheblichen bzw. relevanten Anteilen ihrer Gesamtgehalte aus diesen Rückständen in wässrige Lösun-

gen freigesetzt werden können. Der DMT-Abschlussbericht gibt Chloridkonzentrationen von einigen Gramm bis zu wenigen Zehner Gramm pro Liter an, die bei Elutionsversuchen in wässrige Lösungen freigesetzt werden; diese liegen – teilweise deutlich – unterhalb der Chloridkonzentrationen in Grubenwässern in tieferen Bereichen des Gebirges (18 bis 86 g/l in Teufen von bis zu 800 Meter). Im Vergleich zu den Sulfatkonzentrationen von Grubenwässern (von einigen Zehntel Gramm bis zu wenigen Gramm pro Liter) können die Sulfatkonzentrationen in manchen Eluaten bergbaufremder Rückstände (meist bei einigen Gramm pro Liter) dagegen deutlich höher liegen.

In den GRS-Berichten wird das „toxische Potential der Versatzstoffe" (bergbaufremde Rückstände: Filterstäube und Rauchgasreinigungsrückstände aus Müllverbrennungsanlagen; Flugasche aus Steinkohlenfeuerungsanlagen; Gipsschlamm aus Kraftwerksentschwefelungsanlage) mit in den Rückständen enthaltenen Schwermetallen begründet. Diese Schwermetalle sind aus ihren in den Rückständen vorhandenen chemischen Bindungsformen in unterschiedliche wässrige Lösungen bei Laborversuchen freisetzbar; sie können mobilisiert werden. Dabei lösen sich die entsprechenden Schwermetall-haltigen Feststoffe auf: Versatz-„Materialien besitzen meist ein geringes bis mittleres Potential an mobilisierbarem Inhalt (Salze, Schwermetalle)".

Das Langzeitsicherheits-Tool /GRS 1989) für eine Sicherheitsanalyse der Verbringung bergbaufremder Rückstände arbeitet mit numerischen Modellierungen (Simulationen) des Transports von in Grundwässern gelösten Schwermetallen – unter Berücksichtigung des „toxischen Potentials der Versatzstoffe". Die GRS hat im Rahmen einer „Sicherheitsanalyse Standortmodelle zur Beschreibung der Grundwasserströmungssituation und des Schadstofftransports" entwickelt „und in numerische Rechenmodelle umgesetzt. Mit diesen Rechenmodellen wurden dann die Transportvorgänge simuliert". Damit soll das Transportverhalten rückstandsbürtiger Schwermetalle im Geosystem ‚Tiefengrundwasser im nahen und fernen Festgesteinsumfeld von Rückstandsverfüllten bergbaulichen Hohlräumen' abgebildet und geprüft werden.

Die Ausführungen in den GRS-Berichten zu den „Geochemischen Eingangsdaten für die Stofftransportmodellierung" machen deutlich, dass die numerische Modellierung der hydrogeochemischen Prozesse beim reaktiven Stofftransport auf stoffspezifischen Sorptionskennwerten[18] für Schwermetalle beruht. Die Untersuchungen, Aussagen und Grundannahmen der GRS-Berichte zur hydrogeochemischen Mobilität grenzen die potenziell aus den verbrachten Rückständen freisetzbaren Stoffe auf ausgewählte Schwermetalle ein; erwähnt werden: Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber, Kupfer, Nickel, Chrom und auch das Metalloid Arsen.

Die Untersuchungen der GRS-Berichte zum „Mobilisationsverhalten der Reststoffe", mit denen eine mögliche Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen in Kontakt mit wässrigen Lösungen quantifiziert werden soll, machen quantitative Angaben bzw.

---

[18] Der Verteilungskoeffizient K_D-Wert bzw. der K_{Fr}-Wert mit dem zugehörigen N-Werten für Freundlich Isothermen. Diese Werte kennzeichnen die Mobilität der Schwermetalle in wässrigen Lösungen, die in Sorptions-Wechselwirkung mit den Gesteinskörpern stehen. Modellierungen dieser Sorptionswechselwirkungen („Sorptionsverhalten") erlauben es – so die Annahme der ‚Basisgutachten' – unter der angenommenen Bedingung, dass die ‚Sorption' der einzige mobilitätsbestimmende Prozess ist, zu berechnen, wie hoch die Konzentration der Schwermetalle in solchen wässrigen Lösungen (z.B. Grundwässer im Festgestein) ist, wenn sich das Sorptionsgleichgewicht zwischen wässriger Lösung und sorbierendem Festgestein eingestellt hat. Die dazu notwendigen K_D- bzw. K_{Fr}- und zugehörigen N-Wert werden empirisch für unterschiedliche hydrogeochemische Milieus ermittelt. Dazu wurden entsprechende Laborversuche durchgeführt.

‚Grundannahmen' für die Schwermetalle Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber und Kupfer sowie für Arsen, Calcium, Sulfat, Natrium, Chlorid und den pH-Wert. Lediglich in Ansätzen wird auch auf die Elemente Chrom, Kupfer und Arsen eingegangen: „Das geochemische Verhalten von Chrom und Arsen wird im Folgenden etwas ausführlicher beschrieben, da diese Elemente ansonsten nicht weiter untersucht wurden".

Für die Schwermetalle (Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber) wird in den GRS-Berichten der jeweilige stoffspezifische Sorptionskennwert ermittelt und angegeben, der für die numerische Modellierung des sorptions-kontrollierten Transports von Schwermetallen (Stoffausbreitung) benötigt wird. „In umfangreichen Untersuchungen wurde die Sorption" für die „Schwermetalle (Pb, Zn, Cd, Hg) in Abhängigkeit von untertagespezifischen Milieubedingungen (Temperatur, pH-Wert, Salinität, Redoxmilieu) quantifiziert."

Das hydrogeochemische Verhalten aller übrigen anorganischen Stoffe, die als Bestandteile unterschiedlicher bergbaufremder Rückstände identifiziert und mit ihren darin enthaltenen Gehalten analysiert wurden, wird, wenn diese Stoffe in den Berichten GRS erwähnt werden, rein argumentativ beschreibend abgehandelt und nicht mit ‚Kennwerten' (Sorptionskennwerten oder ähnliche) gekennzeichnet. Im Abgleich mit den Analysen der Rückstände zeigt sich, dass dies u.a. folgende Elemente betrifft: Kupfer und Chrom (mit den weiter oben im Text angeführten Einschränkungen), Nickel, und Vanadium (Schwermetalle); Arsen, Barium, Strontium und Zirkon; Natrium, Calcium, Magnesium, Aluminium, Sulfat-S, Chlorid. Im Abgleich mit den Angaben des Abschlussberichts der DMT betrifft dies auch das Element Molybdän; im Abgleich mit den Angaben der der Machbarkeitsstudie auch die Elemente/Stoffe Eisen, Mangan, Silber, Zinn, Antimon, Beryllium, Kobalt, Selen, Thallium, Bor, Lithium, Sulfat-S, Chlorid, Sulfid, Phosphat, Nitrat, Nitrit, Ammonium, Fluorid und Cyanid.

Quantitative ‚Grundannahmen' hinsichtlich der Art der von den GRS-Berichten für relevant gehaltenen, in den numerischen Modellierungen der hydrogeochemischen Prozesse beim sorptions-kontrollierten Stofftransport und für den Langzeitsicherheitsnachweis berücksichtigten anorganischen Schadstoffe (deren Stoffausbreitung nach der Stofffreisetzung aus den BHV-Bereichen) werden also lediglich für die Schwermetalle Blei, Zink, Cadmium und Quecksilber gemacht. ‚Quellterme'[19], mit denen für die numerischen Modellierungen der hydrogeochemischen Prozesse beim sorptionskontrollierten Stofftransport entsprechende Stoffausträge aus den BHV-Bereichen quantitativ beschrieben werden könnten, werden für die Schwermetalle Blei, Zink und Cadmium angegeben.

---

[19] Im Hinblick auf die Stoffausträge aus den mit Tiefengrundwasser/Porenwasser erfüllten Hohlräumen der versetzten Rückstände hinein in die Tiefengrundwässer des die BHV direkt umgebenden Gebirges (‚Nahfeld'), die mit diffusiven und auch mit advektiven Stoffmassenströmen erfolgen, wobei Porenwasser aus dem BHV-Bereichs austritt, ist festzustellen, dass die GRS-Berichte als ‚Quellterme' lediglich die zeitliche Entwicklung der Schwermetallkonzentrationen – über einige Hundert Jahre – definieren. Mit dieser Art einer ‚Quellterm-Definition' wird außer Acht gelassen, dass die aus den BHV-Bereichen austretenden Porenwässer nicht ausschließlich Schwermetalle als gelöste Bestandteile führen. Tatsächlich treten – mit der Advektion – das Porenwasser selbst mit allen darin gelösten Bestandteilen (u.a. mit den Konzentrationen der H^+- und OH^--Ionen, der Calcium-, Natrium-, Kalium-, Sulfat- und Chlorid-Ionen sowie der Schwermetall-Ionen) in das Grundwasserströmungsfeld des ‚Nahfeldes' über. Es sind alle diese Ionen, die den Stoffaustrag ausmachen, das hydrogeochemische Milieu im ‚Nahfeld' und das hydrogeochemische Verhalten der ausgetragenen Schwermetalle beeinflusse – und damit auch den sorptions-kontrollierten Stofftransport (siehe auch Kap. 7 dieses Berichts).

Aus den Kernaussagen der GRS-Berichte zum ‚Quellterm' für Blei und der ihn beschreibenden empirischen Funktion für die Bleikonzentration in Abhängigkeit vom Wasser/Feststoff-Verhältnis bzw. von der Zeit (Abbildungen 2.5/2 und 5.1.1./8.) lässt sich herleiten, dass die ‚Basisgutachten' davon ausgehen und ihre Modellierungen zur Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' entsprechend aufbauen, dass die Bleikonzentrationen in den aus den BHV-Bereichen austretenden Porenwässern

- über einige Jahrzehnte nach dem ersten Kontakt mit Tiefengrundwässern hoch sein werden (zwischen 2000 und 10 mg/l; maximal bis zu 2,4 g/l, Abbildung 5.1.1./11.) und

- danach zwar kontinuierlich geringer werden, aber

- über einige Jahrhunderte auf einem Niveau zwischen zehn und einem Zehntel Milligramm pro Liter bleiben.

In Verbindung damit macht die GRS (im Abschnitt 5.1.1.3. ‚Kopplung zum Fernfeld') deutlich, wie sie für die Simulationen mit dem Langzeitsicherheitstool den Zeitmaßstab für die Stoffausträge aus den BHV-Bereichen vorgibt: Der „Zeitpunkt" zudem die „maximal eluierbare Stoffmenge aus der UTD ausgetragen wurde" „liegt bei etwa 60 Jahren". Weiterhin beschreibt die GRS (im Abschnitt 5.1.1.2 ‚Ergebnisse und Interpretation') im Hinblick auf die zeitliche Entwicklung des Stoffaustrags aus BHV-Bereichen: „Nach ca. 50 bis 60 Jahren werden nur noch vernachlässigbar kleine Konzentrationsmengen gelöst und die Gesamtmenge an austragbaren Konzentrationsmengen ist erreicht."

Im Hinblick auf die zeitliche Entwicklung von Stoffausträgen stellt der DMT-Abschlussbericht dagegen fest: „Abschätzungen unter Verwendung der oben genannten Durchlässigkeiten" bergbaufremder Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern „ergeben, daß die pH-Werte bei einer Beeinflussung des Versatzes durch Laugungsvorgänge mehr als 100.000 Jahre stabil bleiben müssten. Unter Übertragung der Labordaten wären in diesen Zeiträumen mit stabilem basischen pH-Milieu" (pH-Werte zwischen ca. 10 und 12) „maximale Schwermetallausträge möglich, die den in den Kaskadenschüttelelutionen ermittelten Werten entsprechen (s. Tab. 7.1)[20]. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß in diesen Zeiträumen der Einfluß von stoffinternen Reaktionen (z.B. Mineralneubildungen) die Puffereigenschaften des Materials beeinflußt. Derartige Prozesse können den Einfluß der Laugung (Abfuhr von Hydroxiden) überlagern. Exakte Berechnungen lassen sich daher nicht durchführen."

Die GRS-Berichte beziehen sich sowohl auf das Prinzip der Immissionsneutralität als auch auf das Prinzip des vollständigen Einschlusses. Im Teil 1 des Gutachtens ist für das BW ‚Haus Aden/Monopol' der vollständige Einschluss zu bewerten. In einem Teil 2 des Gutachtens ist für andere BW auch das Prinzip der Immissionsneutralität zu bewerten.

---

[20] Allerdings gibt die Tabelle 7.1 des DMT-Abschlussberichts die Schwermetallausträge in Form von „wasserlöslichen Anteilen" in der Dimension mg/kg Rückstand an; Stoffkonzentrationen in wässrigen Lösungen oder Stoffmassenströme werden nicht genannt. Mit der Abbildung 2.5/1 geben die GRS-Berichte Bleikonzentrationen in unterschiedlichen wässrigen Eluaten von Rückständen an, die bei fünf von elf dargestellten Elutionsversuchen oberhalb von 250 mg/l liegen.

Die Aussagen im Folgenden beziehen sich – unabhängig vom BW ‚Haus A-den/Monopol' – auf generelle Aussagen in den GRS-Berichten zum Prinzip der Immissionsneutralität.

Hinsichtlich einer Einschätzung dazu, ob ein Versatz von Rückständen als immissionsneutral bewertet werden kann, wird in den GRS-Berichten nicht hergeleitet und dargestellt[21], welche Konzentrationen von Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber in den Grundwässern des gesamten Rheinisch-Westfälischen Steinkohlenreviers (Schichtfolgen des Karbons und des Deckgebirges vom Zechstein bis zum Bottroper Mergel) die „geogene Beschaffenheit" der Wässer definieren, die den Porenraum in den BHV-Bereichen füllen und durchströmen und danach in das ‚Nahfeld' übertreten werden. Das wäre – im Sinne der GRS-Berichte – die Voraussetzung dafür, dass ein Nachweis hinsichtlich einer immissionsneutralen Ablagerung geführt werden könnte.

Auch der DMT-Abschlussbericht liefert (mit der Tabelle 2.4, die Machbarkeitsstudie zitierend) „nur in sehr geringem Umfang Daten zur Schwermetallführung der natürlichen Solen", „die Aussagen zur geogenen Hintergrundbelastung erlauben würden". Dabei wird zudem nicht klar, ob die Angaben sich auf die Schichtfolgen des Karbons oder auch auf die des jüngeren Deckgebirges vom Zechstein bis zum Bottroper Mergel beziehen. „Obergrenzen für tolerierbare Schwermetallausträge stellen die natürlichen geogen bedingten Schwermetallführungen der Grubenwässer dar", wie sie in der Tabelle 2.4 des Abschlussberichtes der DMT aufgeführt sind. Genannt werden in diesem Zusammenhang: Blei, Zink, Cadmium, Kupfer, Chrom, Nickel, Arsen, Quecksilber und Vanadium.

Unter Bezug auf eine mögliche Immissionsneutralität stuft der Abschlussbericht der DMT[22] „die in vielen zu prüfenden Reststoffen" (bergbaufremde Rückstände) „dominierenden Elemente Kalzium, Natrium, Kalium, Chlorid und Schwefel usw. im untertägigen Milieu als immissionsneutral und damit unproblematisch" ein. „Karbonat sowie aus dem Glühverlust abzuleitendes Hydroxid als unverbrauchtes Reaktionsreagenz" werden in diesem Zusammenhang als zusätzliche Stoffe genannt, ebenso wie Strontium.

Der Abschlussbericht der DMT zielt darauf ab, Erkenntnisse zur „Freisetzung von Schadelementen" aus „bislang als bedingt geeignet eingestuften z.T. hochbelasteten Flugaschen und Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen" sowie „zu den geochemischen Barriereeigenschaften des Versatzraumumfeldes" zu erarbeiten. Als „Schadelemente" werden im Abschlussbericht der DMT Blei, Zink, Cadmium, Kupfer, Chrom und Nickel genannt.

Neben den Hauptbestandteilen (SiO_2, Al_2O_3, CaO, K_2O, Na_2O, MgO, Fe_2O_3, TiO_2, MnO, P_2O_5) nennt der Abschlussbericht der DMT – zusätzlich zu den vorgenannten „Schadelementen" – die Elemente Barium, Vanadium, Molybdän, Quecksilber und Arsen als Bestandteile „des Filterstaubes".

Mit unterschiedlich konzipierten kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuchen zur Freisetzung von Stoffen aus verschiedenen bergbaufremden Rückständen in unterschiedliche wässrige Lösungen unter unterschiedlichen Temperatur- und Druckbedingungen zeigt der DMT-Abschlussbericht, dass Stoffe mit erheblichen Anteilen ihrer

---

[21] Weder mit allgemeinem Bezug noch Standort-spezifisch.

[22] Wie auch die GRS-Berichte.

Gesamtgehalte aus solchen Rückständen freigesetzt werden können. Die Summe der maximal in wässrige Lösungen freisetzbaren Mengen an Kalzium, Natrium, Kalium, Chlorid und Sulfat aus solchen bergbaufremden Rückständen kann laut DMT-Bericht die Größenordnung zwischen einigen Gramm und wenigen hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand erreichen, wobei die pH-Werte in den eluierenden, wässrigen Lösungen meist im Niveau zwischen pH 12 und pH 11 liegen. „Auch die Analysen des Mineralbestandes" in bergbaufremden Rückständen, die solchen Elutionsversuchen ausgesetzt waren, „bestätigen", dass „die im REA-Salz dominierenden Kalzium-Chlorid-Hydroxid-Hydrate von den Lösungen fast vollständig zerstört" und aufgelöst bzw. umgebildet werden. Solche von der DMT untersuchten bergbaufremden Rückstände sind zu einem erheblichen Teil (von einigen Gramm bis zu einigen hundert Gramm pro Kilogramm der Rückstände) in wässrigen Lösungen ‚mehr oder weniger leicht' löslich.

Hinzu kommen erhebliche Mengen an in wässrige Lösungen freisetzbaren Schwermetallen. Die pH-abhängig mobilisierbare Schwermetallgehalte (in der Bindungsform: ‚wasserlöslich', ‚hydroxidisch' und ‚karbonatisch') in den REA-Salzen und in den Filterstäuben von Müllverbrennungsanlagen variieren laut DMT-Abschlussbericht in folgenden Größenordnungen.

- Zink: bis zu mehrere Tausend mg/kg Rückstand
- Blei: mehrere Hundert bis Tausend mg/kg Rückstand
- Kupfer: mehrere Hundert mg/kg Rückstand
- Cadmium: mehrere Zehner bis zu Hundert mg/kg Rückstand
- Arsen: einige bis dreißig mg/kg Rückstand
- Molybdän: einige bis einige Zehner mg/kg Rückstand
- Chrom: einige bis zwanzig mg/kg Rückstand
- Vanadium: einige bis zehn mg/kg Rückstand
- Nickel: einige mg/kg Rückstand

Im Hinblick auf das Freisetzungspotential von solchen bergbaufremden Rückständen bei kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuchen im Labor stellt der DMT-Bericht zusammenfassend fest, dass „Blei, Cadmium, Zink und Kupfer aus dem REA-Salz durch die Extraktionslösungen nahezu vollständig mobilisiert" werden." „In den Filterstäuben schwanken die mit dem Verfahren erfassbaren" in wässrige Lösungen freisetzbaren „Anteile zwischen 40 % und 60 % der Gesamtgehalte" dieser Schwermetalle" (Blei, Cadmium, Zink und Kupfer).

Ihre bei Laborversuchen ermittelten Untersuchungsergebnisse zur Stofffreisetzung aus den bergbaufremden Rückständen in wässrige Lösungen fasst die DMT – im Hinblick auf reale Geosysteme mit Tiefengrundwässern in langfristiger Entwicklung – wie folgt zusammen: „Abschätzungen unter Verwendung der oben genannten Durchlässigkeiten" bergbaufremder Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern (k_f-Werte meist zwischen 10^{-07} bis 10^{-12} m/s) „ergeben, daß die pH-Werte bei einer Beeinflussung des

Versatzes durch Laugungsvorgänge mehr als 100000 Jahre stabil bleiben müßten. Unter Übertragung der Labordaten wären in diesen Zeiträumen mit stabilem basischen pH-Milieu“ (pH-Werte zwischen ca. 10 und 12) „maximale Schwermetallausträge möglich, die den in den Kaskadenschüttelelutionen ermittelten Werten entsprechen (s. Tab. 7.1). Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß in diesen Zeiträumen der Einfluß von stoffinternen Reaktionen (z.B. Mineralneubildungen) die Puffereigenschaften des Materials beeinflußt. Derartige Prozesse können den Einfluß der Laugung (Abfuhr von Hydroxiden) überlagern. Exakte Berechnungen lassen sich daher nicht durchführen.“[23]

Auch die Machbarkeitsstudie macht quantitative Angaben zur chemischen Zusammensetzung der bergbaufremden Rückstände (Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen; Rückstände aus der kommunalen Klärschlammverbrennung; Rückstandsgemische aus Müllverbrennungsanlagen[24]) hinsichtlich „üblicher Parameter“: Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber, Kupfer, Arsen, Molybdän Chrom, Nickel, Vanadium, Eisen, Mangan, Silber, Zinn, Antimon, Beryllium, Kobalt, Selen, Thallium, Barium, Strontium, Natrium, Kalium, Calcium, Magnesium, Aluminium, Bor, Lithium, Sulfat-S, Chlorid, Sulfid, Phosphat, Nitrat, Nitrit, Ammonium, Fluorid und Cyanid. Mit kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen zur Freisetzung von Stoffen aus solchen Rückständen in unterschiedliche wässrige Lösungen (destilliertes Wasser und ein „Chlorid-Wasser“) zeigt die Machbarkeitsstudie, dass manche der in den bergbaufremden Rückständen nachgewiesen Stoffe (u.a. Schwermetalle) mit relevanten Anteilen ihrer Gesamtgehalte aus solchen Rückständen freigesetzt werden können. Ähnlich wie der DMT-Abschlussbericht nennt die Machbarkeitsstudie entsprechende Anteile in der Größenordnung von einigen Prozent bis zu einigen Zehner Prozenten.

Die explizit aufgeführten Schwermetallkonzentrationen (von Blei, Zink, Cadmium) liegen in den Eluaten meist

- zwischen einem und Tausend mg/l für Blei
- zwischen einem und Tausend mg/l für Zink
- zwischen einem Hundertstel und Zehn mg/l für Cadmium.

Gemessen an ihrer Konzentration im Eluat im Vergleich zur Konzentration in der eluierenden wässrigen Lösung und im Vergleich zum entsprechenden Richtwert der Deponieklasse 2 sind, wie die Machbarkeitsstudie darstellt, folgende Stoffe relevant, hinsichtlich ihrer potentiellen Freisetzung aus den Rückständen in die Tiefengrundwässer, die den Porenraum der Rückstände füllen: Blei, Cadmium, Zink, Selen, Antimon, Zinn, Fluorid. Kupfer, Vanadium und Phosphat.

Auch bei sogenannten ‚Containerversuchen im Technikumsmaßstab‘, bei denen über ca. 300 Tage aus – im Vergleich zu Kurzzeit-Elutionsversuchen – wesentlich größeren Mengen bergbaufremder Rückstände (mehrere Hundert kg; Filterstaub einer Müllverbrennungsanlage bzw. eine Mischung des Filterstaubes mit Gipsschlamm) freisetzbare Stoffe in wässrige Lösungen ausgelaugt werden, steigen die pH-Werte in den Eluaten

---

[23] Es bleibt offen, was damit gemeint sein soll.

[24] Auf Rückstände aus der Lack- und Ölschlammverbrennung sowie aus der Rauchgasreinigung, auf Gießereialtsande und Strahlmittelrückstände wird hier in diesem Bericht nicht eingegangen.

auf ca. pH 9 an, ohne dass in dieser Zeit schon „ein pH-Wert-Maximum erreicht wird". Wie in den Basisgutachten zu den Ergebnissen solcher ‚Container-Versuche' dargestellt wird, liegen die Konzentrationen von Blei, Zink und Cadmium in den Eluaten mit Werten < 1,0 mg/l deutlich unterhalb der bei den Kurzzeit-Elutionsversuchen freigesetzten Konzentrationen (bis zu einigen Tausend mg/l für Blei und Zink, bis zu einigen Zehner mg/l für Cadmium). Die auslaugbaren Schwermetallanteile liegen bei Batchversuchen um mindestens ein bis zwei Größenordnungen höher als bei Containerversuchen.

Zur physikalisch-mechanischen Konsistenz der versetzten Rückstände nimmt der Detailbericht 3 ausführlich Stellung.

4.2 Bewertende Stellungnahme zu den ‚Kernaussagen bzw. Grundannahmen' mit einer Risikoeinschätzung in der ‚Gesamtsicht'

Die ‚Kernaussagen bzw. Grundannahmen' der ‚Basisgutachten',

- dass die „in vielen zu prüfenden Reststoffen dominierenden Elemente Kalzium, Natrium, Kalium, Chlorid, Schwefel" sowie auch das „Karbonat" „im untertägigen Milieu als immissionsneutral und damit unproblematisch" angesehen werden kann und

- dass in Bezug auf eine „Qualitätsverschlechterung" der Grundwässer die rückstandsbürtigen anionischen Bestandteile („Hauptelemente wie z.B. Sulfat oder Chlorid") als „vernachlässigbar" angesehen werden können

sind im Wesentlichen sachgerecht, nachvollziehbar hergeleitet und können als gültig akzeptiert werden. Diese Aussagen wurden auf dem damaligen Stand der wissenschaftlichen Methodik erarbeitet und können auch auf dem heutigen Stand als gültig akzeptiert werden.

Das gilt allerdings nicht für die ‚Kernaussage bzw. Grundannahme' zum „Hydroxid als unverbrauchtes Reaktionsreagenz": Denn in den Eluaten mancher der bergbaufremden Rückstände halten sich die pH-Werte – in Abhängigkeit des Lösung-/Feststoff-Verhältnisses – im Bereich zwischen 10 und 12. Die Aktivität (proportional zur Konzentration) der freien Hydroxid-Ionen liegt damit um etwa fünf Zehnerpotenzen höher als in Tiefengrundwässern; ein Übertritt solcher Wässer aus den BHV-Bereichen in deren ‚Nahfeld' kann nicht als immissionsneutral angesehen werden, auch wenn pH-Pufferreaktionen den pH-Wert in vom Stoffaustrag betroffenen Tiefengrundwässern kontrollieren können. Hier greift die Bewertung ‚nicht vollständig sachgerecht aber unproblematisch'[25]. Über welche Zeiträume diese nicht-immissionsneutrale Wirkung der Rückstände auf den pH-Wert der Tiefengrundwässer innerhalb der Porenräume der BHV-Bereiche und im unmittelbaren Nahfeld anhalten wird, kann auf der Grundlage der ‚Basisgutachten' nicht sicher – insbesondere nicht unter Langzeitsicherheitsaspekten (über Jahrhunderte bis zu Jahrzehntausenden) – eingeschätzt werden.

[25] Im Hinblick auf mögliche Risiken für Beschaffenheit von Grundwässern im Geosystem.

Dieselbe Bewertung als ‚nicht vollständig sachgerecht aber unproblematisch' betrifft auch den möglichen Austrag von Sulfat, weil im Vergleich zu den Sulfatkonzentrationen von Grubenwässern (meist weniger als ein Zehntel Gramm bis zu wenigen Gramm pro Liter) die Sulfatkonzentrationen in manchen Eluaten deutlich höher liegen können. Ein Übertritt solcher Wässer aus BHV-Bereichen in das ‚Nahfeld' kann – unter diesen Umständen – nicht als immissionsneutral angesehen werden.

Die Untersuchungen der ‚Basisgutachten' zur Kennzeichnung der bergbaufremden Rückstände (REA-Salze; Filterstäube von Müllverbrennungsanlagen, Rauchgasreinigungsrückstände aus Hausmüllverbrennungsanlagen, Rückstandsgemische aus Müllverbrennungsanlagen) als potentielle Quellen für erhebliche Mengen an in wässrige Lösungen freisetzbaren Schwermetallen (insbesondere Blei, Zink und Cadmium) entsprechen dem damaligen Stand Wissenschaft. Diese Grundannahme ist sachgerecht und kann als gültig akzeptiert werden.

Als ‚sachgerecht und gültig' zu bewerten ist auch die Einschätzung der ‚Basisgutachten', dass die im Rahmen der ‚Basisgutachten' angewandten „üblichen Labormethoden" (zur Einschätzung des Freisetzungspotentials durch kleinmaßstäbliche Kurzzeit-Elutionsversuche), „seien es Batch- oder Perkolationsversuche mit hohen hydraulischen Gradienten und kurzen Reaktionszeiten, die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können. Hierzu sind sicherlich noch weitere Forschungsarbeiten sinnvoll und notwendig." Mit dieser Einschätzung wird sicherlich die Kennzeichnung der untersuchten bergbaufremden Rückstände als potentielle Quellen für erhebliche Mengen an in wässrige Lösungen freisetzbaren Schwermetallen (insbesondere Blei, Zink und Cadmium) und OH^--Ionen nicht ungültig. Auch unabhängig davon, dass die „vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht" durch solche Laborversuche „widergespiegelt" werden können, stellen sich bei den kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen hydrogeochemische Verhältnisse ein, bei denen „ein Austrag unzulässig hoher Schadstoffemissionen aus den in Grubenräumen mit potentiellen Wasserwegsamkeiten eingebrachten Abfällen und Reststoffen in den meisten untersuchten Fällen nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden kann", so die Machbarkeitsstudie. Dazu stellt die Machbarkeitsstudie zusammenfassend und beurteilend fest: „Selbst wenn für die Beurteilung möglicher Schadstoffemissionen nur die wichtigsten Schwermetalle Blei, Cadmium und Zink herangezogen werden, ergibt sich" „in nahezu allen untersuchten Fällen mindestens bei einem dieser Schadstoffe eine deutliche Überschreitung der Konzentration im Eluat gegenüber der im Eluens (Cl^--Grubenwasser) geogen vorhandenen Stoffkonzentration."

Dabei sind nicht allein die Stoffkonzentrationen von Bedeutung. Auch die pH-abhängig mobilisierbaren Stoffmassen an rückstandsbürtigen Schwermetallen, die in der Größenordnung von mehreren Zehner Milligramm bis zu mehreren Tausend Milligramm pro Kilogramm Rückstand liegen können, sind als relevant einzuschätzen. Die Untersuchungen, welche diese Ergebnisse erbracht haben, entsprechen dem heutigen Stand von Wissenschaft und Methodik, in dem Sinne, dass das langfristige Stofffreisetzungsverhalten der in den BHV-Bereichen versetzten bergbaufremden Rückstände mittels – wie auch immer gearteter kleinmaßstäblicher Kurzzeit-Elutionsversuche – nicht sicher prognostiziert werden kann.

Weil zudem in den GRS-Berichten nicht dargestellt ist, welche Konzentrationen von Blei, Zink, Cadmium, Quecksilber in den Tiefengrundwässern des Rheinisch-Westfälischen Steinkohlereviers (Schichtfolgen des Karbons und des Deckgebirges vom Zechstein bis zum Bottroper Mergel) die „geogene Beschaffenheit" dieser Wässer

definieren, könnte ein eventuell mit dem Langzeitsicherheits-Tool erarbeiteter Sicherheitsnachweis daher lediglich darauf beziehen, ob die rückstandsbürtigen Schwermetalle Blei, Zink, Cadmium und Quecksilber von der Biosphäre weitgehend und dauerhaft fern gehalten werden können. Es würde der Bewertungsmaßstab fehlen, anhand dessen – nach dem Prinzip der immissionsneutralen Ablagerung – beurteilt werden könnte, ob Austräge der rückstandsbürtigen Schwermetalle Blei, Zink, Cadmium und Quecksilber schädliche Verunreinigungen oder nachhaltige Veränderungen des Grundwassers gegenüber der geogenen Beschaffenheit besorgen lassen, die geologischen Schichtfolgen des Karbons und des jüngeren Deckgebirges betreffend.

Es wird in den GRS-Berichten nicht explizit beschrieben, warum die Schwermetalle Kupfer, Nickel, Chrom, Vanadium und Molybdän sowie die übrigen, in den Rückständen mit ihren Gehalten analysierten Elemente wie u.a. Arsen und Barium in den Modellierungen mit dem Langzeitsicherheits-Tool nicht berücksichtigt werden. Hinweise auf tatsächlich deutlich erhöhte Konzentrationen und eine Mobilität z.B. des Schwermetalls Kupfer im System ‚Grubenwässer/Festgesteine des Ruhrkarbons und des Deckgebirges' finden sich in vorliegenden Grubenwasseranalysen. Zumindest lokal und zeitweilig treten hier geogene (oder anthropogen beeinflusste) Kupferkonzentrationen im Bereich von 10 bis 150 µg l^{-1} auf[26]. Von Schleyer & Kerndorff (1992[27]) wird die Obergrenze des geogenen Normalbereichs für die Kupferkonzentration in Grundwässern von oberflächennahen Lockergesteinsgrundwasserleitern mit 12 µg l^{-1} angegeben.

Auch Barium, dessen Vorkommen in den Rückständen nachgewiesen ist, ist unter bestimmten hydrogeochemischen Bedingungen – in Grubenwässern mit niedrigen Sulfatkonzentrationen – tatsächlich hoch mobil[28]; die Bariumkonzentrationen können dort dauerhaft hohe Werte in der Größenordnung von 50 bis 250 mg l^{-1} erreichen. In den aktuellen Grubenwasseranalysen des BW ‚Haus Aden/Monopol' liegen die Bariumkonzentrationen allerdings bei ca. 2 mg/l.

Insofern ist festzustellen: Auch andere rückstandsbürtige Stoffe, nicht ausschließlich die vier für den Langzeitsicherheitsnachweis ausgewählten Schwermetalle (Blei, Zink, Cadmium und Quecksilber), sind potenziell im betrachteten Geosystem mit Tiefengrundwässern mobil und im Hinblick auf den Gewässerschutz relevant. Das zeigt auch das „Hintergrundpapier Steinkohle zum Bewirtschaftungsplan 2016 – 2021 für die nordrhein-westfälischen Anteile von Rhein, Weser, Ems und Maas"[29]. Das Papier gibt diejenigen abgeschätzten Anteile der Stofffrachten u.a. von Barium in den Gewässern der Einzugsgebiete von Emscher, Lippe, Ruhr und Ems an, die mit Grubenwässern in diese Gewässer verfrachtet werden. Im Jahr 2013 lag dieser Anteil zwischen 21% (Ruhr) und 60% (Emscher).

Mit einer auf die Langzeitsicherheit ausgerichteten Sichtweise können folgende Einschätzungen zu solchen, mit den BHV-Bereichen verbundenen Risiken für die Be-

---

[26] Analysen von gehobenen Grubenwässern aus den Wasserhaltungen verschiedener Schachtanalgen (Concordia, Carolinenglück, Robert Müser, Zollverein).

[27] Schleyer, R. & H. Kerndorff; 1992; Die Grundwasserqualität westdeutscher Trinkwasserressourcen; VCH, Weinheim.

[28] Analysen von gehobenen Grubenwässern aus den Wasserhaltungen verschiedener Schachtanalgen (Concordia, Zollverein-Stinnesstrecke).

[29] Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen.

schaffenheit von Grundwässern und Grundwasserleitern abgegeben werden, die von den ‚Basisgutachten' nicht explizit als Risiken benannt und beschrieben werden. Dazu werden die in diesem Zusammenhang wichtigsten Aussagen der ‚Basisgutachten' in diesem Abschnitt für eine ‚Gesamtsicht' dargestellt – auch wenn sie zuvor schon einmal in diesem Bericht referiert worden sind.

- Aus hydrogeochemischer (Gesamt-) Sicht bestehen die bergbaufremden Rückstände in den BHV-Bereichen – zu mehr oder weniger großen Anteilen – aus Feststoffen, die – mehr oder weniger leicht oder gut – löslich in wässrigen Lösungen sind. Die Summe der bei kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuchen im Rahmen der ‚Basisgutachten' in unterschiedliche wässrige Lösungen freigesetzten Massen an Kalzium, Natrium, Kalium, Chlorid und Sulfat aus solchen bergbaufremden Rückständen liegt zwischen einigen Gramm und wenigen hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand.

- Bei den Laborversuchen zur Stofffreisetzung aus den Rückständen stellen sich in den eluierenden, auslaugenden wässrigen Lösungen (entmineralisiertes Wasser; synthetische Grubenwässer) pH-Werte meist im Niveau zwischen pH 9 und pH 12 ein, über weite Bereiche des Feststoff/Wasser-Verhältnisses.

- Mit den in ihnen „enthaltenen Schwermetallen" weisen die bergbaufremden Rückstände ein „toxisches Potential" auf, so stellen es die ‚Basisgutachten' fest. Mit den unterschiedlich ausgelegten Kurzzeit-Elutionsversuchen im Labor (Batch- und Perkolationsversuche) zeigen die ‚Basisgutachten', dass Schwermetalle aus ihren in den Rückständen enthaltenen Bindungsformen in wässrige Lösungen freisetzbar sind. Sie können mobilisiert werden. Dabei lösen sich die entsprechenden Schwermetall-haltigen Feststoffe auf: Versatz-„Materialien besitzen meist ein geringes bis mittleres Potential an mobilisierbarem Inhalt (Salze, Schwermetalle)", so stellen es die ‚Basisgutachten' dar.

- Zusammen mit den Anteilen wasserlöslicher Hauptbestandteile der Rückstände, die aus (mineralischen) Feststoffphasen wie z.B. Halit / NaCl, Sylvin / KCl, Anhydrit / $CaSO_4$, Gips / $CaSO_4{:}2H_2O$, Calcit / $CaCO_3$, Ettringit / $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$, Portlandit / $Ca(OH)_2$, und Ca-Hydroxochloridphasen / $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ bei Kurzzeit-Elutionsversuchen in wässrige Lösungen freisetzbar sind[30], lösen sich „pH-abhängig mobilisierbare Schwermetallgehalte" in den wässrigen Eluaten. Das sind vorwiegend solche Schwermetalle, die in den Rückständen in den Bindungsformen „wasserlöslich, hydroxidisch und karbonatisch" feststoffgebunden waren. In den von den ‚Basisgutachten' untersuchten Rückständen variieren solche bei kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuchen in wässrige Lösungen freisetzbaren Schwermetallgehalte[31] meist in folgenden Größenordnungen
  - Zink: bis zu mehreren Tausend mg/kg Rückstand
  - Blei: mehrere Hundert bis Tausend mg/kg Rückstand
  - Cadmium: mehrere Zehner bis zu Hundert mg/kg Rückstand

---

[30] Glasige Feststoffphasen in den Rückständen bleiben hier unberücksichtigt; ihr Stofffreisetzungsverhalten kann nicht mit chemisch-thermodynamischen Modellierungen beschrieben werden.

[31] Hier sind diejenigen Schwermetalle aufgeführt, welche die vergleichsweise höchsten Gehalte aufweisen.

  - Kupfer: bis zu mehreren Hundert mg/kg Rückstand.

- In den wässrigen Eluaten solcher Rückstände treten dabei die Schwermetalle Blei, Zink und Cadmium mit Konzentrationen meist im Bereich
  - zwischen einem und Tausend mg/l für Blei
  - zwischen einem und Tausend mg/l für Zink
  - zwischen einem Hundertstel und Zehn mg/l für Cadmium.

auf.

Auch bei sogenannten ‚Containerversuchen im Technikumsmaßstab', bei denen über ca. 300 Tage aus – im Vergleich zu Kurzzeit-Elutionsversuchen – wesentlich größeren Mengen bergbaufremder Rückstände (mehrere Hundert kg; Filterstaub einer Müllverbrennungsanlage bzw. eine Mischung des Filterstaubes mit Gipsschlamm) freisetzbare Stoffe in wässrige Lösungen ausgelaugt werden, steigen die pH-Werte in den Eluaten auf ca. pH 9 an, ohne dass in dieser Zeit schon „ein pH-Wert-Maximum erreicht wird". Wie in den Basisgutachten zu den Ergebnissen solcher ‚Container-Versuche' dargestellt wird, liegen die Konzentrationen von Zink, Cadmium und Blei in diesen Eluaten mit Werten < 1,0 mg/l deutlich unterhalb der bei den Kurzzeit-Elutionsversuchen freigesetzten Konzentrationen (bis zu tausend mg/l für Blei und Zink, bis zu einigen Zehner mg/l für Cadmium). „Die auslaugbaren Schwermetallanteile liegen bei Batchversuchen um mindestens ein bis zwei Größenordnungen höher als bei Containerversuchen. Mineralneubildungen können bei letzteren (Container-Versuche) zusätzlich den Porenraum zementieren, so daß die hydraulische Barrierewirkung" (der versetzten Rückstände) „erhöht und der Reststoff im Extremfall nur noch umströmt und nicht mehr durchströmt werden kann. Zusammenfassend ist festzustellen", so die Basisgutachten, „daß die innere geochemische Barriere – nämlich der unmittelbare Versatzbereich – einen wichtigen Sicherheitsfaktor für die Verbringung von MVA-Reststoffen darstellt. Weiter führen die ‚Basisgutachten' in diesem Zusammenhang aus: „Übliche Labormethoden" (zur Einschätzung des Freisetzungspotentials durch kleinmaßstäbliche Kurzzeit-Elutionsversuche), „seien es Batch- oder Perkolationsversuche mit hohen hydraulischen Gradienten und kurzen Reaktionszeiten, können die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln. Einen Schritt in die Richtung zu *in situ* nahen Bedingungen stellen Containerversuche im Technikumsmaßstab dar. Geringe Wasser-Feststoffverhältnisse, lange Versuchszeiten sowie geringe mechanische Beanspruchungen ermöglichen Wechselwirkungen, die bei anderen Versuchen nicht auftreten. Hierzu sind sicherlich noch weitere Forschungsarbeiten sinnvoll und notwendig", so die Feststellung der ‚Basisgutachten'.

Ob allein auf empirischem Wege mit Laborversuchen an realen Rückstandsproben solche Analogmodelle[32] der *in situ* Stofffreisetzung aus den Rückständen in wässrige Lösungen bereitgestellt werden können, die im wissenschaftliche Sinne als übertragbar[33] gelten können und auf Plausibilität geprüfte Vorhersagen zu den zu erwartenden Schwermetallkonzentrationen auch in der Langfristperspektive erlauben, ist fraglich.

---

[32] Hier sind nicht Modelle numerischer Art gemeint.

[33] Um übertragbar gemacht werden zu können, müssen die Ergebnisse empirischer Untersuchungen mit quantifizierbaren Ursachen/Wirkungs-Beziehungen erklärt werden können, die sich aus Stoffgesetzen herleiten. Ansonsten bleibt das untersuchte System mit den darin ablaufen hydrogeochemischen Prozessen eine ‚Black Box'.

Mit den ‚Basisgutachten' liegen keine gesicherten Erkenntnisse (in Form von Messwerten) und auf Plausibilität geprüfte Vorhersagen zu den zu erwartenden Schwermetallkonzentrationen in solchen Porenwässern vor, welche die versetzten Rückstände in BHV-Bereichen füllen und durchströmen werden. Das gilt – aus naheliegendem Grund – insbesondere für die langfristige Entwicklung der Stoffkonzentrationen und für die damit verbundenen Stoffumsätze bei der Freisetzung von Schwermetallen aus den Feststoffphasen und deren Auflösung, Umwandlung oder Neubildung in wässrigen Lösungen unter *in situ* Bedingungen.

Obwohl kleinmaßstäbliche Kurzzeit-Elutionsversuche „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können" und somit die chemische Zusammensetzung solch wässriger Eluate mit ihren Schwermetallkonzentrationen nicht der chemischen Zusammensetzung von solchen Tiefengrundwässern gleichgesetzt werden kann, welche die Porenhohlräume der Rückstände innerhalb der BHV-Bereiche füllen werden, ist nicht mit Sicherheit auszuschließen, dass auch in den realen Tiefengrundwässern/Porenwässer innerhalb der versetzten bergbaufremden Rückstände Schwermetallkonzentrationen auftreten werden, die oberhalb der Schwermetallkonzentrationen rein geogen geprägter Tiefengrundwässer im Rheinisch-Westfälischen Revier liegen[34]. Das gilt auch für solche bergbaufremden Rückstände, die durch Zugabe von Portlandzement vorbehandelt wurden; „mit Ausnahme von Zink und Ammonium liegen auch alle anderen Parameter" mit ihren Konzentrationen in den Eluaten solcher vorbehandelten Rückstände „mehr oder weniger deutlich über den entsprechenden Konzentrationen im Cl^--Grubenwasser" (Tiefengrundwasser), so die Feststellung der ‚Basisgutachten'. Diese Aussage, dass deshalb die bergbaufremden Rückstände (mit oder ohne Vorbehandlung zur Verminderung der Stofffreisetzung) in dem beschriebenen Sinne nicht sicher immissionsneutral in den BHV-Bereichen abgelagert werden können, gilt, obwohl die ‚Basisgutachten' nicht konkret angeben, welche Schwermetallkonzentrationen diejenigen Tiefengrundwässer *in situ* aufweisen werden, die die Hohlräume der versetzten Rückstände füllen und durchströmen werden[35].

Sollte eine ‚immissionsneutrale Ablagerung' nicht nur im Sinne eines theoretischen Prinzips behauptet, sondern auch messend überprüfbar und damit nachweisbar gemacht werden können, muss geklärt werden, welche Beschaffenheit die Tiefengrundwässer, die die Hohlräume der versetzten Rückstände füllen und durchströmen werden[36], aufweisen, bevor sie in Kontakt mit den versetzten Rückständen kommen. Wie bei Grundwasseruntersuchungen im Zustrom und Abstrom von potentiellen Stoffeinträgen in oberflächennahe Grundwasserleiter gilt auch hier, im Bezug auf die Untersuchung und Bewertung einer möglichen immissionsneutralen Ablagerung von bergbaufremden Rückständen in BHV-Bereichen: Die im jeweils lokalen Tiefengrundwasser-

---

[34] Wenn die dazu in den ‚Basisgutachten' angegebenen Konzentrationen in Grubenwässern zum Vergleich herangezogen werden.

[35] In diesem Zusammenhang ist noch zu prüfen, ob die Beschaffenheit der mit der Grubenwasserhaltung gehobenen, beprobten und analysierten Grubenwässer der *in situ* Beschaffenheit derjenigen Tiefengrundwässer entspricht, die tatsächlich in die BHV-Bereiche eindringen werden. Verbunden damit stellen sich die Fragen danach, wie die Beschaffenheit solcher Wässer einer Messung zugänglich gemacht werden könnte, und wie der Nachweis einer eventuell behaupteten ‚Immissionsneutralität' hinsichtlich der Tiefengrundwässer in den Porenhohlräumen der versetzten Rückstände geführt werden kann.

[36] Dazu ist zu fragen, ob die gemessene Beschaffenheit der gehobenen Grubenwässer hierzu genutzt werden kann.

Zustrom zum BHV-Bereich gemessene Wasserbeschaffenheit sollte – möglichst unter Berücksichtigung der Fließzeit des Tiefengrundwassers/Porenwassers durch den BHV-Bereich – verglichen werden mit der Beschaffenheit des aus dem BHV-Bereich abströmenden Tiefengrundwassers/Porenwassers, um einen Ursache/Wirkungs-Zusammenhang zwischen einem vermuteten Stoffeintrag und einer möglichen Belastung des unmittelbar abstromigen Tiefengrundwassers nachzuweisen.

In diesem Sinne wäre es nicht fachgerecht, ersatzweise für die Beschaffenheit der zuströmenden Tiefengrundwässer die Beschaffenheit von Grubenwässern, die aus einem ‚großen Einzugsgebiet' stammen, heranzuziehen. Ebenso sind Proben des gehobenen Grubenwassers, auch wenn sie zeitlich nach dem Kontakt der BHV-Bereiche mit ansteigenden Tiefengrundwässern gezogen wurden, ungeeignet, um anhand ihrer Beschaffenheit bzw. ihrer Beschaffenheitsveränderung im Vergleich zur Beschaffenheit, wie sie vor dem Versatz gemessen wurde, auf einen möglichen Stoffaustrag aus NHV-Bereichen zu schließen[37].

Im Hinblick auf das ‚Prinzip der immissionsneutralen Ablagerung' ist auch zu fragen, ob die Tiefengrundwässer, welche als Porenwässer die Hohlräume der versetzten Rückstände in den BHV-Bereichen füllen (und durchströmen) werden, als Grundwässer oder als Teil der versetzten Rückstände anzusehen sind. Werden solche, sich aus zutretenden Tiefengrundwässern entwickelnden Porenwässer als Grundwässer angesehen, kann die Forderung nach einer ‚immissionsneutralen Ablagerung' nicht sicher eingehalten werden, allein im Hinblick auf die Konzentrationen von Blei, Zink und Cadmium, wie sie in Eluaten bergbaufremder Rückstände auftreten. Damit werden vorhandene Unsicherheiten hinsichtlich der Freisetzung weiterer (Schad-) Stoffe (von Antimon über Bor bis zu Zirkon) in die Tiefengrundwässer, welche als Porenwässer die Rückstände in den BHV-Bereichen füllen werden, für die Bewertung der Stofffreisetzung im Hinblick auf eine ‚immissionsneutrale Ablagerung' irrelevant.

Die Aussage, dass die bergbaufremden Rückstände in dem vorgenannten Sinne nicht sicher immissionsneutral in den BHV-Bereichen abgelagert werden können, gilt, obwohl die ‚Basisgutachten' hinsichtlich der hydrogeochemischen Prozesse innerhalb der versetzten Rückstände und in den BHV-Bereichen behaupten, dass die Rückstände

---

[37] Unter Berücksichtigung der Größenordnung von räumlichen und zeitlichen Dimensionen sowie der Größenordnung der Volumenströme an Tiefengrundwasser kann ein solcher Versuch einer Bewertung mit folgender Vorgehensweise verglichen werden. Im Einzugsgebiet einer Rohwassergewinnungsanlage ist kürzlich ein Grundwasserschadensfall aufgetreten, der – auf einer Fläche von 10.000 m^2 – zum Eintrag bestimmter Stoffmassenströme von Schwefelsäure/H_2SO_4 in das neu gebildete Grundwasser an der Grundwasseroberfläche geführt hat. Die mit der Untersuchung und Bewertung des Schadensfalls Beauftragten kennen weder die der zu erwartenden ‚Verdünnungseffekte', noch die auf der Fließstrecke der Schwefelsäure-belasteten Grundwässer möglicherweise ablaufenden hydrogeochemischen Prozesse sowie die räumlich-zeitlich stark variierenden Beschaffenheit der Rohwässer und der geogenen Grundwässer, in die der Stoffeintrag erfolgte. Trotzdem beproben sie das geförderte Rohwasser – 24-mal in den 24 Monaten nach dem Eintritt des Schadenfalls. Wie soll auf diese Art ein kausaler Zusammenhang zwischen Stoffeintrag in das lokal betroffene neu gebildete Grundwasser und seiner Auswirkung auf die Beschaffenheit des geförderten Grundwassers hergestellt werden können? Hinsichtlich eines BHV-Bereichs sind wissenschaftliche fundierte Aussagen zu einer möglichen Immissionsneutralität von Stofffreisetzungen (neben anderen Voraussetzungen) nur dann sicher, wenn mit Tiefengrundwassermessstellen im unmittelbaren Abstrom die aus dem BHV-Bereich austretenden Porenwässer direkt beprobt werden können. Parallel dazu müssen dann die in den BHV-Bereich eintretenden Tiefengrundwässer beprobt (und auf ihre Beschaffenheit) untersucht werden. Gelingt dies nicht, oder wird dies nicht gewollt bzw. für machbar gehalten, kann eine ‚Immissionsneutralität' lediglich behauptet und als theoretisches Konzept gelten – nicht jedoch nachgewiesen werden.

bzw. die BHV-Bereiche als „innere geochemische Barriere“ fungieren[38]. Hier können, so argumentieren die ‚Basisgutachten‘, die „verbrachten Abfälle“ (Rückstände) „chemisch mit den Inhaltsstoffen der Sickerwässer reagieren und damit eine Schadstoffausbreitung verhindern“. Dieser Teil des Geosystems umfasst neben den verbrachten Rückständen selbst auch die Rand- bzw. Kontaktbereiche der verfüllten Hohlräume zu den teilweise verstürzten Festgesteinen des Karbons. „Zusammenfassend ist“, so die ‚Basisgutachten‘ weiter, “festzustellen, daß die innere geochemische Barriere – nämlich der unmittelbare Versatzbereich – einen wichtigen Sicherheitsfaktor für die Verbringung von MVA-Reststoffen darstellt.“ Durch welche Untersuchungsergebnisse zu Schwermetallkonzentrationen und pH-Werten in wässrigen Lösungen realer Systemen (mit Porenwässern gefüllte Rückstände in BHV-Bereichen)[39] diese Behauptung belegt werden kann, wird aus den ‚Basisgutachten‘ nicht ersichtlich. Dass eine solche ‚Grundannahme‘ zu einer „inneren geochemische Barriere“, die „chemisch mit den Inhaltsstoffen der Sickerwässer reagieren und damit eine Schadstoffausbreitung verhindern“ wird, mit den Ergebnissen der in den ‚Basisgutachten‘ dargestellten Laborversuche zur Stofffreisetzung aus den Rückständen begründet werden kann, muss in Frage gestellt werden. Das gilt insbesondere unter dem Gesichtspunkt einer langfristigen Entwicklung. Insofern ist diese ‚Grundannahme‘ einer „inneren geochemische Barriere“ mit den damaligen Messungen und Labormethoden als nicht nachgewiesen zu bewerten.

Aus den Kernaussagen der GRS-Berichte zum ‚Quellterm‘ für Blei und der ihn beschreibenden empirischen Funktion für die Bleikonzentration in Abhängigkeit vom Wasser/Feststoff-Verhältnis bzw. von der Zeit (Abbildungen 2.5/2 und 5.1.1./8.) lässt sich herleiten, dass die ‚Basisgutachten‘ davon ausgehen und auch ihre Modellierungen zur Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld‘ entsprechend aufbauen, dass die Bleikonzentrationen in den aus den BHV-Bereichen austretenden Porenwässern

- über einige Jahrzehnte nach dem ersten Kontakt mit Tiefengrundwässern hoch sein werden (zwischen 2000 und 10 mg/l) und
- danach zwar kontinuierlich geringer werden, aber
- über einige Jahrhunderte auf einem Niveau zwischen zehn und einem Milligramm pro Liter bleiben.

Damit stellt sich die Frage danach, wie es möglich sein soll, dass aus einer, die Schadstofffreisetzung und Ausbreitung verhindernden „inneren geochemischen Barriere“ derartige Stoffmassenströme ausgetragen werden können – selbst unter ‚worst case‘ Bedingungen. Wie verträgt sich ein solcher ‚Quellterm‘ mit der von den ‚Basisgutachten‘ behaupteten „inneren geochemischen Barriere“?

In wieweit diese Behauptung und der hergeleitete ‚Blei-Quellterm‘ der folgenden, zentralen Aussage der DMT zur Stofffreisetzung in langfristiger Perspektive widersprechen, kann hier nicht bewertet werden: Die „Abschätzungen unter Verwendung der oben genannten Durchlässigkeiten“ bergbaufremder Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern (k_f-Werte meist zwischen 10^{-07} bis 10^{-12} m/s) „ergeben, daß die pH-Werte bei einer Beeinflussung des Versatzes durch Laugungsvorgänge mehr als 100000 Jahre stabil bleiben müßten. Unter Übertragung der Labordaten wären in diesen Zeiträumen

[38] Diese Aussagen sind nicht spezifisch auf die BHV-Bereiche des BW ‚Haus Aden / Monopol‘ bezogen.

[39] Das gilt insbesondere für Zink, Blei und Cadmium sowie in der langfristigen Perspektive.

mit stabilem basischen pH-Milieu“ (pH-Werte zwischen ca. 10 und 12) „maximale Schwermetallausträge möglich, die den in den Kaskadenschüttelelutionen ermittelten Werten entsprechen (s. Tab. 7.1)[40]. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß in diesen Zeiträumen der Einfluß von stoffinternen Reaktionen (z.B. Mineralneubildungen) die Puffereigenschaften des Materials beeinflußt. Derartige Prozesse können den Einfluß der Laugung (Abfuhr von Hydroxiden) überlagern. Exakte Berechnungen lassen sich daher nicht durchführen.“

Unabhängig davon, ob die Tiefengrundwässer, welche die Hohlräume der BHV-Bereiche füllen, durchströmen und dabei zu Porenwässern in den Rückständen werden, als Grundwässer oder als Teil der versetzten Rückstände angesehen werden, ist der untertägige Versatz solcher bergbaufremden Rückstände als „eine nachteilige Veränderung der geogenen Beschaffenheit des Einlagerungsmilieus“[41] – der ehemaligen Nebengesteine der jetzt ausgekohlten Flöze – zu bewerten. Deren geogene Gehalte an Schwermetallen (hier: Blei, Zink, Cadmium) sind deutlich geringer als die entsprechenden Gehalte dieser Schwermetalle in den bergbaufremden Rückständen.

Werden die Porenwässer in den versetzten Rückständen nicht als Grundwässer angesehen, sondern als Teil der versetzten Rückstände definiert[42], ist im Hinblick auf eine ‚immissionsneutrale Ablagerung‘ zu prüfen, welche Stoffausträge aus diesen Porenwässern (per Diffusion) und/oder mit diesen Porenwässern (per Advektion) aus den BHV-Bereichen in solche Tiefengrundwässer hineingelangen, die im ‚Nahfeld‘ der BHV-Bereiche die dort vorhandenen Hohlräume der Festgesteine füllen.

Für eine solche Prüfung müssen – neben den Konzentrationen der Schwermetalle (und ggfs. auch anderer Stoffe) in diesen Porenwässern – die entsprechenden, diffusiven bzw. advektiven Stoffmassenströme[43] abgeschätzt werden, welche aus den BHV-Bereichen in deren ‚Nahfeld‘ übertreten.

Neben den, insbesondere mit ihrer langfristigen Entwicklung nicht bekannten Stoffkonzentrationen in den die Rückstände füllenden Porenwässern, kommen hier deshalb auch die geohydraulischen Eigenschaften der versetzten Rückstände in den BHV-Bereichen zum Tragen. Diese werden sich in der Zeit, insbesondere über längere Zeiträume, verändern.

---

[40] Allerdings gibt die Tabelle 7.1 des DMT-Abschlussberichts die Schwermetallausträge in Form von „wasserlöslichen Anteilen“ in der Dimension mg/kg Rückstand an; Stoffkonzentrationen in wässrigen Lösungen oder Stoffmassenströme werden nicht genannt. Mit der Abbildung 2.5/1 geben die GRS-Berichte Bleikonzentrationen in unterschiedlichen wässrigen Eluaten von Rückständen an, die bei fünf von elf dargestellten Elutionsversuchen oberhalb von 250 mg/l liegen.

[41] Die ‚Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen – Kurzfassung - reproduzierte Fassung (1991)‘ bezieht in ihre Aussagen zur immissionsneutralen Verbringung das „Einlagerungsmilieu“ und damit den mit Grundwasser erfüllten Gesteinskörper ein: „… keine nachteilige Veränderung der geogenen Beschaffenheit des Einlagerungsmilieus, insbesondere der Grundwässer zu besorgen ist.“

[42] Dabei wären insbesondere geohydraulische Zusammenhänge zu berücksichtigen.

[43] Und das angesichts der Aussage der ‚Basisgutachten‘, dass die Kurzzeit-Elutionsversuche „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz“ (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können“ und angesichts der mit diesem Bericht hier vertretenen Einschätzung, dass mit den ‚Basisgutachten‘ keine gesicherten Erkenntnisse (in Form von Messwerten) und auf Plausibilität geprüfte Vorhersagen zu den zu erwartenden Schwermetallkonzentrationen in solchen Porenwässern vorliegen, welche die versetzten Rückstände in BHV-Bereichen füllen und durchströmen werden.

In den ‚Basisgutachten' wird dargestellt, dass sich – Druck-beeinflusst – die Durchlässigkeitsbeiwerte der Rückstände (oder auch ihrer Mischungen mit Flotationsbergen und RAA-Schlämmen) für Grundwasser von ursprünglich in der Größenordnung von 10^{-7} m/s innerhalb von einigen Tagen bis Wochen auf 10^{-10} bis zu 10^{-12} m/s vermindern können. Damit würden solche versetzten Rückstände beim Kontakt mit Tiefengrundwässern sehr schlecht durchlässig für Tiefengrundwässer werden[44]. Entsprechend klein wären – bei gegebenen hydraulischen Gradienten während des Grubenwasseranstiegs und in der darauffolgenden quasi-stationären Phase der Tiefengrundwasserströmung – die (spezifischen) Durchflüsse durch die Rückstände und die zughörigen Stoffmassenströme, die advektiv aus den versetzten Rückständen in das umgebende ‚Nahfeld' übertreten. Auch die für die diffusiven Stoffmassenströme relevanten Eigenschaften der Rückstände (Porosität[45] bzw. Tortuosität) verändern sich bei Kurzzeit-Versuchen. Die ‚Basisgutachten' stellen dazu dar, dass die versetzten Rückstände große Wasseraufnahmevermögen aufweisen (meist zwischen 35 und 75 Gew.% bzw. Vol.%) und dass mit der Wasseraufnahme „hydraulische Bindungsvorgänge" und eine „nahezu spontane Eigenverfestigung infolge Hydratation" einhergehen. Im Zusammenhang mit dem Kontakt mit wässrigen Lösungen – insbesondere mit Tiefengrundwässern – beschreiben die ‚Basisgutachten' weiter, dass bestimmte hydrogeochemische Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände (wie z.B. Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Anhydrit/$CaSO_4$, Gips/$CaSO_4{:}2H_2O$, Calcit/$CaCO_3$, Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$, Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ und Brucit/$Mg(OH)_2$) ablaufen[46]. Mit dem hier vorliegenden Bericht wird die Einschätzung vertreten, dass dabei das Mikrogefüge des porösen, wassergefüllten Rückstandskörpers so umstrukturiert wird, dass es innerhalb der frühen Phasen des Kontakts der versetzten Rückstände mit Tiefengrundwässern und unter dem Einfluss eines anzusetzenden lithostatischen bzw. hydrostatischen Druckes zu der beschriebenen Verminderung der Durchlässigkeitsbeiwerte der Rückstände für Tiefengrundwasser kommt – wie bei Kurzzeit-Laborversuchen beobachtet. Zum Wasseraufnahmevermögen der Rückstände trägt in den ersten zeitlichen Phasen des Zutritts von wässrigen Lösungen wohl auch die Aufnahme von H_2O als Kristallwasser in den Gips bei, der sich aus Anhydrit bildet – so die hier mit dem vorliegenden Bericht vertretene Anschauung.

Wohl in diesem Sinne argumentieren die ‚Basisgutachten' mit der Grundannahme einer „effektiven hydraulischen Barriere" – zusätzlich zur „inneren geochemischen Barriere". „Der verbrachte Reststoff" (Rückstand) „stellt unter derartigen Verhältnissen mit dem nachbrechenden tonigen Gebirge eine effektive hydraulische Barriere dar. Im Idealfall ist die Wasserdurchlässigkeit minimal, so daß der Reststoff potentiellen Sickerwässern" (oder dem ansteigenden Tiefengrundwasser) „einen maximalen Strömungswi-

---

[44] Wenn dazu der Begriff „Selbstdichtung" (Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen; Kurzfassung; reproduzierte Fassung; 1991) verwendet wird, sollte geprüft werden, ob das auch unter Langzeitsicherheitsaspekten gerechtfertigt ist.

[45] Während der DMT-Abschlussbericht (druckabhängig) gemessene Gesamtporositäten von REA-Salzen mit Werten zwischen 10 und 70% angibt, setzen die GRS-Berichte für das Langzeitsicherheits-Tool die Porosität der BHV-Bereiche (Rückstände plus verstürztes Nebengestein) mit 5% an.

[46] Auch NaKCaAl-Silikate (von der DMT als „Feldspäte" gekennzeichnet) treten in solchen Mineralphasengemischen auf, die in Reaktionskontakt mit wässrigen Lösungen gekommen sind und sind wohl als sekundäre Neubildungen anzusprechen.

derstand entgegensetzt und eine Stofflösung allenfalls in der Randzone des weitgehend wasserundurchlässigen Reststoffmonolithen“ (verbrachter Rückstand) „stattfinden kann“, so die ‚Basisgutachten‘.

Jede, an einer langfristigen Perspektive ausgerichtete Aussage dazu, wie sich solche hydrogeochemischen Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände und die damit verbunden Auswirkungen (z.B. auf die Durchlässigkeit der Rückstände für Grundwässer) entwickeln werden, muss allerdings berücksichtigen, dass die bergbaufremden Rückstände zu einem mehr oder weniger großen Anteil aus wasserlöslichen Feststoffen (meist zwischen einigen Gramm und wenigen hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand) bestehen[47]. Das hydrogeochemische Verhalten der Rückstände hat – im Hinblick auf eine Stofffreisetzung in die Porenwässer und/oder einen Stoffaustrag aus bzw. mit diesen Porenwässern in das ‚Nahfeld‘– sowohl hydrogeochemische als auch geohydraulische Aspekte und Implikationen. Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der versetzten Rückstände sind simultan ablaufende Reaktionen, die ein komplexes Netz ineinandergreifender hydrogeochemischer Reaktionen aufbauen, deren Entwicklungsrichtung chemisch-thermodynamisch kontrolliert wird. Von geohydraulischer Art sind die Veränderungen der Durchlässigkeit der versetzten Rückstände durch die hydrogeochemischen Reaktionen – insbesondere der Auflösung bei der Stofffreisetzung. Die beiden Teilprozesse sind in der Art miteinander gekoppelt, dass Stoffauflösungen (= Stofffreisetzung in die wässrige Lösung = Abnahme des Feststoffvolumens im Rückstand) zur Vergrößerung der Porosität und damit verbunden auch der Durchlässigkeit führen können; Ausfällungen von Stoffen (= Stoffdemobilisation aus der wässrigen Lösung = Zunahme des Feststoffvolumens im Rückstand) dagegen können zu einer Verringerung von Porosität und Permeabilität führen – so die hier mit dem vorliegenden Bericht vertretene Sichtweise. Insofern ist das chemisch-thermodynamisch kontrollierte Löslichkeitsverhalten der Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern – insbesondere unter dem Gesichtspunkt der langfristigen Prozessentwicklung – von entscheidender Bedeutung. Denn die aus den versetzten Rückständen (aus bzw. mit den Porenwässern) austretenden Stoffmassenströme ergeben sich

- aus den durch Löslichkeitsgleichgewichte und daran gekoppelten Gleichgewichten aquatischer Spezies kontrollierten Konzentrationen der aus den mineralischen Feststoffphasen der Rückstände freigesetzten Stoffe und

- aus den die versetzten Rückstände (in Abhängigkeit u.a. von der sich in der Zeit verändernden Durchlässigkeit bei hydrogeochemischen Prozessen der Stoffauflösung/ Stoffausfällung) durchströmenden Volumenströmen an Tiefengrundwasser.

Diffusive Stoffmassenströme gewinnen gegenüber den advektiven Stoffmassenströmen dann an Bedeutung, wenn die Durchlässigkeiten der BHV-Bereiche und die sie betreffenden hydraulischen Gradienten sehr gering sind. Auch „weitgehend wasserundurchlässige Reststoffmonolithen“ sind dann einer Stofffreisetzung ausgesetzt, die al-

---

[47] Zusätzlich zu den ‚relativ gut wasserlöslichen‘ Feststoffphasen können sich auch Mineralphasen, die wie Quarz (Hauptbestandteil der Feststoffe in den Rückständen) als ‚relativ schlecht wasserlöslich‘ gelten, in größeren Mengen in solchen Porenwässern innerhalb der Rückstände lösen, wenn die Porenwässer erhöhte pH-Werte (pH 10 bis 12) aufweisen. Hohe pH-Werte sind typisch für die wässrigen Eluate der Rückstände. Solche Reaktionen der Quarzlösung ähneln einem als Schädigungsmechanismus für Beton beschriebenen Prozess, der zu einer starken Beeinträchtigung der Dauerhaftigkeit von Beton-Feststoffkörpern führen kann, die Portlandzement und SiO_2-haltige Phasen (wie Quarz) enthalten: die sogenannte ‚Alkali-Kieselsäure-Reaktion‘.

lerdings mit vergleichsweise kleinen Stoffmassenströmen über sehr lange Zeiträume wirken wird, so die hier mit dem vorliegenden Bericht vertretene Einschätzung.

Hinweise darauf, dass selbst bei Kurzzeit-Perkolationsversuchen im Labor in durchströmten Säulen eine solche, sich auf die geohydraulischen Eigenschaften der Rückstände auswirkende Netto-Auflösung[48] mineralischer Feststoffe aus den Rückständen abläuft, sind den ‚Basisgutachten' zu entnehmen: „Aufgrund der hohen löslichen Volumenanteile in den Reststoffproben treten häufig Randumläufigkeiten bzw. Ausspülungen im Probenkörper (von Perkolationsversuchen mit durchströmten Säulen) auf …". Insofern ist festzustellen, dass das langzeitliche geohydraulische Verhalten der Rückstände im Reaktionskontakt mit den sie füllenden und durchströmenden Tiefengrundwässern bzw. Porenwässern ungeklärt ist bzw. die Grundannahme der ‚Basisgutachten' einer „effektiven hydraulischen Barriere" und damit auch einer „inneren geochemischen Barriere" nicht nachgewiesen und deshalb nicht gültig ist. Es gilt nicht nur, dass die kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuche „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können"; es gilt ebenso, dass die mit diesen „vielfältigen geochemischen Prozessen im Versatz" einhergehenden Änderungen der geohydraulischen Eigenschaften der Rückstandskörper nicht geklärt sind – insbesondere hinsichtlich langfristiger Entwicklungen. Eine dauerhaft relativ geringe Durchlässigkeit bzw. auch die „Selbstdichtung" der Rückstände ist unter dem Gesichtspunkt der Langzeitsicherheit in den ‚Basisgutachten' nicht nachgewiesen[49]. Nicht sicher auszuschließen ist deshalb, dass über einen Zeitraum von einigen Zehner bis zu einigen Zehntausend Jahren advektiv-diffusive Stoffmassenströme löslicher Bestandteile aus den Rückständen heraus zu einer Zunahme der Porosität bzw. auch der Durchlässigkeit führen können – in Abhängigkeit des auf die Rückstände einwirkenden Drucks[50].

Gültige, auf Plausibilität geprüfte, empirisch ermittelte Erkenntnisse (aus kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen) zur langfristige Entwicklung der geohydraulischen Eigenschaften der Rückstände (Porosität und Durchlässigkeit) in den BHV-Bereichen liegen mit den ‚Basisgutachten' nicht vor.

Der in den ‚Basisgutachten' angewandte wissenschaftliche Ansatz, mit dem die Wirkung einer „effektiven hydraulischen Barriere" und einer „inneren geochemischen Barriere" behauptet – aber in der Langfristperspektive nicht nachgewiesen wird, entspricht nicht vollständig dem damaligen Stand der wissenschaftlichen Herangehensweise und der Erkenntnisse hinsichtlich des hydrogeochemischen Verhaltens von Abfällen. Auch auf dem Gebiet der nuklearen Entsorgungstechnik waren damals Fragen bezüglich der hydrogeochemischen Stabilität, Porosität, Durchlässigkeit und Beständigkeit (Stofffreisetzung) von zementierten Abfällen im Reaktionskontakt mit korrosiven ‚Salzlösungen'

---

[48] Im Netz der aneinander gekoppelten Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen der Mineralphasen in den Rückständen.

[49] Wie sollte das auch mit Laborversuchen möglich sein, die das Verhalten der Rückstände über maximal ca. 300 Tage beobachten? Die ‚Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen' (Kurzfassung; reproduzierte Fassung; 1991) nennt in diesem Zusammenhang Zeiträume von mehr als zehntausend Jahren.

[50] Mit anderen Worten: Langfristig können, durch das den Rückständen zu- und aus ihnen abströmende Tiefengrundwasser und/oder durch diffusive Stoffmassenströme aus den Rückständen heraus, neue, lösungs-induzierte Wasserwegsamkeiten innerhalb der versetzten Rückstände geschaffen werden.

zu beantworten. Sowohl die in die BHV-Bereiche verbrachten Rückstände als auch zementierten Abfälle der nuklearen Entsorgung sind mineralische Systeme, die u.a. Portlandit/$Ca(OH)_2$ als geochemisch reaktive Phase enthalten. Schon in den 1990'ger Jahren hat sich das Forschungszentrum Karlsruhe (Institut für Nukleare Entsorgung) mit den Mechanismen der Korrosion solcher Systeme durch ‚Salzlösungen' beschäftigt. Die wissenschaftliche Herangehensweise des Instituts für Nukleare Entsorgung bezieht dabei (hydro-) geochemische Modellierungen ein, die auf chemisch-thermodynamischer Grundlage hydrogeochemische Prozesse berechnen[51]. Die Korrosion durch „Auslaugung", so das Institut für Nukleare Entsorgung, „führt zur Auflösung der festen Portlandit ($Ca(OH)_2$) Phasen und damit zur Vergrößerung des inneren Porenraums des Zementprodukts". Als weiteren Mechanismus, der die hydrogeochemische Stabilität, Beständigkeit und damit auch die Wasserdurchlässigkeit Portlandit-haltiger, mineralischer Systeme im Kontakt mit korrosiven ‚Salzlösungen' kennzeichnet, ist die „Korrosion durch Treibvorgänge". Diese damit verbundene Veränderung des Mikrogefüges der Portlandit-haltigen, mineralischen Systeme wird, so das Forschungszentrum Karlsruhe weiter, „hervorgerufen durch die Bildung neuer Phasen mit höherem spezifischen Volumen (bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen). „Diese Art der Korrosion", so das Institut für Nukleare Entsorgung weiter, „tritt z.B. bei der Einwirkung von Sulfat auf" (Portlandit-haltigen) „Zement ein."[52]

Das Mineral Brucit/$Mg(OH)_2$, das bei der Freisetzung von OH^--Ionen (u.a. aus Portlandit/$Ca(OH)_2$ und Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$) in die Porenwässer und der anschließenden Reaktion dieser OH^--Ionen u.a. mit Tiefengrundwasser-bürtigen Mg^{2+}-Ionen in den Porenhohlräumen der Rückstände in den BHV-Bereichen ausgefällt werden könnte, hat ein hohes spezifisches Volumen bzw. eine geringe Dichte von 2,39 g/cm^3. Nach der Ausfällung des Brucits wird mit der in der Zeit nachlassender Freisetzung von OH^--Ionen bei den weiteren Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen, die durch den Porenwasseraustausch mit zutretendem Tiefengrundwasser angetrieben werden, Brucit instabil und wird sich auflösen. Dabei wird sich das Mikrogefüge der Rückstände erneut verändern; Hohlräume werden dort entstehen, wo zuvor Brucit ausgefällt wurde.

Ein weiteres Beispiel aus dem komplexen Netzt der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen, die durch den Porenwasseraustausch mit zutretendem Tiefengrundwässern in die Rückstände angetrieben werden, ist die mit einer Zunahme des Feststoffvolumens verbundene Umwandlung von primärem Anhydrit/$CaSO_4$ zu sekundärem Gips/$CaSO_4{:}2H_2O$. Auch dabei wird sich das Mikrogefüge der Rückstände ändern; bei nachfolgenden, weiteren Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen, die durch den Porenwasseraustausch mit zutretendem Tiefengrundwasser angetrieben werden, wird Gips instabil und löst sich auf. Dabei wird sich das Mikrogefüge der Rückstände erneut verändern; Hohlräume entstehen dort, wo zuvor Gips ausgefällt wurde.

---

[51] Kienzler, B. & P. Vejmelka (1998); Geochemische Modellierung der Korrosion von zementierten Abfallprodukten in Salzlösungen – Experimentelle Basis, Methoden und Ergebnisse; Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, 39 Seiten.

[52] Feststoffgebundenes, wasserlösliches und korrosiv wirkendes Sulfat ist ein wesentlicher Bestandteil der versetzten bergbaufremden Rückstände.

Die summarische Wirkung solcher Interaktionen zwischen diesen – und vielen weiteren – hydrogeochemischen Prozessen[53], den damit verbundenen Umsätzen an Wasser und den geohydraulischen Vorgängen auf das Mikrogefüge der Rückstände, auf ihre hydrogeochemische Beständigkeit und Durchlässigkeit ist nicht geklärt. Das gilt insbesondere unter dem Gesichtspunkt der langfristigen Entwicklung. Der in den ‚Basisgutachten' dazu dokumentierte Kenntnistand erlaubt es nicht, die Wirkung der untertägig versetzten Rückstände als „effektive hydraulische Barriere" und als „innere geochemische Barriere" als gültiges, realitätsnahes Konzept zu behaupten.

Weil auf empirischem Wege, mit kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuchen wohl kaum sichere Erkenntnisse zu solchen gekoppelten hydrogeochemisch-geohydraulischen Prozessen/Interaktionen unter *in situ* Bedingungen und Langzeitsicherheitsaspekten erarbeitet werden können, soll (im Abschnitt 5 dieses Berichts) mit hydrogeochemischen, numerischen Modellierungen dem rein empirischen, beschreibenden Ansatz der Laborversuche ein wissenschaftlicher Ansatz gegenüber gestellt werden, der auf den allgemein gültigen Stoffgesetzen der chemischen Thermodynamik für Reaktionsgleichgewichte in wässrigen Lösungen beruht. Mit diesem Ansatz soll auf dem heutigen Stand der Wissenschaft und der Praxis anhand simpler, semi-generischer Systeme gezeigt werden, dass „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die Laborversuche „nicht widerspiegeln können" (so die Aussage der ‚Basisgutachten'), allgemein gültigen und übertragbaren chemisch-thermodynamischen Berechnungen zugänglich sind. Denn es sind, gerade unter dem Aspekt langfristiger Entwicklungen, die chemisch-thermodynamischen Bedingungen, welche zumindest die Richtung solcher Entwicklungen hydrogeochemischer Prozesse vorgeben.

Ob sich infolge solcher hydrogeochemisch-geohydraulischer Interaktionen das Hohlraumvolumen der versetzten Rückstände in den BHV-Bereichen – und damit auch deren Durchlässigkeit für Tiefengrundwässer unter *in situ* Bedingungen und unter Berücksichtigung des einwirkenden Drucks – verändern kann, sollte unter Einbeziehung von Modellierungsergebnissen[54] eingeschätzt werden. Sollte dabei nicht sicher ausgeschlossen werden können, dass langfristig die Durchlässigkeit der Körper aus bergbaufremden Rückständen in den BHV-Bereichen im Kontakt mit den sie füllenden und durchströmenden Tiefengrundwässern deutlich zunehmen wird und/oder sich lösungsinduzierte Wasserwegsamkeiten bilden, kommt dieser Entwicklung der geohydraulischen Eigenschaften der versetzten Rückstände besondere Bedeutung zu. Somit käme diesen hydrogeochemisch-geohydraulischen Interaktionen besondere Bedeutung für den Nachweis eines langfristig vollständigen Einschlusses der versetzten Rückstände zu.

Nach dem ‚Prinzip des vollständigen Einschlusses' sind die verbrachten „Abfälle und deren Stoffausträge von der Biosphäre weitgehend und dauerhaft fernzuhalten". Das

---

[53] Einschließlich der sogenannten ‚Alkali-Kieselsäure-Reaktion'. Zusätzlich zu den ‚relativ gut wasserlöslichen' Feststoffphasen können sich auch Mineralphasen, die wie Quarz (Hauptbestandteil der Feststoffe in den Rückständen) als ‚relativ schlecht wasserlöslich' gelten, in größeren Mengen in solchen Porenwässern innerhalb der Rückstände lösen, wenn die Porenwässer erhöhte pH-Werte (pH 10 bis 12) aufweisen. Hohe pH-Werte sind typisch für die wässrigen Eluate der Rückstände. Solche Reaktionen der Quarzlösung ähneln einem als Schädigungsmechanismus für Beton beschriebenen Prozess, der zu einer starken Beeinträchtigung der Dauerhaftigkeit von Beton-Feststoffkörpern führen kann, die Portlandzement und SiO_2-haltige Phasen (wie Quarz) enthalten.

[54] Diese Ergebnisse können nicht mit den zuvor angesprochenen, im Rahmen dieses hier vorliegenden Berichtes durchgeführten Modellierungen simpler und semi-generischer Systeme erzielt werden.

Risiko, dass in diesem Sinne relevante Stoffausträge aus den versetzten Rückständen zunächst in das unmittelbare ‚Nahfeld' der BHV-Bereiche erfolgen werden, ist – nur auf der Grundlage der ‚Basisgutachten' – nicht einschätzbar gewesen. Dass in Szenarien mit einer solchen, bisher nicht auszuschließenden geohydraulischen Entwicklung der BHV-Bereiche (mit zunehmenden Durchlässigkeiten und Wasserwegsamkeiten) keine relevanten Stoffausträge in das ‚Nahfeld' der BHV-Bereiche erfolgen werden, ist in den ‚Basisgutachten' nicht nachgewiesen. Die ‚Basisgutachten' gehen auf solch mögliche langfristige Entwicklungen der Stofffreisetzung aus den Rückständen in die sie füllenden Porenwässer wie folgt ein. Der DMT-Abschlussbericht stellt fest, dass „Abschätzungen unter Verwendung der oben genannten Durchlässigkeiten" bergbaufremder Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern (k_f-Werte meist zwischen 10^{-07} bis 10^{-12} m/s) „ergeben, daß die pH-Werte bei einer Beeinflussung des Versatzes durch Laugungsvorgänge mehr als 100000 Jahre stabil bleiben müßten. Unter Übertragung der Labordaten wären in diesen Zeiträumen mit stabilem basischen pH-Milieu" (pH-Werte zwischen ca. 10 und 12) „maximale Schwermetallausträge möglich, die den in den Kaskadenschüttelelutionen ermittelten Werten entsprechen (s. Tab. 7.1)[55]. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß in diesen Zeiträumen der Einfluß von stoffinternen Reaktionen (z.B. Mineralneubildungen) die Puffereigenschaften des Materials beeinflußt. Derartige Prozesse können den Einfluß der Laugung (Abfuhr von Hydroxiden) überlagern. Exakte Berechnungen lassen sich daher nicht durchführen."

Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1x10^{-8}$ m/s und $1x10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

Dieses Risiko, dass langfristig die Durchlässigkeit der bergbaufremden Rückstände in den BHV-Bereichen im Kontakt mit den sie füllenden und durchströmenden Tiefengrundwässern deutlich zunehmen kann und/oder sich lösungs-induzierte, möglicherweise bevorzugte Wasserwegsamkeiten bilden können, ist relevant[56]. Tritt dieses Risiko ein, kommt der Mobilität der gelösten Schwermetalle, ihrer Stoffausbreitung – und aller anderen, advektiv-diffusiv in das BHV-Nahfeld verfrachteten Stoffe – besondere Bedeutung zu.

Eine weitere hydrogeochemisch-geohydraulische Interaktion kann sich auf das geohydraulische Verhalten der versetzten, mit Porenwässern erfüllten Rückstände innerhalb der BHV-Bereiche auswirken. Genauso wie die zuvor beschriebene Interaktion, die über eine nicht auszuschließende Netto-Auflösung von Feststoffphasen (‚es lösen sich größere Feststoffvolumina im Vergleich zu den ausgefällten Feststoffvolumina') die Durchlässigkeit des die „effektive geohydraulische Barriere" bildenden „Reststoff-

---

[55] Allerdings gibt die Tabelle 7.1 des DMT-Abschlussberichtes die Schwermetallausträge in Form von „wasserlöslichen Anteilen" in der Dimension mg/kg Rückstand an; Stoffkonzentrationen in wässrigen Lösungen oder Stoffmassenströme werden nicht genannt. Mit der Abbildung 2.5/1 geben die GRS-Berichte Bleikonzentrationen in unterschiedlichen wässrigen Eluaten von Rückständen an, die bei fünf von elf dargestellten Elutionsversuchen oberhalb von 250 mg/l liegen.

[56] Das kann auch in der konsequenten Weiterverfolgung der Festlegungen der ‚Basisgutachten' zum Blei-Quellterm deutlich werden. Den damit beschriebenen massiven Freisetzungen von Blei (über Jahrzehnte hinweg mit bis zu 2,4 g/l in den wässrigen Lösungen) müssen auf der Feststoffseite entsprechend große Mengen/Volumina an Blei-haltigen Feststoffen gegenüber stehen, die sich – unter Zunahme des Hohlraumanteils – bei der Mobilisation von Blei aufgelöst haben müssen. Und selbstverständlich lösen sich nicht nur die Blei-haltigen Feststoffe.

monolithen“ im Laufe der Zeit steigern könnte, so ergibt sich auch diese Interaktion aus einem weiteren, sehr einfachen chemischen Prinzip. Während bei der erstgenannten Interaktion chemisch-thermodynamisch getriebene Einstellungen von Löslichkeitsgleichgewichten ursächlich sind, wird diese zusätzliche Interaktion durch chemisch-thermodynamische ‚Neutralisations-Reaktionen‘ (‚Säure-Pufferungs-Reaktionen‘) angetrieben. Ein erheblicher Teil der Feststoffphasen der Rückstände besteht – schon vor oder nach dem ersten Kontakt mit den die Rückstände füllenden Tiefengrundwässern – aus solchen potentiell instabilen, im wiederholten Kontakt mit Wässern löslichen Mineralphasen, die H_2O-Moleküle und/oder Hydroxyl-Gruppen (OH^-) in ihre Strukturen eingebunden haben: ‚Kristallwasser‘ z.B. im Gips, Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$; sowie Portlandit/$Ca(OH)_2$ oder Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O mit Kristallwasser und Hydroxyl-Gruppen/OH^--Ionen. Das zuvor strukturell und feststoffgebundene Wasser wird bei der Auflösung der ‚wasserhaltigen‘ Phasen freigesetzt und mischt sich (als ‚reines Wasser‘ H_2O) dem Porenwasser zu, in dem die Phasen aufgelöst wurden. Mehr noch, die Auflösung der Hydroxyl-Gruppen-haltigen Mineralphasen setzt OH^--Ionen in das Porenwasser frei, was zu Erhöhung der pH-Werte im Porenwasser bis auf ca. pH 12 führen kann. Freie und gebundene H^+-Ionen aus dem zutretenden Tiefengrundwasser, oder diffusiv aus dem Nahfeld in die Rückstände gelangende H^+-Ionen reagieren – im Porenwasser, das die Rückstände füllt – mit den darin freigesetzten OH^--Ionen. Dabei bilden sich dem Stoffumsatz entsprechende Mengen bzw. Volumina an Wasser: $H^+ + OH^- \rightarrow H_2O$.

Da diese Wasservolumina *in situ* – im Porenraum der Rückstände bei den sich in der Zeit entwickelnden Stoffumsätzen der Auflösung und der H^+-Transfer-Reaktionen – neu gebildet werden, müssen sie entsprechende Volumina schon vorhandener, den Porenraum vollständig füllender Porenwässer aus dem versetzten Rückstand verdrängen. Aus hydrogeochemischen Prozessen entwickelt sich auf diese Weise – *in situ* und sozusagen durch ‚Grundwasser-Neubildung‘ – ein hydraulischer Gradient, der aus den versetzten Rückständen heraus auf das Nahfeld der BHV-Bereiche gerichtet ist. Dementsprechend – und abhängig von den dabei möglicherweise auch durch Netto-Auflösung zunehmenden Durchlässigkeiten oder entlang von lösungs-induzierten Wasserwegsamkeiten – werden sich Volumenströme des Porenwassers aus den versetzten Rückständen heraus in das unmittelbare ‚Nahfeld‘ der BHV-Bereiche bewegen und sich den jeweils lokalen Grundwasserströmungsfeldern überlagern. Mit diesen Volumenströmen des Porenwassers werden die im Porenwasser gelösten Stoffe advektiv aus den versetzten Rückständen heraus in das ‚Nahfeld‘ verfrachtet. Diese advektiven Stoffmassenströme addieren sich den Stoffmassenströmen auf, die advektiv durch das jeweils lokale Grundwasserströmungsfeld aus den BHV-Bereichen ausgetragen werden.

Die Grundannahmen der ‚Basisgutachten‘ hinsichtlich einer „effektiven hydraulischen Barriere“ und einer „inneren geochemische Barriere“ sind – unter Langzeitsicherheitsaspekten – nur dann als nachgewiesen und gültig zu akzeptieren, wenn u.a. mit chemisch-thermodynamisch basierten hydrogeochemischen Gleichgewichtsmodellierungen gezeigt werden kann, dass bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern langfristig

- sich keine erhöhten Porositäten und Durchlässigkeiten in den versetzten Rückständen entwickeln

- sich in den versetzten Rückständen keine zusätzlichen, relevanten Mengen/Volumina an Wasser neu bilden[57] und

- Schwermetalle dabei in solchen Bindungsformen stabil feststoffgebunden bleiben, die sehr geringe Gleichgewichts-Schwermetallkonzentrationen in den Porenwässern ermöglichen.

Dazu sind chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichtsmodellierungen zu folgenden Punkten durchzuführen[58],

- zur Nettobilanz der Molmengen aufgelöster und ausgefällter Mineralphasen beim wiederholtem Kontakt der Rückstände mit Tiefengrundwässern und den dadurch ausgelösten Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände sowie

- zu den bei diesen Reaktionen umgesetzten Mengen/Volumina an H_2O und

- zu den bei diesen Reaktionen in wässrige Lösung freigesetzten Schwermetallen.

Im sediment-petrographischen Sinne ist eine ausgehärtete, ehemalige Suspension im BHV-Bereich so zu beschreiben, dass

- sie als gröbere Partikel bzw. Klasten verstürztes Nebengestein (80 bis 1 mm) führt

- sie in ihrer Matrix feinere Partikel (< 1 mm) aus Rückstandsmineralgemischen führt und

- die Matrix „hohe“ wasser„lösliche Volumenanteile“ enthält, die „häufig Randumläufigkeiten bzw. Ausspülungen im Probenkörper“ von Perkolationsversuchen mit durchströmten Säulen auslösen.

Deshalb gilt, dass sich beim Zuritt wässriger Lösungen „hohe“ wasser-„lösliche Volumenanteile“ in der Matrix auflösen können – unabhängig davon, ob diese ausgehärtete, ehemalige Suspension im BHV-Bereich durch Zementation und/oder durch Druckeinwirkung zu einem „weitgehend wasserundurchlässigen Abfallmonolithen“ verfestigt ist oder ob sie als „nicht standfestes Korngemisch“ vorliegt. Das wurde bei Perkolationsversuchen mit durchströmten Säulen im Labor beobachtet, auch wenn diese Laborversuche nur bedingt auf die *in situ*-Bedingungen im BW übertragbar sind.

---

[57] Das ist insbesondere unter solchen geohydraulischen Bedingungen von Bedeutung, unter denen der Zustrom von Tiefengrundwässern in die Hohlräume der versetzten Rückstände sehr gering sein wird.

[58] Zur Prüfung der Modellierungen und ihrer Ergebnisse auf ihre Plausibilität müssen die Modellierungen begleitet werden durch Untersuchungen an Labor-Systemen aus wässrigen Lösungen und Mineralphasen, die exakt so aufgebaut sind, wie die modellierten Systeme – mit eindeutig definierten Start- und Randbedingungen.

5 Semi-generische, chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichtsmodellierungen zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern[59]

Die in den Kapiteln 5 bis 5.7.2 dokumentierten Modellierungen zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern sollen – als Vorstudien zu den Modellierungen zum BW ‚Haus Aden/Monopol' – allgemeines hydrogeochemisches Prozessverständnis erarbeiten. Die Ergebnisse dieser Vorstudie hinsichtlich der zeitlichen Entwicklung solcher Prozesse der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags können und dürfen nicht auf die zu erwartenden Verhältnisse im BW ‚Haus Aden/Monopol' übertragen werden. Die hier vorgestellten Ergebnisse zur zeitlichen Entwicklung mit konkreten Zeitangaben in Jahren gelten lediglich für die willkürlich gewählte Abstandsgeschwindigkeit der Porenwasserdurchströmung; sie dienen lediglich dazu, die Modellierungsergebnisse anschaulicher darzustellen, als das mit einer Skala für die Anzahl der Porenwasseraustausche (PWA) möglich ist.

Zudem kann mit den (in nachfolgenden Kapiteln dieses Berichts dokumentieren) PHREEQC 1D-Stofftransportmodellierungen für das BW ‚Haus Aden/Monopol' nicht angegeben werden, in welchen konkreten Zeitabschnitten sich die Stofffreisetzung und der Stoffaustrag entwickeln werden, da die einzelnen Porenwasser-Austausche bei der Durchströmung der BHV-Bereiche nicht immer gleich lang sind. Zu Beginn – in der instationären Flutungsphase – dauert ein PWA der BHV-Bereiche nur wenige Wochen, da noch ein sehr hohes hydraulisches Gefälle zwischen dem bereits gefluteten Grubengebäude und dem BHV-Bereich besteht. Wenn sich stationäre Strömungsverhältnisse eingestellt haben, ist das hydraulische Gefälle wesentlich kleiner, und der einzelne PWA dauert wesentlich länger (Mittelwert 34 Jahre, Detailbericht 5).

Der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft hat mit seinen Modellierungen zur instationären und 3D-Strömung des Tiefengrundwassers konkrete Abstandsgeschwindigkeiten berechnet. Damit ist es möglich, den PWA konkrete Zeitachsen zuzuordnen – für die Grundwasserströmungsverhältnisse im BW ‚Haus Aden/Monopol'; nicht jedoch für die vorgestellten Vorstudien.

Dass die Ergebnisse dieser Vorstudie hinsichtlich der zeitlichen Entwicklung der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags nicht auf die zu erwartenden Verhältnisse im BW ‚Haus Aden/Monopol' übertragen werden dürfen, liegt zudem auch daran, dass bei den Vorstudien ein Tiefengrundwasser mit anderer chemischer Zusammensetzung (das von den ‚Basisgutachten' sogenannte ‚RAG'-Wasser) eingesetzt wird, als sie das Tiefengrundwasser im BW ‚Haus Aden/Monopol' aufweist.

Zu den mineralischen Hauptbestandteilen der Rückstände gehören, neben Quarz, auch solche primär in den Rückständen vorhandene oder im Kontakt mit wässrigen Lösungen (schon vor oder mit dem Versatz in den BHV-Bereichen) gebildete Feststoffphasen, die ‚mehr oder weniger gut' löslich in wässrigen Lösungen sind: z.B. Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Anhydrit/$CaSO_4$, Gips/$CaSO_4$:$2H_2O$, Calcit/$CaCO_3$, Ett-

[59] Die Wiederholung ganzer Textpassagen aus den vorlaufenden Abschnitten soll der besseren Nachvollziehbarkeit der Argumentation im Zusammenhang dienen.

ringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$, Ca-Hydroxochloridphasen / $Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O und Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$.[60] Mit den Grundannahmen der ‚Basisgutachten' zur potentiellen Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen bzw. zum physikalisch-chemischen Verhalten der Rückstände zeigt sich anhand von Laborversuchen,

- dass bestimmte Stoffe mit relevanten Stoffkonzentrationen und mit relevanten Massenanteilen aus den bergbaufremden Rückständen durch Elutionsversuche mit wässrigen Lösungen freigesetzt werden und

- dass bestimmte hydrogeochemische Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von mineralischen Bestandteilen der Rückstände im Kontakt mit Tiefengrundwässern ablaufen.

Hinweise darauf, dass bei Kurzzeit-Perkolationsversuchen im Labor in durchströmten Säulen eine solche, sich auf die geohydraulischen Eigenschaften der Rückstände auswirkende Netto-Auflösung mineralischer Feststoffe aus den Rückständen abläuft, sind den ‚Basisgutachten' zu entnehmen: „Aufgrund der hohen löslichen Volumenanteile in den Reststoffproben treten häufig Randumläufigkeiten bzw. Ausspülungen im Probenkörper (solcher Perkolationsversuche mit durchströmten Säulen) auf …". Zusammen machen allein die u.a. in den Phasen NaCl, KCl, $CaSO_4$, $CaSO_4$:$2H_2O$, $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$ und $Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O feststoffgebundenen Chlorid- und Sulfatgehalte die Größenordnung von einigen Gramm bis zu wenigen hundert Gramm pro Kilogramm Rückstand aus. Insofern ist festzustellen, dass das langzeitliche geohydraulische Verhalten der Rückstände im Reaktionskontakt mit den sie füllenden und durchströmenden Tiefengrundwässern bzw. Porenwässern ungeklärt bzw. die Grundannahme einer „effektiven hydraulischen Barriere" und einer „inneren geochemischen Barriere" nicht nachgewiesen ist. Es gilt nicht nur, dass die Elutionsversuche „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können"; es gilt ebenso, dass die mit diesen „vielfältigen geochemischen Prozessen im Versatz" einhergehenden Änderungen der geohydraulischen Eigenschaften der Rückstandskörper nicht geklärt sind – insbesondere hinsichtlich langfristiger Entwicklungen. Eine dauerhaft relativ geringe Durchlässigkeit bzw. auch die „Selbstdichtung" der Rückstände ist unter dem Gesichtspunkt der Langzeitsicherheit nicht nachgewiesen[61]. Nicht sicher auszuschließen ist deshalb, dass über einen Zeitraum von einigen Tausend Jahren advektiv-diffusive Stoffmassenströme löslicher Bestandteile aus den Rückständen heraus zu einer Zunahme der Porosität bzw. auch der Durchlässigkeit führen können[62]. Mehr noch, nicht sicher auszuschließen ist, dass von solchen Auflösungsreaktionen – aber auch von Ausfällungs-und Umwandlungsreaktionen – zusätzlich die an die versetzten Rückstände unmittelbar angrenzen-

---

[60] SiO_2/Al_2O_3/CaO-dominierte glasige Bestandteile, Calcium-Silikat-Hydrat-Phase (CSH) und Calciumaluminat-hydrat-Phasen (CAH)werden hier nicht berücksichtigt.

[61] Wie sollte das auch mit Laborversuchen möglich sein, die das Verhalten der Rückstände über maximal ca. 297 Tagen beobachten? Die ‚Studie zur Eignung von Steinkohlebergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen' (Kurzfassung; reproduzierte Fassung; 1991) nennt in diesem Zusammenhang Zeiträume von mehr als zehntausend Jahren.

[62] Mit anderen Worten: Langfristig können, durch das den Rückständen zu- und aus ihnen abströmende Tiefengrundwasser und/oder durch diffusive Stoffmassenströme aus den Rückständen heraus, neue, lösungs-induzierte Wasserwegsamkeiten innerhalb der versetzten Rückstände geschaffen werden. Das wird bei den instationären Modellierungen der Tiefengrundwasserströmung berücksichtigt (s. Detailbericht 5).

den und die in die BHV-Bereiche verstürzten Festgesteine des Karbons betroffen werden können.

Vor diesem Hintergrund werden chemisch-thermodynamisch basierte hydrogeochemische Gleichgewichtsmodellierungen zu den folgenden Fragen durchgeführt.

- Sind die mit den ‚Basisgutachten' nachgewiesenen mineralischen Bestandteile der Rückstände (primär vorhanden oder nach dem Kontakt mit wässrigen Lösungen neu gebildet) löslich in Tiefengrundwässern mit semi-generischer Zusammensetzung?

- Welche Mengen dieser primären, instabilen Bestandteile der Rückstände lösen sich im Kontakt mit solchen Tiefengrundwässern auf?

- Welche Mengen von instabilen, mineralischen Bestandteilen der Rückstände lösen sich im Kontakt mit solchen Tiefengrundwässern auf und wandeln sich in welche Mengen dabei neugebildeter, stabiler Mineralphasen um?

- Welche Nettobilanz der Molmengen aufgelöster und ausgefällter Mineralphasen ergibt sich bei wiederholtem Kontakt mit Tiefengrundwässern semi-generischer Zusammensetzung?

Das dazu eingesetzte Rechenprogramm ist der Phreeqc Code des U.S. Geological Survey; die zugehörigen und eingesetzten chemisch-thermodynamischen Datenbanken sind wateq4f.dat und llnl.dat (Parkhurst & Appelo, 1999)[63]. Die Berechnungen beruhen auf der Annahme, dass sich, in den langen Zeiträumen, die das Tiefengrundwasser benötigt, um die Hohlräume in den versetzten Rückständen zu durchströmen, der chemisch-thermodynamische Gleichgewichtszustand so einstellt, wie er durch die chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten vorgegeben ist[64].

---

[63] Parkhurst, D.L., Appelo, C.A.J., 1999. User's guide to PHREEQC (Version 2)–A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. U.S. Geological. Survey, Water-Resources Research Investigation Report 99–425.

[64] In allen hier vorgestellten chemisch-thermodynamisch basierten Modellierungen zu den hydrogeochemischen Reaktionen wird davon ausgegangen, dass diese Reaktionen spontan – ohne zeitliche Verzögerung – den chemischen Gleichgewichtszustand so einstellen, wie es die chemische Thermodynamik für Gleichgewichtsreaktionen wässriger Lösungen mit Feststoffphasen und Gasphasen sowie mit den zugehörigen Gleichgewichtskonstanten der Massenwirkungsgesetze vorgibt. Mit anderen Worten, reaktionskinetische Zusammenhänge, die eine zeitliche Entwicklung der Reaktionen und ihrer Stoffumsätze beschreiben würden, bleiben unberücksichtigt – und könnten auch wegen fehlender kinetischer Daten nicht berücksichtigt werden. Angesichts i) der Zeitskala, auf der sich die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen der mineralischen Bestandteile der Rückstände im Reaktionskontakt mit wässrigen Lösungen entwickeln (Jahre, Jahrzehnte, Jahrhunderte, Jahrtausende) und ii) der Tatsache, dass selbst bei den Kurzeit-Elutionsversuchen der ‚Basisgutachten' massive Auflösungsreaktionen und auch Ausfällungsreaktionen beobachtet wurden, gilt, dass kinetische Aspekte sicher nicht vorrangig bei der Beschreibung solch hydrogeochemischer Reaktionen sind, die keine Redoxreaktionen sind. Kinetische Aspekte sind dann nicht zu vernachlässigen oder gar vorrangig zu betrachten, wenn insbesondere mikrobiell katalysierte Redoxreaktionen (wie z.B. die Nitratreduktion durch organische Kohlenstoffverbindungen) in ihrem Zusammenwirken mit rein anorganischen Reaktionen (wie z.B. mit dem Kalk-Kohlensäure-Gleichgewicht) modelliert werden sollen. Nichtsdestotrotz gilt und soll hier klar dargestellt werden, dass mit den chemisch-thermodynamisch basierten Modellierungen zu den hydrogeochemischen Reaktionen lediglich berechnet werden kann, welchen Endzustand die hydrogeochemischen Prozesse anstreben und auch erreichen werden, falls dafür ausreichend Reaktionszeit bereitsteht.

Der semi-generische (Standort-unspezifische) Charakter dieser Modellierung ergibt sich daraus, dass derzeit

- keine repräsentative *in situ* Zusammensetzung der versetzten Rückstände hinsichtlich der mineralischen Bestandteile und

- keine repräsentative hydrochemische *in situ* Zusammensetzung des die BHV-Bereiche füllenden Tiefengrundwassers sowie des im BHV-Umfeld vorhandenen oxidativ beeinflussten Haftwassers[65]

angegeben werden kann.

Solche Modellierungen bilden, auf dem Stand der Wissenschaft, die chemisch-thermodynamisch unabwendbare, langfristige Entwicklung des komplexen Netzes aneinandergekoppelter Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und der Ausfällung von Mineralphasen in den Hohlräumen der versetzten Rückstände ab, die dem Porenwasseraustausch durch zutretende Tiefengrundwässer und der Einstellung von Löslichkeitsgleichgewichten ausgesetzt sind, in der langfristigen Perspektive. Stofftransportmodellierungen koppeln diese langfristige Entwicklung des komplexen Netzes aneinandergekoppelter Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und der Ausfällung von Mineralphasen – und die resultierenden Gleichgewichtskonzentrationen in den Porenwässern – an die advektive Bewegung des Porenwassers und an die molekulare Diffusion gelöster Spezies. Damit werden Stoffkonzentrationen in den Porenwässern/Tiefengrundwässern und advektive (advektiv-diffusive) Stoffmassenströme berechenbar.

Mit solchen hydrogeochemischen, numerischen Modellierungen wird dem rein empirischen, beschreibenden Ansatz der kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Elutionsversuche der ‚Basisgutachten' ein alternativer wissenschaftlicher Ansatz gegenübergestellt, der auf den allgemein gültigen Stoffgesetzen der chemisch-thermodynamisch basierten Berechnung von chemischen Reaktionsgleichgewichten in wässrigen Lösungen beruht. Mit diesem Ansatz soll anhand simpler, semi-generischer Systeme gezeigt werden, dass „die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die Laborversuche „nicht widerspiegeln können", allgemein gültigen und übertragbaren chemisch-thermodynamischen Berechnungen zugänglich sind. Es ist selbstverständlich, dass in der zur Verfügung gestellten Bearbeitungszeit für diesen hier vorliegenden Bericht lediglich anhand semi-generischer (und nicht detailliert Fall-spezifischer) Modellierungen Aussagen zum Stofffreisetzungsverhalten hergeleitet werden können (vgl. Abschnitt 1. ‚Aufgabenstellung'). Es kann nicht das Ziel dieser im Rahmen des hier vorliegenden Berichts durchgeführten Modellierungen sein, für konkrete und reale, gar Standort-spezifische Systeme gültige und auf Plausibilität geprüfte Ergebnisse zu erzielen – dazu fehlen Messwerte jeglicher Art, die zum Aufbau solcher Modelle benötigt werden. Denn Modellierungsergebnisse müssen zumindest auf Plausibilität geprüft werden; das setzt voraus, dass einige Jahre der Modellentwicklung und Prüfung zur Verfügung stehen und entsprechende Messwerte zum Vergleich mit den modellierten Werten verfügbar sind. Das ist umso deutlicher hervorzuheben, da das hydrogeochemische Verhalten der Rückstände – im Hinblick auf advektiv und diffusiv angetriebene Stoffausträge aus den BHV-Bereichen (‚Quelltermbeschreibung') – sowohl hydrogeochemische (Stofffreisetzung und Stoffkonzentration) als auch ge-

[65] Beim ersten Kontakt mit ansteigenden Tiefengrundwässern und Sickerwässern.

ohydraulische Implikationen (Veränderung der Durchlässigkeit der versetzten Rückstände durch Auflösung/Stofffreisetzung) hat. Mehr noch, dabei prägen Interaktionen zwischen hydrogeochemischen und geohydraulischen Prozessen die zeitliche Entwicklung des Systems ‚Rückstände in den BHV-Bereichen im Kontakt mit Tiefengrundwässern'.

Nichtsdestotrotz gilt, dass mit den Modellierungen die chemisch-thermodynamisch unabwendbare, langfristige Entwicklung des Stofffreisetzungsverhaltens und der hydrogeochemischen Stabilität der bergbaufremden Rückstände in BHV-Bereichen einschätzen lässt.

5.1 Löslichkeit einzelner Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit

Zunächst wird mit einfachen Batch-Modellen[66] zur Einstellung von Löslichkeitsgleichgewichten zwischen einzelnen Feststoffphasen (Quarz/SiO_2, Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Anhydrit/$CaSO_4$, Calcit/$CaCO_3$, Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$, Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$, Portlandit/$Ca(OH)_2$ oder Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ und einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung[67] die ‚Löslichkeit' dieser Phasen in dem Tiefengrundwasser errechnet. Als Ergebnis dieser Berechnungen wird angegeben, welche Molmengen[68] sich pro Kilogramm Wasser (mol/kgw) in dem Tiefengrundwasser bei 40°C in einem für Gasphasen geschlossenen System lösen und welcher pH-Wert sich – im Löslichkeitsgleichgewicht mit jeweils einer der Phasen – dabei einstellt. Diese Werte gelten für einen Gesamtdruck von 1,0 atm; Berechnungen für *in situ*-Druckbedingungen sind für solche dieser Phasen möglich (aber hier nicht durchgeführt), für welche die Abhängigkeit der Löslichkeitskonstanten vom Druck bekannt ist. Die Gleichgewichtskonstanten für alle aquatischen und Feststoff-Spezies sowie deren Abhängigkeit von der Temperatur sind in der chemisch-thermodynamischen Datenbank ‚wateq4f.dat' aufgeführt. Dort nicht genannte Phasen sind mit ihren Daten aus der ‚llnl.dat' -Datenbank übernommen und in der jeweiligen Phreeqc-Eingabedatei definiert. Andere als die genannten ‚primären' Phasen, also ‚se-

---

[66] Diese Batch-Modelle bilden geschlossene Systeme mit i) porösen Gerüsten aus Feststoffphasen mit bestimmten Vorräten (in der Dimension mol im Batch bzw. im Reaktor) und ii) damit in Reaktionskontakt stehenden wässrigen Lösungen (1,0 Liter) ab, die den Porenhohlraum füllen. Der Porenhohlraum wird lediglich einmal mit der wässrigen Lösung gefüllt und der Gleichgewichtszustand stellt sich ein.

[67] Das sogenannte ‚RAG-Wasser der Basisgutachten', das nach einem Ladungsbilanzausgleich in das Löslichkeitsgleichgewicht mit denjenigen Feststoffphasen (Quarz, Kaolinit, Calcit, Siderit und Pyrit) gebracht wurde, von denen hier angenommen wird, dass sie im Löslichkeitsgleichgewicht mit dem RAG-Wasser stehen.

[68] Die hier angegebenen Stoffumsätze in mol/kgw (kgw: Kilogramm des Lösungsmittels reines Wasser in der wässrigen Lösung) dienen lediglich zur Abschätzung und zum Vergleich der Größenordnung aufgelöster Molmengen unterschiedlicher Phasen. Weil keine Informationen zur exakten Zusammensetzung realer Mineralphasengemische in den Rückständen vorliegen, weil zudem die reale chemische Zusammensetzung desjenigen Tiefengrundwassers, das die Porenräume in den Rückständen füllen wird, nicht bekannt ist, werden hier keine Angaben zu den umgesetzten Stoffmassen in Gramm und zu den entsprechenden Veränderungen der Feststoffvolumina gemacht. Damit soll darauf hingewiesen werden, dass diese – und alle nachfolgend dargestellten – Modellierungsergebnisse lediglich semi-generischen Charakter haben und nicht zur Prognose zur erwartender, realer hydrogeochemischer Entwicklung genutzt werden dürfen. Zudem wird hier darauf verzichtet, diese Berechnung – zum Vergleich – auch mit dem pitzer.dat-Datensatz durchzuführen, um den Einfluss ‚sehr hoher' Ionenstärken berücksichtigen zu können.

kundäre' Phasen, werden bei den Modellierungen nicht berücksichtigt; so z.B. auch nicht, dass sich Anhydrit in Gips umwandeln kann.

Damit die Modellierungen und ihre Ergebnisse nachvollziehbar und überprüfbar sind, werden die erarbeiteten Phreeqc-Eingabedateien hier vollständig wiedergegeben; von interessierten Lesern können sie für eigenständige Berechnungen genutzt werden. Diese Eingabedateien sind integrale Bestandteile der Darlegungen in diesem Bericht und Grundlage für die Aussagen des Berichts; sie werden deshalb nicht in einem Anhang untergebracht, sondern inmitten des Berichtes dokumentiert. Die Tabelle 2[69] dokumentiert den Aufbau der Batchmodelle zur Berechnung der ‚Löslichkeit' einzelner Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung.

Tab. 2: Batchmodell ‚Batch_EinzelnePhasen' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' einzelner Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung

```
TITLE Batch_EinzelnePhasen

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation: -4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation: -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_EinzelnePhase.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite
-totals Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4)
-water
```

[69] Die in allen Tabellen mit PHREEQC-Dateien verwendeten Dezimalpunkte sind als Dezimalkommazeichen zu lesen.

```
SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1
Quartz                  0.0 10.0
# Halite               0.0 10.0
# Sylvite              0.0 10.0
# Ca2Cl2(OH)2:H2O      0.0 10.0
# Ettringite           0.0 10.0
# Portlandite          0.0 10.0
# Glauberite           0.0 10.0
# Anhydrite            0.0 10.0
# Calcite              0.0 10.0
END[70]
```

In der Abbildung 3[71] sind die Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_EinzelnePhasen' dargestellt. Bis auf die Phasen Quarz und Calcit lösen sich – bis zur Einstellung des Löslichkeitsgleichgewichts – alle anderen Phasen in beträchtlichen Molmengen in einem Kilogramm Wasser des semi-generischen Tiefengrundwassers auf. Wenn also ein solches Tiefengrundwasser auf ausreichende Mengen dieser einzelnen Phasen (nicht in einem Phasengemisch vorliegend) trifft, wird das Tiefengrundwasser ca. 0,003 mol/kgw Ettringit, 0,024 mol Portlandit, 0,034 mol/kgw Anhydrit, 0,065 mol/kgw Glauberite, ca.[72] 0,5 mol $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ und jeweils ca. 4 mol/kgw Sylvin und Halit daraus herauslösen, um sich so an diesen Phasen zu sättigen. Das ist chemisch-thermodynamisch unabwendbar. An Quarz (SiO_2) und Calcit ($CaCO_3$) dagegen lösen sich weniger als 10^{-6} mol/kgw (‚Rechenungenauigkeit'), weil sich das Tiefengrundwasser schon zuvor im Löslichkeitsgleichgewicht mit diesen beiden Phasen war.

---

[70] Dieser Tabelleninhalt kann in eine Phreeqc-Eingabedatei kopiert werden, die dann mit dem Rechenprogram Phreeqc2.18 (U.S. Geological Survey; Download von der Phreeqc Homepage) und dem thermodynamischen Datensatz wateq4f.dat (U.S. Geological Survey; Download von der Phreeqc Homepage) zur Berechnung der Speziesverteilung im Gleichgewicht und der zugehörigen Stoffumsätze gestartet wird. Um z.B. das Löslichkeitsgleichgewicht mit Portlandite – anstelle von Quarz – zu berechnen, ist das Zeichen ‚#' vor ‚Quarz' zu setzen und vor ‚Portlandite' zu entfernen.

[71] Die in allen Abbildungen verwendeten Dezimalpunkte sind als Dezimalkommazeichen zu lesen.

[72] Wegen der hohen Ionenstärken in den wässrigen Lösungen im Gleichgewicht mit $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Sylvin und Halit und der damit verbundenen Unsicherheiten werden die Ergebnisse der Berechnungen nicht auf ein Millimol genau angegeben.

Damit zeigt sich, dass

- relevante Mengen von einigen der mineralischen Hauptbestandteile bergbaufremder Rückstände in den Tiefengrundwässern ‚mehr oder weniger gut' löslich sind und

- sich bei der Auflösung von Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$ und Ettringit/ $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$ Gleichgewichts-pH-Werte im alkalischen Bereich zwischen pH 10,7 (Ettringit/ $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$) und 13,5 (Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$) einstellen.

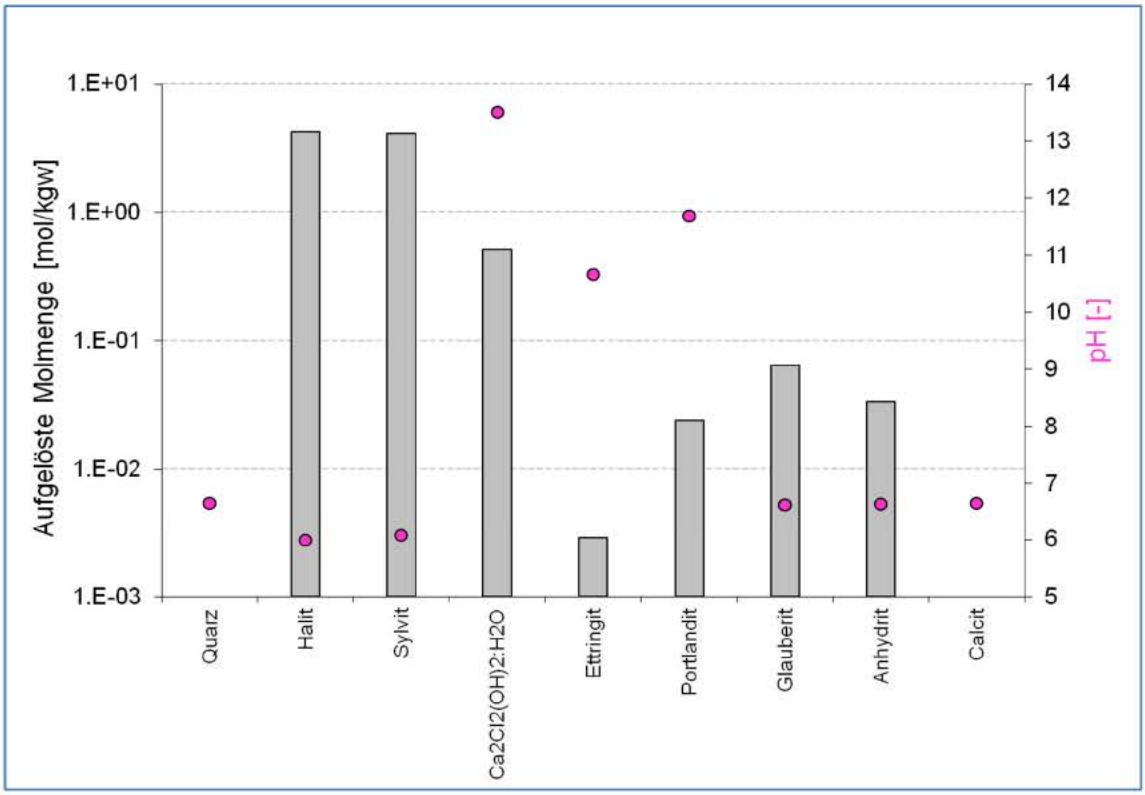


Abb. 3: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_EinzelnePhasen' (mol/kgw)
In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; der Stoffumsatz an Quarz und Calcit ist kleiner als 10^{-6} mol/kgw

5.2 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit

Allerdings bestehen die bergbaufremden Rückstände nicht aus diesen einzelnen Mineralphasen; sie sind ein Gemisch aus diesen – und auch anderen, hier in diesem einfachen semi-generischen Ansatz nicht berücksichtigten – Mineralphasen[73]. Deren Auflösung, läuft simultan, in einem komplexen Netz ineinandergreifender, gekoppelter hydrogeochemischer Reaktionen ab, deren Gesamtentwicklungsrichtung chemisch-thermodynamisch kontrolliert wird. Deshalb wird auf einer zweiten Stufe der Berechnungen zur ‚Löslichkeit' mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' (Tabelle 3) die simultane Gleichgewichtseinstellung der Phasen mit dem semi-generischen Tiefengrundwasser berechnet. Die vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers zu dem Mineralgemisch vorhandenen Molmengen repräsentieren keine tatsächlichen, nachgewiesenen Mengen; zur exakten quantitativen mineralischen Zusammensetzung der Rückstände, zu deren Porosität, die sich in der Zeit im Kontakt mit dem Tiefengrundwasser ändert und damit zum Feststoff/Wasser-Verhältnis liegen keine, für eine Modellierung verwertbaren Messwerte vor. Für das semi-generische Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' wird vorgegeben, dass Tiefengrundwasser (mit einem Kilogramm Wasser) mit den Hauptbestandteilen Quarz (10 mol), Halit (0,25 mol), Sylvin (0,25 mol), $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ (0,25 mol), Ettringit (0,25 mol) und Portlandit (0,25 mol) sowie mit den Nebenbestandteilen Glauberit (0,1 mol), Anhydrit (0,1 mol) und Calcit (0,1 mol) in Reaktionskontakt kommt und reagieren kann. Sofern dazu der jeweilige Phasenvorrat (10 oder 0,25 oder 0,1 mol) ausreicht, stellt sich der Gleichgewichtszustand durch Auflösung und Bildung aquatischer Spezies ein. Reicht der Phasenvorrat einer Phase dazu nicht aus, löst sich der gesamte Phasenvorrat dieser Phase vollständig auf, ohne dass das Löslichkeitsgleichgewicht erreicht werden kann. Andere als die genannten ‚primären' Phasen, also ‚sekundäre' Phasen, werden bei den Modellierungen nicht berücksichtigt; so z.B. auch nicht, dass sich Anhydrit in Gips umwandeln kann.

Tab. 3: Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung

```
TITLE Batch_PhasenGemisch

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H      -382.451      kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
```

[73] Dazu kommen glasige Bestandteile der Rückstände, die hier nicht berücksichtigt werden.

```
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation:-104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_PhasenGemisch.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite
-totals Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4)
-water

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1         # Primär in den BHV; vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers
Quartz                0.0 10.0
Halite                0.0  0.25
Sylvite               0.0  0.25
Ca2Cl2(OH)2:H2O       0.0  0.25
Ettringite            0.0  0.25
Portlandite           0.0  0.25
Glauberite            0.0  0.1
Anhydrite             0.0  0.1
Calcite               0.0  0.1
END
```

In der Abbildung 4 sind die Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' dargestellt. Damit zeigt sich, dass

- die Phasenvorräte von Halit, Sylvin, $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$ und Glauberit vollständig aufgelöst werden (0,250 mol; 0,250 mol; 0,250 mol; bzw. 0,10 mol)

- Quarz ‚(an-) gelöst' wird (0,004 mol)

- Calcit, Anhydrit[74] und Portlandit nicht gelöst sonder durch Ausfällung neu gebildet werden (0,002 mol, 0,188 mol bzw. 0,231 mol) während

- Ettringit sich in relevanten Mengen weder löst noch neu-bildet.

Zudem bilden sich 0,004 kg H_2O in dem Batch-Reaktor neu.

Die Gleichgewichtseinstellung führt zu einer Netto-Auflösung von 0,433 mol Feststoffphasen in einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels Tiefengrundwasser, wobei die Wassermasse im Batch-Reaktor um 4 g zunimmt und der pH-Wert des Porenwassers im Rückstandsphasengemisch von 6,7 auf 11,4 ansteigt.

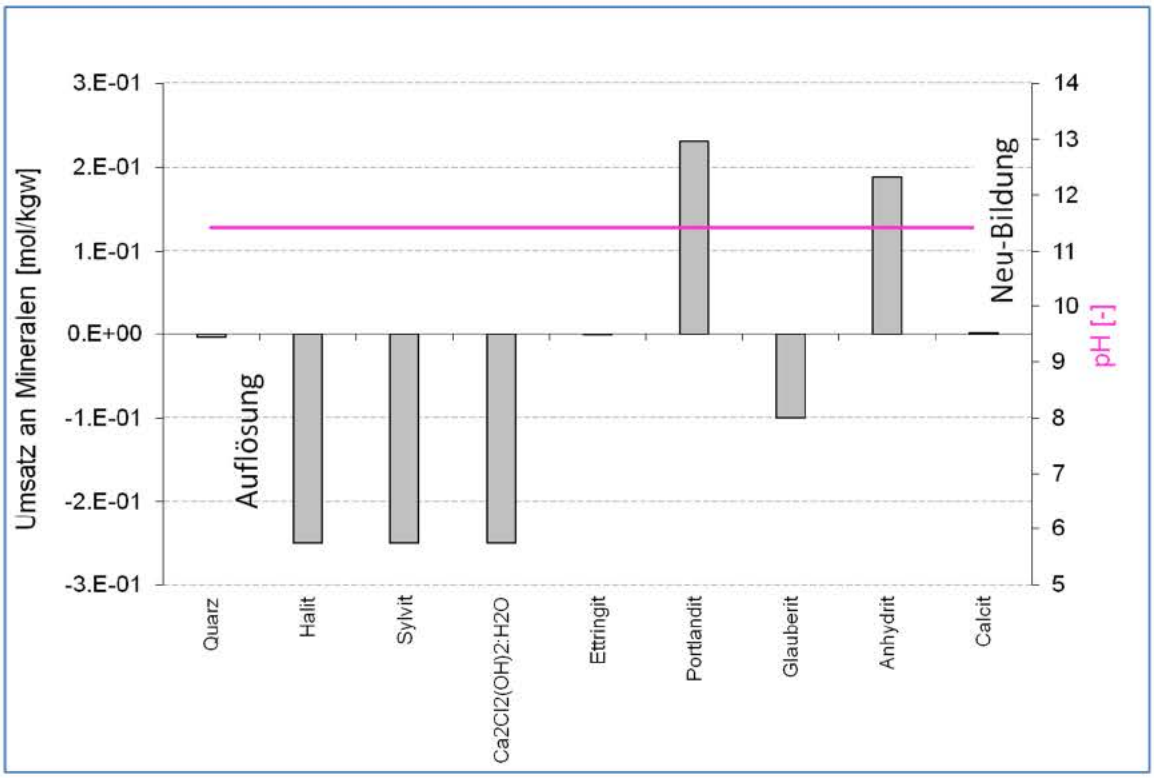


Abb. 4: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemisch' (mol/kgw)
In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; oder die angegebene Molmenge bildet sich neu; Auflösung: mit negativen Stoffumsätzen; Neu-Bildung (Ausfällung): mit positiven Stoffumsätzen

[74] Würde Gips als zusätzliche sekundäre Phase berücksichtigt, die sich bei Übersättigung bilden kann, würden sich etwas größere Mengen an $CaSO_4$:$2H_2O$ bilden. Die Netto-Auflösung würde etwas geringer sein, und es würde kein zusätzliches Wasser freigesetzt sondern gebunden (0,059 kg im Batch).

5.3 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen

In diesem komplexen Netz der Reaktionen führt die Netto-Freisetzung von Stoffen (insbesondere von OH^--Ionen, H_4SiO_4-Spezies, Natrium-, Kalium, Calcium, Magnesium und Sulfationen aus den sich auflösenden Phasen) dazu, dass nicht nur Calcit, Anhydrit und Portlandit aus dem Porenwasser des Batch-Reaktors ausgefällt werden und Ettringit nicht (an-) gelöst wird. Zusätzlich zu diesen schon vor dem Zutritt von Tiefengrundwasser im Phasengemisch primär vorhandenen Phasen (Calcit, Anhydrit, Portlandit und Ettringit) können weitere, sekundäre Feststoffphasen ihre Sättigung im Porenwasser erreichen und ihr jeweiliges Löslichkeitsgleichgewicht durch Ausfällung einstellen. Daran können auch solche chemischen Komponenten beteiligt sein, die erst mit dem ‚RAG-Wasser' in das System eingetragen werden (z.B. Mg^{2+}-Ionen). Die chemische Gleichgewichtsthermodynamik wird bestimmen, ob sich auf Kosten instabil werdender primärer Phasen stabile sekundäre Phasen neu-bilden und mit welchen Molmengen diese Stoffumsätze der gekoppelten Auflösung und Ausfällung erfolgen werden.

Deshalb wird auf einer dritten Stufe der Berechnungen zur ‚Löslichkeit' mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' die simultane Gleichgewichtseinstellung der zuvor schon genannten primären Phasen – und zusätzlich der potentiellen sekundären Phasen – mit dem semi-generischen Tiefengrundwasser berechnet (Tabelle 4). Es werden bei der Modellierung dieselben Vorräte der primären Phasen eingesetzt, die auch schon auf der zweiten Stufe der Modellierungen (‚Batch_PhasenGemisch') berücksichtigt wurden. Als potentielle sekundäre Phasen, die sich bilden können, wenn das Porenwasser sich daran übersättigt, werden diejenigen Phasen ausgewählt, die

- aus den Komponenten bestehen, die in den primären Phasen und/oder im zutretenden Tiefengrundwasser vorhanden sind
- im thermodynamischen Datensatz ‚wateq4f.dat' mit ihren Löslichkeits-bestimmenden Konstanten aufgeführt sind und
- sich auch bei der relativ geringen Temperatur von 40°C bilden und nicht als Hochtemperatur- oder Hochdruckphasen anzusehen sind[75].

[75] So wird beispielsweise anstelle der Feldspäte Adular und Albit ($KAlSi_3O_8$ bzw. $NaAlSi_3O_8$) die potentiellen Phasen Phillipsit ($Na_{0.5}K_{0.5}AlSi_3O_8{:}H_2O$) und Analcim ($NaAlSi_2O_6{:}H_2O$) erlaubt.

Tab. 4: Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen

```
TITLE Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
       Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
       log_k           62.5362
       -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
       Ettringite
#      Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
       -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#      -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
      Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
       log_k           26.2901
       -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
       Ca2Cl2(OH)2:H2O
#      Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
       KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
       log_k           0.8459
       -delta_H       17.4347kJ/mol # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#      Enthalpy of formation:-104.37 kcal/mol
       -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#      -Range:  0-300

Glauberite
       Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
       log_k           -5.4690
       -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
       Glauberite
#      Enthalpy of formation:0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite Dolomite Epsomite
Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydrocerrusite Hydromagnesite Jarosite(ss) Jarosite-K
Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite Melanterite Mirabilite
Nahcolite Natron Nesquehonite Phillipsite Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite
Sulfur Thenardite Thermonatrite Trona Witherite
-totals Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4)
-water

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                1.751e-08
Ba                2.293e-03
C                 1.606e-03
Ca                5.707e-02
Cl                2.523e+00
Fe                1.526e-04
K                 1.147e-02
Mg                4.816e-02
Na                2.293e+00
S                 2.463e-08
Si                7.783e-05
Sr                2.293e-03
```

```
EQUILIBRIUM_PHASES 1          # Primär in den BHV; vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers
Quartz                  0.0  10.0 dissolve_only
Halite                  0.0  0.25
Sylvite                 0.0  0.25
Ca2Cl2(OH)2:H2O         0.0  0.25
Ettringite              0.0  0.25
Portlandite             0.0  0.25
Glauberite              0.0  0.1
Anhydrite               0.0  0.1
Calcite                 0.0  0.1
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia        0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)       0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite          0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK            0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite          0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime         0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
#Annite          0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite       0.0  0.0  # CaAl2Si2O8
Aragonite        0.0  0.0  # CaCO3
Artinite         0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite           0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite     0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite      0.0  0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite        0.0  0.0  # AlOOH
Brucite          0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite        0.0  0.0  # SrSO4
#CH4(g)          0.0  0.0  # CH4
Chalcedony       0.0  0.0  # SiO2
#Chlorite14A     0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0  0.0  # Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0  0.0  # MgSiO3
#CO2(g)          0.0  0.0  # CO2
Cristobalite     0.0  0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0  0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0  0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0  0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0  0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0  0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0  0.0# Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0  0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0  0.0  # FeS
#Forsterite      0.0  0.0  # Mg2SiO4
Gibbsite         0.0  0.0  # Al(OH)3
#Goethite        0.0  0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0  0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0  0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0  0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0  0.0  # H2
#H2O(g)          0.0  0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0  0.0  # H2S
#Halloysite      0.0  0.0  # Al2Si2O3(OH)4
#Hematite        0.0  0.0  # Fe2O3
Huntite          0.0  0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydromagnesite   0.0  0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0  0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0  0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0  0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0  0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0  0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0  0.0  # AlOHSO4
Kaolinite        0.0  0.0  # Al2Si2O5(OH)4
#Kmica           0.0  0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
#Laumontite      0.0  0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
#Leonhardite     0.0  0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
#Mackinawite     0.0  0.0  # FeS
Magadiite        0.0  0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0  0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0  0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0  0.0  # Fe3O4
Melanterite      0.0  0.0  # FeSO4:7H2O
Mirabilite       0.0  0.0  # Na2SO4:10H2O
```

```
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0  0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0  0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0  0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0  0.0  # NaHCO3
Natron           0.0  0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0  0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0  0.0  # O2
Phillipsite      0.0  0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite      0.0  0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
#Prehnite        0.0  0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
Pyrite           0.0  0.0  # FeS2
#Pyrophyllite    0.0  0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite       0.0  0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)    0.0  0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
Siderite         0.0  0.0  # FeCO3
#Siderite(d)(3)  0.0  0.0  # FeCO3
Silicagel        0.0  0.0  # SiO2
SiO2(a)          0.0  0.0  # SiO2
Strontianite     0.0  0.0  # SrCO3
Sulfur           0.0  0.0  # S
#Talc            0.0  0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite       0.0  0.0  # Na2SO4
Thermonatrite    0.0  0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite       0.0  0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona            0.0  0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite       0.0  0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite        0.0  0.0  # BaCO3
END
```

In der Abbildung 5 sind die Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' dargestellt. Damit zeigt sich, dass bei der einmaligen Gleichgewichtseinstellung zwischen dem semi-generischen Tiefengrundwasser und dem Mineralphasengemisch

- die Phasenvorräte von Halit, Sylvin, $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Anhydrit und Glauberit vollständig aufgelöst werden (0,250 mol; 0,250 mol; 0,250 mol; 0,250 mol; bzw. 0,10 mol und 0,10 mol),

- Quarz massiv teilaufgelöst wird (1,504 mol),

- Calcit nicht gelöst, sondern durch Ausfällung neu gebildet wird (0,002 mol),

- Portlandit als primär vorhandene Phase mit zusätzlichen Mengen (0,696 mol) neugebildet wird und

- die sekundären Phasen Baryt/$BaSO_4$ (0,002 mol), Brucit/$Mg(OH)_2$ (0,048 mol), $Fe(OH)_{3(a)}$ (<<0,001 mol), Gips (1,041 mol), Phillipsit/$Na_{0.5}K_{0.5}AlSi_3O_8{:}H_2O$ (0,500 mol) und Pyrit/FeS_2 (<< 0,001 mol) neu gebildet werden.

Zudem bilden sich 0,093 kg H_2O in dem Batch-Reaktor neu, in dem die Masse an H_2O deshalb von 1,0 kg auf 1,093 kg ansteigt.

Obwohl sich sekundäre Phasen neu-bilden, führt die Gleichgewichtseinstellung – ähnlich wie auf der zweiten Stufe der Berechnungen zur Löslichkeit des Mineralgemischs – zu einer Netto-Auflösung von 0,415 mol Feststoffphasen in einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels Tiefengrundwasser. Im Unterschied dazu wird aber eine deutlich größere Masse an Wasser (93 g im Vergleich zu 4 g) freigesetzt, während der pH-Wert des Porenwassers im Rückstandsphasengemisch auf ähnliche Werte (von 6,3 auf 11,2; zu 11,4 im Vergleich) ansteigt.

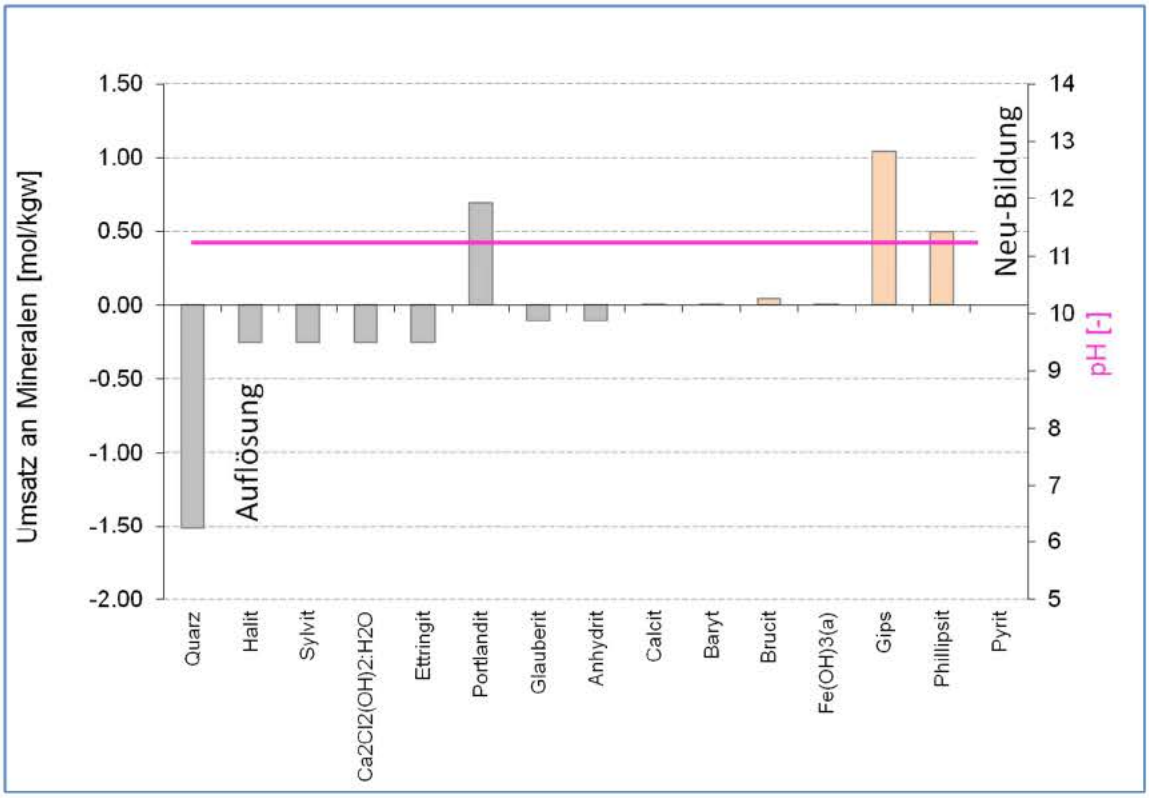


Abb. 5: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_PhasenGemischMitSekundärPhasen' (mol/kgw)
In einem Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser löst sich die angegebene Molmenge der jeweiligen Mineralphase; oder die angegebene Molmenge bildet sich neu; Auflösung: mit negativen Stoffumsätzen; Neu-Bildung (Ausfällung): mit positiven Stoffumsätzen

Obwohl sich auf der dritten Stufe der Modellierung zur Löslichkeit des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs zeigt, dass bei einmaliger Füllung des Porenraumes mit Tiefengrundwasser eine größere Molmenge an Phasen gelöst als neu gebildet wird, muss dies nicht bedeuten, dass sich der Porenraum im Mineralgemisch bei der erstmaligen Füllung mit dem Tiefengrundwasser vergrößern wird. Die neu gebildeten Phasen (insbesondere Gips und Brucit) können, weil sie relativ geringe Dichten (z.B. im Vergleich zu Anhydrit) aufweisen, viel Raum im zuvor freien Porenraum besetzen – auch in dem Porenraum, der durch Auflösung neu geschaffen wurde. Von besonderer Bedeutung für das sich bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen verändernde Mikrogefüge des porösen, rückstandsähnlichen Mineralgemischs ist die massive (An-) Lösung des Hauptbestandteils Quarz. Sie weist den größten Stoffumsatz aller Lösungs- und Fällungsreaktionen auf und ist die Folge der gekoppelten Auflösung von Quarz und der Ausfällung des Alkali-Aluminium-Silikats Phillipsit/ $Na_{0.5}K_{0.5}AlSi_3O_8{:}H_2O$. Dieser Prozess wird das Mikrogefüge mit dem Gerüst aus Quarzpartikeln, von denen ein großer Teil aufgelöst wird (1,504 mol pro Kilogramm H_2O des Lösungsmittels Tiefengrundwasser), am stärksten – auch hinsichtlich der Porosität und der Durchlässigkeit – beeinflussen.

Wie sich das komplexe Netz solcher Auflösung-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen nach der erstmaligen Gleichgewichtseinstellung mit dem Tiefengrundwasser quantitativ auf die Porosität und insbesondere auf die Durchlässigkeit für Wasser auswirkt, kann aus den Modellierungsergebnissen nicht abgeleitet werden. Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1X10^{-8}$ m/s und $1X10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

5.4 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines zunehmenden Wasser-zu-Feststoff-Verhältnisses

Diese modellierte, einmalige Füllung des Porenhohlraums im rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch (Abbildung 3) entwickelt sich in den Batch-Modellen in geschlossenen Systemen: Aus den Mineralphasen durch Auflösung freigesetzte Stoffe verbleiben im Porenraum des Batch-Reaktors; sie werden zum Teil in Form neu gebildeter Phasen dort ausgefällt und/oder bleiben in wässriger Lösung gelöst. Bei den in die BHV-Bereiche eingebrachten Rückständen im Steinkohlengebirge handelt es sich jedoch um keine geschlossene, sondern um offene Systeme: Das Porenwasser mit den gelösten Anteilen der rückstandsbürtigen Stoffe wird – in der weiteren zeitlichen Entwicklung – durch das in den Porenraum der versetzten Rückstände eindringende/nachströmende Tiefengrundwasser verdrängt. Der dadurch erzeugte advektive Stoffmassenstrom wird sich auf seiner weiteren Fließstrecke durch den Rückstandskörper bewegen, wobei der Löslichkeitsgleichgewichtszustand weiter aufrecht erhalten bleibt oder neu eingestellt werden kann – je nach der Zusammensetzung des mineralischen Feststoffgerüsts. Tritt dieser advektive Stoffmassenstrom aus den versetzten Rückständen aus, kommt es zum Stoffaustrag aus den BHV-Bereichen hinein ein deren unmittelbares ‚Nahfeld'.

In solchen Rückstandskörpern, in denen die Verdrängung der Porenwässer bzw. der Austausch der Porenwässer durch zutretendes Tiefengrundwasser nur sehr eingeschränkt läuft bzw. in denen die Abstandsgeschwindigkeit des den Rückstandskörper durchströmenden Tiefengrundwassers/Porenwassers sehr klein ist, gewinnt der durch Diffusion angetriebene Stoffmassenstrom an Bedeutung. Das wird wohl in den frühen Zeitabschnitten der Entwicklung von BHV-Bereichen der Fall sein, in denen die summarische Wirkung der Auflösung-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen die Porosität und die Durchlässigkeit des Rückstandskörpers durch die massive Neu-Bildung von Phasen mit vergleichsweise geringer Dichte – möglicherweise tendenziell eher erniedrigt als erhöht.

Unter dem Gesichtspunkt der Langfristsicherheit gilt es in diesem Zusammenhang zu bedenken[76]: In nachfolgenden Zeitabschnitten der Entwicklung, wenn ‚frisches' zutretendes Tiefengrundwasser den Porenhohlraum wiederholt füllt und dabei die sich im Löslichkeitsgleichgewicht befindenden Porenwässer wiederholt verdrängt (Porenwasseraustausch), werden sich auch die bei der erstmaligen Füllung und Gleichgewichtseinstellung neu gebildeten, sekundären Phasen wie u.a. Portlandit, Brucit und Gips

[76] Darauf gehen die ‚Basisgutachten' explizit nicht ein.

auflösen. Dass sich die primären Phasen Halit, Sylvin, $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Anhydrit und Glauberit vollständig in dem semi-generischen Tiefengrundwasser lösen, wurde schon mit den vorangegangenen Modellierungen gezeigt. Aber auch die neu gebildeten Phasen lösen sich in dem semi-generischen Tiefengrundwasser auf, weil dieses Tiefengrundwasser an diesen Phasen untersättigt ist; der Sättigungsindex dieser Wässer hinsichtlich der neu gebildeten sekundären Phasen ist kleiner als Null; diese Phasen sind im Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser nicht stabil. In der chemisch-thermodynamischen Konsequenz müssen sich diese Phasen – bis zur Einstellung des Löslichkeitsgleichgewichts – auflösen, und dadurch das Tiefengrundwasser an diesen Phasen sättigen (der Sättigungsindex dieser Phasen wird dann gleich Null). Mit anderen Worten und aus chemisch-thermodynamischer Sicht: Die Mineralphasengemische der Rückstände in den BHV-Bereichen sind im Kontakt mit den Tiefengrundwässern in ein hydrogeochemisches Milieu verbracht worden, in den einige der primären und sekundären Phasen nicht stabil existieren können und im Tiefengrundwasser aufgelöst werden müssen. Es ist lediglich eine Frage der Geschwindigkeit des Abtransports der gelösten Bestandteile aus dem Porenraum der Rückstände heraus in das ‚Nahfeld' der BHV-Bereiche (was zu mit Stoffausträgen aus den BHV-Bereichen in das ‚Nahfeld' gleichzusetzen ist), eine Frage der Geschwindigkeit der zur Gleichgewichtseinstellung führenden, gekoppelten Auflösung-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen, sowie eine Frage des Vorrates/der Menge an rückstandsbürtigen, (potentiell) instabilen Phasen, wann dieser Prozess der nahezu vollständigen Auflösung der instabilen, rückstandsbürtigen Phasen abgeschlossen sein wird. In den BHV-Bereichen befinden sich rückstandsbürtige und sekundär gebildete Mineralphasen, die – bis auf Quarz, Baryt, Calcit, Pyrit, Siderit und $Fe(OH)_{3(a)}$ – den Gesteinen im ‚Nahfeld' sowie dem dort vorhandenen Tiefengrundwässern fremd sind. Die chemisch-thermodynamische Natur der dadurch ausgelösten hydrogeochemischen Entwicklung führt deshalb zwangsläufig zur Auflösung solcher, dem geogenen System fremden und instabilen Phasen. Am Ende dieser hydrogeochemischen Entwicklung werden lediglich diejenigen rückstandsbürtigen und sekundär gebildeten Mineralphasen im Reaktionskontakt mit den Tiefengrundwässern stabil erhalten bleiben, die schon von Natur aus in den Gesteinen des ‚Nahfeldes' vorkommen und an denen sich das Tiefengrundwasser – schon vor dem Eintritt in die BHV-Bereiche – hat sättigen können.

In wieweit die innerhalb des Rückstandskörpers neu gebildeten Mengen reinen und deshalb extrem untersättigten Wassers (93 g H_2O pro Kilogramm Wasser im Lösungsmittel Tiefengrundwasser) auf die Entwicklung der Porosität und der Durchlässigkeit sowie auf die Verdrängung von sich dabei im Löslichkeitsgleichgewicht befindenden Porenwässern auswirkt, ist nicht mit diesen Batch-Modellierungen zu klären.

Auf der vierten Stufe der Modellierungen zur ‚Löslichkeit' rückstandsähnlicher Mineralphasengemische wird ein Batch-Modell mit einem Reaktor aufgebaut, in den schrittweise – nach der jeweils im vorlaufenden Schritt erfolgten Gleichgewichtseinstellung – ‚frisches' Tiefengrundwasser eintritt, welches das Gleichgewichtsporenwasser verdrängt und danach selbst das Löslichkeitsgleichgewicht mit den Vorräten der nach der vorlaufenden Gleichgewichtseinstellung verbliebenen primären und der neu gebildeten sekundären Mineralphasen einstellt. Dieser Porenwasseraustausch wird insgesamt tausendmal wiederholt; das Batch-Modell bildet damit ein zunehmendes Was-

ser/Feststoff-Verhältnis in einem offenen Reaktor ab[77]. In der Tabelle 5 ist der Aufbau dieses Batch-Modells ‚Batch_ZunehmendesWzuF' dargestellt.

Tab. 5: Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

```
TITLE Batch_ZunehmendesWzuF

PRINT
-reset false

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation: -4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation: -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_ZunehmendesWzuF.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite Dolomite Epsomite
Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydrocerrusite Hydromagnesite Jarosite(ss) Jarosite-K
Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite Melanterite Mirabilite
Nahcolite Natron Nesquehonite Phillipsite Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite
Sulfur Thenardite Thermonatrite Trona Witherite
-totals Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4)
```

[77] Allerdings sind dem ‚Null-dimensionalen' Batch-Modell keine räumliche Ausdehnung und keine zeitliche Erstreckung zugewiesen. Damit ausgestattet, würde das jetzt offene Batch-Modell zu einem reaktiven Stofftransportmodell werden.

```
-water

SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1 # Primär in den BHV vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers #vorhan-
den
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Halite          0.0  0.25
Sylvite         0.0  0.25
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0  0.25
Ettringite      0.0  0.25
Portlandite     0.0  0.25
Glauberite      0.0  0.1
Anhydrite       0.0  0.1
Calcite         0.0  0.1
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
#Annite         0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0  0.0  # CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0  0.0  # CaCO3
Artinite        0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite          0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite    0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite     0.0  0.0  #(NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite       0.0  0.0  # AlOOH
Brucite         0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite       0.0  0.0  # SrSO4
#CH4(g)         0.0  0.0  # CH4
Chalcedony      0.0  0.0  # SiO2
#Chlorite14A    0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A     0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile     0.0  0.0  # Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite 0.0  0.0  # MgSiO3
#CO2(g)         0.0  0.0  # CO2
Cristobalite    0.0  0.0  # SiO2
```

```
#Diaspore          0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside          0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite           0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite           0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)         0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3     0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8          0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)          0.0   0.0  # FeS
#Forsterite        0.0   0.0  # Mg2SiO4
Gibbsite           0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite          0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite        0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite          0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum             0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)             0.0   0.0  # H2
#H2O(g)            0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)            0.0   0.0  # H2S
#Halloysite        0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
#Hematite          0.0   0.0  # Fe2O3
Huntite            0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydromagnesite     0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite            0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)       0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K         0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na        0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH          0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite          0.0   0.0  # AlOHSO4
Kaolinite          0.0   0.0  # Al2Si2O5(OH)4
#Kmica             0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
#Laumontite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
#Leonhardite       0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
#Mackinawite       0.0   0.0  # FeS
Magadiite          0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite         0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite          0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite         0.0   0.0  # Fe3O4
Melanterite        0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Mirabilite         0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite          0.0   0.0  # NaHCO3
Natron             0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite       0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)             0.0   0.0  # O2
Phillipsite        0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite        0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
#Prehnite          0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
Pyrite             0.0   0.0  # FeS2
#Pyrophyllite      0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite         0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)      0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
Siderite           0.0   0.0  # FeCO3
#Siderite(d)(3)    0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel          0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)            0.0   0.0  # SiO2
Strontianite       0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur             0.0   0.0  # S
#Talc              0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite         0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite      0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite         0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona              0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite         0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite          0.0   0.0  # BaCO3
END

ADVECTION
-cells  1
-shifts 1000
END
```

In den Abbildungen 6 bis 9 sind die Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ ZunehmendesWzuF' dargestellt. Damit zeigt sich, dass mit der zunehmenden Wiederholung des Austauschs von Porenwasser durch zutretendes ‚frisches' Tiefengrundwasser

- der pH-Wert stufenweise von pH 11,2 und 11,6 zunächst auf 8,8 und dann auf 6,5 (wie im zutretenden Tiefengrundwasser) abfällt,
- der Vorrat an Halit und Sylvit (jeweils 0,25 mol) mit dem ersten Porenwasseraustausch vollständig verbraucht wird,
- der Vorrat an Quarz zunächst (bei pH-Werten über 11) stark und dann weniger stark aber kontinuierlich um insgesamt 1,664 mol vermindert wird,
- der gesamte Vorrat an Anhydrit (0,1 mol) mit dem ersten Porenwasseraustausch gelöst und in Gips umgewandelt wird (1,040 mol; zusätzliches Calcium und Sulfat kommen aus der Auflösung von Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, von Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$ und von Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$),
- der neu gebildete Vorrat an Gips sich danach ebenfalls vollständig auflöst (ca. 40. Porenwasseraustausch),
- Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$ und Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$ sich mit dem ersten Porenwasseraustausch vollständig lösen (jeweils 0,25 mol, 0,1 mol und 0,25 mol), wobei sich Portlandit zunächst ‚auf deren Kosten' neu bildet und danach vollständig auflöst (mit dem 17. Porenwaseraustausch),
- der pH-Wert, solange sich Portlandit bildet und/oder auflöst, auf 11,3 bzw. 11,6 gehalten wird,
- Brucit sich zunächst vom 1. bis zum 17 Porenwasseraustausch neu bildet (0.819 mol maximal) und danach wieder vollständig aufgelöst wird (mit dem 870. Porenwasseraustausch),
- der pH-Wert, solange sich Brucit bildet und/oder auflöst, auf 8,8 gehalten wird und danach auf 6,5 abfällt und
- anfänglich (bei der erstmaligen Füllung) große Massen an H_2O neu gebildet werden (93 g), die dann geringer werden (ca. 1 g) bis schließlich kein weiteres H_2O neu gebildet wird.

Weitere Reaktionen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung von Mineralphasen in dem Batchmodell ‚Batch_ ZunehmendesWzuF' sind solche, bei denen

- Dolomit sich ständig neu bildet (0,745 mol maximal),
- Calcit sich anfangs in geringen Mengen neu bildet (0,027 mol maximal) und sich danach ständig und mit dem 23. Schritt vollständig auflöst,
- $Fe(OH)_{3(a)}$ sich anfangs in sehr geringen Mengen neu bildet (ca. 0,0001 mol maximal) und danach kontinuierlich auflöst,

- Phillipsit ($Na_{0.5}K_{0.5}AlSi_3O_8:H_2O$) sich mit dem ersten Porenwasseraustausch neu bildet (0,50 mol maximal) und sich danach lediglich in sehr geringen Mengen löst,

- Pyrit sich in sehr geringen Mengen kontinuierlich neu bildet (< 0,00001 mol maximal),

- Kaolinit sich in sehr geringen Mengen (erst ab dem 872. Porenwasseraustausch; < 0,001 mol maximal) neu bildet,

- Cölestin/$SrSO_4$ sich in geringen Mengen (ca. 0,053 mol maximal) neu bildet, sich danach kontinuierlich löst und mit dem 51. Porenwasseraustausch vollständig aufgelöst wird sowie

- Baryt bis zum 51. Porenwasseraustausch neu gebildet wird (0,117 mol maximal) und danach kontinuierlich gelöst wird.

Aus chemisch-thermodynamischer Sicht und in quantitativer Darstellung sind dies (siehe auch Abbildungen 6 bis 9) einige der in den ‚Basisgutachten' so genannten „vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (der mineralischen Hauptbestandteile beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuche zur Stofffreisetzung „nicht widerspiegeln können". Nach 1000-maligem Porenwasseraustausch durch ‚frisches' Tiefengrundwasser ist von allen primären Mineralphasen des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs lediglich ein deutlich verminderter Anteil von Quarz noch vorhanden – alle übrigen primären rückstandsbürtigen Phasen sind vollständig aufgelöst. Auf deren Kosten haben sich – in der netto-Molbilanz – kleinere Molmengen an Dolomit, Phillipsit, Baryt, Kaolinit und Pyrit neu gebildet. Insgesamt sind netto 1,87 mol Mineralphasen mehr aus dem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch gelöst als neu gebildet worden.

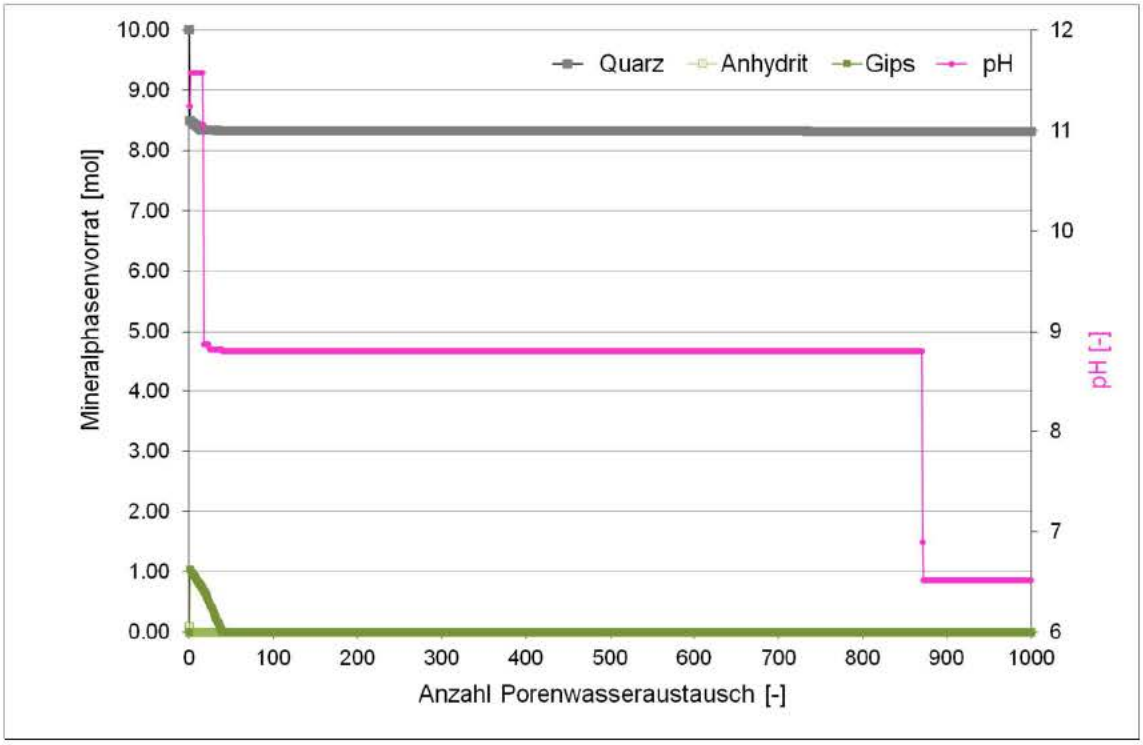


Abb. 6: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an Quarz, Anhydrit und Gips sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde.

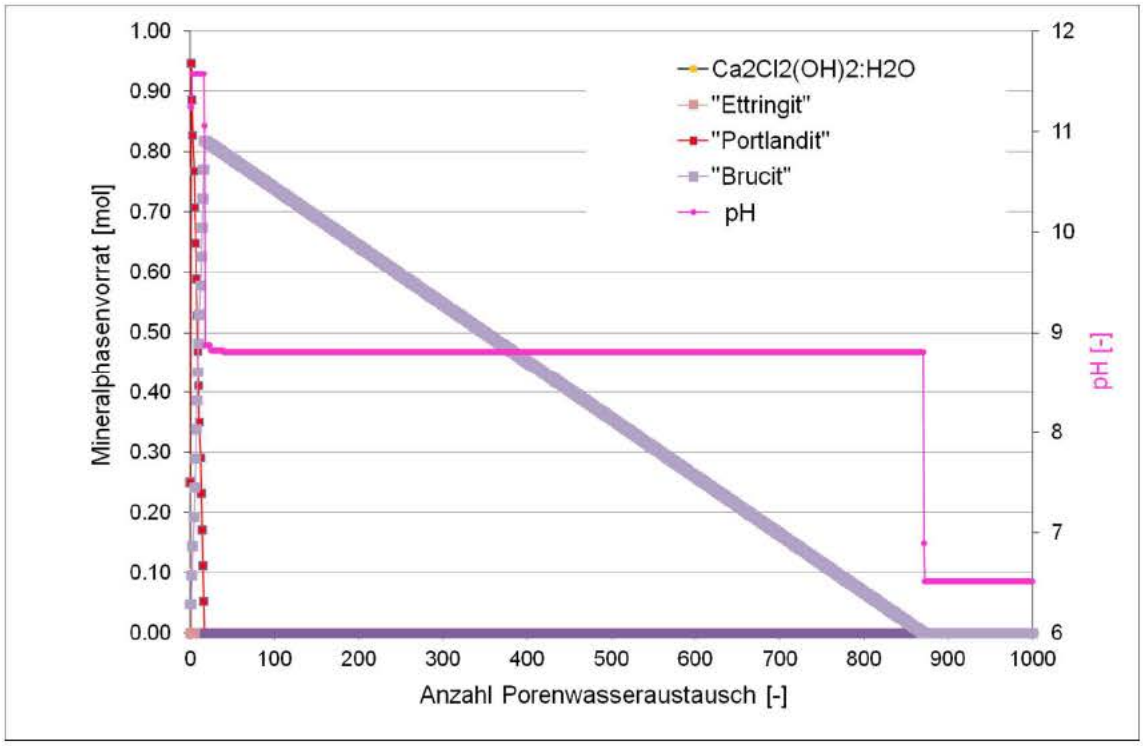


Abb. 7: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses.
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Portlandit und Brucit sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde (vgl. auch Abb. 6).

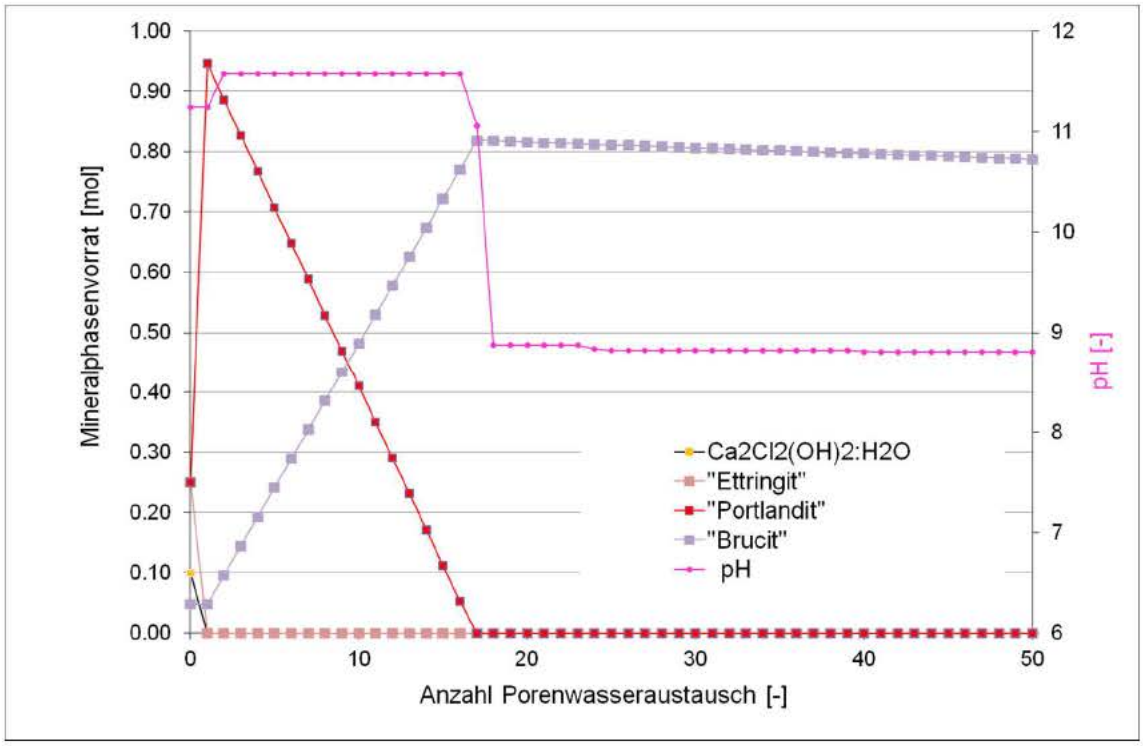


Abb. 8: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Vorräte (in mol im Batch-Reaktor) an $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$, Ettringit, Portlandit und Brucit sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde.

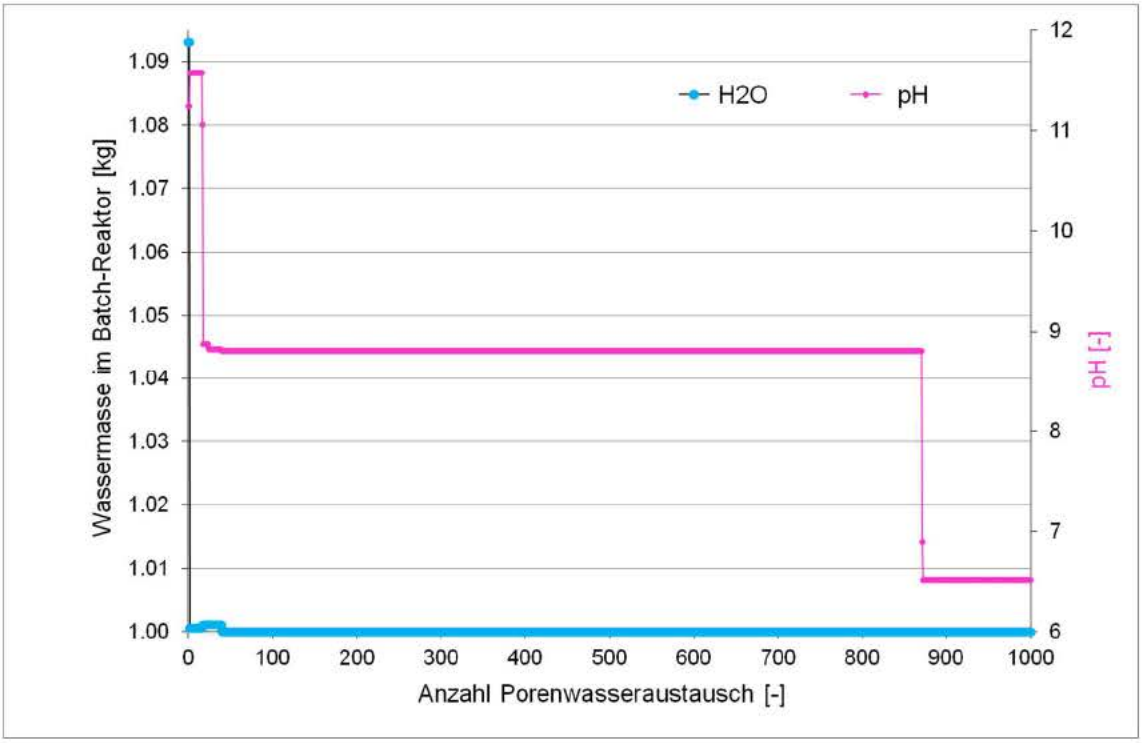


Abb. 9: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Massen an Wasser sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde.

5.5 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung von Bleiphasen

Wie sich Mineralphasen des Schwermetalls Blei und dessen Konzentrationen im Porenwasser bei diesen Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen im Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser im rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch verhalten, wird dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' errechnet (fünfte Stufe der Entwicklung hydrogeochemischer, chemisch-thermodynamisch basierter Modelle). Dazu wird das Batchmodell ‚Batch_ZunehmendesWzuF' (Tabelle 5; Abbildungen 6 bis 9) um die primär vorhandene Blei-Phase Cerussit/$PbCO_3$[78] erweitert, der ein Phasenvorrat von 0,01 mol im Batch-Reaktor zugewiesen wird. Als potentielle sekundäre Bleiphasen, die sich bei Übersättigung der Porenwässer im rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch neu-bilden können, werden die Phasen Galena/PbS, Laurionit/Pb(OH)Cl, $Pb(OH)_2$, Phosgenit/$PbCl_2$:$PbCO_3$, Anglesit/$PbSO_4$, Cotunnit/$PbCl_2$, Hydrocerrusit/$Pb(OH)_2$:$2PbCO_3$, Larnakit/PbO:$PbSO_4$, Litharge/PbO, Massicot/PbO, Minium/Pb_3O_4, $Pb_2(OH)_3Cl$, $Pb_2O(OH)_2$, Pb_2O_3, Pb_2OCO_3, Pb_2SiO_4, $Pb_3O_2CO_3$, $Pb_3O_2SO_4$, $Pb_4(OH)_6SO_4$, $Pb4O_3SO_4$, PbMetal, PbO:$0.3H_2O$, $PbSiO_3$ und Plattnerit/PbO_2 berücksichtigt. In der Tabelle 6 ist die Eingabedatei für das Batch-Modell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' dargestellt.

Tab. 6: Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Blei-Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

```
TITLE Batch_Pb-ZunehmendesWzuF

PRINT
-reset false

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
```

[78] Die ‚Basisgutachten' vermuten, dass Blei in dieser Bindungsform in den Rückständen vorliegt.

```
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation: -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_Pb_ZunehmendesWzuF.xls
-equilibrium_phases Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
-totals Pb
-water

SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1 # Primär in den BHV vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers #vorhan-
den
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Halite          0.0  0.25
Sylvite         0.0  0.25
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0  0.25
Ettringite      0.0  0.25
Portlandite     0.0  0.25
Glauberite      0.0  0.1
Anhydrite       0.0  0.1
Calcite         0.0  0.1
Cerrusite       0.0  0.01
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
```

```
Al(OH)3(a)          0.0   0.0  # Al(OH)3
#Albite             0.0   0.0  # NaAlSi3O8
AlumK               0.0   0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite             0.0   0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime            0.0   0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite           0.0   0.0  # PbSO4
#Annite             0.0   0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite          0.0   0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite           0.0   0.0  # CaCO3
Artinite            0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite              0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite        0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite         0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite           0.0   0.0  # AlOOH
Brucite             0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite           0.0   0.0  # SrSO4
#CH4(g)             0.0   0.0  # CH4
Chalcedony          0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A        0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A         0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile         0.0   0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite     0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)             0.0   0.0  # CO2
Cotunnite           0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite        0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore           0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside           0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite            0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite            0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
#Fe(OH)2.7Cl.3      0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
Fe(OH)3(a)          0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe3(OH)8           0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)           0.0   0.0  # FeS
#Forsterite         0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena              0.0   0.0  # PbS
Gibbsite            0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite           0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite         0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite           0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum              0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)              0.0   0.0  # H2
#H2O(g)             0.0   0.0  # H2O
#Halloysite         0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
#H2S(g)             0.0   0.0  # H2S
#Hematite           0.0   0.0  # Fe2O3
Huntite             0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite      0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite      0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite             0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)        0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K          0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na         0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH           0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite           0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica              0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite           0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite         0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite          0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite        0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge            0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite        0.0   0.0  # FeS
Magadiite           0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite          0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite           0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite          0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot            0.0   0.0  # PbO
Melanterite         0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium              0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite          0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite           0.0   0.0  # NaHCO3
Natron              0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
```

```
Nesquehonite      0.0   0.0   # MgCO3:3H2O
#O2(g)            0.0   0.0   # O2
Pb(OH)2           0.0   0.0   # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl        0.0   0.0   # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2         0.0   0.0   # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3             0.0   0.0   # Pb2O3
Pb2OCO3           0.0   0.0   # PbO:PbCO3
Pb2SiO4           0.0   0.0   # Pb2SiO4
Pb3O2CO3          0.0   0.0   # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4          0.0   0.0   # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4       0.0   0.0   # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4          0.0   0.0   # PbSO4:3PbO
PbMetal           0.0   0.0   # Pb
PbO:0.3H2O        0.0   0.0   # PbO:0.33H2O
PbSiO3            0.0   0.0   # PbSiO3
Phillipsite       0.0   0.0   # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite       0.0   0.0   # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite        0.0   0.0   # PbCl2:PbCO3
Plattnerite       0.0   0.0   # PbO2
#Prehnite         0.0   0.0   # Ca2Al2Si3O10(OH)2
Pyrite            0.0   0.0   # FeS2
#Pyrophyllite     0.0   0.0   # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0   # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0   # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0   # SiO2
Strontianite      0.0   0.0   # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0   # S
#Talc             0.0   0.0   # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0   # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0   # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0   # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0   # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0   # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0   # BaCO3

ADVECTION
-cells  1
-shifts 1000
END
```

Die Ergebnisse der Modellierungen zur Löslichkeit von Bleiphasen im Porenwasser des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs sind in den Abbildungen 10 und 11 dargestellt, einschließlich der sich im Löslichkeitsgleichgewicht einstellenden Blei-Konzentrationen (Abbildung 12).

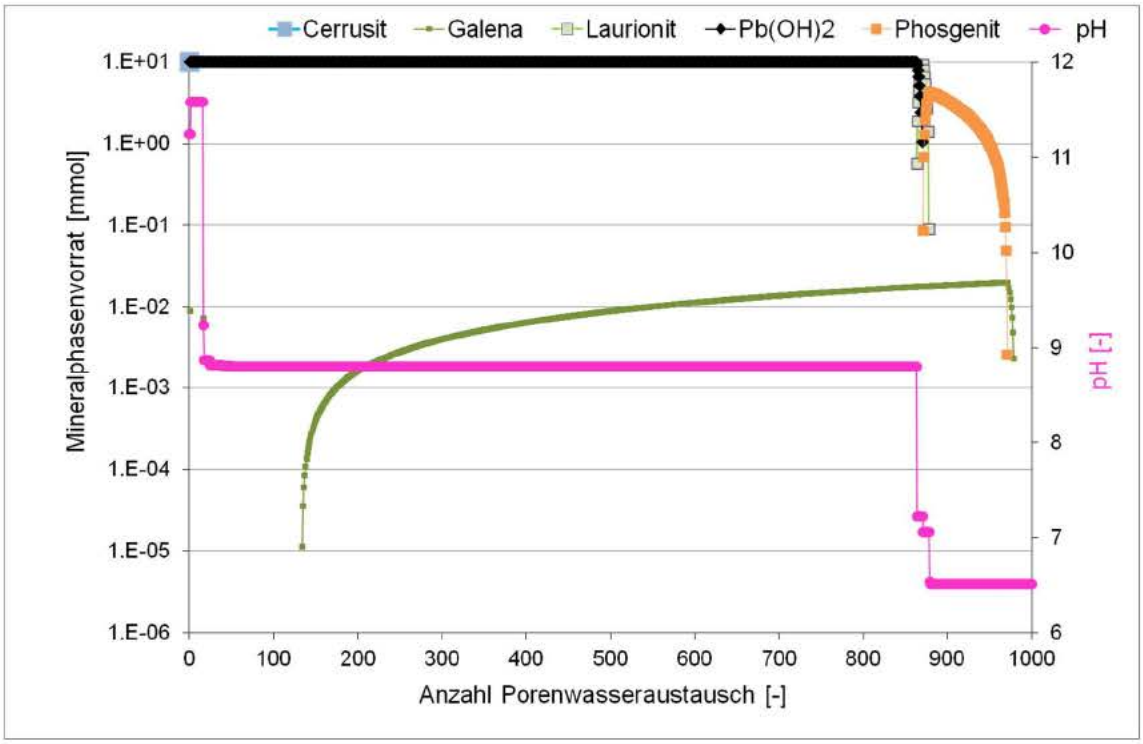


Abb. 10: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol.

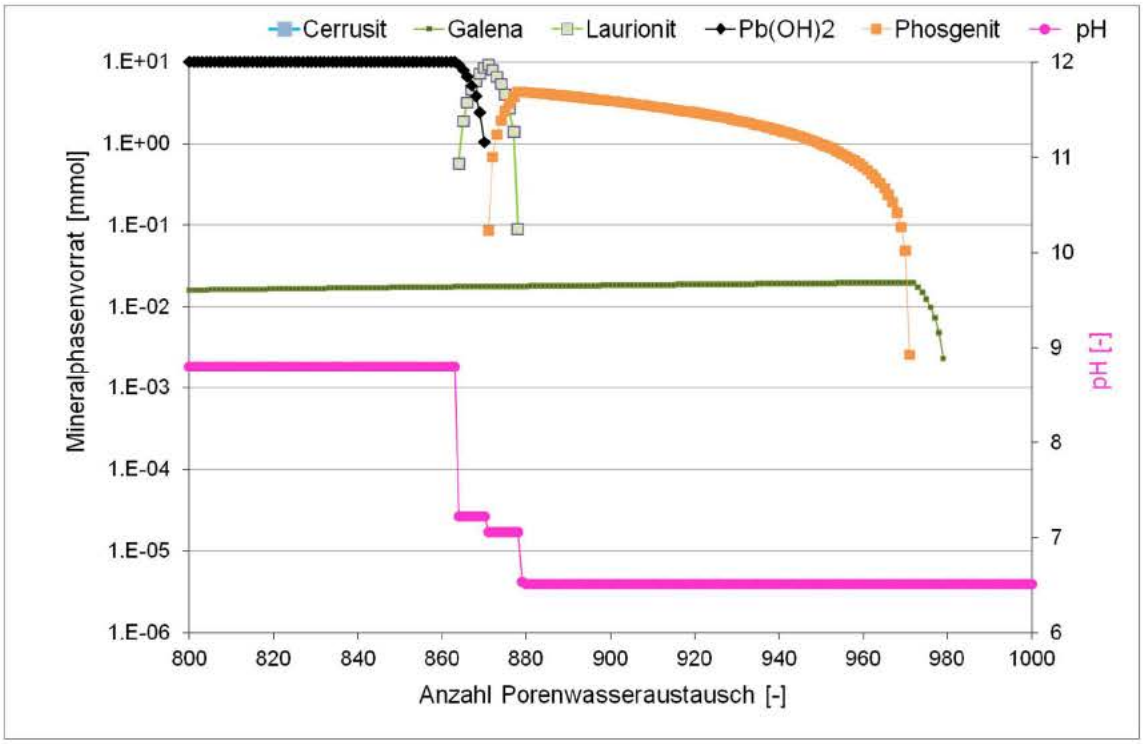


Abb. 11: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol.

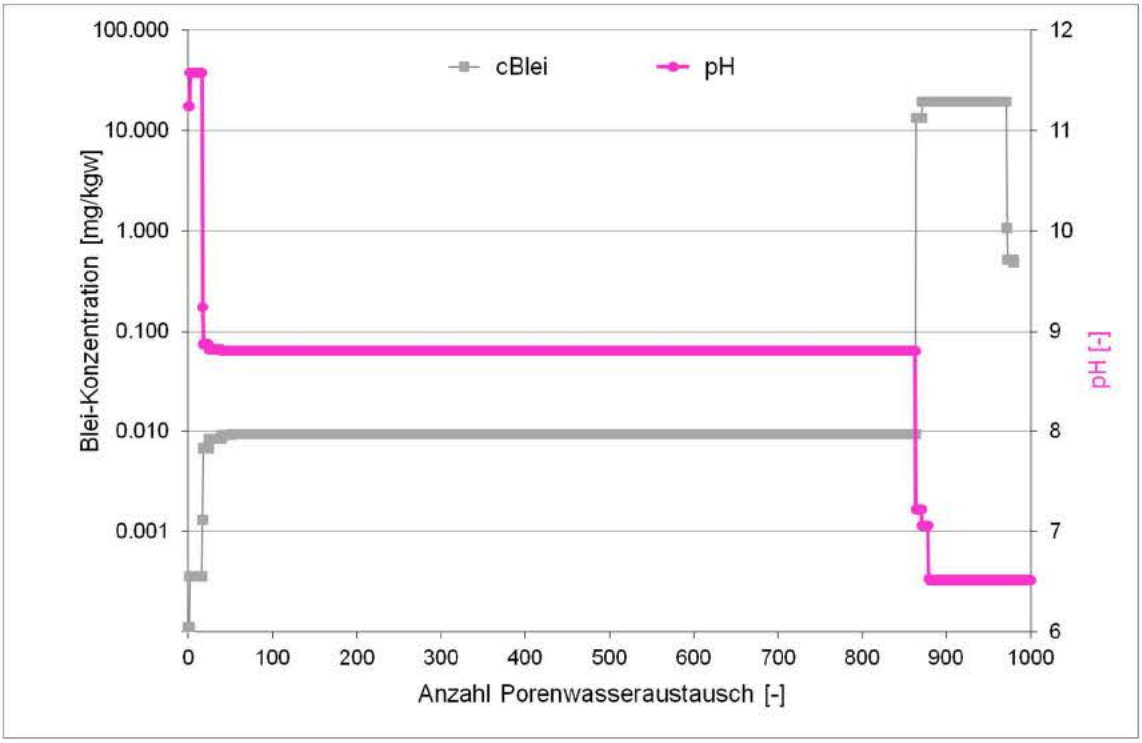


Abb. 12: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen in einem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Blei-Konzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. mg/kgw: Milligramm pro Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser; nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw.

Im Batch-Reaktor des Modells ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' wandelt sich unter den sich bei der Füllung des Porenraumes mit Tiefengrundwasser einstellenden hydrogeochemischen Verhältnissen (pH, E_H, Ionenstärke, Konzentrationen/Aktivitäten aller gelösten Stoffe) instabil werdendes Cerussit/$PbCO_3$ in die sich neu-bildenden Phasen $Pb(OH)_2$ und Galena/PbS um. Bei den sich einstellenden pH-Werten oberhalb von 8,8 sind diese beiden Phasen stabil; die sich im Löslichkeitsgleichgewicht einstellenden Bleikonzentrationen liegen bei ca. 10 µg/kgw – solange, bis das Tiefengrundwasser den Porenhohlraum 864 mal gefüllt bzw. ausgetauscht hat. Bei einer größeren Zahl für den Porenwasseraustausch stellen sich deutlich geringere pH-Werte ein (ca. 7,1 und danach 6,5), und die sich im Löslichkeitsgleichgewicht einstellenden Bleikonzentrationen liegen dann bei ca. 20 mg/kgw, die nach dem 974. Porenwasseraustausch auf ca. 0,5 mg/kgw absinken. Damit verbunden ist zunächst die vollständige Wiederauflösung der zwischenzeitlich neu gebildeten Phasen $Pb(OH)_2$, Laurionit und Phosgenite, sowie – ab dem 973. Porenwasseraustausch auch die Anlösung der neu gebildeten Phase Galena/PbS (Abbildungen 11 und 12). Aus chemisch-thermodynamischer Sicht und in quantitativer Darstellung sind (siehe auch Abbildungen 11 und 12) diese Reaktionen von bleihaltigen Phasen Teil der in den ‚Basisgutachten' so genannten „vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (der mineralischen Blei-haltigen Bestandteile der Rückstände) beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuche zur Stofffreisetzung „nicht widerspiegeln können".

5.6 Löslichkeit eines Gemischs von Feststoffphasen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Beschaffenheit unter Berücksichtigung von Bleiphasen und Mineralphasen der verstürzten Nebengesteine des Karbons

Im Batch-Reaktor des Modells ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' bauen lediglich die rückstandsbürtigen Mineralphasen das Korngerüst auf, dessen Porenhohlraum sich mit Tiefengrundwasser füllt, welches mit den hydrogeochemischen Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen zum Porenwasser im Rückstandskörper wird. In einem BHV-Bereich dagegen befinden sich sowohl die rückstandsbürtigen Mineralphasen als auch die in den BHV-Bereich verstürzten Nebengesteine des Karbons mit ihrem Mineralbestand (semi-generisch: Quarz, Kaolinit, Calcit, Siderit, Pyrit). Deshalb wird auf der siebten Stufe der Entwicklung hydrogeochemischer, chemisch-thermodynamisch basierter Modellierungen ein Batch-Reaktor (‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF') aufgebaut, der im Vergleich zum Batch-Reaktor ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' (Tabelle 7)

- lediglich die Hälfte der Vorräte der reaktiven Bestandteile des primären Mineralphasengemischs im Rückstand[79] und
- dafür aber zusätzlich Vorräte der Phasen Kaolinit, Siderit und Pyrit

enthält (siehe Tabelle 7). Wie im Modell ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' wird auch hier der Reaktor einem 1000-maligen Porenwasseraustausch ausgesetzt.

[79] Auch das sind notwendige Annahmen, die den semi-generischen Charakter des Modells ausmachen.

Tab. 7: Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen, primärer Phasen verstürzter Nebengesteine und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

```
TITLE Batch_Verst_Pb-ZunehmendesWzuF

PRINT
-reset false

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation:-104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

SELECTED_OUTPUT
-file Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite Dolomite
Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydrocerrusite Hydromagnesite
Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite
Magnesite Melanterite Mirabilite Nahcolite Natron Nesquehonite Phillipsite
Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenardite Thermonatrite
Trona Witherite
Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
-totals Pb Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4)
-water

SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al              1.751e-08
```

```
Ba                 2.293e-03
C                  1.606e-03
Ca                 5.707e-02
Cl                 2.523e+00
Fe                 1.526e-04
K                  1.147e-02
Mg                 4.816e-02
Na                 2.293e+00
S                  2.463e-08
Si                 7.783e-05
Sr                 2.293e-03

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                 1.751e-08
Ba                 2.293e-03
C                  1.606e-03
Ca                 5.707e-02
Cl                 2.523e+00
Fe                 1.526e-04
K                  1.147e-02
Mg                 4.816e-02
Na                 2.293e+00
S                  2.463e-08
Si                 7.783e-05
Sr                 2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1 # Primär in den BHV vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers vorhan-
den
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Halite          0.0  0.125
Sylvite         0.0  0.125
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0  0.125
Ettringite      0.0  0.125
Portlandite     0.0  0.125
Glauberite      0.0  0.05
Anhydrite       0.0  0.05
Calcite         0.0  0.05
Cerrusite       0.0  0.005
Kaolinite       0.0  1.0  # Zusätzlich primär im verstürzten Gebirge vorhanden
Siderite        0.0  0.010 #0.1
Pyrite          0.0  0.001 #0.01
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite       0.0  0.0  # PbSO4
#Annite         0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0  0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0  0.0  # CaCO3
Artinite        0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite          0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite    0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite     0.0  0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite       0.0  0.0  # AlOOH
Brucite         0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite       0.0  0.0  # SrSO4
#CH4(g)         0.0  0.0  # CH4
Chalcedony      0.0  0.0  # SiO2
#Chlorite14A    0.0  0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A     0.0  0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile     0.0  0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite 0.0  0.0  # MgSiO3
#CO2(g)         0.0  0.0  # CO2
Cotunnite       0.0  0.0  # PbCl2
Cristobalite    0.0  0.0  # SiO2
#Diaspore       0.0  0.0  # AlOOH
#Diopside       0.0  0.0  # CaMgSi2O6
```

```
Dolomite          0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite          0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)        0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3    0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8         0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)         0.0   0.0  # FeS
#Forsterite       0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena            0.0   0.0  # PbS
Gibbsite          0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite         0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite       0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite         0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum            0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)            0.0   0.0  # H2
#H2O(g)           0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)           0.0   0.0  # H2S
#Hematite         0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite       0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite           0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite    0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite    0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite           0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)      0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K        0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na       0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH         0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite         0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite         0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite       0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite        0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite      0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge          0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite      0.0   0.0  # FeS
Magadiite         0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite        0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite         0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite        0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot          0.0   0.0  # PbO
Melanterite       0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium            0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite        0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite         0.0   0.0  # NaHCO3
Natron            0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite      0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)            0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2           0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl        0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2         0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3             0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3           0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4           0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3          0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4          0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4       0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4          0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal           0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O        0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3            0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite       0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite       0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite        0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite       0.0   0.0  # PbO2
#Prehnite         0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite     0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0  # SiO2
Strontianite      0.0   0.0  # SrCO3
```

```
Sulfur           0.0   0.0   # S
#Talc            0.0   0.0   # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite       0.0   0.0   # Na2SO4
Thermonatrite    0.0   0.0   # Na2CO3:H2O
#Tremolite       0.0   0.0   # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona            0.0   0.0   # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite       0.0   0.0   # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite        0.0   0.0   # BaCO3

ADVECTION
-cells  1
-shifts 1000
END
```

Im Vergleich der damit errechneten Ergebnisse mit den Ergebnissen des Modells ‚Batch_Pb_ZunehmendesWzuF' zeigt sich – auch auf die Mobilität von Blei bezogen – der Einfluss geringerer Vorräte an rückstandsbürtigen Phasen zusammen mit dem Einfluss der zusätzlich in das komplexe Netzt der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen einbezogenen Mineralphasen des verstürzten Gebirges. Die Modellierungsergebnisse zur Entwicklung der Blei-Mobilität im Modell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' sind in den Abbildungen 13 und 14 dargestellt.

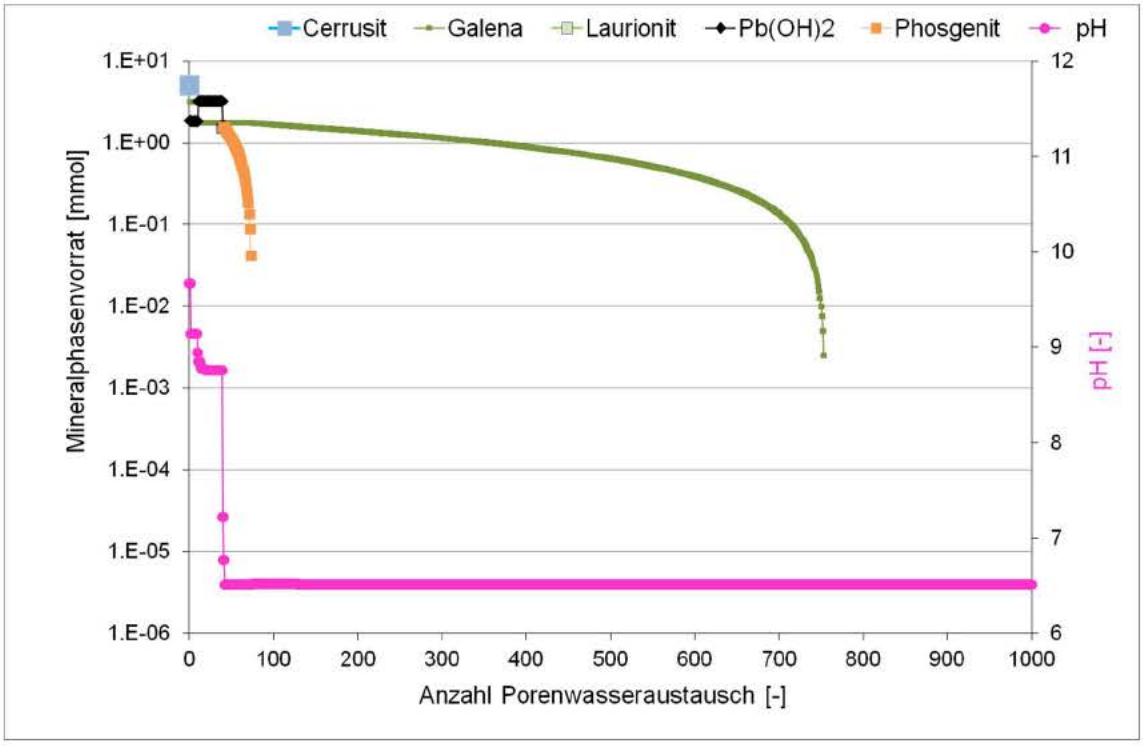


Abb. 13: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Bleiphasen (nähere Erläuterungen in der Tabelle 7) sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol (vgl. Abbildung 10)

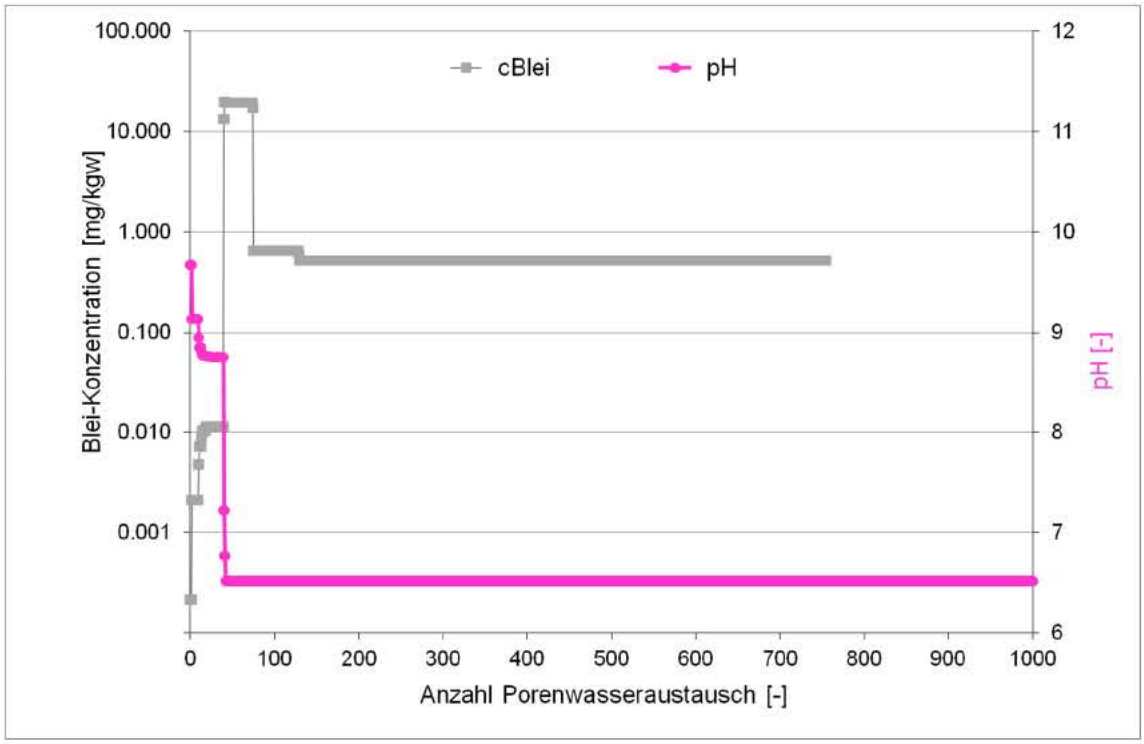


Abb. 14: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Bleiphase Cerrusit, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Blei-Konzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw.

Bei den simultan ablaufenden Reaktionen zwischen dem Tiefengrundwasser, den primären und sekundären Phasen der mineralischen Rückstände sowie den primären Mineralphasen der verstürzten Nebengesteine der ausgekohlten Flöze stellen sich, so das Ergebnis der Modellierungen mit der Eingabedatei ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF', solche hydrogeochemischen Verhältnisse im chemisch-thermodynamischen Gleichgewicht ein, die hinsichtlich

- der Art der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsrektionen von mineralischen Hauptbestandteilen und Blei-haltigen Phasen,

- des sequentiellen Ablaufs dieser Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsrektionen,

- der dabei sich einstellenden Blei-Konzentrationen in den Porenwässern

gleich sind mit den Reaktionen und deren Auswirkungen im ‚reinen' Rückstandsphasengemisch. Lediglich das pH-Niveau in den frühen Stadien der Reaktion mit dem Tiefengrundwasser ist etwas erniedrigt gegenüber dem entsprechenden pH-Niveau im ‚reinen' Mineralgemisch aus rückstandsbürtigen Phasen. Das ist auch der Grund dafür, dass die von der Anzahl der Porenwassertauschvorgänge abhängige (zeitliche) Entwicklung des sequentiellen Ablaufs der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsrektionen – und der damit verbundenen Entwicklung der Blei-Konzentrationen – schneller/früher (nach einer geringeren Zahl von Porenwassertauschvorgängen) einsetzt.

Auf der Grundlage dieses Prozessverständnisses kann berechnet werden, wie sich solche Prozesse und ihre Auswirkungen auf

- das Porenwasser in den Rückstandskörpern einschließlich der Bleikonzentrationen,

- die mineralisch-chemische Zusammensetzung des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs aus primären Phasen und den daraus sich bildenden und wieder auflösenden sekundären Mineralphasen einschließlich der Bleiphasen,

- die mineralisch-chemische Zusammensetzung (einschließlich der Bleiphasen) der Nebengesteine der BHV-Bereiche im Hangenden und Liegenden und auf

- das Tiefengrundwasser im unmittelbaren ‚Nahfeld' der versetzten Rückstände, das von den Stoffausträgen aus den BHV-Bereichen beeinflusst wird (einschließlich durch Bleifreisetzung)

in räumlicher und zeitlicher Erstreckung/Dimension entwickeln werden.

5.7 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs

Ein 1000-maliger Austausch des Porenwassers, wie er mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' berechnet wurde, bildet eine langfristige Entwicklung der hydrogeochemischen Verhältnisse in dem modellierten BHV-Bereich ab. Das Batchmodell ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen (einschließlich der Bleiphasen) ist allerdings nicht dazu konzipiert, eine solche Entwicklung mit ihren konkreten zeitlichen und auch räumlichen Dimensionen zu berechnen. Dazu müsste das ‚Null-dimensionale' Batch-Modell zu einem reaktiven Stofftransportmodell weiterentwickelt werden, das mit räumlichen und zeitlichen Dimensionen ausgestattet ist und advektiv-diffusive Stoffmassenströme berechnet. Obwohl die an die Netto-Auflösung der Mineralphasenmengen gebundenen Veränderungen der Durchlässigkeit des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs nicht einzuschätzen sind, wird ein ein-dimensionales Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandskörpers und der Nebengesteine entwickelt. Ohne eine zugehörige Plausibilitätsprüfung der Modellierungen anhand von Vergleichen der modellierten hydrogeochemischen Entwicklung mit gemessenen bzw. beobachteten Entwicklungen in gleichartigen Systemen, können die Ergebnisse nicht für eine aussagesichere Prognose der Entwicklung in einem realen System genutzt werden.

Nichtsdestotrotz gilt, dass mit den Modellierungen die chemisch-thermodynamisch unabwendbare, langfristige Entwicklung des Stofffreisetzungsverhaltens und der hydrogeochemischen Stabilität der bergbaufremden Rückstände in BHV-Bereichen einschätzen lässt.

5.7.1 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs – ‚RAG-Wasser' als semi-generisches Tiefengrundwasser

Der Aufbau des ein-dimensionalen PHREEQC-Modells für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden und Liegenden des BHV-Bereichs (‚1D_AdvektionDiffusion') ist in der Tabelle 8 dargestellt.

Tab. 8: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons (‚1D_AdvektionDiffusion').

```
TITLE 1D_AdvektionDiffusion

PRINT
-reset false # es wird keine umfangreich Ausgabedateii erzeugt

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation:-104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

LiBr
        LiBr = Li+ + Br-
        log_k          1.582
        delta_h 0.918 kcal



SELECTED_OUTPUT
-file 1D_AdvektionDiffusion.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite
Dolomite Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydromagnesite
Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite
Melanterite Mirabilite Nahcolite Natron
Nesquehonite Phillipsite Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenard-
ite Thermonatrite
Trona Witherite
Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
-totals Li Al Ba C(4) Ca Cl Fe K Mg Na S(6) S(-2) Si Sr Pb
-water

SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
```

```
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

SOLUTION 1-101 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1-45       # Nahfeld im Hangenden
Quartz           0.0 10.0 dissolve_only
Calcite        0.0 0.1
Siderite         0.0 0.01
Kaolinite        0.0 1.0
Pyrite           0.0 0.001
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia        0.0   0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)       0.0   0.0  # Al(OH)3
#Albite          0.0   0.0  # NaAlSi3O8
AlumK            0.0   0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite          0.0   0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime         0.0   0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite        0.0   0.0  # PbSO4
#Annite          0.0   0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite       0.0   0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite        0.0   0.0  # CaCO3
Artinite         0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite           0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite     0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite      0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite        0.0   0.0  # AlOOH
Brucite          0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite        0.0   0.0  # SrSO4
#CH4(g)          0.0   0.0  # CH4
Chalcedony       0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A     0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0   0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)          0.0   0.0  # CO2
Cotunnite        0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite     0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0   0.0  # FeS
#Forsterite      0.0   0.0  # Mg2SiO4
```

```
Galena           0.0   0.0  # PbS
Gibbsite         0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite        0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0   0.0  # H2
#H2O(g)          0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0   0.0  # H2S
#Hematite        0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite      0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge         0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0   0.0  # FeS
Magadiite        0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0   0.0  # PbO
Melanterite      0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0   0.0  # NaHCO3
Natron           0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2          0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl       0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2        0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3            0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3          0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4          0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3         0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4         0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4      0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4         0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal          0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O       0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3           0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite      0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite      0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite       0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite      0.0   0.0  # PbO2
#Prehnite        0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite    0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite       0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)    0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)  0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel        0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)          0.0   0.0  # SiO2
Strontianite     0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur           0.0   0.0  # S
#Talc            0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite       0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite    0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite       0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona            0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite       0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
```

```
Witherite         0.0   0.0  # BaCO3
Halite            0.0   0.0
Sylvite           0.0   0.0
Ca2Cl2(OH)2:H2O   0.0   0.0
Ettringite                0.0   0.0
Portlandite       0.0   0.0
Glauberite        0.0   0.0
Anhydrite         0.0   0.0
Cerrusite         0.0   0.0
LiBr              0.0   0.01

EQUILIBRIUM_PHASES 46-55      # Rückstände & verstürztes Gebirge in der BHV
Quartz                  0.0 10.0 dissolve_only
Halite                  0.0   0.125
Sylvite          0.0    0.125
Ca2Cl2(OH)2:H2O  0.0    0.125
Ettringite              0.0   0.125
Portlandite      0.0    0.125
Glauberite       0.0    0.05
Anhydrite        0.0    0.05
Calcite          0.0    0.05
Cerrusite        0.0    0.005
Kaolinite        0.0    1.0   # Zusätzlich primär im verstürzten Gebirge vorhanden
Siderite         0.0    0.010
Pyrite           0.0    0.001
#-------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia        0.0    0.0   # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)       0.0    0.0   # Al(OH)3
#Albite          0.0    0.0   # NaAlSi3O8
AlumK            0.0    0.0   # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite          0.0    0.0   # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime         0.0    0.0   # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite        0.0    0.0   # PbSO4
#Annite          0.0    0.0   # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite       0.0    0.0   #  CaAl2Si2O8
Aragonite        0.0    0.0   # CaCO3
Artinite         0.0    0.0   # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite           0.0    0.0   # BaSO4
Basaluminite     0.0    0.0   # Al4(OH)10SO4
#Beidellite      0.0    0.0   # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite        0.0    0.0   # AlOOH
Brucite          0.0    0.0   # Mg(OH)2
Celestite        0.0    0.0   # SrSO4
#CH4(g)          0.0    0.0   # CH4
Chalcedony       0.0    0.0   # SiO2
#Chlorite14A     0.0    0.0   #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0    0.0   #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0    0.0   #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0    0.0   # MgSiO3
#CO2(g)          0.0    0.0   # CO2
Cotunnite        0.0    0.0   # PbCl2
Cristobalite     0.0    0.0   # SiO2
#Diaspore        0.0    0.0   # AlOOH
#Diopside        0.0    0.0   # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0    0.0   # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0    0.0   # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0    0.0   # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0    0.0   # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0    0.0   # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0    0.0   # FeS
#Forsterite      0.0    0.0   # Mg2SiO4
Galena           0.0    0.0   # PbS
Gibbsite         0.0    0.0   # Al(OH)3
#Goethite        0.0    0.0   # FeOOH
#Greenalite      0.0    0.0   # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0    0.0   # Fe3S4
Gypsum           0.0    0.0   # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0    0.0   # H2
#H2O(g)          0.0    0.0   # H2O
#H2S(g)          0.0    0.0   # H2S
#Hematite        0.0    0.0   # Fe2O3
#Halloysite      0.0    0.0   # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0    0.0   # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0    0.0   # Pb(OH)2:2PbCO3
```

```
Hydromagnesite  0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite         0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)    0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K      0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na     0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH       0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite       0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica          0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite       0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite     0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite      0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite    0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge        0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite    0.0   0.0  # FeS
Magadiite       0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite      0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite       0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite      0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot        0.0   0.0  # PbO
Melanterite     0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium          0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite      0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite       0.0   0.0  # NaHCO3
Natron          0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite    0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)          0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2         0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl      0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2       0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3           0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3         0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4         0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3        0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4        0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4     0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4        0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal         0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O      0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3          0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite     0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite     0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite      0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite     0.0   0.0  # 46.82  PbO2
#Prehnite       0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite   0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite      0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)   0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3) 0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel       0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)         0.0   0.0  # SiO2
Strontianite    0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur          0.0   0.0  # S
#Talc           0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite      0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite   0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite      0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona           0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite       0.0   0.0  # BaCO3


EQUILIBRIUM_PHASES 56-100      # Nahfeld im Liegenden
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Calcite        0.0 0.1
Siderite        0.0 0.01
Kaolinite       0.0 1.0
Pyrite          0.0 0.001
#-------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0   0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0   0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0   0.0  # NaAlSi3O8
```

```
AlumK              0.0   0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite            0.0   0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime           0.0   0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite          0.0   0.0  # PbSO4
#Annite            0.0   0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite         0.0   0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite          0.0   0.0  # CaCO3
Artinite           0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite             0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite       0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite        0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite          0.0   0.0  # AlOOH
Brucite            0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite          0.0   0.0  # SrSO4
#CH4(g)            0.0   0.0  # CH4
Chalcedony         0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A       0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A        0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile        0.0   0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite    0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)            0.0   0.0  # CO2
Cotunnite          0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite       0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore          0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside          0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite           0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite           0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)         0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3     0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8          0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)          0.0   0.0  # FeS
#Forsterite        0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena             0.0   0.0  # PbS
Gibbsite           0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite          0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite        0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite          0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum             0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)             0.0   0.0  # H2
#H2O(g)            0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)            0.0   0.0  # H2S
#Hematite          0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite        0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite            0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite     0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite     0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite            0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)       0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K         0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na        0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH          0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite          0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica             0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite          0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite         0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite       0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge           0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite       0.0   0.0  # FeS
Magadiite          0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite         0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite          0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite         0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot           0.0   0.0  # PbO
Melanterite        0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium             0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite         0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite          0.0   0.0  # NaHCO3
Natron             0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite       0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)             0.0   0.0  # O2
```

```
Pb(OH)2           0.0   0.0   # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl        0.0   0.0   # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2         0.0   0.0   # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3             0.0   0.0   # Pb2O3
Pb2OCO3           0.0   0.0   # PbO:PbCO3
Pb2SiO4           0.0   0.0   # Pb2SiO4
Pb3O2CO3          0.0   0.0   # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4          0.0   0.0   # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4       0.0   0.0   # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4          0.0   0.0   # PbSO4:3PbO
PbMetal           0.0   0.0   # Pb
PbO:0.3H2O        0.0   0.0   # PbO:0.33H2O
PbSiO3            0.0   0.0   # PbSiO3
Phillipsite       0.0   0.0   # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite       0.0   0.0   # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite        0.0   0.0   # PbCl2:PbCO3
Plattnerite       0.0   0.0   # PbO2
#Prehnite         0.0   0.0   # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite     0.0   0.0   # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0   # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0   # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0   # SiO2
Strontianite      0.0   0.0   # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0   # S
#Talc             0.0   0.0   # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0   # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0   # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0   # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0   # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0   # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0   # BaCO3
Halite            0.0   0.0
Sylvite           0.0   0.0
Ca2Cl2(OH)2:H2O   0.0   0.0
Ettringite        0.0   0.0
Portlandite       0.0   0.0
Glauberite        0.0   0.0
Anhydrite         0.0   0.0
Cerrusite         0.0   0.0


TRANSPORT
-cells  100
-lengths 100*0.5 # Meter
-shifts 1000
-flow_direction backward
-time_step 3153.6e05 # 10 Jahre
-boundary_conditions flux flux
-diffusion_coefficient 1.0e-10
#-print_frequency
#-punch_frequency
END
```

Aufgebaut wird dieses Transportmodell der Stofffreisetzung[80] mit

- dem Tiefengrundwasser (‚RAG-Wasser') semi-generischer Zusammensetzung, das auch in den vorlaufenden Batch-Modellen den Porenraum des Rückstandskörpers füllte und wiederholt austauschte,

- den primären und potentiellen sekundären Mineralphasen des semi-generischen Rückstandgemischs, die auch in den vorlaufenden Batch-Modellen mit dem Tiefengrundwasser zur Reaktion kommen konnten,

- den Phasenvorräten dieser primären Rückstandsphasen in den Reaktoren/Zellen des Modells, die auch bei der vorlaufenden Batch-Modellierung ‚Batch_Verst_Pb-ZunehmendesWzuF' den BHV-Bereich aufbaute[81],

- den Mineralphasen (Quartz, Calcite, Siderite, Kaolinite, Pyrite) eines Festgesteinsgrundwasserleiters semi-generischer Zusammensetzung im ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs, mit denen das ‚RAG-Wasser' zur Einstellung des Löslichkeitsgleichgewichts gebracht wurde, bevor es erstmalig die Porenhohlräume des Rückstandskörpers füllte,

- insgesamt 100 Reaktoren/Zellen, die mit den porösen Feststoffgerüsten gefüllt sind und in die das Tiefengrundwasser eintritt
  - jede Zelle ist 0,5 Meter lang[82] (in Strömungsrichtung)
  - hat einen Hohlraumvolumen von 1,0 Liter
  - entlang der Strömungsrichtung des eintretenden Tiefengrundwassers bilden die Zellen 100 bis 56 (50 bis 27,5 Meter relativer Teufe) den Festgesteinsgrundwasserleiter unterhalb des BHV-Bereichs im ‚Nahfeld' ab
  - die Zellen 55 bis 46 (27,5 bis 22,5 Meter) bilden den BHV-Bereich ab
  - die Zellen 45 bis 1 (22,5 bis 0 Meter) bilden den Festgesteinsgrundwasserleiter oberhalb des BHV-Bereichs im unmittelbaren ‚Nahfeld' ab
  - die senkrecht zur Strömungsrichtung gelegenen Ränder auch der Zellen 100 und 1 sind für den Durchfluss des eintretenden Tiefengrundwassers und des austretenden Porenwassers offen
- insgesamt 1.000 Zeitschritten von jeweils 10 Jahren Dauer (fiktive, angenommene Zeitdauer), über die das Tiefengrundwasser in die Zelle 100 eintritt.

---

[80] Der mit der Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs erfolgende Stoffaustrag hinein das unmittelbar hangende und liegende ‚Nahfeld' und die dort erfolgende Stoffausbreitung werden vom Modell ebenfalls abgebildet.

[81] Die jeweiligen Phasenvorräte geben diejenigen Molmengen der Phasen an, die in Reaktionskontakt mit den Porenwässern kommen können. Das Modell kann nicht abbilden, wie und zu welchen Anteilen vorhandenen Phasen durch die Neu-Bildung sekundärer Phasen auf Partikeloberflächen inaktiviert/passiviert und so am vollständigen Reaktionskontakt mit den Porenwässern gehindert werden.

[82] Untersuchungen zur räumlich-zeitlichen Diskretisierung des Modells (‚grid refinement') wurden nicht durchgeführt.

Aus der Zell- und Zeitschritt-Länge ergibt sich eine (stationäre und räumlich homogen verteilte) konzeptionelle (und fiktive, angenommene) Abstandsgeschwindigkeit v_a von 0,05 m/a bzw. ein spezifischer Durchfluss q von 2,5E-03 m/a (bei einer zeitlich konstanten Porosität von n = 0,05 in allen Zellen) bzw. eine Darcy-Geschwindigkeit v_f von $8X10^{-11}$ m/s. Mit diesem spezifischen Zufluss von Tiefengrundwasser organisiert sich ein advektiver (advektiv-diffusiver) Stoffmassenstrom durch die 100 Zellen hindurch. Mit einem effektiven Diffusionkoeffizienten für alle aquatischen Spezies von 1.0E-10 m^2/s wird der diffusive Stofftransport parametrisiert.

Der Einfluss

- der *in situ* Neu-Bildung von H_2O bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in den Zellen des BHV-Bereichs und

- der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen mit den sich dabei in der Zeit ändernden Durchlässigkeit und Porosität aller von solchen Reaktionen betroffenen Zellen

auf die sich in der Zeit ändernde Abstandsgeschwindigkeit des strömenden Porenwassers kann mit dem Modell nicht abgebildet werden. Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1X10^{-8}$ m/s und $1X10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

Dagegen wird der Einfluss der *in situ* Neu-Bildung von H_2O auf die hydrogeochemischen Prozesse berücksichtigt.

Bewegungen des Tiefengrundwassers/Porenwassers, die durch Dichteunterschiede zwischen Wässern ausgelöst werden könnten, sind mit den Berechnungen mit dem PHREEQC-Transportmodell ‚1D_AdvektionDiffusion' nicht abzubilden. Im realen System ‚BHV-Bereich/Nahfeld' wird es dagegen dazu kommen, so die hier vertretene Einschätzung, dass sich in den Porenwässern innerhalb des Rückstandskörpers, durch die Auflösung von insbesondere Halit/NaCl und Sylvin/KCl, eventuell bis zur Sättigung der Porenwässern an diesen Phasen, sehr hohe Konzentrationen an gelösten Bestandteilen einstellen[83]. Damit erhöht sich die Dichte der Porenwässer innerhalb des Rückstandskörpers und erreicht möglicherweise Werte, die so deutlich oberhalb der Dichte des Tiefengrundwassers im ‚Nahfeld' liegen, dass eine Dichteströmung der Porenwässer angetrieben werden könnte. Wie sich eine solche Dichteströmung dem Porenwasser-/Tiefengrundwasserströmungsfeld und dem diffusiven Stofftransport innerhalb des BHV-Bereichs und aus ihm heraus überlagert, ist hier nicht einzuschätzen. Das gilt auch wegen der simultan ablaufenden und sowohl ‚verdünnend' als auch ‚verstärkt lösend' wirkenden *in situ* Neu-Bildung von H_2O im Porenraum des BHV-Bereichs. Solche komplexen Wechselwirkungen zwischen hydrogeochemischen und geohydraulischen Prozessen (im weiteren Sinne) sind für das System ‚BHV/Nahfeld' weder vollständig bekannt, noch – soweit bekannt – in qualitativer Sicht verstanden

[83] Mit zunehmenden Konzentrationen gelöster Stoffe, mit zunehmender Dichte, nehmen auch die Ionenstärken der Porenwässer zu. Unter diesen Bedingungen müssen die PHREEQC-Modellierungen, um korrekte Stoff-Aktivitäten berechnen zu können, auf einen anderen Algorithmus zur Berechnung der Aktivitätskoeffizienten zugreifen und dazu auch Konstanten verwenden, die nicht für alle relevanten chemischen Spezies im System verfügbar sind.

oder gar mit einem simplen Transportmodell wie ‚1D_AdvektionDiffusion' numerisch modellierend abzubilden, insbesondere mit den zeitlich-räumlichen Entwicklungen.

Besonders deutlich wird das anhand folgender Überlegung: Wie die Ergebnisse der Batch-Modellierungen zeigen, werden die ‚leicht löslichen Salze' NaCl und KCl schon in zeitlich frühen Abschnitten des Kontakts mit Tiefengrundwasser (schon bei geringen Werten für das Wasser/Feststoff-Verhältnis bzw. für die Anzahl der Porenwasseraustausche) aus den Rückständen ausgewaschen, während noch hohe pH-Werte vorherrschen und Blei-Ionen noch nicht aus dem rückstandsähnlichen Mineralphasengemisch herausgelöst und in die Porenwässer freigesetzt wird. Das geschieht erst später, im weiteren Verlauf der Entwicklung, wenn die pH-Werte ein niedrigeres Niveau erreicht haben – und die ‚leicht löslichen Salze' NaCl und KCl schon zeitlich weit davor völlig weggelöst sind.[84]

Eine weiteres komplexes Verhalten des realen Systems ‚BHV' kann nicht mit dem Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' abgebildet werden: Durchlässigkeit und Porosität des BHV-Bereichs können räumlich inhomogen verteilt vorliegen. Entweder ist diese inhomogene Verteilung schon mit dem Versatz der Rückstände angelegt worden, oder erst durch die beschriebene, mögliche Zunahme von Hohlraumanteilen durch Netto-Auflösung von rückstandsbürtigen Mineralphasen aus den Rückständen in der Zeit entwickelt worden.

- „Im Idealfall ist die Wasserdurchlässigkeit minimal, so daß der Reststoff potentiellen Sickerwässern" (oder dem ansteigenden Tiefengrundwasser) „einen maximalen Strömungswiderstand entgegensetzt und eine Stofflösung allenfalls in der Randzone des weitgehend wasserundurchlässigen Reststoffmonolithen" (verbrachter Rückstand) „stattfinden kann", so sehen es die ‚Basisgutachten'.

  In diesem Fall steht dem zu- bzw. umströmenden Tiefengrundwasser in einer randlichen Kontaktzone des massiven „Reststoffmonolithen" lediglich eine vergleichsweise geringe Masse an rückstandsbürtigen Mineralen als Reaktionspartner zur Verfügung. Unter solchen Bedingungen eines vergleichsweise großen Wasser-/Feststoff-Verhältnisses würde die entsprechend kleine Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) und eine damit verbundene niedrige Bleikonzentration (< 0,01 mg/kgw) halten zu können, schnell in der Zeit von relativ großen Volumenströmen an Tiefengrundwasser aufgebraucht werden. Bei pH-Werten unterhalb von ca. 8,8 (vgl. Abschnitte 5.4 bis 5.6) in dieser Kontaktzone würden dann die dort vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb der Kontaktzone in hohen Konzentrationen freigesetzt – nach vergleichsweise kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts. Weil dabei nicht nur Bleiphasen gelöst werden, entwickeln sich langfristig in dieser Kontaktzone mit kleiner werdenden Feststoffmengen größere Hohlraumvolumina und möglicherweise auch eine größere Durchlässigkeit. Es entwickeln sich randliche, lösungsinduzierte Wasserwegsamkeiten, die dann bevorzugt durchströmt werden. In diesem Fall könnte sich der Durchfluss an Tiefengrundwasser durch die sich in der Zeit erweiternde Kontaktzone vergrößern und der „Reststoffmonolith" jetzt nur noch mit verminderter Geschwindigkeit von ‚Außen nach Innen' angelöst werden.

---

[84] Am Beginn der Fließstrecke der Porenwässer durch den BHV-Bereich; wie sich diese Prozesse auf der weiteren Fließstrecke entwickeln, kann hier nicht eingeschätzt werden.

- Ist das Volumen des „Reststoffmonolithen“ aus rückstandsbürtigen Mineralphasen und verstürzten Gesteinen dagegen intern in einzelne Kompartimente gegliedert, die durch Bereiche mit dazu vergleichsweise höheren Wasserwegsamkeiten voneinander getrennt sind, setzt die Anlösung des rückstandsbürtigen Mineralphasengemischs und damit auch die Freisetzung von Blei von diesen Wasserwegsamkeiten ausgehend – und damit inhomogen verteilt – ein. Hier wirkt sich, wie zuvor für die randliche Kontaktzone des „Reststoffmonolithen“ beschrieben, ein vergleichsweise großes Wasser/Feststoff-Verhältnis auf die Beschaffenheitsentwicklung der Tiefengrundwässer in dem BHV-Bereich aus. Auch hier entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen vergleichsweise schnell in der Zeit von hohen pH-Wertniveaus (zwischen pH 11 und 9) zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden dann die in diesen Zonen mit höheren Wasserwegsamkeiten vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb dieser Wasserwegsamkeiten freigesetzt – nach schon relativ kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts.

- Ist eine Durchlässigkeit des BHV-Bereichs räumlich homogen verteilt, die eher eine Durchströmung als eine Umströmung des BHV-Körpers erlaubt, verdrängt das zutretende Tiefengrundwasser die Porenwässer – über die durchströmte Querschnittfläche des gesamten Tiefengrundwasser-gefüllten BHV-Bereichs; nicht nur aus einer randlichen Kontaktzone um den „Reststoffmonolithen“ herum oder nicht nur aus den Bereichen mit großer Wasserwegsamkeit. Dabei stellen sich vergleichsweise kleine Wasser/Feststoff-Verhältnisse ein. Im Vergleich zu den beiden zuvor beschriebenen Szenarien steht hier dem zutretenden Tiefengrundwasser eine größere Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen gegenüber, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können. Deshalb entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen vergleichsweise langsam in der Zeit von den relativ hohen pH-Wertniveaus zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden hier – homogen verteilt im gesamten BHV-Bereich und nach und nach mit der in Strömungsrichtung vordringenden Mobilisationsfront – die vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser freigesetzt. Dies entwickelt sich allerdings erst nach vergleichsweise langen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts.

  Das Modell ‚1D_AdvektionDiffusion‘ bildet das Szenario einer solchen homogen verteilten Durchlässigkeit ab.

- Die realen BHV-Bereiche werden sich, so die hier vertretene Einschätzung, so verhalten, als träten alle drei zuvor beschriebenen Szenarien der Durchlässigkeits-Verteilung und Entwicklung zusammen in irgendeiner Art räumlich verteilt innerhalb eines BHV-Bereichs auf. Innerhalb solcher Teilbereiche des BHV würden zwar die gleichen hydrogeochemischen Prozesse der Auflösung, Umwandlung, Ausfällung, pH-Pufferung und Stofffreisetzung ablaufen. Doch würden sich diese Prozesse und damit die Beschaffenheit der Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Werte, Bleikonzentrationen) in den unterschiedlichen Teilbereichen mit unterschiedlicher Geschwindigkeit entwickeln. Die unterschiedlichen Durchlässigkeiten und die damit in Zusammenhang stehenden Wasser/Feststoff-Verhältnisse auf der Fließstrecke der Porenwässer/Tiefengrundwässer durch den BHV-Bereich beeinflussen die zeitliche Beschaffenheitsentwicklung im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld‘ eines BHV-Bereichs. Das gilt auch für solche BHV-Körper, die hinsichtlich ihrer mineralischen Zusammensetzung einheitlich aufgebaut sind. Aus diesem Grund ist zu er-

warten, dass zu einem Zeitpunkt an verschiedenen Lokalitäten im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' eines BHV-Bereichs durchaus drastisch unterschiedliche Beschaffenheiten der aus den BHV-Bereichen austretenden Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Wert und Bleikonzentrationen) auftreten werden.

Diese Vorgänge können mit einem einfachen 1D-Modell nicht abgebildet werden. Bei den instationären Modellierungen der 3D-Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1x10^{8}$ m/s und $1x10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

Die Abbildungen 15 bis 24 stellen ausgewählte Ergebnisse der Berechnungen mit dem Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' dar[85], mit

- den pH-Werten und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen[86]
- den Vorräten an Quarz in den Zellen über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen sowie
- deren Entwicklung in der Zeit für die (fiktiven, angenommenen) Zeitschritte 500, 1.000, 2.000, 3.000, 4.000, 5.000, 6.000, 7.000, 8.000 und 10.000 Jahre.

---

[85] Der vollständige Datensatz der Modellierungsergebnisse wird der delta h Ingenieurgesellschaft zur Verwendung als ‚Quellterm' in deren Modellierungen der nicht-reaktiven Stoffausbreitung im ‚weiteren Nah- und Fernfeld' übergeben. Mit dem Hinweis darauf, dass diese Modellierungsergebnisse zur Stofffreisetzung mit einem Modell erzeugt wurden, das i) nicht kalibriert ist, ii) nicht auf Plausibilität geprüft ist, iii) dessen geohydraulischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter (Durchlässigkeit, Porosität, hydraulischer Gradient) beruht, iv) dessen hydrogeochemischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten der chemischen Beschaffenheit des Tiefengrundwassers beruht, v) dessen hydrogeochemischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch nicht vollständig bekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter (u.a. mineralogische Zusammensetzung, Porosität, Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe) beruht, vi) und das deshalb semi-generischer Natur ist. Nichtsdestotrotz sind diese Modellierungen in der Lage, die prinzipielle Entwicklung solcher Systeme mit der Richtung der Entwicklung und den Größenordnungen der dabei auftretenden Stoffkonzentrationen im Wasser, der Phasenvorräte sowie der räumlichen und zeitlichen Dimension zu beschreiben. Denn eine solche Entwicklung ist die unabwendbare Folge der chemisch-thermodynamischen Natur solcher Prozesse, die an die Bewegung von Wasser in porösen/geklüfteten Medien gekoppelt sind.

[86] Mit entsprechend weiter entwickelten PHREEQC-Modellierungen würde es auch möglich werden, die Wirkung der Oberflächenkomplexierung (surface complexation) u.a von gelösten Pb-Spezies an u.a. den neu gebildeten Eisen(III)-Hydroxiden auf die Bleikonzentrationen und die Bleimobilität zu errechnen; auch eine eventuell mögliche Reaktion mit aus den Nebengesteinen der Kohle freisetzten Mengen an Methan/$CH_{4(aq)}$ könnte mit in das komplexe Netzt der mit PHREEQC modellierten Reaktionen eingebunden werden.

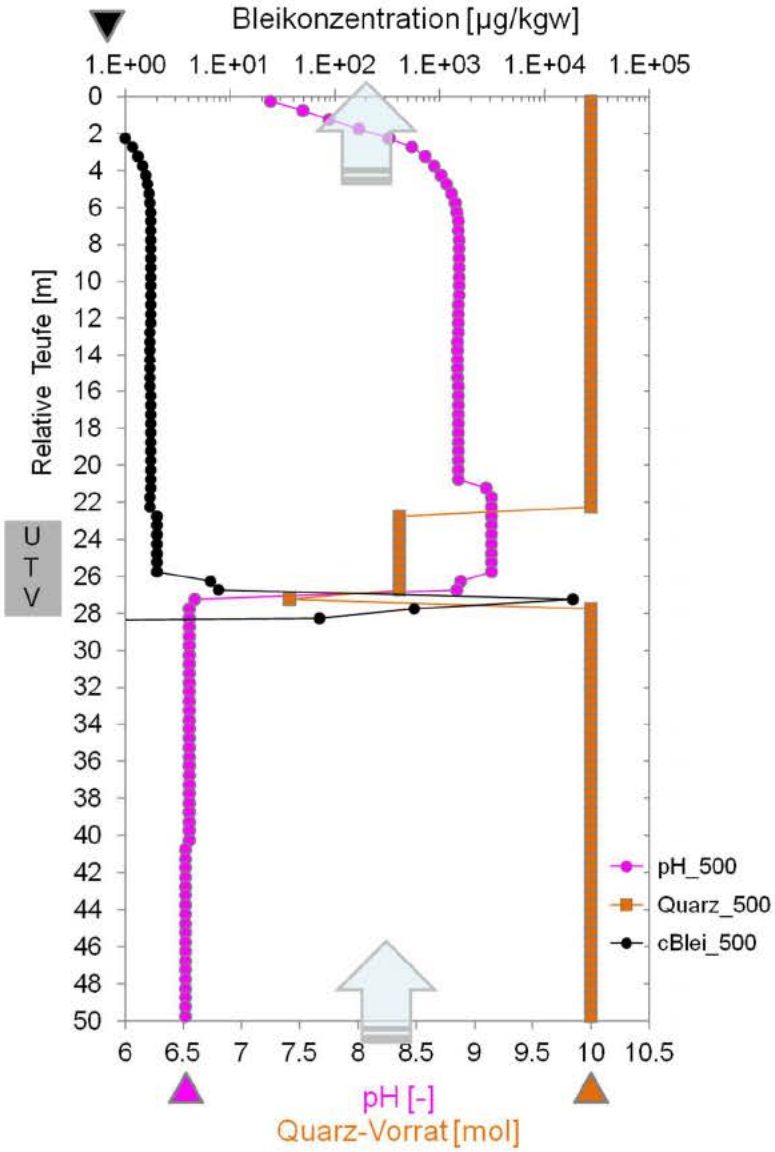


Abb. 15: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚500 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

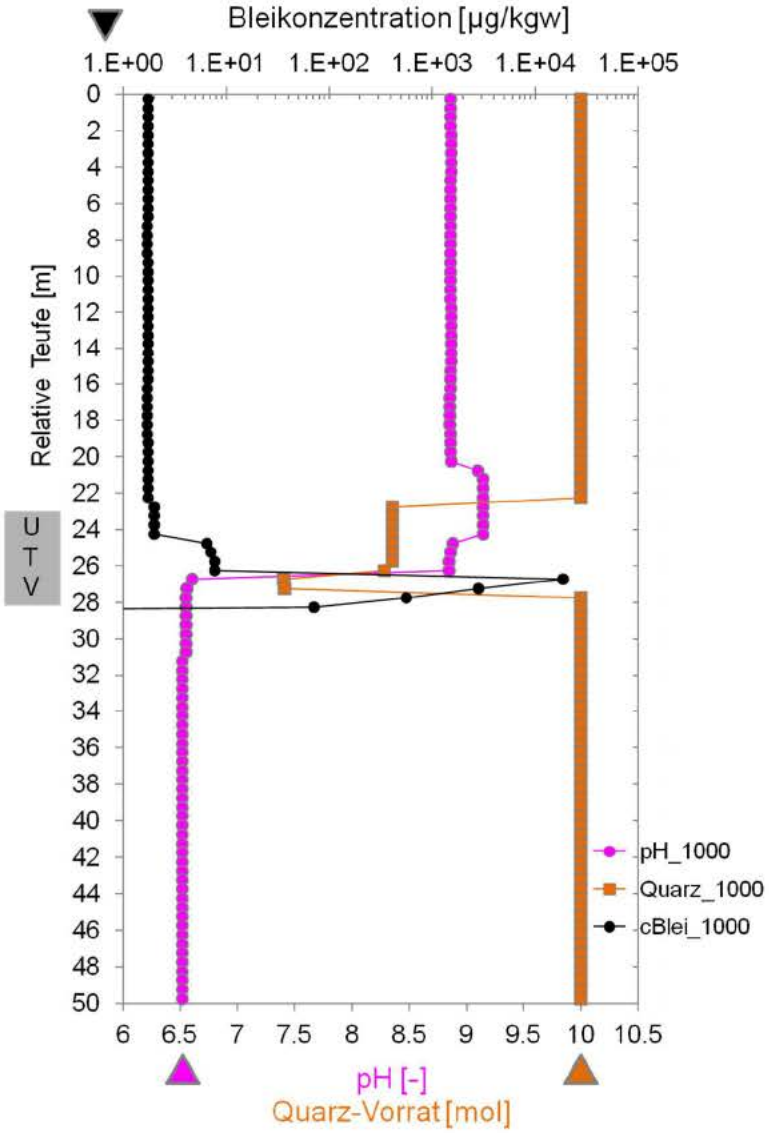


Abb. 16: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚1.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

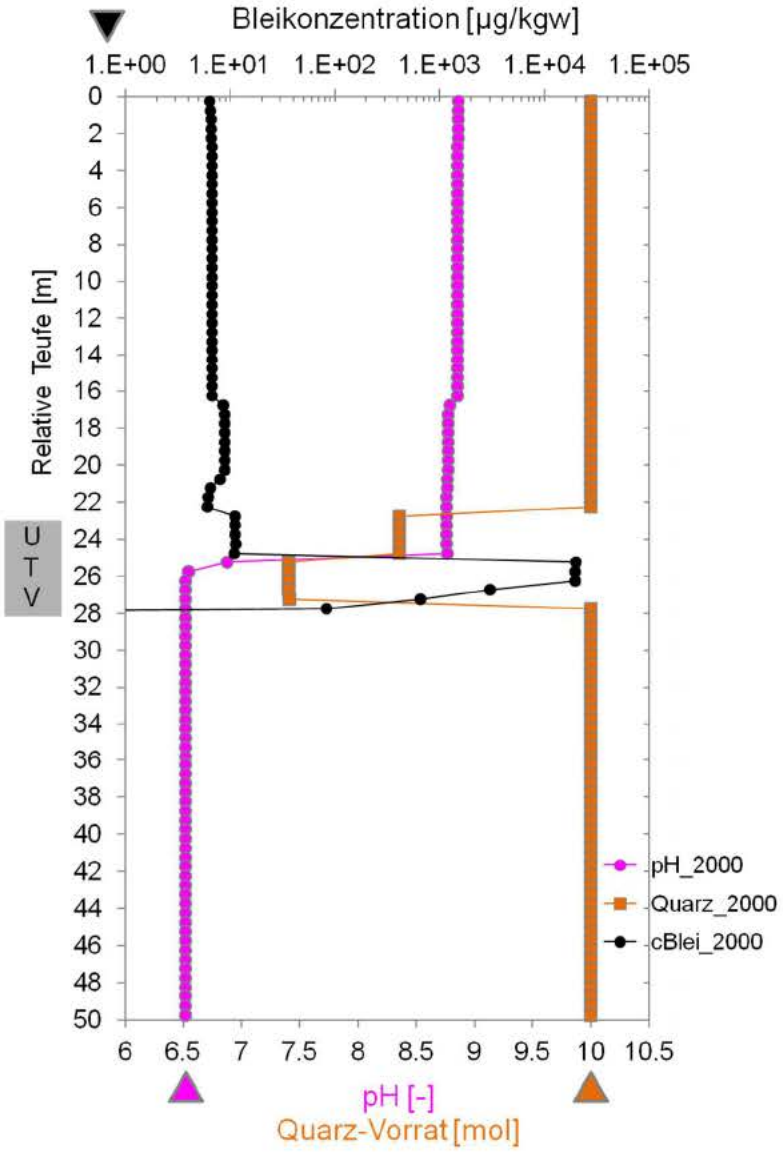


Abb. 17: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚2.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

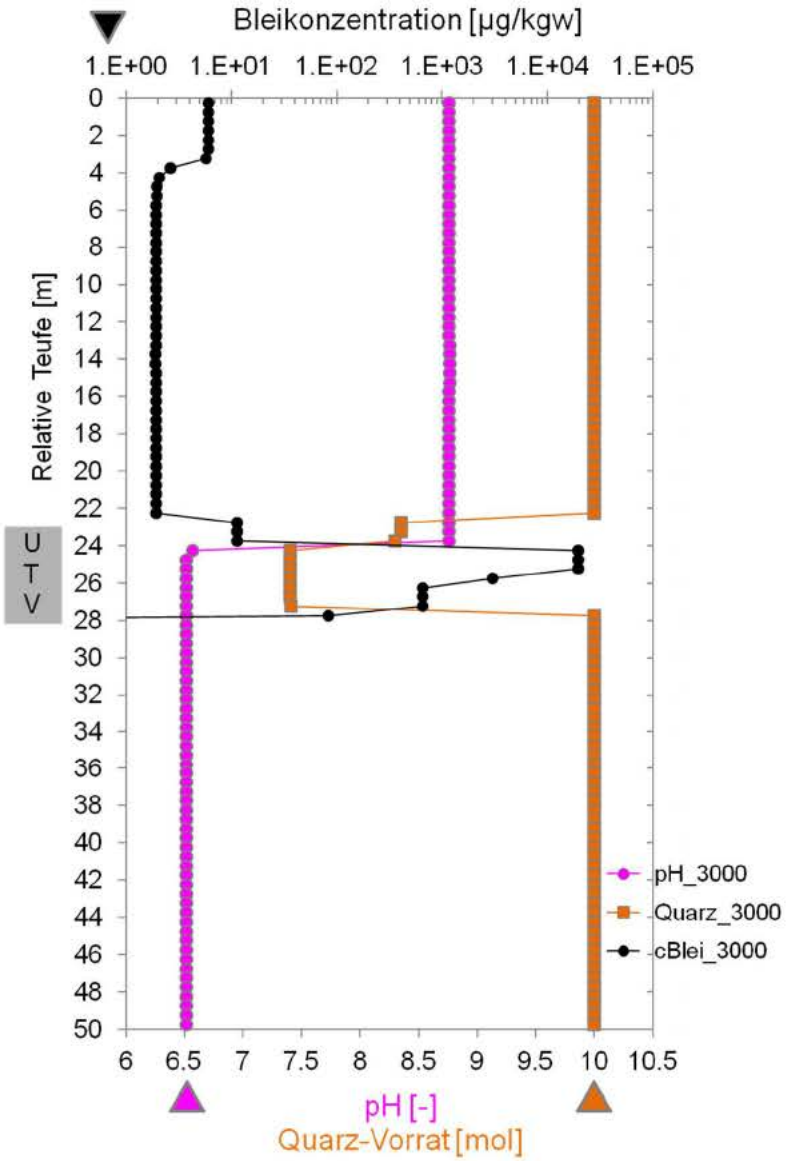


Abb. 18: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

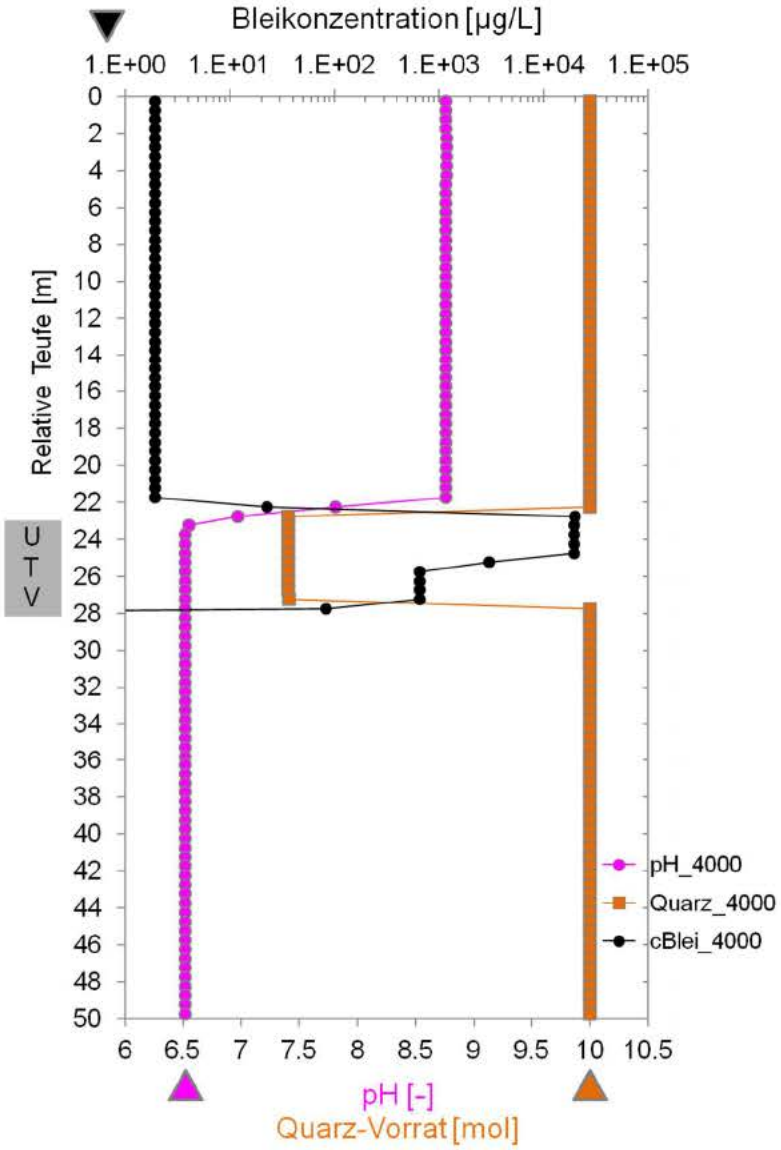


Abb. 19: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚4.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

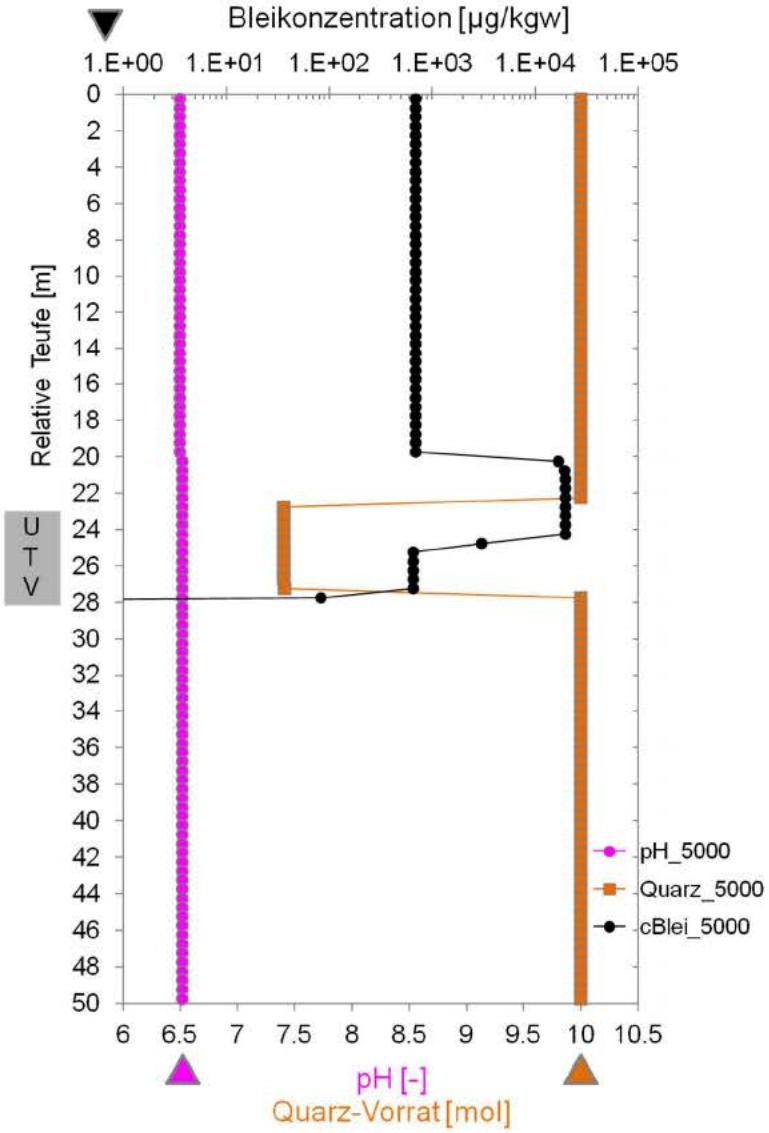


Abb. 20: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚5.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

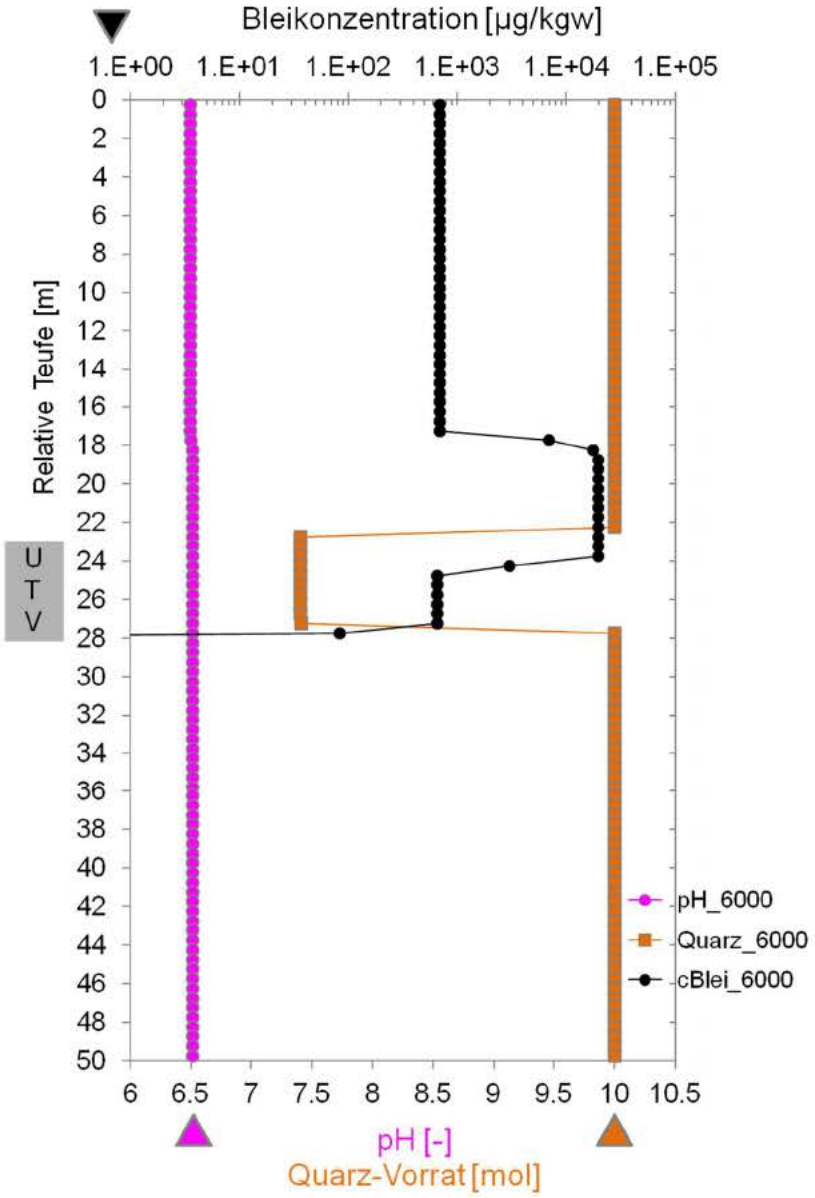


Abb. 21: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor.

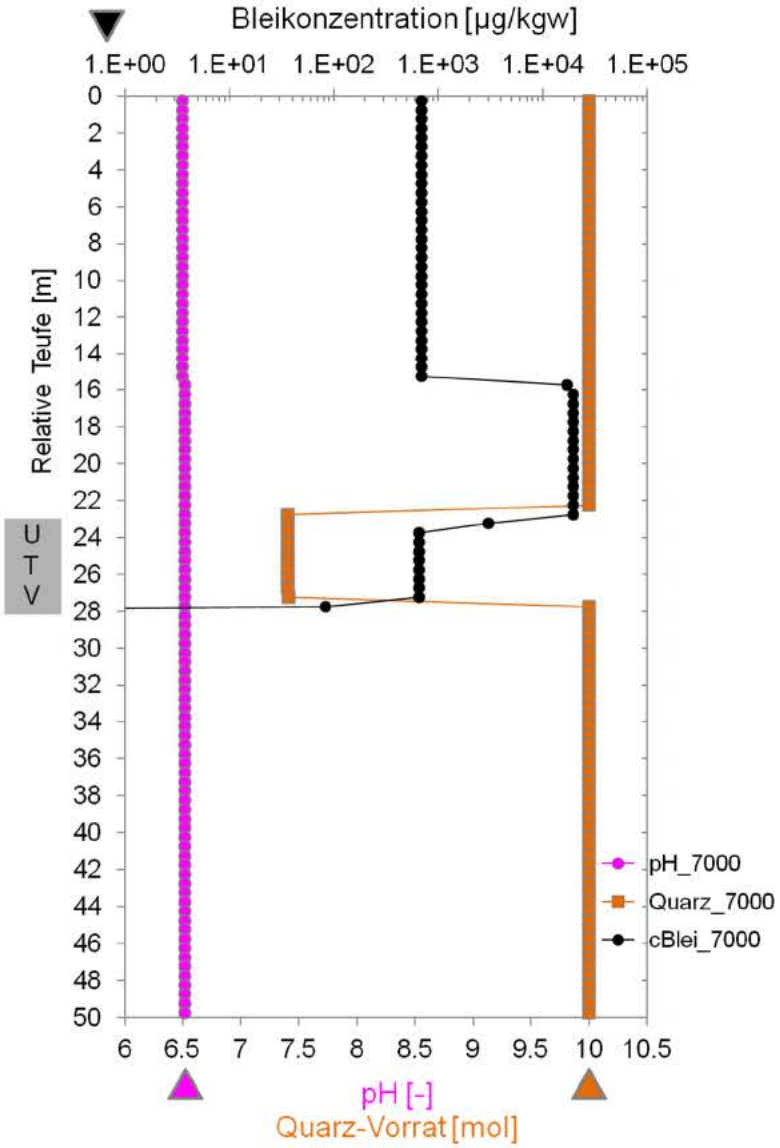


Abb. 22: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚7.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

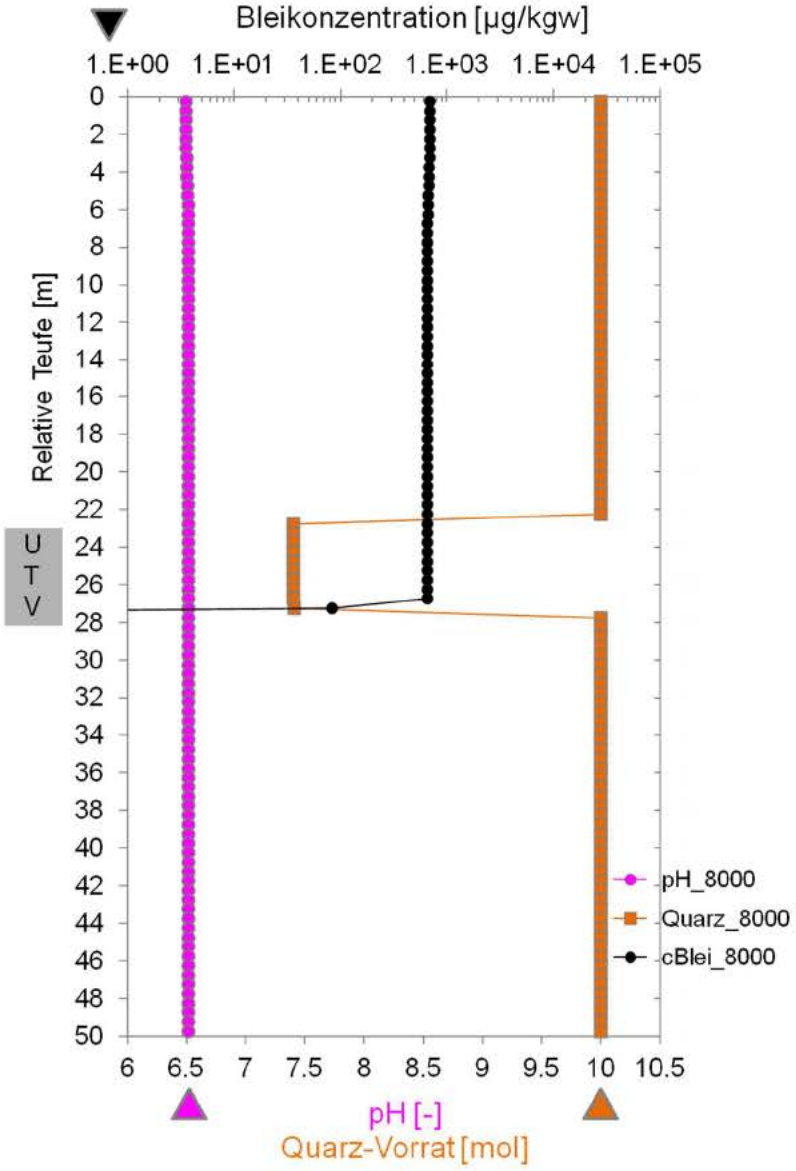


Abb. 23: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚8.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

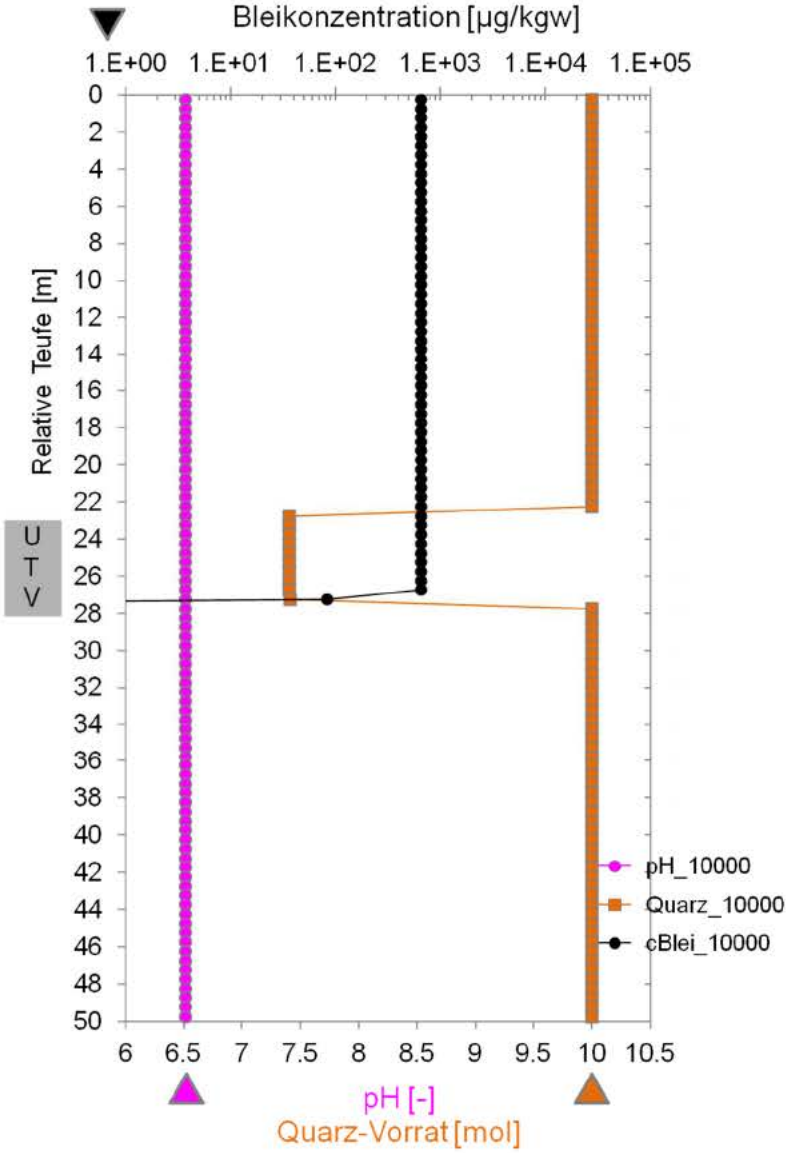


Abb. 24: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte und Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/kgw; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Bleikonzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

An dieser Stelle wird noch einmal daraufhin gewiesen, dass die Ergebnisse dieser Vorstudie hinsichtlich der zeitlichen Entwicklung solcher Prozesse der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags nicht auf die zu erwartenden Verhältnisse im BW ‚Haus Aden/Monopol' übertragen werden dürfen. Die hier vorgestellten Ergebnisse zur zeitlichen Entwicklung mit konkreten Zeitangaben in Jahren gelten lediglich für die willkürlich gewählte Abstandsgeschwindigkeit der Porenwasserdurchströmung; sie dienen lediglich dazu, die Modellierungsergebnisse anschaulicher darzustellen, als das mit einer Skala für die Anzahl der Porenwasseraustausche (PWA) möglich ist.

Die räumlich-zeitliche Entwicklung der hydrogeochemischen Verhältnisse in der modellierten 1D-Gesteinsäule von 50 Metern Mächtigkeit mit dem 5 Meter mächtigen eingeschalteten BHV-Bereich und dem von unten nach oben gerichteten Zutritt von Tiefengrundwaser (Abbildungen 15 bis 24) lässt sich vereinfachend wie folgt beschreiben.

i) In frühen Phasen der Stofffreisetzung[87] Jahren haben sich in den unteren Abschnitten des BHV-Bereichs hohe Bleikonzentrationen von einigen Zehnern bis zu wenigen

---

[87] Alle hier und nachfolgend gemachten Angaben zu modellierten zeitlichen Aspekten in der Vorstudie sind unter folgendem Gesichtspunkt zu bewerten.

i) Sie gelten für Abstandsgeschwindigkeiten der Tiefengrundwasser- bzw. Porenwasser-Bewegung v_a durch den BHV-Bereich in der Größenordnung von 0,05 m/a bzw. für spezifische Durchflüsse q von 2,5E-03 m/a (bei einer zeitlich konstanten Porosität von n = 0,05 in allen Zellen) bzw. für eine Darcy-Geschwindigkeit v von $8X10^{-11}$ m/s und für durchströmte Strecken von 5 Meter innerhalb des BHV-Bereichs. Da sich, ausgelöst durch die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen die Porosität und die Durchlässigkeit des BHV-Bereichs in der Zeit ändern wird, da die Bildung von H_2O bei diesen Reaktionen eine *in situ* ‚Wasser-Neubildung' erzwingt und damit eine intensivierte Verdrängung des Porenwassers antreibt, ist in solchen Systemen mit sich in der Zeit stark ändernden – wahrscheinlich zunehmenden Abstandsgeschwindigkeiten – zu rechen. Eine Vergrößerung der Abstandsgeschwindigkeit um den Faktor 10 würde – in der Größenordnung – eine Verkürzung der Entwicklungszeiträume für solche Prozesse um den Faktor 10 bedeuten, während entsprechend eine Verringerung der Abstandsgeschwindigkeit um den Faktor 10 – in der Größenordnung – eine Verlängerung der Entwicklungszeiträume für solche Prozesse um den Faktor 10 bedeuten würde. Sollte die Durchlässigkeit des BHV-Bereichs bzw. die Abstandsgeschwindigkeit des Porenwassers unter stationären, langfristigen Bedingungen nicht zunehmen und möglicherweise – entgegen den hier aufgestellten Vermutungen – gar abnehmen und Stofftransporte rein diffusiv erfolgen, dann werden einige Zehnermillionen Jahre der zeitliche Maßstab sein, der für die Stoffausträge relevant ist.

ii) Durchlässigkeit und Porosität des BHV-Bereichs, die in der Zeit durch die hydrogeochemischen Prozesse der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen verändert werden können, verteilen sich zudem räumlich inhomogen im BHV-Bereich. Gebunden an die Porosität ist das Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe. Dieses Verhältnis bestimmt – zusammen mit der Abstandsgeschwindigkeit des den BHV-Bereich durchströmenden Porenwassers – die Länge des Zeitraums für solche hydrogeochemischen Entwicklungen und damit u.a. den Zeitpunkt und die Zeitspanne, in der die massive Freisetzung von Blei in die Porenwässer einsetzt und anhält. Eine derart komplexe räumlich-zeitliche Entwicklung der Porenwasserbeschaffenheit in einem realen System ‚BHV' kann nicht mit dem Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' abgebildet werden.

- „Im Idealfall ist die Wasserdurchlässigkeit minimal, so daß der Reststoff potentiellen Sickerwässern" (oder dem ansteigenden Tiefengrundwasser) „einen maximalen Strömungswiderstand entgegensetzt und eine Stofflösung allenfalls in der Randzone des weitgehend wasserundurchlässigen Reststoffmonolithen" (verbrachter Rückstand) „stattfinden kann", so sehen es die ‚Basisgutachten'.
  In diesem Fall steht dem zu- bzw. umströmenden Tiefengrundwasser in einer randlichen Kontaktzone des massiven, intern homogen aufgebauten „Reststoffmonolithen" lediglich eine vergleichsweise geringe Masse an rückstandsbürtigen Mineralen als Reaktionspartner zur Verfügung. Unter solchen Bedingungen eines vergleichsweise großen Wasser/Feststoff-Verhältnisses würde die entsprechend kleine Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können, innerhalb kurzer Zeitspannen von relativ großen Volumenströmen an Tiefengrundwasser aufgebraucht werden. Bei pH-Werten unterhalb von ca. 8,8 (vgl. Ab-

schnitte 5.4 bis 5.6) in dieser Kontaktzone würden dann die dort vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb der Kontaktzone in hohen Konzentrationen freigesetzt – nach vergleichsweise kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts. Weil dabei nicht nur Bleiphasen gelöst werden, entwickeln sich langfristig in dieser Kontaktzone mit kleiner werdenden Feststoffmengen größere Hohlraumvolumina und möglicherweise auch eine größere Durchlässigkeit. So entwickeln sich randliche, lösungs-induzierte Wasserwegsamkeiten. In diesem Fall könnte sich der Durchfluss an Tiefengrundwasser durch die sich in der Zeit erweiternde Kontaktzone vergrößern, der „Reststoffmonolith" von ‚Außen nach Innen' angelöst und die freisetzbaren Bleimengen aus der Kontaktzone mobilisiert werden. Verbunden wäre eine solche Entwicklung mit einem vergleichsweise frühzeitigen Auftreten ‚auffälliger' Bleikonzentrationen im unmittelbar abstromigen ‚Nahfeld'.

- Ist das Volumen des „Reststoffmonolithen" aus rückstandsbürtigen Mineralphasen und verstürzten Gesteinen dagegen intern in einzelne Kompartimente mit vergleichsweise geringen Durchlässigkeiten gegliedert, die durch wasserwegsame Bereiche mit dazu vergleichsweise höheren Durchlässigkeiten voneinander getrennt sind, setzt die Anlösung des rückstandsbürtigen Mineralphasengemischs und damit auch die Freisetzung von Blei von diesen Wasserwegsamkeiten ausgehend – und damit inhomogen verteilt – ein. Hier wirkt sich, wie zuvor für die randliche Kontaktzone des „Reststoffmonolithen" beschrieben, ein vergleichsweise großes Wasser/Feststoff-Verhältnis auf die Beschaffenheitsentwicklung der Tiefengrundwässer in dem BHV-Bereich aus. Auch hier entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in vergleichsweise kurzen Zeitspannen von hohen pH-Wertniveaus (zwischen pH 11 und 9) zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden dann die in diesen Zonen mit höheren Wasserwegsamkeiten vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb dieser Wasserwegsamkeiten freigesetzt – nach schon relativ kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts. Dieser Effekt der höheren Durchlässigkeit ist kombiniert mit dem sich gleichgerichtet auswirkenden Effekt, der aus dem vergleichsweise großen Wasser/Feststoff-Verhältnis in den wasserwegsamen Bereichen herrührt. Vergleichsweise kleine Kapazitäten der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können, werden innerhalb kurzer Zeitspannen von relativ großen Volumenströmen an Tiefengrundwasser aufgebraucht. Zeitgleich – aber mit geringerer Entwicklungsgeschwindigkeit – läuft dieser hydrogeochemische Prozess auch in den BHV-Kompartimenten mit vergleichsweise geringen Durchlässigkeiten und niedrigen Wasser/Feststoffverhältnissen ab. Aus diesen Kompartimenten in das unmittelbar abstromige ‚Nahfeld' übertretende Porenwässer werden über entsprechend längere Zeitspannen pH-Werte oberhalb von 8,8 aufweisen und durch geringere Bleikonzentrationen belastet sein. Eine massive Belastung mit freigesetztem Blei wird hier erst nach vergleichsweise großen Zeitspannen des Tiefengrundwasserzutritts auftreten.
- Ist eine Durchlässigkeit des BHV-Bereichs räumlich homogen verteilt und – im Vergleich zur Gesteinsdurchlässigkeit im ‚Nahfeld'– so groß, dass eher eine Durchströmung als eine Umströmung des BHV-Körpers auftritt, verdrängt das zutretende Tiefengrundwasser die Porenwässer – über die gesamte durchströmte Querschnittfläche aus dem gesamten Tiefengrundwasser-gefüllten BHV; nicht nur aus einer randlichen Kontaktzone um den „Reststoffmonolithen" herum oder nicht nur aus den Bereichen mit großer Wasserwegsamkeit. Dabei stellen sich vergleichsweise kleine Wasser/Feststoff-Verhältnisse ein. Im Vergleich zu den beiden zuvor beschriebenen Szenarien steht hier dem zutretenden Tiefengrundwasser eine größere Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen gegenüber, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können. Deshalb entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen innerhalb vergleichsweise langer Zeitspannen von den relativ hohen pH-Wertniveaus zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden hier – homogen verteilt im gesamten BHV-Bereich und nach und nach mit der in Strömungsrichtung vordringenden Mobilisationsfront – die vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser freigesetzt. Dies entwickelt sich allerdings über vergleichsweise lange Zeiträume des Tiefengrundwasserzutritts.
  Das Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' bildet das Szenario einer solchen homogen verteilten Durchlässigkeit ab.
- Die realen BHV-Bereiche werden sich, so die hier vertretene Einschätzung, so verhalten, als träten alle drei zuvor beschriebenen Szenarien der Verteilung von Durchlässigkeit, Porosität und Wasser/Feststoffverhältnis sowie deren zeitliche Entwicklung zusammen und in irgendeiner Art räumlich verteilt innerhalb eines BHV-Bereichs auf. Innerhalb solcher Teilbereiche des BHV würden zwar die gleichen hydrogeochemischen Prozesse der Auflösung, Umwandlung, Ausfällung, pH-Pufferung und Stofffreisetzung ablaufen. Doch würden sich diese Prozesse und damit die Beschaffenheit der Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Werte, Bleikonzentrationen) in den unterschiedlichen Teilbereichen mit unterschiedlicher Geschwindigkeit in unterschiedlichen

Zehntausenden µg/kgw (wenige Zehner mg/kgw) eingestellt – bei pH-Werten von ca. 6,5. In der Zelle mit den höchsten Bleikonzentrationen sind die Vorräte an Quarz um ca. 2,5 mol verringert worden[88] – mit nicht geklärten Auswirkungen auf die Porosität und Durchlässigkeit des BHV-Bereichs. In den mittleren und oberen Teufenabschnitten des BHV-Bereichs sind die Bleikonzentrationen dagegen niedrig (einige µg/kgw), die pH-Werte etwas höher (pH 8,8 bzw. 9,1) und die Phasenvorräte an Quarz nicht ganz so stark vermindert (um ca. 1,7 mol) wie in den darunter anstehenden Teufenabschnitten des BHV-Bereichs. Auch in den unteren Abschnitten des unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeldes' des BHV-Bereichs (23 bis 4 m relativer Teufe) haben sich in den Tiefengrundwässern die pH-Werte (von ehemals 6,5) auf pH 8,9 deutlich erhöht. Die Bleikonzentrationen liegen hier auf einem Niveau von einigen µg/kgw; die Quarzvorräte bleiben unverändert bei 10 mol.

ii) Später hat sich die Mächtigkeit derjenigen unteren Abschnitte des BHV-Bereichs vergrößert, in denen sich das komplexe Netz der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen (siehe Abbildungen 3 bis 14) ausgewirkt hat. In diesen Teufenabschnitten des BHV-Bereichs haben sich hohe Bleikonzentrationen von einigen Zehnern bis zu wenigen Zehntausenden µg/kgw eingestellt – bei pH-Werten von ca. 6.5. In den zwei Zellen mit den höchsten Bleikonzentrationen sind die Vorräte an Quarz um ca. 2,5 mol verringert worden. In den mittleren und oberen Teufenabschnitten des BHV-Bereichs sind die Bleikonzentrationen dagegen weiterhin niedrig (einige µg/kgw), die pH-Werte höher (> 8,8) und die Phasenvorräte an Quarz nicht ganz so stark vermindert (um ca. 1,7 mol) wie in den darunter anstehenden Teufenabschnitten des BHV-Bereichs. Weiterhin zeigen sich auch in den unteren Abschnitten des unmittelbar abstromigen ‚Nahfeldes' des BHV-Bereichs (23 bis 4 m relativer Teufe) die Auswirkungen der Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs und die daraus resultierenden Stoffausträge in das ‚Nahfeld'. Dort haben sich in den Tiefengrundwässern die pH-Werte (von ehemals 6,5) auf ca. pH 9 deutlich erhöht. Die Bleikonzentrationen liegen hier – weiterhin – auf einem Niveau von einigen wenigen µg/kgw; die Quarzvorräte bleiben unverändert bei 10 mol.

iii) Noch später hat sich die Mächtigkeit derjenigen unteren Abschnitte des BHV-Bereichs weiter vergrößert, in denen sich das komplexe Netz der Auflösungs-, Um-

---

Zeitspannen entwickeln. Die unterschiedlichen Durchlässigkeiten und die damit in Zusammenhang stehenden Wasser/Feststoff-Verhältnisse auf der Fließstrecke der Porenwässer/Tiefengrundwässer durch den BHV-Bereich beeinflussen die zeitliche Beschaffenheitsentwicklung im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' eines BHV-Bereichs. Das gilt auch für solche BHV-Körper, die hinsichtlich der Art ihrer mineralischen Zusammensetzung einheitlich aufgebaut sind. Aus diesem Grund ist zu erwarten, dass zu einem Zeitpunkt an verschiedenen Lokalitäten im unmittelbaren abstromigen, ‚Nahfeld' durchaus drastisch unterschiedliche Beschaffenheiten der aus der BHV-Bereich austretenden Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Wert und Bleikonzentrationen) auftreten werden.
Diese Vorgänge können mit einem einfachen 1D-Modell nicht abgebildet werden. Hydrogeochemische, reaktive 3D-Stofftransportmodelle der Stofffreisetzung, welche die Berechnung der hydrogeochemischen Prozesse (Programm PHREEQC) und die Berechnung der Porenwasserströmung (Programm HST3D; ebenfalls vom U.S. Geological Survey entwickelt) aneinander koppeln, könnten dazu mit dem Programm PHAST (vom U.S. Geological Survey entwickelt) entwickelt werden. Das wäre die Voraussetzung dafür, auch nur die Größenordnung der verbundenen Effekte von inhomogener Verteilung und zeitlicher Veränderung von Durchlässigkeit, Porosität und Wasser/Feststoffverhältnis einzuschätzen.

[88] Welche Änderungen der Phasenvorräte aller übrigen primären und sekundären Phasen und welche Stoffkonzentrationen aller an den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen beteiligten Komponenten (‚vom Natrium bis zum Barium') auftreten, ist zwar mit dem Modell berechnet worden aber aus Platzgründen hier nicht darstellbar.

wandlungs- und Ausfällungsreaktionen (siehe Abbildungen 3 bis 14) ausgewirkt hat. Die hydrogeochemischen Verhältnisse (hier dargestellt: die Bleikonzentrationen, die pH-Werte und die Vorräte an Quarz; Abbildung 17) entwickeln sich in der Art, wie sie so schon für die vorangehenden Zeitschritte (siehe unter i) und ii))) beschrieben wurde. Die Auswirkungen der Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs zeigen sich (u.a.) in der weiterhin anhaltenden Auflösung von Quarz und der Verminderung seiner Phasenvorräte in immer größer werdenden Teufenabschnitten, in hohen Bleikonzentrationen der Porenwässer von ca. 20 mg/kgw. Die Auswirkungen der Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs und der daraus resultierenden Stoffausträge in das ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs zeigen sich deutlich u.a. in den gering (auf ca. 10 µg/kgw) erhöhten Bleikonzentrationen und in den in den Tiefengrundwässern (von ehemals 6,5) auf ca. pH 9 erhöhten pH-Werten.

iv) Wiederum danach hat sich die Mächtigkeit derjenigen unteren Abschnitte des BHV-Bereichs noch weiter vergrößert, in denen sich das komplexe Netz der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen ausgewirkt hat. Die hydrogeochemischen Verhältnisse (hier dargestellt: die Bleikonzentrationen, die pH-Werte und die Vorräte an Quarz; Abbildung 18 und 19) entwickeln sich in der Art, wie sie so schon für die vorangehenden Zeitschritte (siehe unter i) und iii))) beschrieben wurde.

v) Danach (Abbildung 22) jedoch entwickeln sich im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs wieder pH-Werte im Bereich um 6,5 und – damit verbunden – hohe Bleikonzentrationen im Tiefengrundwasser von ca. 20 mg/kgw. Die in dem BHV-Bereich freigesetzten Bleifrachten sind nun auch im unmittelbar abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs mobil. Die ‚Auswaschung' der pH-Wert-puffernden Mineralphasen aus dem BHV-Bereich ist abgeschlossen; die Auflösung zuvor gebildeter, Blei-freisetzender Phasen hält dagegen an; der Zustrom von Tiefengrundwasser verdrängt die mit hohen Bleikonzentrationen hochbelasteten Porenwässer in das abstromige ‚Nahfeld', wo das das Blei – bei pH-werten um 6,5 – mobil ist und nicht zum größten Teil in Form einer sekundären Bleiphase de-mobilisiert bzw. feststoffgebunden wird.

vi) Während der späteren Phasen der Stofffreisetzung hält dieser Prozess an. Über immer größer werdende Mächtigkeitsabschnitte des abstromigen ‚Nahfeldes' ist das Tiefengrundwaser mit hohen Bleikonzentrationen von ca. 20 mg/kgw belastet. Zusätzlich treten – weiterhin – in den oberen Mächtigkeitsabschnitten des unmittelbaren Nahfeldes' hohe Bleikonzentrationen von ca. einem Milligramm/kgw auf.

vii) Gegen Ende der modellierten zeitlichen Entwicklung treten die zuvor in dem BHV-Bereich freigesetzten Bleimengen und die hohen Bleikonzentrationen von 19 bis 20 mg/kgw nicht mehr in den unmittelbar abstromigen Teufenabschnitten auf. Aber immer noch liegt die Bleikonzentration der Tiefengrundwässer im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs in der Größenordnung von einem Milligramm/kgw.

Welche sekundären Bleiphasen durch ihre zwischenzeitliche Neu-Bildung und Wieder-auflösung die räumlich-zeitliche Entwicklung der Freisetzung von Blei innerhalb des BHV-Bereichs und den Austrag bzw. die Ausbreitung von Blei in das unmittelbare ‚Nahfeld' kontrollieren, zeigt sich mit der Auswertung der Abbildungen 25 bis 27[89].

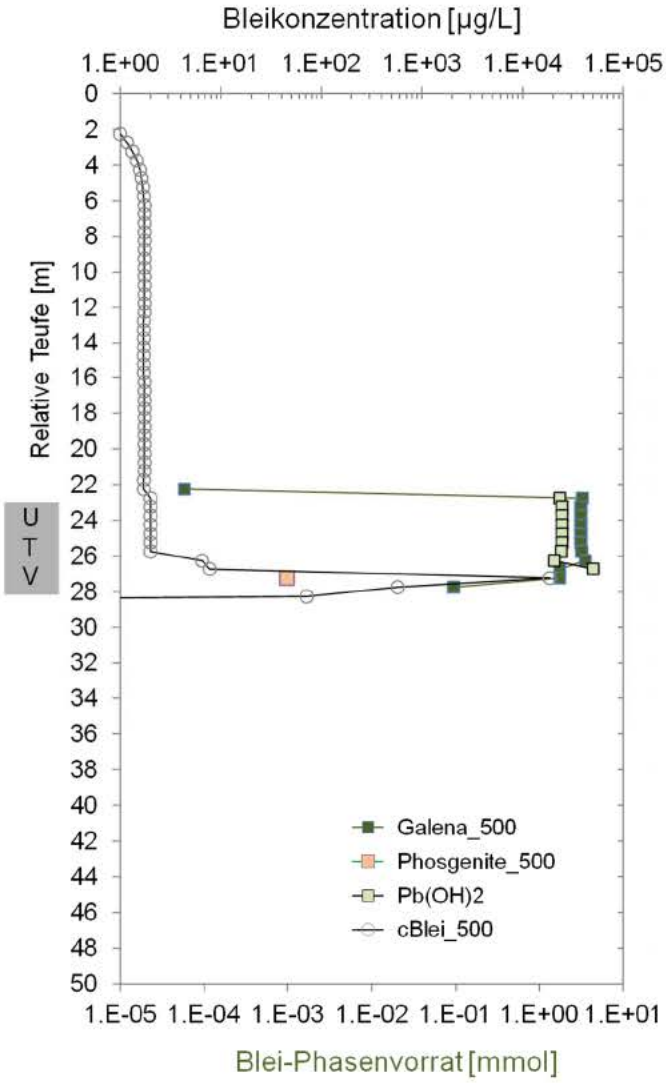


Abb. 25: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚500 Jahre'** berechnete Verteilung der Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an sekundären Bleiphasen über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Bleikonzentrationen sind kleiner

[89] Das sich in solchen hydrogeochemischen Systemen entwickelnde prinzipielle ‚0-dimensionale' Verhalten von Blei in Batch-Reaktoren ist schon mit Abbildung 8 bis 12 dargestellt.

als 1,0 µg/kgw; nicht dargestellte Vorräte von Bleiphasen sind kleiner als 10E-05 mmol; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser; Galena: PbS; Phosgenite/$PbCl_2$:$PbCO_3$ (vgl. Abbildung 15).

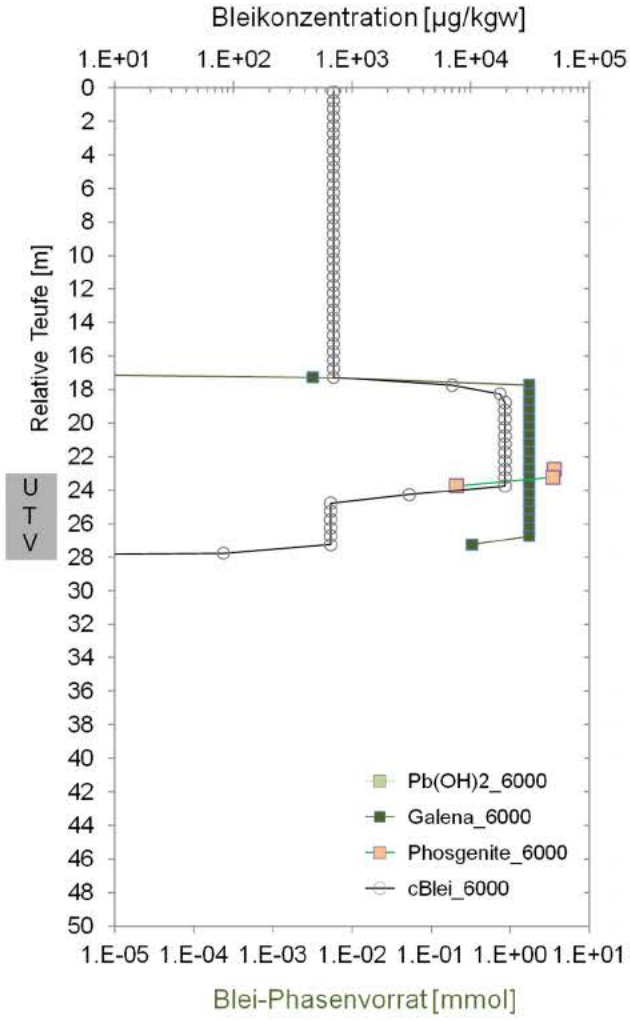


Abb. 26: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** berechnete Verteilung der Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an sekundären Bleiphasen über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Vorräte von Bleiphasen sind kleiner als 10E-05 mmol; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser; Galena: PbS (vgl. Abbildung 19).

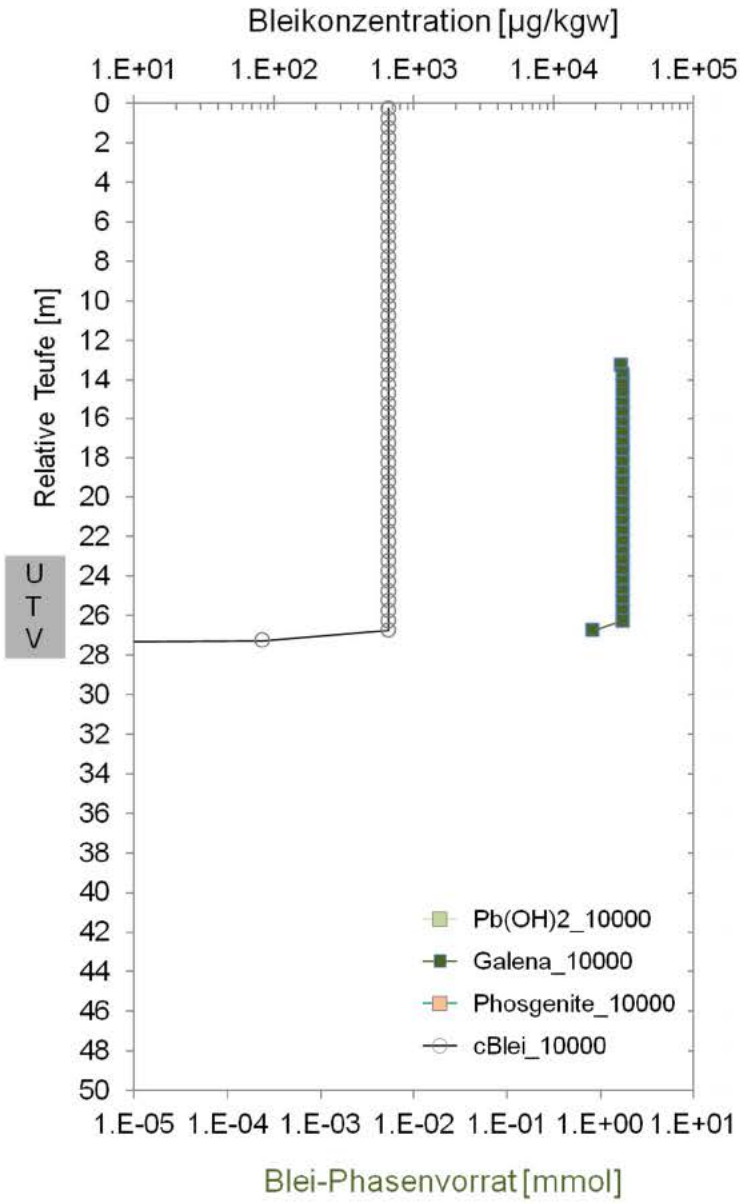


Abb. 27: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** berechnete Verteilung der Bleikonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an sekundären Bleiphasen über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Vorräte von Bleiphasen sind kleiner als 10E-05 mmol; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser; Galena: PbS (vgl. Abbildung 24).

Die räumlich-zeitliche Entwicklung der Freisetzung von Blei innerhalb des BHV-Bereichs und des Austrags bzw. der Ausbreitung von Blei im unmittelbaren Nahfeld' des BHV-Bereichs in der modellierten 1D-Gesteinsäule von 50 Metern Mächtigkeit mit dem 5 Meter mächtigen, eingeschalteten BHV-Bereich (Abbildungen 25 bis 27; vgl. auch Abbildungen 15 bis 24) lässt sich vereinfachend wie folgt beschreiben.

i) In zeitlichen frühen Phasen der Stofffreisetzung haben sich über fast die gesamte Mächtigkeit des BHV-Bereichs die Bleiphasen Galena/PbS und $Pb(OH)_2$ zu Phasenvorräten von ca. zwei bzw. drei mmol in den Reaktoren neu gebildet – durch die Umwandlung der (fälschlicherweise) als primär angenommenen instabilen Phase Cerrusit/$PbCO_3$[90]. Auch in der ersten Zelle im abstromigen ‚Nahfeld' (22 Meter relative Teufe) hat sich rückstandsbürtiges Blei im Feststoffgerüst des Tiefengrundwasserleiters in Form geringer Mengen der Phase Galena/PbS angereichert. In den untersten Teilabschnitten des BHV-Bereichs (in einer Zelle) tritt auch Phosgenit/$PbCl_2$:$PbCO_3$ auf – allerdings nur mit sehr geringen Phasenvorräten. Die Konzentrationsspitzen von Blei im Porenwasser (18,7 bzw. 0,6 mg/kgw) sind an diese unteren Abschnitte in dem BHV-Bereich gebunden, in dem die Phasenvorräte an $Pb(OH)_2$ geringer (geworden) sind und sich wahrscheinlich ein Teil dieser Phase schon wieder auflöst.

ii) An die frühe zeitliche Entwicklung anschließend hat sich die Neu-Bildung von Galena/PbS über die gesamte Mächtigkeit des BHV-Bereichs – und auch über sechs Meter innerhalb des unmittelbar abstromigen ‚Nahfelds' – entwickelt. Hier reichert sich rückstandsbürtiges Blei, das mit den Porenwäsern aus dem BHV-Bereich antransportiert wurde, im Feststoffgerüst des abstromigen Tiefengrundwasserleiters in Form der Phase Galena/PbS an. Über weite Mächtigskeitsabschnitte im Porenwasser des BHV-Bereichs – und auch über fünf Meter innerhalb des abstromigen ‚Nahfelds' – treten die Spitzenkonzentrationen des Bleis (19,5 mg/kgw) auf, die bei der Wiederauflösung des zwischenzeitlich neu gebildeten Phosgenite/$PbCl_2$:$PbCO_3$ freigesetzt und nur zum Teil in Form von Galena/PbS wieder ausgefällt wurden. Phosgenit bildet sich lediglich noch im oberen Drittel des BHV-Bereichs mit großen Phasenvorräten neu (ca. 4 mmol), ist aber in den unteren Abschnitten ebenfalls vollständig wieder aufgelöst worden. Dagegen ist das noch beim Zeitschritt ‚500 Jahre' mit großen Phasenvorräten im geamten Mächtigkeitsabschnitt des BHV-Bereichs vorhandene $Pb(OH)_2$ vollständig wieder aufgelöst worden. In den oberen Mächtigkeitsabschnitten des abstromigen ‚Nahfeldes' sowie in den unteren Abschnitten des BHV-Bereichs treten in den Wässern Bleikonzentration von ca. 0,7 mg/kgw auf.

iii) Später dann erstrecken sich über weite Mächtigkeitsabschnitte des BHV-Bereichs und hinein in das unmittelbar abstromige ‚Nahfeld' (über ca. 10 Meter) neu gebildete Phasenvorräte an Galena/PbS von ca. zwei mmol in den Reaktoren, Hier reichert sich rückstandsbürtiges Blei entlang der Fließstrecke des Tiefengrundwassers/Porenwassers im Feststoffgerüst des Tiefengrundwasserleiters an. Im Löslichkeitsgleichgewicht mit Galena/PbS stehen Bleikonzentrationen in den Porenwässern, die mit ca. 0,7 mg/kgw deutlich unter denjenigen Spitzenkonzentrationen des Bleis liegen, wie sie noch beim Zeitschritt ‚6000 Jahre' in dem BHV-Bereich und im abstromigen ‚Nahfeld' auftraten.

[90] Wahrscheinlich ist $Pb(OH)_2$ eine der primären Bleiphasen.

Dass auch solche Stoffe, die im Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' (siehe Tabelle 8) nicht rückstandsbürtig sind, sondern mit dem Tiefengrundwasser in den BHV-Bereich eingetragen werden, in das komplexe Netzt der miteinander gekoppelten Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen eingebunden sind, zeigt die in den Abbildungen 28 bis 30 dargestellte räumlich-zeitliche Entwicklung der Bariumkonzentrationen[91] und der Baryt/$BaSO_4$-Phasenvorräte im Modell.

[91] Barium ist im Hinblick auf den Gewässerschutz relevant. Das zeigt das „Hintergrundpapier Steinkohle zum Bewirtschaftungsplan 2016 – 2021 für die nordrhein-westfälischen Anteile von Rhein, Weser, Ems und Maas". Das Papier gibt diejenigen abgeschätzten Anteile der Stofffrachten u.a. von Barium in den Gewässern der Einzugsgebiete von Emscher, Lippe, Ruhr und Ems an, die mit Grubenwässern in diese Gewässer verfrachtet werden. Im Jahr 2013 lag dieser Anteil zwischen 21% (Ruhr) und 60% (Emscher).

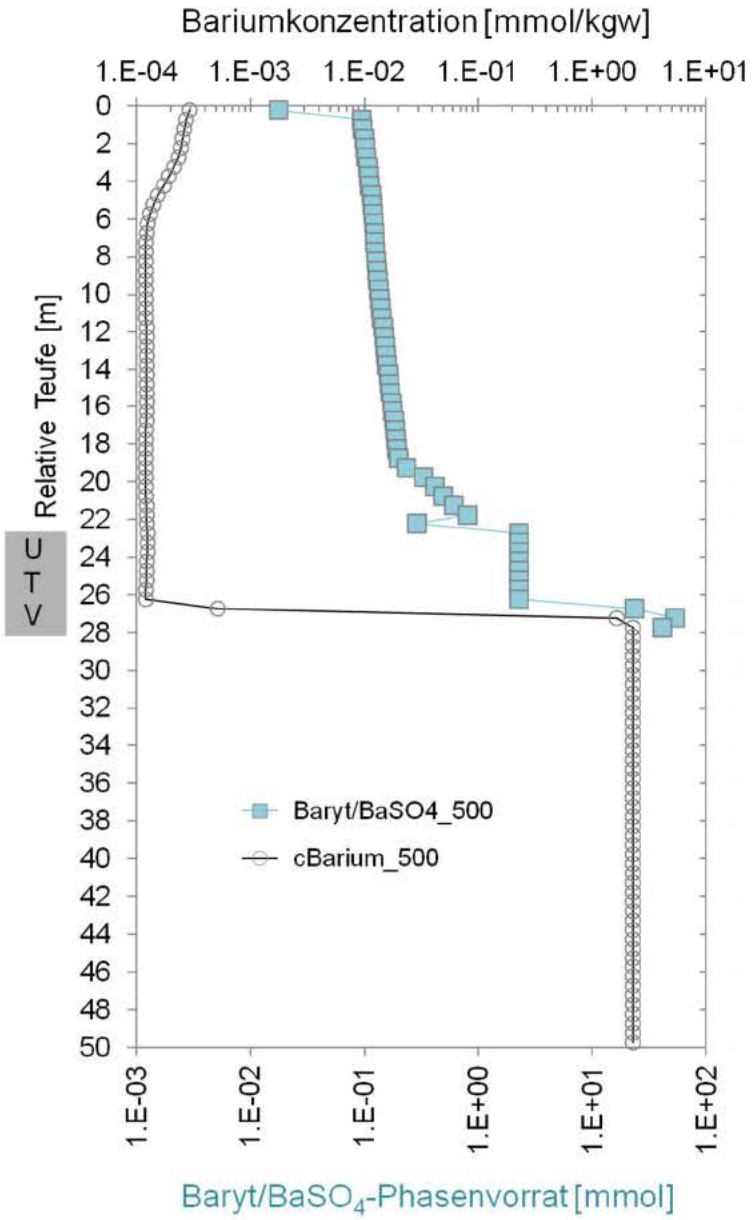


Abb. 28: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚500 Jahre'** berechnete Verteilung der Bariumkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an der Bariumphase Baryt/$BaSO_4$ über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Vorräte an Baryt sind nicht vorhanden; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

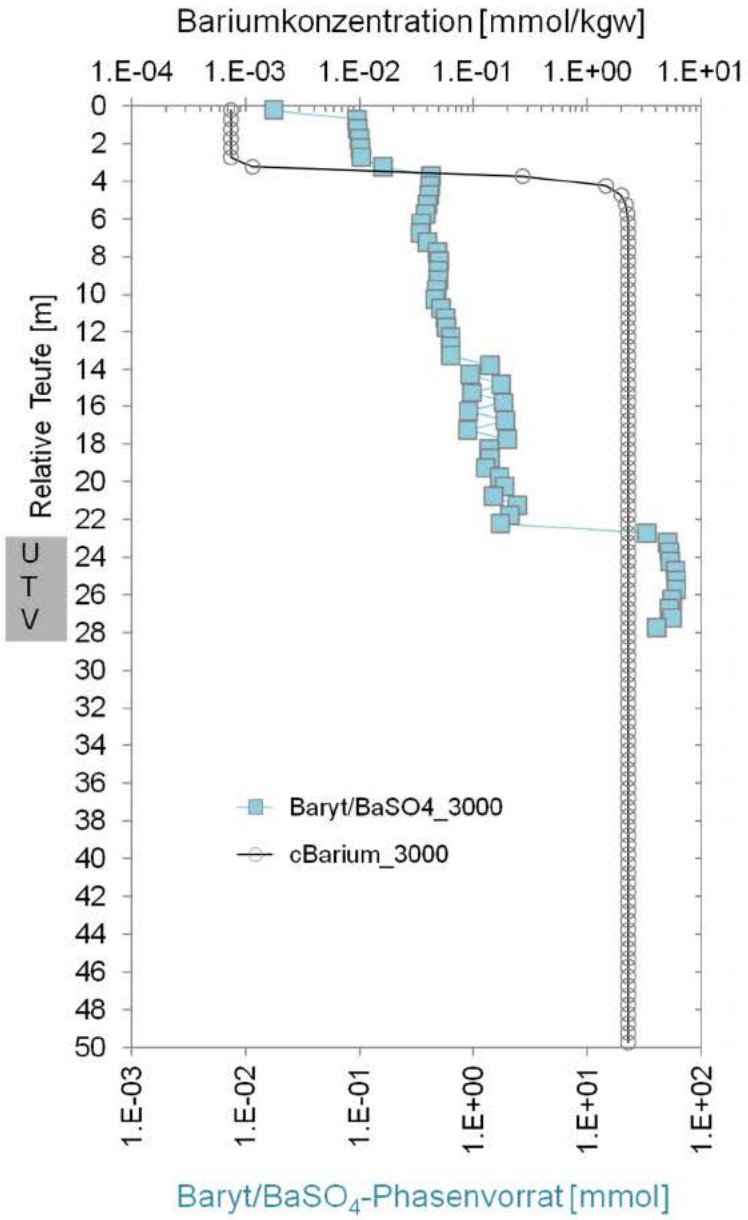


Abb. 29: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** berechnete Verteilung der Bariumkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an der Bariumphase Baryt/$BaSO_4$ über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Vorräte an Baryt sind nicht vorhanden; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

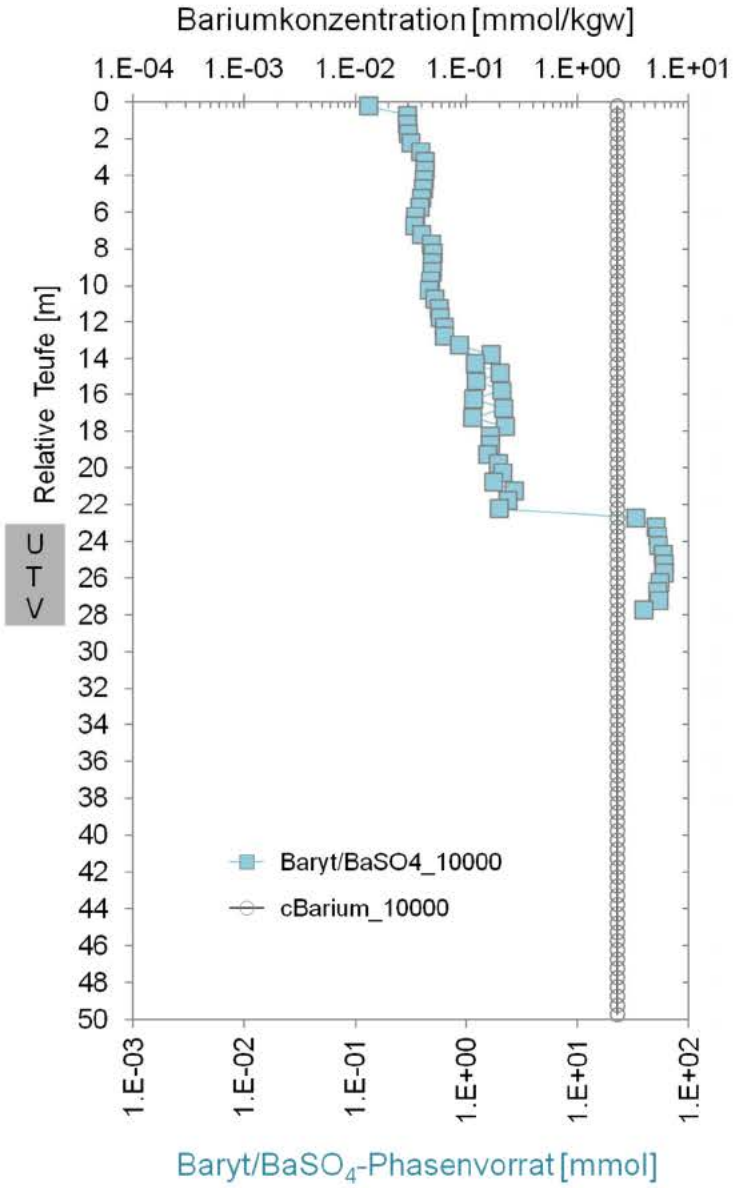


Abb. 30: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚10.000 Jahre'** berechnete Verteilung der Bariumkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an der Bariumphase Baryt/$BaSO_4$ über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Vorräte an Baryt sind nicht vorhanden; die Strömungsrichtung ist entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; kgw: Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semi-generisches Tiefengrundwasser.

Wie sich aus den Abbildungen 28 bis 30 ablesen lässt, wird das mit den Tiefengrundwässern in den BHV-Bereich transportierte Barium dort demobilisiert – zumindest zeitweilig. Antransportiertes Barium wird im BHV-Bereich in Form von Baryt/$BaSO_4$ ausgefällt; ‚geogenes' Barium aus dem zutretenden Tiefengrundwasser wird dort angereichert. Der Reaktionspartner des Bariums, der zur Neu-Bildung von Baryt benötigt wird, wird aus den instabilen, sich auflösenden Sulfat-haltigen Phasen des Rückstands (u.a. Gips) freigesetzt. Bei der Bildung von Baryt werden die Bariumkonzentrationen auf das Niveau von etwa einem Mikromol/kgw vermindert, während das zutretende Tiefengrundwasser mit 2 mmol/kgw ca. zweitausendmal höhere Bariumkonzentrationen aufweist. Von dieser Demobilisierung (Bildung von Baryt und damit einhergehende Konzentrationsverminderung des Bariums) betroffen sind sowohl der BHV-Bereich als auch dessen unmittelbar abstromiges ‚Nahfeld'. Diese effektive Demobilisierung von Barium ist aber nur zeitweilig wirksam, nämlich solange ausreichende Sulfatkonzentrationen/Sulfataktivitäten aus instabil gewordenen, sich auflösenden Sulfat-haltigen Phasen des Rückstands (u.a. Gips) freigesetzt und auch aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' transportiert werden. Nach 3000 Jahren (Abbildung 29) haben sich deshalb schon wieder in weiten Mächtigkeitsabschnitten des unmittelbar abstromigen ‚Nahfelds' sowie im BHV-Bereich selbst die hohen Bariumkonzentrationen des Tiefengrundwassers durchgesetzt. Die als ‚letzte Vorräte der Sulfatphasen' verbliebenen Vorräte an Baryt lösen sich auf[92].

Diese Prozesse der Demobilisierung und nachfolgenden Remobilisierung von Barium würden auch in solchen Systemen ablaufen, deren BHV-Bereich feststoffgebundenes rückstandsbürtiges Barium (dann vermutlich als Baryt vorliegend oder sich schnell zu Baryt umwandelnd) enthalten.

Im 1D-Stofftransportmodell hängt die zeitlich-räumliche Entwicklung aller Prozesse bei der Stofffreisetzung und der Stoffausbreitung (Abbildungen 13 bis 28) stark von der konzeptionellen Abstandsgeschwindigkeit[93] des Tiefengrundwassers/Porenwassers ab; bei gegebenen hydraulischen Gradienten somit stark von der Durchlässigkeit der durchströmten Feststoffgerüste. Ist die Abstandsgeschwindigkeit sehr klein, dominiert der diffusive Anteil der Stoffmassenströme. Für angenommene Verhältnisse, unter denen der Stofftransport in der 1D-Säule rein diffusiv erfolgt, beginnt der Zeitraum der Belastung der Tiefengrundwässer mit hohen Bleikonzentrationen im ‚Nahfeld' erst nach mehr als einigen Zehner Millionen Jahren[94]. Allerdings wird es in realen BHV-

---

[92] Existierende Grubenwasseranalysen unterschiedlicher Grubenwasserhaltungen mit unterschiedlichen Barium- und Sulfatkonzentrationen könnten dazu genutzt werden, eine Plausibilitätsprüfung der Modellaussagen hinsichtlich der Einstellung solcher Löslichkeitsgleichgewichte von Tiefengrundwässern mit geogenen Barium/Barytmengen durchzuführen. Mit PHREEQC Modellierungen könnte gezeigt werden, ob sich die in den Grubenwässern gemessenen Barium- und Sulfatkonzentrationen in jeweiligen spezifischen Milieu (pH und Konzentrationen von Natrium, Chlorid, Calcium, etc.) als Folge der Einstellung des Löslichkeitsgleichgewichts mit Baryt unter *in situ* Bedingungen erklären lassen. Diese wichtige Erkenntnis könnte genutzt werden, um zumindest diesen, auf Barium bezogenen Teil der Modellierungen zur Stofffreisetzung und Stoffausbreitung im ‚Nahfeld' (‚1D_AdvektionDiffusion') auf seine Aussageplausibilität zu prüfen und damit anwendbar zu machen.

[93] Sowie von der Porosität und damit verbunden auch dem Verhältnis der Wassermassen im Porenraum zu den damit in Reaktionskontakt stehenden Massen der Feststoffe.

[94] Das sind Ergebnisse von 1D-Transportmodellierungen (Modell ‚1D_Diffusion'; analog zum Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'), bei denen kein advektiver Transport stattfindet, weil die konzeptionelle Abstandsgeschwindigkeit zu Null gesetzt wird und lediglich die Diffusion wirkt. Auch diese Ergebnisse zeigen, wie wichtig es für eine Risikoeinschätzung ist, das – in der Zeit sich ändernde Durchlässigkeitsverhalten der BHV-Bereiche – einzuschätzen. Die Aussage der ‚Basisgutachten' dass der BHV-Bereich als „innere geochemische Barriere" wirkt, wird bei ausschließlich diffusiv wirkendem

Bereichen nicht zu einem rein diffusiv gesteuerten Stoffaustrag aus den versetzten Rückständen kommen. Das ergibt sich aus der *in situ* Freisetzung und Neu-Bildung von H_2O im komplexen Netz der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen beim Reaktionskontakt zwischen dem Mineralbestand der Rückstände und dem Tiefengrundwasser[95]. Da diese Wasservolumina *in situ* – im Porenraum der Rückstände bei den sich in der Zeit entwickelnden Stoffumsätzen der Auflösung, Umwandlung und Ausfällung sowie der H^+-Transfer-Reaktionen – neu gebildet werden, müssen sie entsprechende Volumina schon vorhandener, den Porenraum vollständig füllender Porenwässer aus dem versetzten Rückstand verdrängen. Insofern werden diffusive Stofftransporte dann durch advektive Stofftransporte überlagert, wenn H_2O neu gebildet wird. Das wird dann geschehen, wenn die wasserhaltigen und OH^--freisetzenden Mineralphasen der Rückstände gelöst werden, was insbesondere in den frühen Zeiträumen der Stoffumsätze abläuft. Die Abbildung 31 zeigt für das 1D-Tranportmodell ‚1D_AdvektionDiffusion', in dem Advektion und Diffusion simultan stattfinden, wann H_2O intensiv neu gebildet wird und/oder freigesetztes H_2O aus dem BHV-Bereich heraustritt und in das ‚Nahfeld' gelangt. Dabei handelt es sich in der Spitze um Wassermassen (30 bis 55 g/kgw), die also durchaus drei bis sechs Prozent der vollständigen Füllung eines Porenvolumens in der jeweiligen Zelle (1,0 Kilogramm H_2O) ausmachen und – im ansonsten rein diffusiven System – zusammen mit aus dem Rückstand gelösten Bestandteilen aus dem Porenraum abströmen.

Stofftransport nachvollziehbar, wenn man den Zeitraum für eine Langzeitsicherheitsbetrachtung auf einige Zehntausend bis zu Hunderttausend Jahren eingrenzt.

[95] Ein erheblicher Teil der Feststoffphasen der Rückstände besteht – schon vor oder nach dem ersten Kontakt mit den die Rückstände füllenden Tiefengrundwässern – aus solchen potentiell instabilen, im wiederholten Kontakt mit Wässern löslichen Mineralphasen, die H_2O-Moleküle und/oder Hydroxyl-Gruppen (OH^-) in ihre Strukturen eingebunden haben: ‚Kristallwasser' z.B. im Gips, Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$; sowie Portlandit/$Ca(OH)_2$ oder Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O mit Kristallwasser und Hydroxyl-Gruppen/OH^--Ionen. Das zuvor strukturell und feststoffgebundene gebundene Wasser wird bei der Auflösung der ‚wasserhaltigen' Phasen freigesetzt und mischt sich (als ‚reines Wasser' H_2O) dem Porenwasser zu, in dem die Phasen aufgelöst wurden. Mehr noch, die Auflösung der Hydroxyl-Gruppen-haltigen Mineralphasen setzt OH^--Ionen in das Porenwasser frei, was zu Erhöhung der pH-Werte im Porenwasser bis auf ca. pH 12 führen kann. Freie und gebundene H^+-Ionen aus dem zutretenden Tiefengrundwasser, oder diffusiv aus dem Nahfeld in die Rückstande gelangende H^+-Ionen reagieren – im Porenwasser, das die Rückstände füllt – mit den darin freigesetzten OH^--Ionen. Dabei bilden sich dem Stoffumsatz entsprechende Mengen bzw. Volumina an Wasser: $H^+ + OH^- \rightarrow H_2O$.

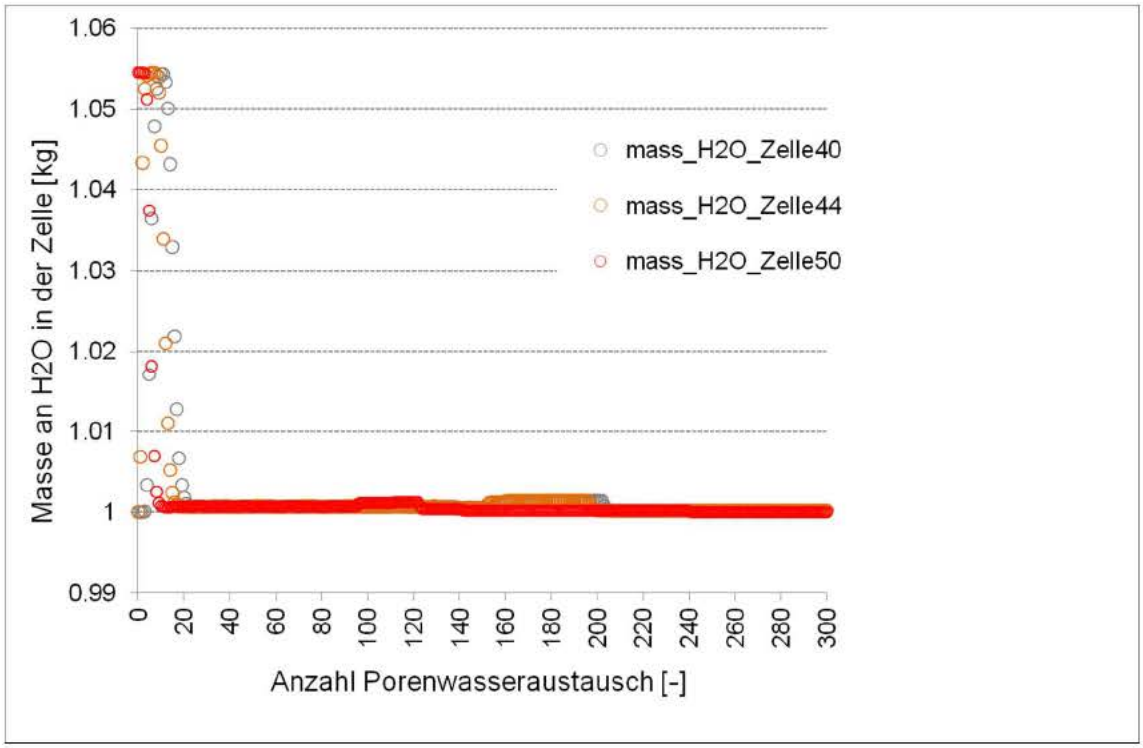


Abb. 31: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion'
Dargestellt sind die jeweiligen Massen an H_2O in den Zellen (Zelle_50: mittig in dem BHV; Zelle_44: am oberen Rand des BHV; Zelle_40: im unmittelbaren, abstromigen ‚Nahfeld' gegen die Zahl der Porenwasseraustausche in der ersten Zelle.

Insgesamt lassen die zuvor mit den Abbildungen 3 bis 31 dargestellten Modellierungsergebnisse[96] i) zur Löslichkeit reaktiver Mineralphasen in Batch-Modellen und ii) zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs erkennen:

- Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen rückstandsbürtiger und sekundärer Mineralphasen beim Kontakt und im chemisch-thermodynamischen Gleichgewicht mit Tiefengrundwässern/Porenwässern verursachen eine Freisetzung von Stoffen aus den rückstandsähnlichen Mineralgemischen in die Tiefengrundwässer/Porenwässer innerhalb des BHV-Bereichs. Gekoppelt an die Bewegung der Tiefengrundwässer/Porenwässer innerhalb des BHV-Bereichs und aus

[96] Vollständig sind die Modellierungsergebnisse im Anhang zu diesem Bericht auf Datenträger in Form einer EXCEL®-Tabelle dokumentiert.

ihm heraus verursachen die Reaktionen eine Stoffausbreitung im unmittelbar abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs.

- Die Stofffreisetzung aus versetzten Rückständen in die Porenwässer des BHV-Bereichs und auch die Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs wirken sich mit einer Erhöhung der pH-Werte (von 6,5 auf 9,2 bzw. 8,9) in dem BHV-Bereich selbst und auch über einige Meter bis zu wenigen Zehner Meter Mächtigkeit im Tiefengrundwasser des unmittelbaren abstromigen ‚Nahfelds' deutlich aus.

- Die teilweise Auflösung des Hauptbestandteils Quarz im Feststoffgerüst des BHV-Bereichs erstreckt sich über die gesamte Mächtigkeit des BHV-Bereichs.

- Die weiteren mineralischen, primären Haupt- und Nebenbestandteile der in den BHV-Bereich eingebrachten Rückstände (Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Ettringit/ $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$ und Ca-Hydroxochloridphasen/ $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$) haben sich in relativ frühen Phasen der Stofffreisetzung vollständig aufgelöst – unter entsprechender, weiter Volumenabnahme des Feststoffphasenanteils im Rückstand.

- Andererseits hat sich innerhalb dieser relativ frühen Phasen eine ganze Reihe von sekundären Mineralphasen in unterschiedlichen Molmengen neu gebildet – unter entsprechender Volumenzunahme des Feststoffphasenanteils im Rückstand. In der Reihenfolge abnehmender Molmengen sind dies: Kaolinit/$Al_2Si_2O_5(OH)_4$, Analcim/ $NaAlSi_2O_6{:}H_2O$, Gips/$CaSO_4{:}2\ H_2O$, Phillipsit/$Na_{0.5}K_{0.5}AlSi_3O_8{:}H_2O$, Christobalit/$SiO_2$, Brucit/$Mg(OH)_2$, Cölestin/$SrSO_4$, Dolomit/$CaMg(CO_3)_2$, $Fe(OH)_{3(a)}$, Calcit/$CaCO_3$, Siderite/$FeCO_3$, FeS_2 und Galena/PbS.

- Von diesen neu gebildeten Mineralphasen sind nach sehr langen Zeiträumen des kontinuierlichen Zutritts von Tiefengrundwasser und der wiederholten Einstellung von Löslichkeitsgleichgewichten durch Lösung, Umwandlung und Ausfällung lediglich einige Phasen mit teilweise sehr geringen Vorräten ‚übriggeblieben': Kaolinit und Phillipsit, Siderit, Dolomit, Pyrit, Baryt und Galena/PbS.

- Nach sehr langen Zeiträumen des kontinuierlichen Zutritts von Tiefengrundwasser verbleiben – abgesehen von den ‚geogenen' Mineralphasen in den Kohle-Nebengesteine in dem BHV-Bereich (Quarz, Kaolinit, Calcit, Siderite und Pyrit) – lediglich Phillipsit, Dolomit und Galena/PbS als Reste des aufgelösten und umgewandelten, semi-generischen bergbaufremden Rückstands übrig. Die Molmengen der insgesamt geösten Mineralphasen (Quarz/SiO_2, Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Ettringit/ $Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}{:}26H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$ und Ca-Hydroxochloridphasen/ $Ca_2Cl_2(OH)_2{:}H_2O$) werden nicht durch die gesamte Molmenge der ausgefällten – und ‚übrig gebliebenen' Phasen – ausgeglichen. Welche Wirkung diese massive Umstrukturierung des Mikrogefüges im porösen Rückstandskörper auf dessen Durchlässigkeit hat, ist schwer einzuschätzen. Eine Erhöhung der Durchlässigkeit ist dabei allerdings wahrscheinlicher als eine Verringerung, so die hier vertretene Einschätzung.

- In relativ frühen Phasen der Stofffreisetzung weisen die Porenwässer in den unteren Mächtigkeitsabschnitten des BHV-Bereichs hohe Bleikonzentrationen (ca. 19 bis 20 mg/kgw[97]) auf, die sich zeitweise auf diesem Niveau halten und danach bei ca. 0,5 bis 1,0 mg/kgw liegen[98].

- Solche hohen Bleikonzentrationen (ca. 19 bis 20 mg/kgw) treten im auch Tiefengrundwasser des unmittelbaren ‚Nahfelds' des BHV-Bereichs auf.

- Nach dem Auftreten dieser Peak-Konzentrationen von Blei treten geringere aber immer noch hohe Bleikonzentrationen (ca. 0,5 bis 1,0 mg/kgw) im Tiefengrundwasser im unmittelbaren ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs auf – im gesamten Teufenabschnitt der modellierten 1D-Säule von 25 Metern im Hangenden des BHV-Bereichs.

- Im Feststoffgerüst der Festgesteinsgrundwasserleiter des den BHV-Bereich unmittelbar (über einige Meter bis zu wenigen Zehner-Meter) überlagernden abstromigen ‚Nahfeldes' reichert sich – zeitweilig durch Ausfällung von Galena/PbS – rückstandsbürtiges Blei an.

- Ob es bei dem Stoffaustrag von Blei in das ‚Nahfeld' bzw. bei der Stoffausbreitung zu Roll-Front-Effekten der Demobilisation und der anschließenden Remobilisation von Blei kommt, ob sich also kleinräumig-lokal und zeitweilig im Tiefengrundwasser bei der Remobilisation von Blei aus neu gebildeten Bleiphasen Spitzenkonzentrationen an Blei im Tiefengrundwasser entwickeln, ist mit den Modellierungen nicht geklärt.

- Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen haben das Porositäts- und Durchlässigkeits-bestimmende Mikrogefüge im BHV-Bereich verändert. Da größere Molmengen an Feststoffphasen in den Reaktoren des BHV-Bereichs aufgelöst als neu gebildet werden, ist es nicht sicher auszuschließen, dass sich die Porosität und die Durchlässigkeit des BHV-Bereichs in diesem Zeitraum vergrößert.

Ob also der BHV-Bereich tatsächlich – auch in der Langzeitperspektive von Zehntausenden bis zu Hunderttausenden Jahren – als „effektive wirksame geohydraulische Barriere" fungiert, wie die ‚Basisgutachten' behaupten, muss deshalb in Frage gestellt werden. Auf der Grundlage der vorgestellten Modellierungsergebnisse ist diese mit den ‚Basisgutachten' vertretene ‚Kernaussage' als zumindest ‚nicht vollständig sachgerecht' zu bewerten. Unter dem Gesichtspunkt der Langzeitsicherheit und der chemisch-thermodynamischen Ursachen für die beteiligten hydrogeochemischen Reaktionen muss diese ‚Kernaussage' der ‚Basisgutachten' als ‚nicht sachgerecht' und ‚nicht gültig' angesehen werden – auch weil sie nicht durch Messungen nachgewiesen wurde.

Allerdings gilt auch für die hier vorgenommene Bewertung selbst, dass sie nicht auf einem tatsächlich geführten Nachweis durch Langzeit-Messungen beruht[99].

---

[97] mg/kgw: in grober Näherung entspricht das einer Angabe in mg/l.

[98] Die GRS führt dazu (im Abschnitt 5.1.1.3. ‚Kopplung zum Fernfeld') aus: Der „Zeitpunkt" zudem die „maximal eluierbare Stoffmenge" (auch die von Blei) „aus der UTD ausgetragen wurde" „liegt bei etwa 60 Jahren". In dem davor liegenden Zeitraum erreichen die maximalen Bleikonzentrationen allerdings auch Werte bis zu 2,4 g/l, so die GRS-Berichte.

[99] Aus offensichtlichem Grund.

Wegen der Bedeutung dieser Wechselwirkungen zwischen hydrogeochemischen Reaktionen (‚Stofffreisetzung durch Auflösung') und der Bewegung des Porenwassers durch den BHV-Bereich (‚Abtransport der freigesetzten Stoffe') in einem porösen Feststoffphasenkörper, der wegen seines primären Mineralbestands (u.a. Portlandit/$Ca(OH)_2$ und Quarz/SiO_2) in seinem Reaktionsverhalten Ähnlichkeiten mit anderen, Portlandzement-bürtigen Materialien aufweist, sollte materialwissenschaftliche Expertise zur langfristigen ‚Korrosionsbeständigkeit' der BHV-Feststoffkörper eingeholt werden.

Die mit dieser Expertise erarbeiteten Erkenntnisse zur ‚Korrosionsbeständigkeit' von Portlandit- und Quarz-haltigen – gleichzeitig aber Chlorid/Sulfat/Natrium-reichen und freisetzenden Feststoffen – in einem Einlagerungsmilieu, das durch zutretende, Chlorid/(Sulfat)/Natrium-haltige Tiefengrundwässer und advektive Stofftransportprozesse gekennzeichnet ist, können helfen, die ‚Kernaussagen' der ‚Basisgutachten' einerseits und die hier dargelegten chemisch-thermodynamisch begründeten Aussagen andererseits hinsichtlich ihrer Übertragbarkeit auf reale BHV-Bereiche zu prüfen. Es stellen sich die Fragen: Wie ist die zeitliche und räumliche Entwicklung der chemisch-thermodynamisch unabwendbaren Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen rückstandsbürtiger und sekundärer Mineralphasen in dem BHV-Bereich langfristig und unter *in situ* Bedingungen einzuschätzen?[100] Wie ist die Wahrscheinlichkeit einzuschätzen, dass sich Lösungs-induzierte Wasserwegsamkeiten bilden und/oder sich die Wasserdurchlässigkeit der kleinen Rückstandskörper zwischen den Bruchstücken des verstürzten Gebirges innerhalb des BHV-Bereichs erhöht? [101]

- Die Bewertung der Behauptung einer geohydraulischen Barrierewirkung des BHV-Bereichs (als ‚nicht vollständig sachgerecht'; in der Langzeitperspektive ‚nicht nachgewiesen' und ‚nicht gültig') stützt sich auch, zusätzlich zur vermuteten, allerdings durch Messwerte nicht nachgewiesenen Zunahme von Porosität und Durchlässigkeit, darauf, dass innerhalb dieser „effektiv wirksamen geohydraulischen Barriere" Wasser/H_2O bei den hydrogeochemischen Reaktionen neu gebildet wird; in vielen der Reaktoren zu vielen Zeitschritten in Mengen von einigen Gramm bis zu einigen Zehner Gramm pro Kilogramm Wasser des Lösungsmittels semigenerisches Tiefengrundwasser.

- Wie u.a. i) die nach relativ kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts im unmittelbar abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs auftretenden Änderungen der pH-Werte, ii) die erst nach relativ langen Zeiträumen auftretenden und lang anhaltenden Belastungen solcher Tiefengrundwässer mit Blei (im Konzentrationsbereich von wenigen Zehner Milligramm/kgw bzw. einem Milligramm/kgw) und iii) die Remobilisierung von Barium aus zwischenzeitlich neu gebildetem und danach wieder aufgelösten Baryt zeigen, ist auch die von den ‚Basisgutachten' behauptete[102] „innere geochemische Barriere" nicht vollständig und auch nicht langfristig wirksam.

---

[100] Eng daran gebunden ist die zeitlich-räumliche Entwicklung der Intensität der Stofffreisetzung.

[101] Es liegen Erfahrungen zur Korrosionsstabilität solcher ‚Zement-artiger' Materialien vor, die beim Ausbau von Bohrungen und Förderbrunnen zur Gas/Öl-Gewinnung aus tiefen Reservoiren mit erhöhten Temperaturen und ‚hoch-mineralisierten' Formationswässern eingesetzt werden. Allerdings weisen diese Materialien nicht die für die bergbaufremden Rückstände und ihr hydrogeochemisches Verhalten relevanten mineralischen Zusammensetzungen auf: Sulfat- und Chlorid-freisetzende Phasen von teilweise sehr hoher ‚Wasserlöslichkeit'.

[102] Allerdings nicht durch Messwerte zu Stoffkonzentrationen in wässrigen Lösungen nachgewiesene Barriere.

Auf der Grundlage der Messungen von Stoffkonzentrationen in wässrigen Lösungen, die im Reaktionskontakt mit rückstandsbürtigen Mineralphasengemischen stehen (Elutionsversuche) und auf der Grundlage der vorgestellten Modellierungsergebnisse ist die mit den ‚Basisgutachten' vertretene ‚Kernaussage', dass der BHV-Bereich eine „innere geochemische Barriere" bildet, als zumindest ‚nicht vollständig sachgerecht' zu bewerten. Unter dem Gesichtspunkt der Langzeitsicherheit und der chemisch-thermodynamischen Ursachen für die beteiligten hydrogeochemischen Reaktionen muss diese ‚Kernaussage' der ‚Basisgutachten' als ‚nicht nachgewiesen' und ‚nicht gültig' angesehen werden – auch im Hinblick auf das Schwermetall Blei.

- In der Konsequenz können die hydrogeochemischen Auswirkungen des Versatzes der bergbaufremden Rückstände auf die chemische Beschaffenheit von Tiefengrundwässern und die chemische Beschaffenheit der zugehörigen Grundwasserleiter im unmittelbaren ‚Nahfeld' auf der Grundlage der in den ‚Basisgutachten' postulierten – insbesondere in der langfristigen Perspektive aber nicht nachgewiesenen – Funktionsweisen des BHV-Bereichs als „effektive wirksame geohydraulische Barriere" und als „innere geochemische Barriere" nicht eingeschätzt werden.

  Auch die ‚Basisgutachten' selbst argumentieren hinsichtlich der „Barrieren" nicht durchgängig widerspruchsfrei: Aus den Kernaussagen der GRS-Berichte zum ‚Quellterm' für Blei und der ihn beschreibenden empirischen Funktion für die Bleikonzentration in Abhängigkeit vom Wasser/Feststoff-Verhältnis bzw. von der Zeit (Abbildungen 2.5/2 und 5.1.1./8.) lässt sich herleiten, dass die ‚Basisgutachten' davon ausgehen und auch ihre Modellierungen zur Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' entsprechend aufbauen, dass die Bleikonzentrationen in den aus den BHV-Bereich austretenden Porenwässern

  – über einige Jahrzehnte nach dem ersten Kontakt mit Tiefengrundwässern extrem hoch sein werden (zwischen 2000 und 10 mg/l; maximal bis zu 2,4 g/l, Abbildung 5.1.1./11.)

  – danach zwar kontinuierlich geringer werden aber

  – über einige Jahrhunderte auf einem Niveau zwischen zehn und einem Zehntel Milligramm pro Liter bleiben können.

Damit stellt sich die Frage danach, warum man einen porösen Rückstandskörper, von dem angenommen wird, dass aus ihm solche Stoffausträge (hier: ‚Quellterm' für Blei) erfolgen, als eine, die Schadstofffreisetzung und Ausbreitung verhindernde „innere geochemische Barriere" definiert.

- Auf der Grundlage der vorgestellten Modellierungsergebnisse und trotz der eingeschränkten Aussagesicherheit semi-generischer Modelle[103] kann eingeschätzt werden, dass aus den versetzten Rückständen Stoffe freigesetzt und mit Porenwässern/Tiefengrundwässern transportiert werden.

  – Das gilt hinsichtlich der von der Stofffreisetzung aus den BHV-Bereichen betroffenen Tiefengrundwässer in dem BHV-Bereich selbst und im unmittelbaren

[103] Siehe dazu die nachfolgend beschriebenen Restriktionen unter dem letzten Aufzählungspfeil in diesem Abschnitt: … Allerdings muss an dieser Stelle nochmals deutlich gemacht werden, …

‚Nahfeld' sowie auch hinsichtlich der damit in Reaktionskontakt stehenden Feststoffgerüste der Gesteine[104].

- Das gilt u.a. für OH^--Ionen bzw. für den pH-Wert sowie für Blei.
- Das gilt u. a. auch für deren anionische und kationische Hauptbestandteile (u.a. Chlorid und Sulfat sowie Natrium und Kalium).

- Ob die modellierten Stoffausträge aus einem BHV-Bereich und die modellierte Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' sich derart auf die Beschaffenheit der mit einer Grubenwasserhaltung gehobenen Grubenwässer auswirken würden, dass sie dort messtechnisch (durch chemische Analysen) erfassbar wären, hängt ab von: [105].
  - solchen geohydraulischen Prozessen ab, die den Anteil der aus dem BHV-Bereich austretenden ehemaligen Porenwässer an dem gesamten gehobenen Volumenstrom an ‚Grubenwasser' bestimmen (siehe Bericht ‚Stoffausbreitung' der delta h Ingenieurgesellschaft) und
  - den auf der Fließstrecke der ehemaligen Porenwässer (von dem BHV bis zum Ort der Fassung der Grubenwässer) ablaufenden hydrogeochemischen Prozessen

- Allerdings muss an dieser Stelle deutlich gemacht werden, dass die mit diesem hier vorliegenden Bericht vorgestellten Modellierungsergebnisse zur Stofffreisetzung und Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' mit einem einfachen Modell erzeugt wurden, das i) nicht kalibriert ist, ii) nicht auf Plausibilität geprüft ist, iii) dessen geohydraulischer Teil lediglich auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter (Durchlässigkeit, Porosität, hydraulischer Gradient) beruht, iv) dessen hydrogeochemischer Teil lediglich auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten der chemischen Beschaffenheit des Tiefengrundwassers beruht, v) dessen hydrogeochemischer Teil lediglich auf vereinfachenden Annahmen zu noch nicht vollständig bekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter des versetzten Rückstandes (u.a. mineralogische Zusammensetzung, Porosität, Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe) beruht, vi) und das deshalb lediglich semi-generischer Natur ist.

---

[104] Eine in Bezug auf die Beschaffenheit der Tiefengrundwässer positiv zu bewertende Demobilisation der aus den versetzten Rückständen mit Porenwässern oder diffusiv aus den Porenwässern ausgetragenen Schadstoffe im ‚Nahfeld' würde lediglich diese Stoffe auf die Feststoffgerüste der Grundwasserleiter im ‚Nahfeld' umverteilen; z.B. gelöste Bleispezies in Form von Galena/PbS ausfällen, das sich zeitweise im Feststoffgerüst des Gebirges anreichert. Verbunden damit wäre eine nicht immissionsneutrale Wirkung auf das gesamte „Einlagerungsmilieu" (im Sinne der LWA-Kurzfassung der ‚Machbarkeitsstudie') aus Grundwässern und Feststoffgerüsten der Grundwasserleiter.

[105] Zu den Signalen, anhand derer eine anteilige Zumischung der aus dem BHV-Bereichen austretenden ehemaligen Porenwässer in den gesamten gehobenen Volumenstrom an Grubenwasser erkannt werden könnte, gehört möglicherweise die zeitweilige konzentrationsvermindernde Wirkung der BHV-Passage von Tiefengrundwässern. Die Bariumkonzentrationen zutretender, Barium-reicher Tiefengrundwässer wird durch die BHV-Passage zeitweilig und drastisch – um bis zu vier Zehnerpotenzen – erniedrigt (vgl. Abbildungen 26 bis 28).

Dessen ungeachtet sind diese Modellierungen in der Lage, die prinzipielle Entwicklung solcher Systeme mit ihrer Entwicklungsrichtung und den Größenordnungen der dabei auftretenden Stoffkonzentrationen im Wasser, der Mineralphasenvorräte sowie der räumlichen und zeitlichen Dimension solcher Entwicklungen zu beschreiben. Denn eine solche Entwicklung ist die unabwendbare Folge der chemisch-thermodynamischen Natur solcher Prozesse, die an die Bewegung von Wasser in porösen/geklüfteten Medien gekoppelt sind.

5.7.2 Chemisch-thermodynamisch basierte Modellierungen zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' – ‚RAG-Wasser' als semi-generisches Tiefengrundwasser und Zinkphasen als Bestandteile der mineralischen Rückstände

Auf der Grundlage des bisher mit den Batch- und den 1D-Stofftransportmodellierungen zur Stofffreisetzung und zur Stoffausbreitung in unmittelbaren ‚Nahfeld' von BHV-Bereichen gewonnenen Prozessverständnisses wird versucht, das hydrogeochemische Verhalten von Zink zu verstehen und numerisch modellierend abzubilden. Dafür werden die Modelle ‚Batch_Verst_Pb_ZunehmendesWzuF' (Kapitel 5.6; Tabelle 7) und ‚1D_AdvektionDiffusion' (Kapitel 5.7.1; Tabelle 8) erweitert um

- die im Rückstandsmineralgemisch primär vorhandene Phase Smithsonit/$ZnCO_3$[106] mit einem Anfangsvorrat von 0,005 mol im Batch-Reaktor bzw. in den BHV-Zellen des 1D-Transportmodells

- die potentiellen sekundären Zinkphasen, die sich bei Sättigung neu-bilden und bei danach sich potentiell einstellender Untersättigung auch wieder auflösen

- Bianchit/$ZnSO_4$:$6H_2O$, Goslarit/$ZnSO_4$:$7H_2O$, Zincosit/$ZnSO_4$, $Zn(OH)_2$-a, $Zn(OH)_2$-b, $Zn(OH)_2$-c, $Zn(OH)_2$-e, $Zn(OH)_2$-g, $Zn_2(OH)_2SO_4$, $Zn_2(OH)_3Cl$, $Zn_3O(SO_4)_2$, $Zn_4(OH)_6SO_4$, $Zn_5(OH)_8Cl_2$, $ZnCl_2$, $ZnCO_3$:H_2O, ZnMetal, ZnO(a), $ZnS_{(a)}$, $ZnSO_4$:H_2O, Sphalerit/ZnS[107].

Der Aufbau des (null-dimensionalen) Batch-Modells ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' für die Berechnung der Stofffreisetzung bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen im Rückstandsmineralphasengemisch beim tausendfach wiederholten Porenwasseraustausch (‚RAG-Wasser') ist in der Tabelle 9 dargestellt.

---

[106] Es wird aufgrund fehlender Untersuchungsergebnisse angenommen, dass Zink in dieser Bindungsform als Karbonat primär im Rückstandsmineralgemisch vorliegt.

[107] Alle diese Phasen sind mit ihren chemisch-thermodynamischen Daten in Datensatz wate4f.dat beschrieben; die dort ebenfalls aufgeführten Phasen Willemite/Zn_2SiO_4, $ZnSiO_3$, Wurtzite/ZnS und Zincite(c)/ZnO wurden nicht als potentielle sekundäre Phasen berücksichtigt.

Tab. 9: Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen, primärer Phasen verstürzter Nebengesteine und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses

```
TITLE Batch_Verst_Zn_Pb-ZunehmendesWzuF

PRINT
-reset false

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation:-4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation:-104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation:0 kcal/mol


SELECTED_OUTPUT
-file Batch_Verst_Zn_Pb-ZunehmendesWzuF.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite Dolomite
Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydrocerrusite Hydromagnesite
Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite
Magnesite Melanterite Mirabilite Nahcolite Natron Nesquehonite Phillipsite
Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenardite Thermonatrite
Trona Witherite
Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
Smithsonite Bianchite Sphalerite Zincite(c) Zincosite Zn(OH)2-a Zn(OH)2-b Zn(OH)2-c
Zn(OH)2-e Zn(OH)2-g
Zn2(OH)2SO4    Zn2(OH)3Cl Zn3O(SO4)2  Zn4(OH)6SO4 Zn5(OH)8Cl2  ZnCl2 ZnCO3:H2O ZnMetal
ZnO(a) ZnS(a) ZnSiO3 ZnSO4:H2O Goslarite
-totals Pb Si Na Cl K Ca S(6) S(-2) Mg C(4) Zn
-water
```

```
SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

SOLUTION 1 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1 # Primär in den BHV vor dem Zutritt des Tiefengrundwassers vorhan-
den
Quartz                0.0 10.0 dissolve_only
Halite                0.0  0.125
Sylvite         0.0   0.125
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0   0.125
Ettringite            0.0  0.125
Portlandite     0.0   0.125
Glauberite      0.0   0.05
Anhydrite       0.0   0.05
Calcite         0.0   0.05
Cerrusite       0.0   0.005
Smithsonite     0.0   0.005
Kaolinite       0.0   1.0  # Zusätzlich primär im verstürzten Gebirge vorhanden
Siderite        0.0   0.010 #0.1
Pyrite          0.0   0.001 #0.01
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0   0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0   0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0   0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0   0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0   0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0   0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite       0.0   0.0  # PbSO4
#Annite         0.0   0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0   0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0   0.0  # CaCO3
Artinite        0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite          0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite    0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite     0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite       0.0   0.0  # AlOOH
Brucite         0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite       0.0   0.0  # SrSO4
#CH4(g)         0.0   0.0  # CH4
Chalcedony      0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A    0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A     0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
```

```
#Chrysotile      0.0   0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)          0.0   0.0  # CO2
Cotunnite        0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite     0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0   0.0# Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0   0.0  # FeS
#Forsterite      0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena           0.0   0.0  # PbS
Gibbsite         0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite        0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0   0.0  # H2
#H2O(g)          0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0   0.0  # H2S
#Hematite        0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite      0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge         0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0   0.0  # FeS
Magadiite        0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0   0.0  # PbO
Melanterite      0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0   0.0  # NaHCO3
Natron           0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2          0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl       0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2        0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3            0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3          0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4          0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3         0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4         0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4      0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4         0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal          0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O       0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3           0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite      0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite      0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite       0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite      0.0   0.0  # 46.82   PbO2
#Prehnite        0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
```

```
#Pyrophyllite     0.0   0.0   # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0   # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0   # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0   # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0   # SiO2
Strontianite      0.0   0.0   # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0   # S
#Talc             0.0   0.0   # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0   # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0   # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0   # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0   # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0   # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0   # BaCO3
Bianchite         0.0   0.0   # ZnSO4:6H2O
Goslarite         0.0   0.0   # ZnSO4:7H2O
Sphalerite        0.0   0.0   # ZnS
#Zincite(c)       0.0   0.0   # ZnO
Zincosite         0.0   0.0   # ZnSO4
Zn(OH)2-a         0.0   0.0
Zn(OH)2-b         0.0   0.0
Zn(OH)2-c         0.0   0.0
Zn(OH)2-e         0.0   0.0
Zn(OH)2-g         0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4       0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl        0.0   0.0
Zn3O(SO4)2        0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4       0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2       0.0   0.0
ZnCl2             0.0   0.0
ZnCO3:H2O         0.0   0.0
ZnMetal           0.0   0.0
ZnO(a)            0.0   0.0
ZnS(a)            0.0   0.0
#ZnSiO3           0.0   0.0
ZnSO4:H2O         0.0   0.0
#Willemite        0.0   0.0   # Zn2SiO4
#Wurtzite         0.0   0.0   # ZnS

ADVECTION
-cells  1
-shifts 1000
END
```

Die Modellierungsergebnisse zur Entwicklung der Zink- und Blei-Mobilität im Modell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' sind in den Abbildungen 32 und 33 dargestellt.

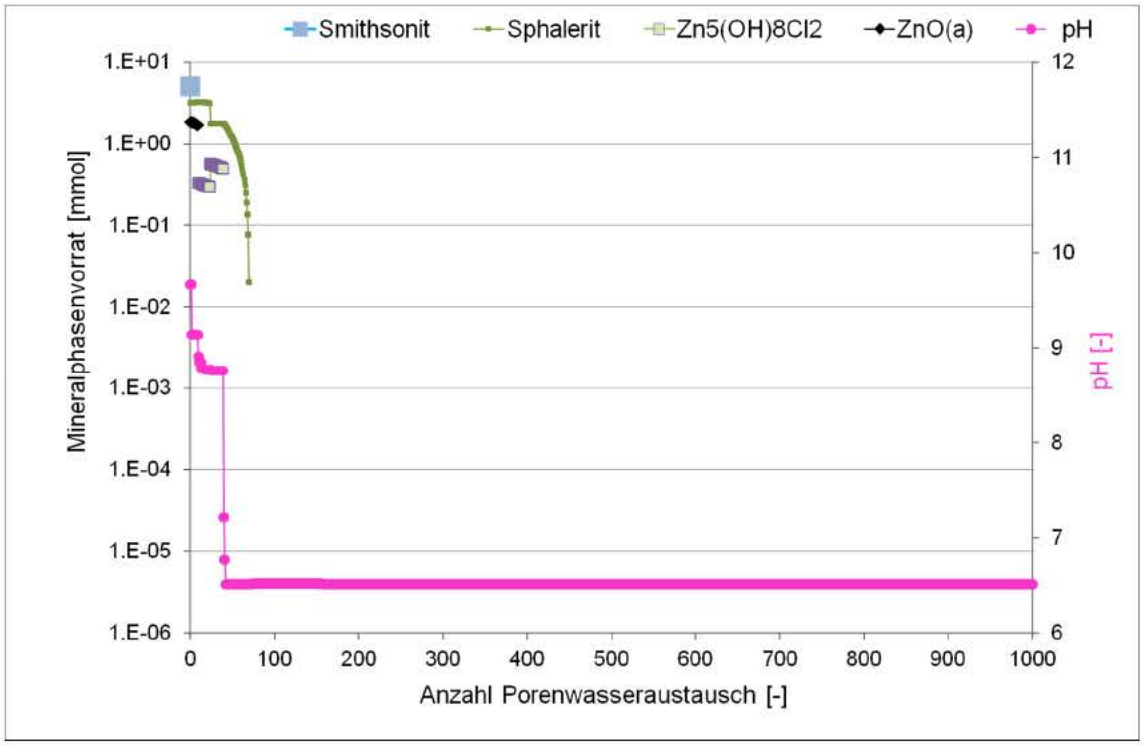


Abb. 32: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) vorhandenen Mengen an Zinkphasen (nähere Erläuterungen in der Tabelle 9) sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Mineralphasenvorräte sind kleiner als 10^{-06} mmol.

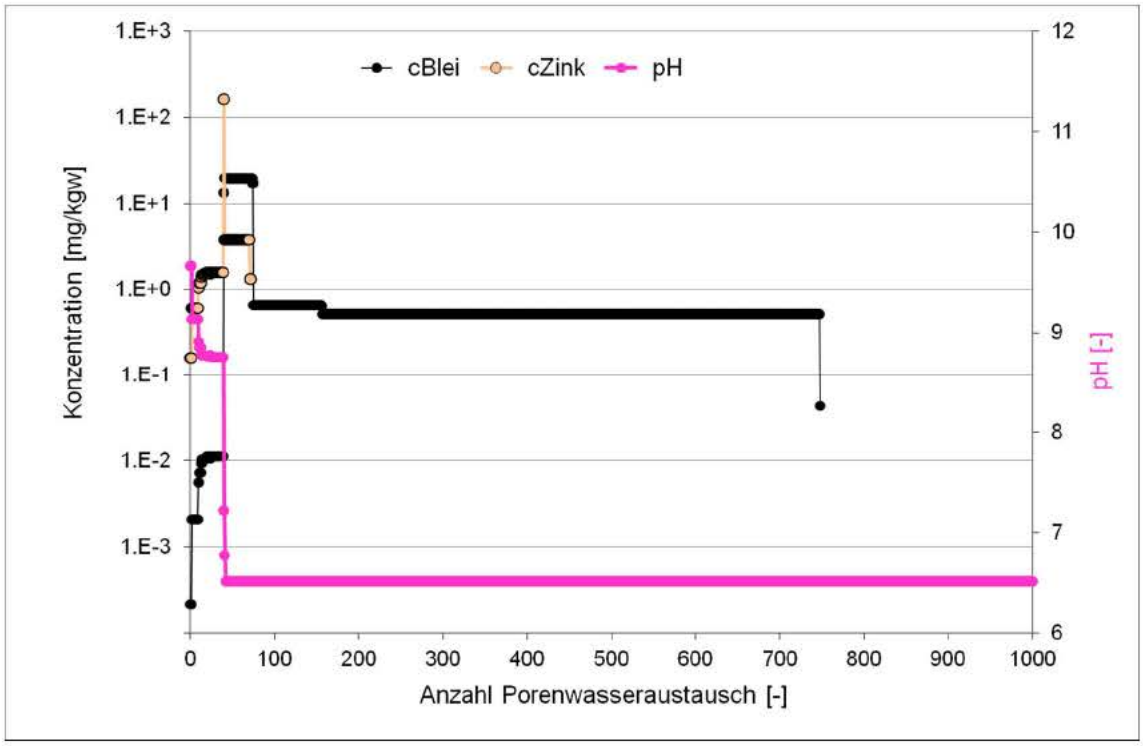


Abb. 33: Ergebnisse der Berechnungen mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen eines rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in einem Tiefengrundwasser semi-generischer Zusammensetzung unter Berücksichtigung der primären Schwermetallphasen Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$, potentieller sekundärer Phasen und eines in der Zeit zunehmenden Wasser/Feststoff-Verhältnisses
Dargestellt sind die zum jeweiligen Schritt (Anzahl Porenwasseraustausch) im Porenwasser vorhandenen Zink- und Bleikonzentrationen sowie der zugehörige pH-Wert in Abhängigkeit davon, wie oft das Porenvolumen durch zutretendes Tiefengrundwasser ausgetauscht wurde. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 10^{-04} mg/kgw.

Im Batch-Reaktor des Modells ‚Batch_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' wandelt sich unter den sich bei der Füllung des Porenraumes mit Tiefengrundwasser einstellenden hydrogeochemischen Verhältnissen (pH, E_H, Ionenstärke, Konzentrationen/Aktivitäten aller gelösten Stoffe) Smithsonit/$ZnCO_3$ in die sich (sukzessiv) neu-bildenden Zink-Phasen $ZnO_{(a)}$, $Zn_5(OH)_8Cl_2$ und Sphalerit/ZnS um. Bei sich einstellenden pH-Werten oberhalb von 8,8 (bis zum 39. Porenwasseraustausch) bleiben die Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern unterhalb von ca. 2 mg/kgw. Erst wenn mit dem 40. Zeitschritt der pH-Wert auf ca. 7,2 erniedrigt wird, $ZnO_{(a)}$ sowie $Zn_5(OH)_8Cl_2$ sich wieder vollständig aufgelöst haben und Sphalerit/ZnS sich teilweise auflöst, werden Spitzenkonzentrationen von Zink (wenige Hundert mg/l) und von Blei (wenige Zehner mg/l) in die Porenwässer freigesetzt. Nach dem 71. Zeitschritt bzw. Porenwasseraustausch ist die Zink-Freisetzung beendet; die Zink-Konzentrationen sind von wenigen Hundert mg/l über wenige Milligramm/l auf Werte unterhalb von einem Mikrogramm pro Liter erniedrigt.

Dagegen halten sich die Bleikonzentrationen auf einem Niveau zwischen 0,5 und 1,0 mg/l über eine längere Spanne des Porenwasseraustauschs (bis zum 747. Austausch).

Aus chemisch-thermodynamischer Sicht und in quantitativer Darstellung sind diese Reaktionen von Blei-haltigen Phasen (siehe auch Abbildungen 11 und 12) und Zink-haltigen Phasen Teil der in den ‚Basisgutachten' so genannten „vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (der mineralischen Zink- und Blei-haltigen Bestandteile der Rückstände beim Kontakt mit wässrigen Lösungen), welche die kleinmaßstäblichen Kurzzeit-Laborversuche zur Stofffreisetzung „nicht widerspiegeln können".

Auf der Grundlage dieses Prozessverständnisses kann auf der folgenden Stufe der hydrogeochemischen Modellierungen berechnet werden, wie sich solche Prozesse und ihre Auswirkungen auf

- das Porenwasser in den Rückstandskörpern einschließlich der Blei- und Zinkkonzentrationen

- die mineralisch-chemische Zusammensetzung des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs aus primären Phasen und den daraus sich bildenden und wieder auflösenden sekundären Mineralphasen einschließlich der Blei- und Zinkphasen

- die mineralisch-chemische Zusammensetzung der Nebengesteine der BHV-Bereiche im Hangenden und Liegenden (einschließlich der Blei- und Zinkphasen) und auf

- das Tiefengrundwasser im unmittelbaren ‚Nahfeld' der versetzten Rückstände, das von den Stoffausträgen aus den BHV-Bereichen beeinflusst wird (einschließlich durch Blei- und Zinkfreisetzung)

in räumlicher und zeitlicher Erstreckung/Dimension entwickeln werden.

Ein 1.000-maliger Austausch des Porenwassers, wie er mit dem Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' berechnet wurde, bildet eine langfristige Entwicklung der hydrogeochemischen Verhältnisse ab. Das Batchmodell ‚Batch_Verst_Zn_Pb_ZunehmendesWzuF' zur Berechnung der ‚Löslichkeit' der Feststoffphasen (einschließlich der Blei- und Zinkphasen) ist allerdings nicht dazu konzipiert, eine solche Entwicklung mit ihren konkreten zeitlichen und auch räumlichen Dimensionen zu berechnen. Dazu muss das ‚Null-dimensionale' Batch-Modell zu einem reaktiven Stofftransportmodell weiterentwickelt werden, das mit räumlichen und zeitlichen Dimensionen ausgestattet ist und advektiv-diffusive Stoffmassenströme berechnet. Obwohl die an die Netto-Auflösung der Mineralphasenmengen gebundenen Veränderungen der Durchlässigkeit des rückstandsähnlichen Mineralphasengemischs nicht einzuschätzen sind, wird ein ein-dimensionales Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandskörpers und der Nebengesteine entwickelt.

Der Aufbau des ein-dimensionalen PHREEQC-Modells für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden und Liegenden des BHV-Bereichs (‚1D_AdvektionDiffusion_Zn') ist in der Tabelle 10 dargestellt.

Tab. 10: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons (‚1D_AdvektionDiffusion_Zn ').

```
TITLE 1D_AdvektionDiffusion_Zn

PRINT
-reset false # es wird keine umfangreich Ausgabedateii erzeugt

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H        -382.451        kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation: -4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H        0               # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H        17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation: -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H        0               # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

LiBr
        LiBr = Li+ + Br-
        log_k           1.582
        delta_h 0.918 kcal



SELECTED_OUTPUT
-file 1D_AdvektionDiffusionZn.xls
-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite
Dolomite Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydromagnesite
Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite
Melanterite  Mirabilite  Nahcolite  Natron  Nesquehonite  Phillipsite  Pyrite  Siderite
Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenardite Thermonatrite Trona Witherite
Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
Smithsonite  Bianchite  Goslarite  Sphalerite  Zincite(c)  Zincosite  Zn(OH)2-a  Zn(OH)2-b
Zn(OH)2-c Zn(OH)2-e Zn(OH)2-g Zn2(OH)2SO4   Zn2(OH)3Cl    Zn3O(SO4)2         Zn4(OH)6SO4
Zn5(OH)8Cl2  ZnCl2 ZnCO3:H2O ZnMetal ZnO(a) ZnS(a) ZnSiO3 ZnSO4:H2O
-totals Li Al Ba C(4) Ca Cl Fe K Mg Na S(6) S(-2) Si Sr Pb Zn
-water

SOLUTION 0 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
```

```
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

SOLUTION 1-101 # Semi-generisches Tiefengrundwasser / RAG-Wasser DMT-Bericht/Tabelle 5.1
-pH     6.659
-pe     -3.374
-temp   40.0
-units  mol/kgw
Al                  1.751e-08
Ba                  2.293e-03
C                   1.606e-03
Ca                  5.707e-02
Cl                  2.523e+00
Fe                  1.526e-04
K                   1.147e-02
Mg                  4.816e-02
Na                  2.293e+00
S                   2.463e-08
Si                  7.783e-05
Sr                  2.293e-03

EQUILIBRIUM_PHASES 1-45       # Nahfeld im Hangenden
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Calcite         0.0 0.1
Siderite        0.0 0.01
Kaolinite       0.0 1.0
Pyrite          0.0 0.001
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite       0.0  0.0  # PbSO4
#Annite         0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0  0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0  0.0  # CaCO3
Artinite        0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite          0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite    0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite     0.0  0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite       0.0  0.0  # AlOOH
Brucite         0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite       0.0  0.0  # SrSO4
Cerrusite       0.0  0.0  # PbCO3
#CH4(g)         0.0  0.0  # CH4
Chalcedony      0.0  0.0  # SiO2
#Chlorite14A    0.0  0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A     0.0  0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile     0.0  0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite 0.0  0.0  # MgSiO3
#CO2(g)         0.0  0.0  # CO2
Cotunnite       0.0  0.0  # PbCl2
Cristobalite    0.0  0.0  # SiO2
#Diaspore       0.0  0.0  # AlOOH
#Diopside       0.0  0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite        0.0  0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite        0.0  0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)      0.0  0.0  # Fe(OH)3
```

```
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0   0.0  # Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0   0.0  # FeS
#Forsterite      0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena           0.0   0.0  # PbS
Gibbsite         0.0   0.0  # Al(OH)3
Goslarite        0.0   0.0  # ZnSO4:7H2O
#Goethite        0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0   0.0  # H2
#H2O(g)          0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0   0.0  # H2S
#Hematite        0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite      0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge         0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0   0.0  # FeS
Magadiite        0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0   0.0  # PbO
Melanterite      0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0   0.0  # NaHCO3
Natron           0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2          0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl       0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2        0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3            0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3          0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4          0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3         0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4         0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4      0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4         0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal          0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O       0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3           0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite      0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite      0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite       0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite      0.0   0.0  # PbO2
#Prehnite        0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite    0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite       0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)    0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)  0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel        0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)          0.0   0.0  # SiO2
Strontianite     0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur           0.0   0.0  # S
#Talc            0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
```

```
Thenardite        0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0  # BaCO3
Halite            0.0   0.0
Sylvite           0.0   0.0
Ca2Cl2(OH)2:H2O   0.0   0.0
Ettringite       0.0   0.0
Portlandite       0.0   0.0
Glauberite        0.0   0.0
Anhydrite         0.0   0.0
Bianchite         0.0   0.0  # ZnSO4:6H2O
Sphalerite        0.0   0.0  # ZnS
#Zincite(c)       0.0   0.0  # ZnO
Zincosite         0.0   0.0  # ZnSO4
Zn(OH)2-a         0.0   0.0
Zn(OH)2-b         0.0   0.0
Zn(OH)2-c         0.0   0.0
Zn(OH)2-e         0.0   0.0
Zn(OH)2-g         0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4       0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl        0.0   0.0
Zn3O(SO4)2        0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4       0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2       0.0   0.0
ZnCl2             0.0   0.0
ZnCO3:H2O         0.0   0.0
ZnMetal           0.0   0.0
ZnO(a)            0.0   0.0
ZnS(a)            0.0   0.0
#ZnSiO3           0.0   0.0
ZnSO4:H2O         0.0   0.0
#Willemite        0.0   0.0  # Zn2SiO4
#Wurtzite         0.0   0.0  # ZnS
Smithsonite       0.0   0.0  # ZnCO3

EQUILIBRIUM_PHASES 46-55      # Rückstände & verstürztes Gebirge in der BHV
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Halite          0.0  0.125
Sylvite         0.0  0.125
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0  0.125
Ettringite      0.0  0.125
Portlandite     0.0  0.125
Glauberite      0.0  0.05
Anhydrite       0.0  0.05
Calcite         0.0  0.05
Cerrusite       0.0  0.005
Smithsonite     0.0  0.005
Kaolinite       0.0  1.0  # Zusätzlich primär im verstürzten Gebirge vorhanden
Siderite        0.0  0.010
Pyrite          0.0  0.001
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite       0.0  0.0  # PbSO4
#Annite         0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0  0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0  0.0  # CaCO3
Artinite        0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite          0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite    0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite     0.0  0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite       0.0  0.0  # AlOOH
Brucite         0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite       0.0  0.0  # SrSO4
#CH4(g)         0.0  0.0  # CH4
Chalcedony      0.0  0.0  # SiO2
```

```
#Chlorite14A     0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0   0.0  #  Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0   0.0  #  Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)          0.0   0.0  # CO2
Cotunnite        0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite     0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0   0.0# Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0   0.0  # FeS
#Forsterite      0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena           0.0   0.0  # PbS
Gibbsite         0.0   0.0  # Al(OH)3
Goslarite        0.0   0.0  # ZnSO4:7H2O
#Goethite        0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0   0.0  # H2
#H2O(g)          0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0   0.0  # H2S
#Hematite        0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite      0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0   0.0  # Ca2Al14Si8O24:7H2O
Litharge         0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0   0.0  # FeS
Magadiite        0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0   0.0  # PbO
Melanterite      0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen   0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche   0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0   0.0  # NaHCO3
Natron           0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2          0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl       0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2        0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3            0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3          0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4          0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3         0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4         0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4      0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4         0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal          0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O       0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3           0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite      0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite      0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
```

```
Phosgenite        0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite       0.0   0.0  # PbO2
#Prehnite         0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite     0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0  # SiO2
Strontianite      0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0  # S
#Talc             0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0  # BaCO3
Bianchite         0.0   0.0  # ZnSO4:6H2O
Sphalerite        0.0   0.0  # ZnS
#Zincite(c)       0.0   0.0  # ZnO
Zincosite         0.0   0.0  # ZnSO4
Zn(OH)2-a         0.0   0.0
Zn(OH)2-b         0.0   0.0
Zn(OH)2-c         0.0   0.0
Zn(OH)2-e         0.0   0.0
Zn(OH)2-g         0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4       0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl        0.0   0.0
Zn3O(SO4)2        0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4       0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2       0.0   0.0
ZnCl2             0.0   0.0
ZnCO3:H2O         0.0   0.0
ZnMetal           0.0   0.0
ZnO(a)            0.0   0.0
ZnS(a)            0.0   0.0
#ZnSiO3           0.0   0.0
ZnSO4:H2O         0.0   0.0
#Willemite        0.0   0.0  # Zn2SiO4
#Wurtzite         0.0   0.0  # ZnS


EQUILIBRIUM_PHASES 56-100      # Nahfeld im Liegenden
Quartz          0.0 10.0 dissolve_only
Calcite         0.0 0.1
Siderite        0.0 0.01
Kaolinite       0.0 1.0
Pyrite          0.0 0.001
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia        0.0   0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)       0.0   0.0  # Al(OH)3
#Albite          0.0   0.0  # NaAlSi3O8
AlumK            0.0   0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite          0.0   0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime         0.0   0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite        0.0   0.0  # PbSO4
#Annite          0.0   0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite       0.0   0.0  #  CaAl2Si2O8
Aragonite        0.0   0.0  # CaCO3
Artinite         0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite           0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite     0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite      0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite        0.0   0.0  # AlOOH
Brucite          0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite        0.0   0.0  # SrSO4
Cerrusite        0.0   0.0  # PbCO3
#CH4(g)          0.0   0.0  # CH4
Chalcedony       0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A     0.0   0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0   0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0   0.0  # Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0   0.0  # MgSiO3
```

```
#CO2(g)          0.0   0.0  # CO2
Cotunnite        0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite     0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe(OH)2.7Cl.3   0.0   0.0# Fe(OH)2.7Cl.3
#Fe3(OH)8        0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0   0.0  # FeS
#Forsterite      0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena           0.0   0.0  # PbS
Gibbsite         0.0   0.0  # Al(OH)3
Goslarite        0.0   0.0  # ZnSO4:7H2O
#Goethite        0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0   0.0  # H2
#H2O(g)          0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0   0.0  # H2S
#Hematite        0.0   0.0  # Fe2O3
#Halloysite      0.0   0.0  # Al2Si2O3(OH)4
Huntite          0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge         0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0   0.0  # FeS
Magadiite        0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0   0.0  # PbO
Melanterite      0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite          0.0   0.0  # NaHCO3
Natron             0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite       0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)             0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2            0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl         0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2          0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3              0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3            0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4            0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3           0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4           0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4        0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4           0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal            0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O         0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3             0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite        0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite        0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite         0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite        0.0   0.0  # PbO2
#Prehnite          0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite      0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
```

```
#Sepiolite        0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0  # SiO2
Strontianite      0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0  # S
#Talc            0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0  # BaCO3
Halite            0.0   0.0
Sylvite           0.0   0.0
Ca2Cl2(OH)2:H2O   0.0   0.0
Ettringite        0.0   0.0
Portlandite       0.0   0.0
Glauberite        0.0   0.0
Anhydrite         0.0   0.0
Bianchite         0.0   0.0  # ZnSO4:6H2O
Sphalerite        0.0   0.0  # ZnS
#Zincite(c)       0.0   0.0  # ZnO
Zincosite         0.0   0.0  # ZnSO4
Zn(OH)2-a         0.0   0.0
Zn(OH)2-b         0.0   0.0
Zn(OH)2-c         0.0   0.0
Zn(OH)2-e         0.0   0.0
Zn(OH)2-g         0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4       0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl        0.0   0.0
Zn3O(SO4)2        0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4       0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2       0.0   0.0
ZnCl2             0.0   0.0
ZnCO3:H2O         0.0   0.0
ZnMetal           0.0   0.0
ZnO(a)            0.0   0.0
ZnS(a)            0.0   0.0
#ZnSiO3           0.0   0.0
ZnSO4:H2O         0.0   0.0
#Willemite        0.0   0.0  # Zn2SiO4
#Wurtzite         0.0   0.0  # ZnS
Smithsonite       0.0   0.0  # ZnCO3

TRANSPORT
-cells  100
-lengths 100*0.5 # Meter
-shifts 1000
-flow_direction backward
-time_step 3153.6e05 # 10 Jahre
-boundary_conditions flux flux
-diffusion_coefficient 1.0e-10
#-print_frequency
#-punch_frequency
END
```

Wie dieses 1D-Transportmodell zur Stofffreisetzung aus dem BHV-Bereich und zur Stoffausbreitung in dessen unmittelbarem ‚Nahfeld' aufgebaut ist, wird in Kapitel 5.7.1 ausführlicher beschrieben. Die räumlich-zeitliche Entwicklung der hydrogeochemischen Verhältnisse in der modellierten 1D-Gesteinsäule von 50 Metern Mächtigkeit mit dem 5 m mächtigen, eingeschalteten BHV-Bereich und dem von unten nach oben gerichteten Zutritt von Tiefengrundwaser lässt sich vereinfachend mit den folgenden Abbildungen 34 bis 43 beschreiben.

An dieser Stelle wird noch einmal daraufhin gewiesen, dass die Ergebnisse dieser Vorstudie hinsichtlich der zeitlichen Entwicklung solcher Prozesse der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags nicht auf die zu erwartenden Verhältnisse im BW ‚Haus Aden/Monopol' übertragen werden dürfen. Die hier vorgestellten Ergebnisse zur zeitlichen Entwicklung mit konkreten Zeitangaben in Jahren gelten lediglich für die willkürlich gewählte Abstandsgeschwindigkeit der Porenwasserdurchströmung; sie dienen lediglich dazu, die Modellierungsergebnisse anschaulicher darzustellen, als das mit einer Skala für die Anzahl der Porenwasseraustausche (PWA) möglich ist.

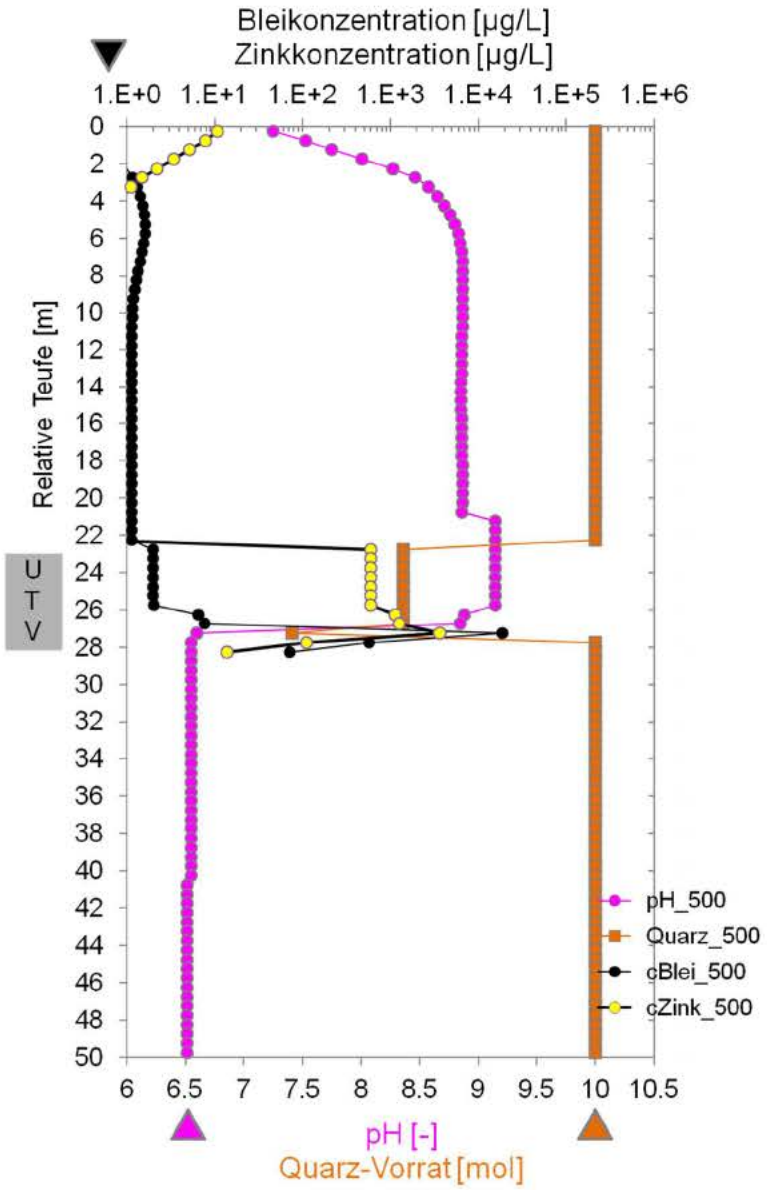


Abb. 34: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚500 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

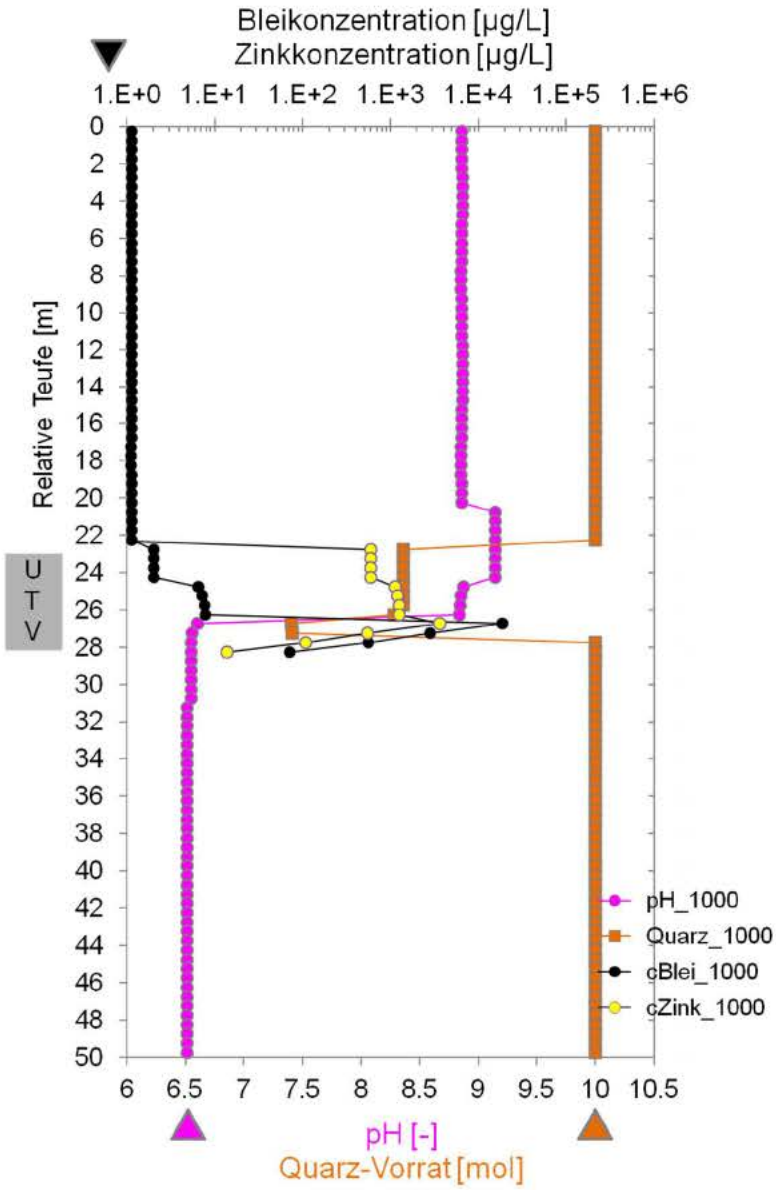


Abb. 35: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚1.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

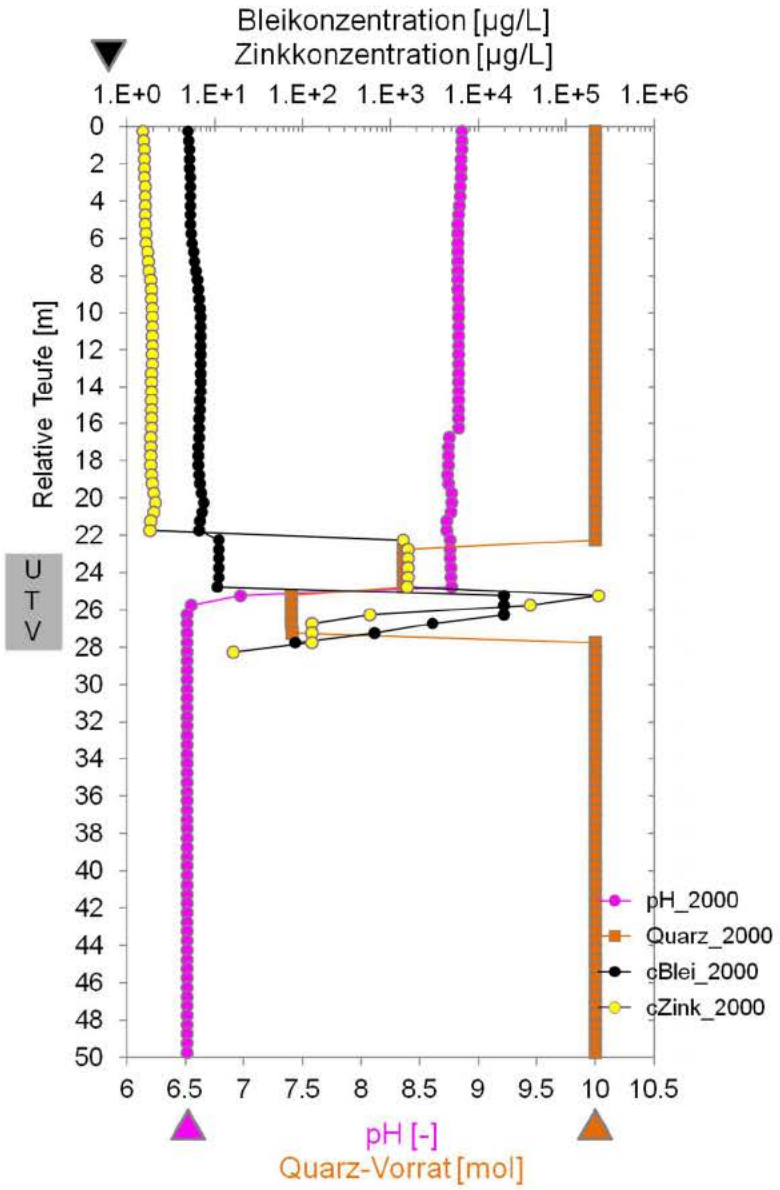


Abb. 36: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚2.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

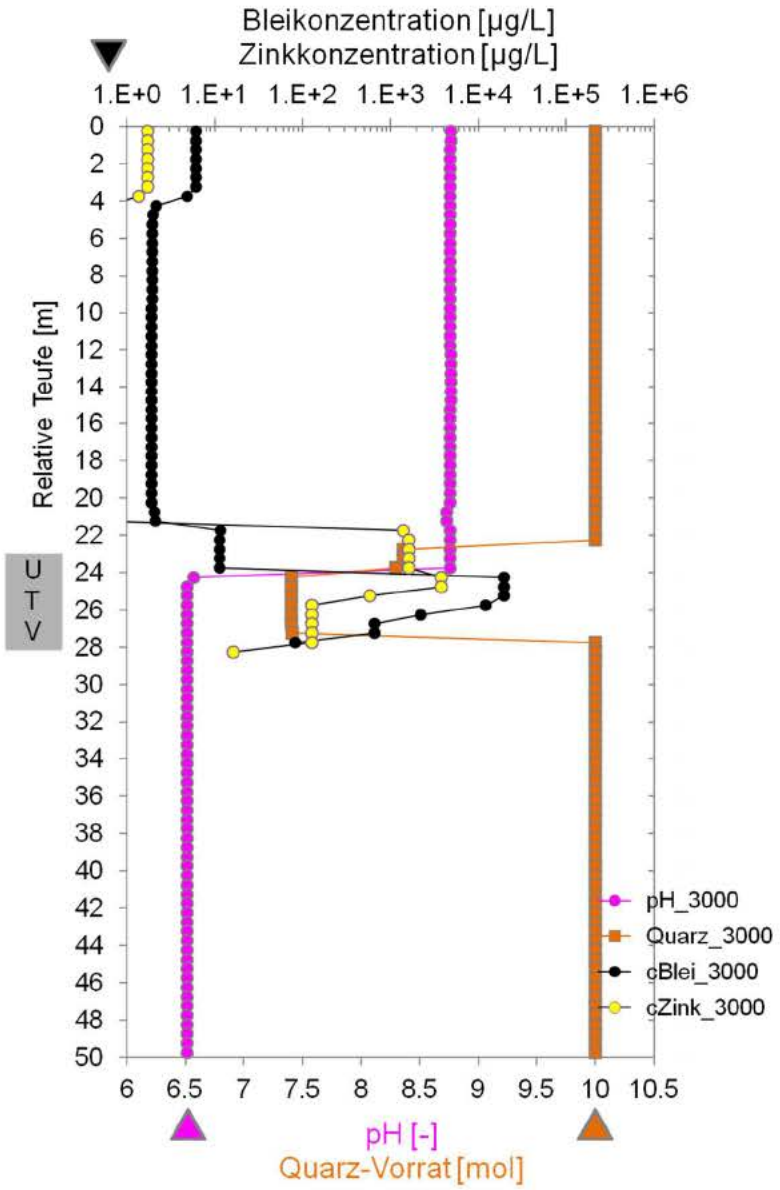


Abb. 37: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚3.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

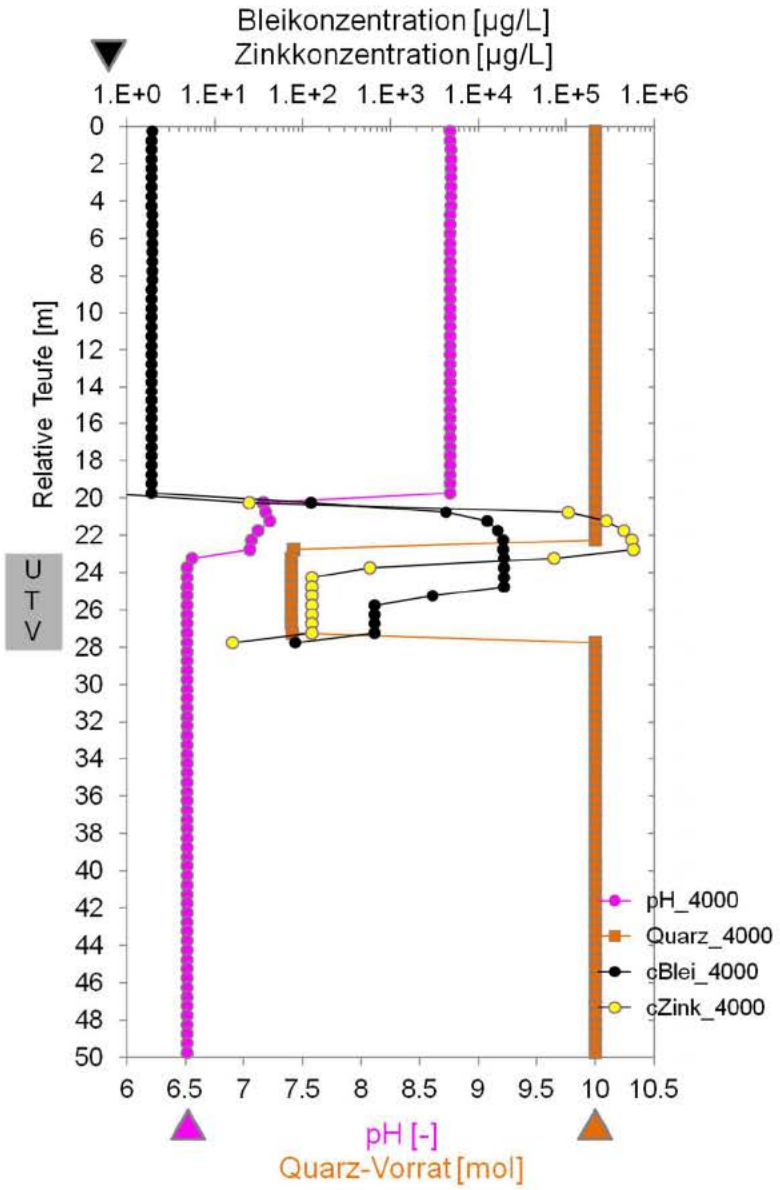


Abb. 38: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚4.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

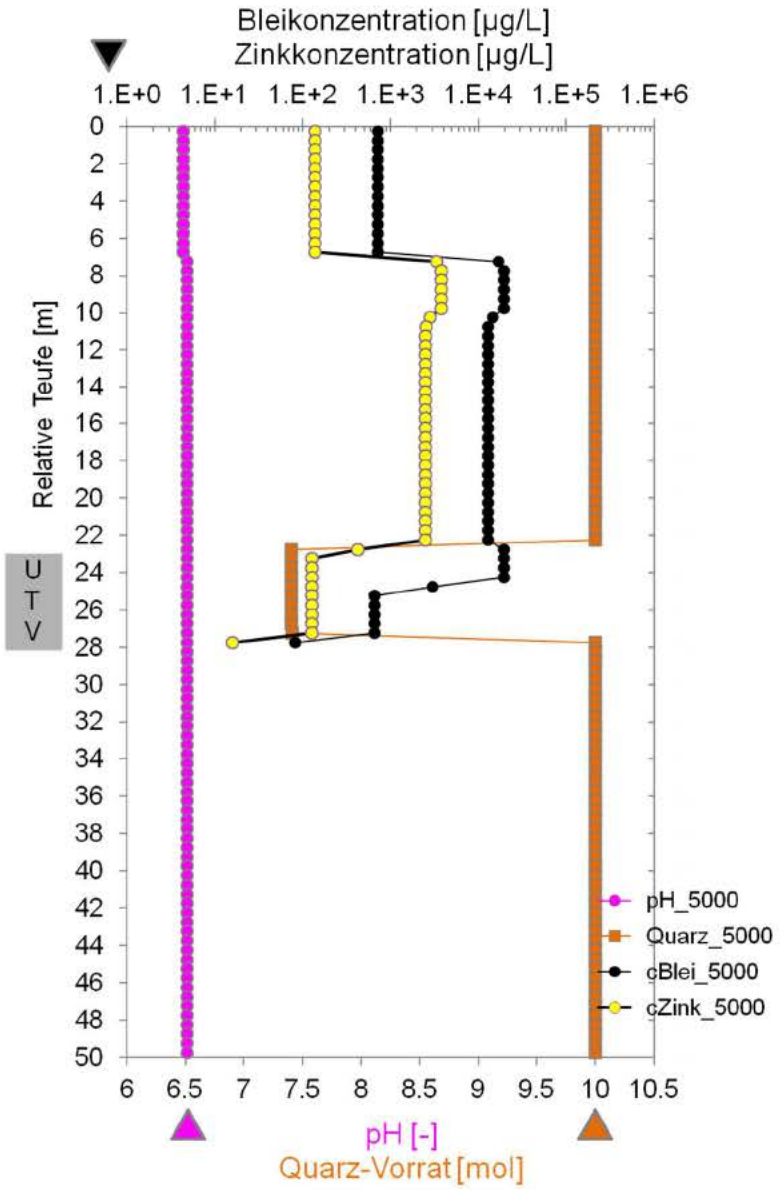


Abb. 39: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚5.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

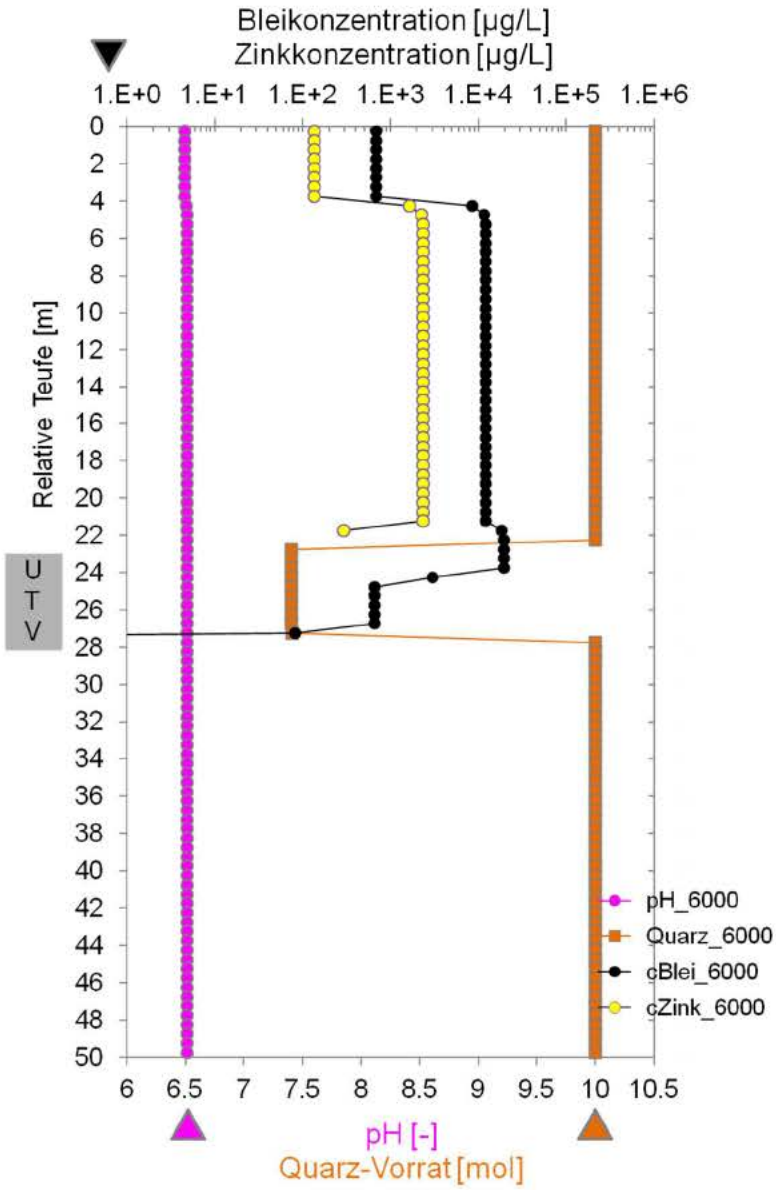


Abb. 40: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚6.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

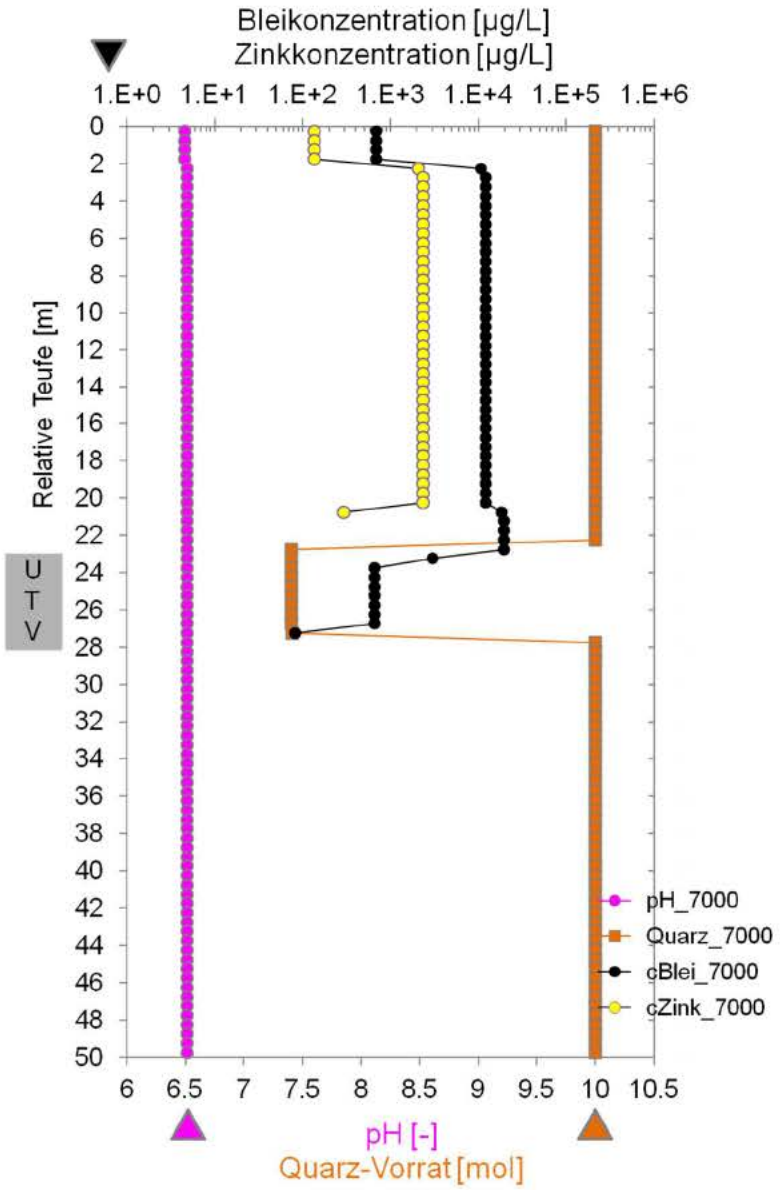


Abb. 41: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚7.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

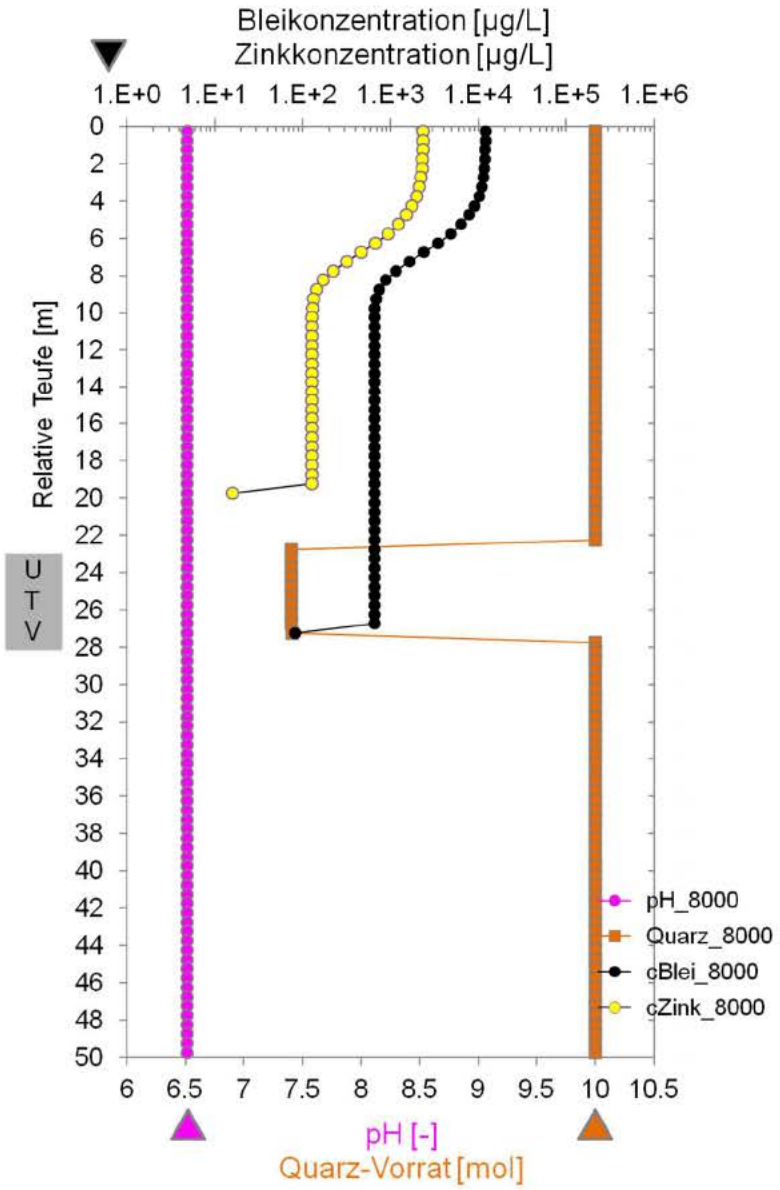


Abb. 42: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚8.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

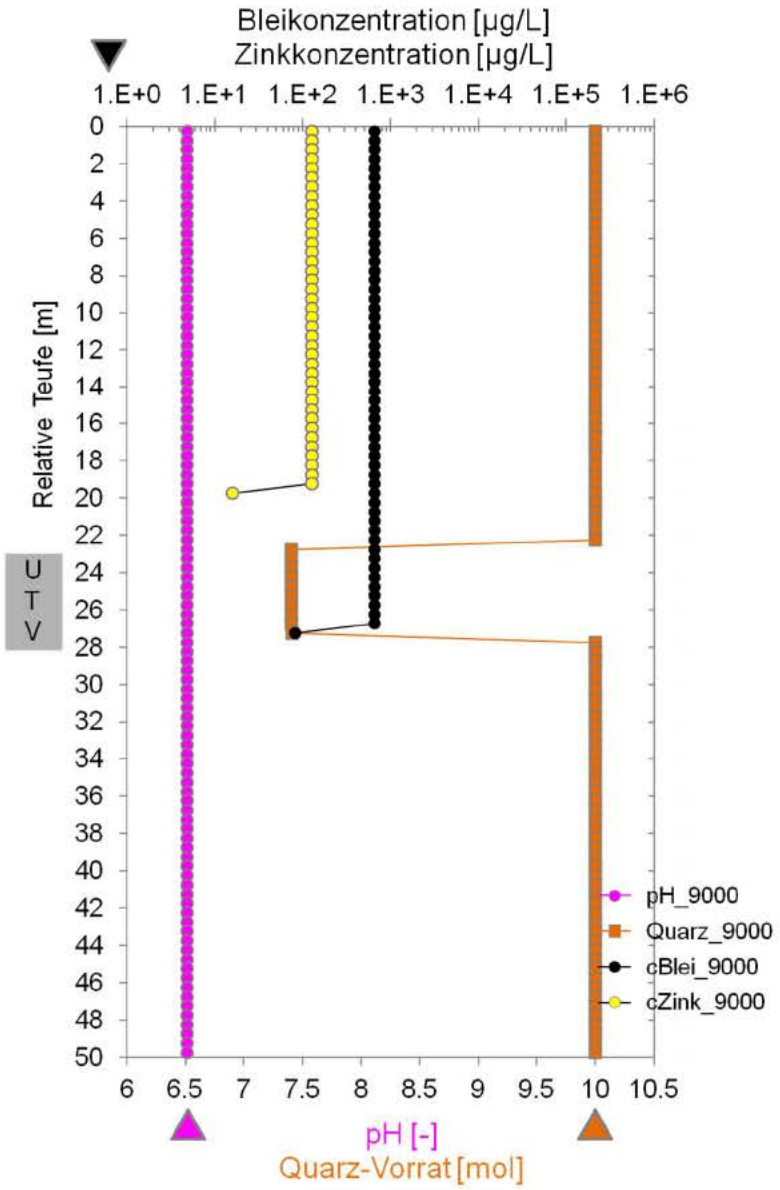


Abb. 43: Ergebnisse der Berechnungen mit dem ein-dimensionalen PHREEQC-Modell für den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen durch den Porenraum eines Rückstandkörpers innerhalb eines BHV-Bereichs und hinein in die damit in Kontakt stehenden Festgesteinsgrundwasserleiter des Karbons im Hangenden (und im Liegenden) des BHV-Bereichs; Modell ‚1D_AdvektionDiffusion_Zn'
Dargestellt ist die für den Zeitschritt **‚9.000 Jahre'** berechnete Verteilung der pH-Werte, der Bleikonzentrationen und der Zinkkonzentrationen in den Porenwässern der Zellen sowie der zugehörigen Vorräte an Quarz über die relative Teufe (von 50 bis 0 Meter) in den 100 Zellen. Nicht dargestellte Konzentrationen sind kleiner als 1,0 µg/l; die Pfeile markieren die Strömungsrichtung entlang der relativen Teufen-Achse von 50 Meter zu 0 Meter; die Dreieck-Symbole markieren die pH-Werte und die Konzentrationen im Ausgangstiefengrundwasser bzw. die Quarz-Vorräte in den Zellen vor dem Beginn des reaktiven Transports.

Insgesamt lassen die zuvor mit den Abbildungen 34 bis 43 dargestellten Modellierungsergebnisse[108] zur Freisetzung und zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Zink und Blei aus dem BHV-Bereich erkennen:

- Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen rückstandsbürtiger und sekundärer Zink- und Bleimineralphasen beim Kontakt und im chemisch-thermodynamischen Gleichgewicht mit Tiefengrundwässern/Porenwässern verursachen eine Freisetzung von Zink und Blei aus den rückstandsähnlichen Mineralgemischen in die Tiefengrundwässer/Porenwässer innerhalb des BHV-Bereichs. Gekoppelt an die Bewegung der Tiefengrundwässer/Porenwässer innerhalb des BHV-Bereichs und aus ihm heraus verursachen die Reaktionen eine Ausbreitung von Zink und Blei im unmittelbar abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs.

- Spitzen-Konzentrationen von Zink und Blei treten in relativ frühen Phasen der Stofffreisetzung auf und erreichen in einigen der Porenwässer innerhalb des BHV-Bereichs Konzentrationen von einigen Milligramm pro Liter bis zu wenigen Zehner mg/l. Das Auftreten solcher Spitzen-Konzentrationen ist an die Erniedrigung des pH-Wertes – von zuvor pH 9,1 – auf pH 6,6 gebunden, die sich dann einstellt, wenn die ‚OH^- -Ionen-Freisetzungskapazität' des rückstandsähnlichen Mineralgemischs durch den Zutritt von Tiefengrundwässern aufgebraucht ist.

- Die höchsten Konzentrationen von Zink in Porenwässern innerhalb des BHV-Bereichs liegen dabei mit bis zu wenigen Hundert mg/l um einen Faktor 10 höher als die höchsten Konzentrationen von Blei in den Porenwässern innerhalb des BHV-Bereichs (wenige Zehner mg/l).

- Die höchsten Konzentrationen von Zink in Tiefengrundwässern im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' des BHV-Bereichs liegen dabei mit bis zu einigen Hundert mg/l um Faktoren zwischen 20 und 30 höher als die höchsten Konzentrationen von Blei in diesen Tiefengrundwässern.

- In späteren Phasen der Stofffreisetzung, innerhalb derer solche Spitzen-Konzentrationen von Zink nicht mehr erreicht werden, liegen die auftretenden, immer noch hohen Zink-Konzentrationen (wenige mg/l) durchweg unterhalb der in denselben Teufenabschnitten auftretenden hohen Bleikonzentrationen (wenige Zehner mg/l).

- Insgesamt ist das Stofffreisetzungsverhalten und das daran gebundene Ausbreitungsverhalten von Zink – im Vergleich zum Blei – als ‚extremer ausgeprägt' zu beschreiben. Die Zink-Spitzenkonzentrationen sind zwar höher als die Blei-Spitzenkonzentrationen; dafür jedoch hält die Belastung der Porenwässer/Tiefengrundwässer mit Blei auf dem Niveau der Spitzenkonzentration länger in der Zeit an und dehnt sich über weitere Teufenabschnitte aus.

Allerdings muss – auch im Hinblick auf das hydrogeochemische Verhalten von Zink und Blei – deutlich gemacht werden, dass die mit diesem Bericht vorgestellten Modellierungsergebnisse zur Stofffreisetzung und Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' mit einem einfachen Modell erzeugt wurden, das i) nicht kalibriert ist, ii) nicht auf Plau-

[108] Vollständig sind die Modellierungsergebnisse im Anhang zu diesem Bericht auf Datenträger in Form einer EXCEL®-Tabelle dokumentiert.

sibilität geprüft ist, iii) dessen geohydraulischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter (Durchlässigkeit, Porosität, hydraulischer Gradient) beruht, iv) dessen hydrogeochemischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten der chemischen Beschaffenheit des Tiefengrundwassers beruht, v) dessen hydrogeochemischer Teil lediglich auf vereinfachenden Annahmen zu noch nicht vollständig bekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter des versetzten Rückstandes (u.a. mineralogische Zusammensetzung, Porosität, Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe) beruht, vi) und das deshalb lediglich semi-generischer Natur ist. Dessen ungeachtet sind diese Modellierungen in der Lage, die prinzipielle Entwicklung solcher Systeme mit ihrer Entwicklungsrichtung und den Größenordnungen der dabei auftretenden Stoffkonzentrationen im Wasser, der Mineralphasenvorräte sowie der räumlichen und zeitlichen Dimension solcher Entwicklungen zu beschreiben. Denn eine solche Entwicklung ist die unabwendbare Folge der chemisch-thermodynamischen Natur solcher Prozesse, die an die Bewegung von Wasser in porösen/geklüfteten Medien gekoppelt sind.

Alle hier gemachten Angaben zu modellierten zeitlichen Aspekten sind unter folgendem Gesichtspunkt zu bewerten.

i) Sie gelten für Abstandsgeschwindigkeiten der Tiefengrundwasser- bzw. Porenwasser-Bewegung v_a durch den BHV-Bereich in der Größenordnung von 0,05 m/a bzw. für spezifische Durchflüsse q von 2,5E-03 m/a (bei einer zeitlich konstanten Porosität von n = 0,05 in allen Zellen) bzw. für eine Darcy-Geschwindigkeit v_f von $8X10^{-11}$ m/s und für durchströmte Strecken von 5 Meter innerhalb des BHV-Bereichs. Da sich, ausgelöst durch die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen die Porosität und die Durchlässigkeit des BHV-Bereichs in der Zeit ändern wird, da die Bildung von H_2O bei diesen Reaktionen eine *in situ* ‚Wasser-Neubildung' erzwingt und damit eine intensivierte Verdrängung des Porenwassers antreibt, ist in solchen Systemen mit sich in der Zeit stark ändernden – wahrscheinlich zunehmenden Abstandsgeschwindigkeiten – zu rechen. Eine Vergrößerung der Abstandsgeschwindigkeit um den Faktor 10 würde – in der Größenordnung – eine Verkürzung der Entwicklungszeiträume für solche Prozesse um den Faktor 10 bedeuten, während entsprechend eine Verringerung der Abstandsgeschwindigkeit um den Faktor 10 – in der Größenordnung – eine Verlängerung der Entwicklungszeiträume für solche Prozesse um den Faktor 10 bedeuten würde. Sollte die Durchlässigkeit des BHV-Bereichs bzw. die Abstandsgeschwindigkeit des Porenwassers unter stationären, langfristigen Bedingungen nicht zunehmen und möglicherweise – entgegen den hier aufgestellten Vermutungen – gar abnehmen und Stofftransporte rein diffusiv erfolgen, dann werden einige Zehnermillionen Jahre der zeitliche Maßstab sein, der für die Stoffausträge relevant ist.

ii) Durchlässigkeit und Porosität des BHV-Bereichs, die in der Zeit durch die hydrogeochemischen Prozesse der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen verändert werden können, verteilen sich zudem räumlich inhomogen im BHV-Bereich – so die hier vertretene Einschätzung. Gebunden an die Porosität ist das Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe. Dieses Verhältnis bestimmt – zusammen mit der Abstandsgeschwindigkeit des den BHV-Bereich durchströmenden Porenwassers – die Länge des Zeitraums für solche hydrogeochemischen Entwicklungen und damit u.a. den Zeitpunkt und die Zeitspanne, in der die massive Freisetzung von Zink und Blei in die Porenwässer einsetzt und anhält. Eine derart komplexe räum-

lich-zeitliche Entwicklung der Porenwasserbeschaffenheit in einem realen System , BHV-Bereich' kann nicht mit dem Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' abgebildet werden.

- „Im Idealfall ist die Wasserdurchlässigkeit minimal, so daß der Reststoff potentiellen Sickerwässern" (oder dem ansteigenden Tiefengrundwasser) „einen maximalen Strömungswiderstand entgegensetzt und eine Stofflösung allenfalls in der Randzone des weitgehend wasserundurchlässigen Reststoffmonolithen" (verbrachter Rückstand) „stattfinden kann", so sehen es die ‚Basisgutachten'.

  In diesem Fall steht dem zu- bzw. umströmenden Tiefengrundwasser in einer randlichen Kontaktzone des massiven „Reststoffmonolithen" lediglich eine vergleichsweise geringe Masse an rückstandsbürtigen Mineralen als Reaktionspartner zur Verfügung. Unter solchen Bedingungen eines vergleichsweise großen Wasser/Feststoff-Verhältnisses würde die entsprechend kleine Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können, innerhalb kurzer Zeitspannen von relativ großen Volumenströmen an Tiefengrundwasser aufgebraucht werden. Bei pH-Werten unterhalb von ca. 8,8 (vgl. Kapitel 5.4 bis 5.6) in dieser Kontaktzone würden dann die dort vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Zink und Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb der Kontaktzone in hohen Konzentrationen freigesetzt – nach vergleichsweise kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts. Weil dabei nicht nur Zink- und Bleiphasen gelöst werden, entwickeln sich langfristig in dieser Kontaktzone mit kleiner werdenden Feststoffmengen größere Hohlraumvolumina und möglicherweise auch eine größere Durchlässigkeit. So entwickeln sich randliche, lösungs-induzierte Wasserwegsamkeiten. In diesem Fall könnte sich der Durchfluss an Tiefengrundwasser durch die sich in der Zeit erweiternde Kontaktzone vergrößern, der „Reststoffmonolith" von ‚Außen nach Innen' angelöst und freisetzbares Zink und Blei aus der Kontaktzone mobilisiert werden. Verbunden wäre eine solche Entwicklung mit einem vergleichsweise frühzeitigen Auftreten ‚auffälliger' Zink- und Bleikonzentrationen im unmittelbaren ‚Nahfeld'.

- Ist das Volumen des „Reststoffmonolithen" aus rückstandsbürtigen Mineralphasen und verstürzten Gesteinen dagegen intern in einzelne Kompartimente mit vergleichsweise geringen Durchlässigkeiten gegliedert, die durch wasserwegsame Bereiche mit dazu vergleichsweise höheren Durchlässigkeiten voneinander getrennt sind, setzt die Anlösung des rückstandsbürtigen Mineralphasengemischs und damit auch die Freisetzung von Blei und Zink von diesen Wasserwegsamkeiten ausgehend – und damit inhomogen verteilt – ein. Hier wirkt sich, wie zuvor für die randliche Kontaktzone des „Reststoffmonolithen" beschrieben, ein vergleichsweise großes Wasser/Feststoff-Verhältnis auf die Beschaffenheitsentwicklung der Tiefengrundwässer in dem BHV-Bereich aus. Auch hier entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen in vergleichsweise kurzen Zeitspannen von hohen pH-Wertniveaus (zwischen pH 11 und 9) zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden dann die in diesen Zonen mit höheren Wasserwegsamkeiten vorhandenen rückstandsbürtigen Vorräte an Blei und Zink in das Tiefengrundwasser/Porenwasser innerhalb dieser Wasserwegsamkeiten freigesetzt – schon nach relativ kurzen Zeiträumen des Tiefengrundwasserzutritts. Dieser Effekt der höheren Durchlässigkeit ist kombiniert mit dem sich gleichgerichtet auswirkenden Effekt, der aus einem vergleichsweise großen Wasser/Feststoff-Verhältnis in den wasserwegsamen Bereichen herrührt. Vergleichsweise kleine Kapazitäten der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen, den pH-Wert auf

hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können, werden innerhalb kurzer Zeitspannen von relativ großen Volumenströmen an Tiefengrundwasser aufgebraucht. Zeitgleich – aber mit geringerer Entwicklungsgeschwindigkeit – laufen diese hydrogeochemischen Prozesse auch in den BHV-Kompartimenten mit vergleichsweise geringen Durchlässigkeiten und niedrigen Wasser/Feststoffverhältnissen ab. Aus diesen Kompartimenten in das unmittelbar abstromige ‚Nahfeld' übertretende Porenwässer werden über entsprechend längere Zeitspannen pH-Werte oberhalb von 8,8 aufweisen und durch geringere Zink- und Bleikonzentrationen belastet sein. Eine massive Belastung mit freigesetztem Zink und Blei wird hier erst nach vergleichsweise großen Zeitspannen des Tiefengrundwasserzutritts auftreten.

- Ist eine Durchlässigkeit des BHV-Bereichs räumlich homogen verteilt und – im Vergleich zur Gesteinsdurchlässigkeit im ‚Nahfeld'– so groß, dass eher eine Durchströmung als eine Umströmung des BHV-Körpers auftritt, verdrängt das zutretende Tiefengrundwasser die Porenwässer – über die durchströmte Querschnittfläche aus dem gesamten Tiefengrundwasser-gefüllten BHV-Bereich; nicht nur aus einer randlichen Kontaktzone um den „Reststoffmonolithen" herum oder nicht nur aus den Bereichen mit großer Wasserwegsamkeit. Dabei stellen sich vergleichsweise kleine Wasser/Feststoff-Verhältnisse ein. Im Vergleich zu den beiden zuvor beschriebenen Szenarien steht hier dem zutretenden Tiefengrundwasser eine größere Kapazität der für die Reaktionen verfügbaren Rückstandsmassen gegenüber, den pH-Wert auf hohem Niveau (zwischen pH 11 und 9) halten zu können. Deshalb entwickeln sich die Stofffreisetzung und die Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen innerhalb vergleichsweise langer Zeitspannen von den relativ hohen pH-Wertniveaus zu pH-Werten unterhalb von ca. 8,8. Damit würden hier – homogen verteilt im gesamten BHV-Bereich und nach und nach mit der in Strömungsrichtung vordringenden Mobilisationsfront – die vorhandenen, rückstandsbürtigen Mengen an Zink und Blei in das Tiefengrundwasser/Porenwasser freigesetzt. Dies entwickelt sich allerdings über vergleichsweise lange Zeiträume des Tiefengrundwasserzutritts.

Das Modell ‚1D_AdvektionDiffusion' bildet das Szenario einer solchen homogen verteilten Durchlässigkeit ab.

- Die realen BHV-Bereiche werden sich, so die hier vertretene Einschätzung, so verhalten, als träten alle drei zuvor beschriebenen Szenarien der Verteilung von Durchlässigkeit, von Porosität und Wasser/Feststoffverhältnis sowie deren zeitliche Entwicklung zusammen und in irgendeiner Art räumlich verteilt innerhalb eines BHV-Bereichs auf. Innerhalb solcher Teilbereiche des BHV würden zwar die gleichen hydrogeochemischen Prozesse der Auflösung, Umwandlung, Ausfällung, pH-Pufferung und Stofffreisetzung ablaufen. Doch würden sich diese Prozesse und damit die Beschaffenheit der Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Werte, Zink- und Blei-Konzentrationen) in den unterschiedlichen Teilbereichen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten in unterschiedlichen Zeitspannen entwickeln. Die unterschiedlichen Durchlässigkeiten und die damit in Zusammenhang stehenden unterschiedlichen Wasser/Feststoff-Verhältnisse auf der Fließstrecke der Porenwässer/Tiefengrundwässer durch den BHV-Bereich beeinflussen die zeitliche Beschaffenheitsentwicklung im unmittelbaren abstromigen ‚Nahfeld' eines BHV-Bereichs. Das gilt auch für solche BHV-Körper, die hinsichtlich der Art ihrer mineralischen Zusammensetzung einheitlich aufgebaut sind. Aus diesem Grund ist zu erwarten, dass zu einem Zeitpunkt an verschiedenen Lokalitäten im unmittelbaren

abstromigen ‚Nahfeld' eines BHV-Bereichs durchaus drastisch unterschiedliche Beschaffenheiten der aus der BHV-Bereich austretenden Porenwässer/Tiefengrundwässer (u.a. pH-Wert, Zink- und Bleikonzentrationen) auftreten werden.

Diese Vorgänge, welche die Stofffreisetzung und Stoffausbreitung kontrollieren, können mit einem einfachen 1D-Modell nicht abgebildet werden. Hydrogeochemische, reaktive 3D-Stofftransportmodelle könnten dazu mit dem Programm PHAST (vom U.S. Geological Survey entwickelt)[109] entwickelt werden, das die Berechnung der hydrogeochemischen Prozesse (Programm PHREEQC) und die Berechnung der Porenwasserströmung (Programm HST3D; ebenfalls vom U.S. Geological Survey entwickelt) aneinander koppelt. Das wäre die Voraussetzung dafür, auch nur die Größenordnung der verbundenen Effekte von inhomogener Verteilung und zeitlicher Veränderung von Durchlässigkeit, Porosität und Wasser/Feststoffverhältnis einzuschätzen.

5.7.3 PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms'

Das im Rahmen der modellierenden Vorstudien (Kapitel 5.1 bis 5.7.2) erarbeitete hydrogeochemische Prozessverständnis zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen und zu der damit verbundenen Stofffreisetzung aus Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischen im Reaktionskontakt mit Tiefengrundwässern bildet die Grundlage für die in diesem Kapitel dokumentierten PHREEQC-Modellierungen.

Um die Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs bei dessen Durchströmung mit dem Tiefengrundwasser zu modellieren, das sich bei der Durchströmung zum Porenwasser im BHV-Bereich entwickelt, müssen für den BHV-Bereich die für die numerische 1D-Stofftransportmodellierung notwendigen Eigenschaften bzw. Parameter und deren Werte festgelegt werden. Zum einen sind dies geohydraulische Parameter (z.B. die Abstandsgeschwindigkeit des Porenwassers) und zum anderen hydrogeochemische Parameter (z.B. Art und Menge der im Versatz vorhandenen und in Reaktionskontakt mit dem Porenwasser kommenden Versatz-bürtigen Mineralphasen). Diese Parameter müssen mit ihren Werten den Zellen/Reaktoren des numerischen 1D-Stofftransportmodells zugeordnet werden; dabei kann eine real vorhandene, räumlich inhomogene Verteilung von Parameter-Werten (z.B. des Volumenanteils des Versatzes im BHV-Bereich) nicht berücksichtigt werden – ebenso wie eine zu erwartende zeitliche Änderung bestimmter Parameter (z.B. der Durchlässigkeit und der Porosität infolge der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen von Mineralphasen). Für einige Parameter liegen keine gemessenen Werte oder Beobachtungen vor (z.B. hinsichtlich der Menge der jeweiligen, primär (initial) im Versatz vorhandenen Reststoff-bürtigen Mineralphasen[110] und hinsichtlich der sich daraus bei den Umwandlungs- und Ausfäl-

[109] Parkhurst, D.L., Kipp, K.L., Charlton, S.R. 2010. PHAST Version 2—A program for simulating groundwater flow, solute transport, and multicomponent geochemical reactions: U.S. Geological Survey Techniques and Methods 6–A35, 235 p.

[110] Im Gegensatz zur chemischen Zusammensetzung des Reststoff-bürtigen Versatzmaterials ist deren mineralische Zusammensetzung lediglich qualitativ bis abschätzend halb-quantitativ mit den ‚Basisgutachten' untersucht worden. Keine verwertbare Aussagen liefern die ‚Basisgutachten' zu den Blei- und Zink-Mineralphasen.

lungsreaktionen sekundär neu-bildenden Mineralphasen). Für solche Parameter-Werte müssen Annahmen getroffen werden. Weitere Parameter-Werte sind von den angenommenen Parameter-Werten (z.B. von der Porosität) abhängig oder stehen damit im Zusammenhang, so wie die Abstandsgeschwindigkeit v_a des Porenwassers, der Durchlässigkeitsbeiwert k_f , und auch die Menge an primär vorhandenen Reststoff-bürtigen Mineralphasen in den Zellen/Reaktoren des numerischen 1D-Stofftransportmodells. Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1x10^{-8}$ m/s und $1x10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

Die prinzipielle Vorgehensweise beim Aufbau solcher 1D-PHREEQC-Modelle ist ausführlich in den vorlaufenden Kapiteln 5.7.1 und 5.7.2 beschrieben; ebenso sind die auf der Fließstrecke ablaufenden hydrogeochemischen Prozesse und ihre Auswirkungen auf das Porenwasser – vom Prinzip her – beschrieben und erläutert worden.

Zum Aufbau des 1D-Stofftransportmodells wird zunächst ein konzeptionelles Modell erarbeitet und dessen Parametrisierung dokumentiert. Danach wird auf die Begrenzung der Aussagesicherheit von genutzten Parameter-Werten und des Modellierungsansatzes selbst eingegangen sowie die Anforderungen an eine Kalibrierung und eine Plausibilitätsprüfung beschrieben.

In den Tabellen 11 bis 12 in diesem Abschnitt werden

- die geohydraulischen und die hydrogeochemischen Parameter sowie ihre zugehörigen Parameter-Werte für den zu modellierenden BHV-Bereich und

- der Aufbau des hydrogeochemischen 1D-Stofftransportmodells mit diesen geohydraulischen und hydrogeochemischen Parameter-Werten

zusammenfassend dokumentiert. Darin wird auch dargestellt, auf welche Aussagen des Modells sich die Parameter auswirken und wie sicher die angegebenen Parameter-Werte einzuschätzen sind.

Es folgt eine ausführliche Beschreibung des konzeptionellen Modells und des Modellaufbaus für die PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms'.

5.7.3.1 Das konzeptionelle Modell und der Modellaufbau

Modelliert wird die Stofffreisetzung innerhalb des BHV-Bereichs auf eindimensionalen Fließstrecken des den BHV-Bereich durchströmenden Porenwassers, die, wenn sie 10 Meter lang sind, vertikal (vom Hangenden zum Liegenden) über die Mächtigkeit des BHV-Bereichs ausgerichtet sind. Längere Fließstrecken von 100, 50 oder 25 Metern bilden eine Durchströmung des BHV-Bereichs ab, die auch horizontale Komponenten aufweist, die sich in Abhängigkeit vom 3D regionalen Strömungsfeld (Projektpartner delta h) ergeben können.

Für insgesamt 5000 Zeitschritte wird berechnet, wie sich die chemische Zusammensetzung des Porenwassers auf den Fließstrecken entwickelt, wenn der Stofftransport durch Advektion und Diffusion angetrieben wird. Die Dispersion beim Stofftransport bleibt unberücksichtigt, weil keine auch nur annähernd plausible und belegbare Annahme zur Dispersivität eines BHV-Bereichs gemacht werden kann.

Als ‚Quellterm' für die numerische Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nahfeld' und ‚Fernfeld' des BHV-Bereichs (Projekpartner delta h) wird diejenige chemische Zusammensetzung des Porenwassers angegeben und an den Projektpartner delta h übergeben, die zu den 5.000 einzelnen Zeitschritten am Ende der jeweiligen Fließstrecke des Porenwassers durch den BHV-Bereich auftreten.

Entlang dieser Fließstrecken im BHV-Bereich bewegt sich das aus dem ‚Nahfeld' in den BHV-Bereich übergetretene Tiefengrundwasser (Analyse Z2; Wedewardt; Detailbericht 3) auf Wegsamkeiten vorwiegend durch Bereiche mit verstürztem Gebirge, und insbesondere im Kontaktbereich zum Versatz – so die Annahme (Abbildung 44).

Der Anteil an versetzten, mineralischen Bestandteilen der Reststoffe (ohne glasige Bestandteile) in dem BHV-Bereich, der mit einer Mächtigkeit von 10 Metern zum Ansatz kommt, beträgt 2%; der Anteil der mineralischen Bestandteile der RAA-Schlämme und der Gesteinsbruchstücke des verstürzten Gebirges im BHV-Bereich macht entsprechend 98% aus, einschließlich ihrer jeweiligen, gleichgroßen durchflusswirksamen (Poren-) Hohlraumgehalte.

Konzeptionell bildet das Modell damit solche Verhältnisse ab, unter denen der den BHV-Bereich durchströmende 1D-Porenwasserdurchfluss Q_{BHV} [m^3 s^{-1}] – entlang der gesamten Fließstrecke und auch am Ende der jeweiligen Fließstrecke – sowohl mit den mineralischen Bestandteilen der Reststoffe als auch mit den Mineralphasen des verstürzten Gebirges und der RAA-Schämme (als Teil des Versatzmaterials) in Reaktionskontakt kommt und danach in das unmittelbar ‚abstromige Nahfeld' übertritt.

Alle modellrelevanten Parameter-Werte sind homogen im gesamten Modell-BHV-Bereich verteilt; Versatz und Bruchstücke des Nebengesteins in dem BHV-Bereich werden im konzeptionellen Modell als eine, räumlich nicht aufgelöste Einheit bzw. Mischung abgebildet.

Der durchflusswirksame (Poren-) Hohlraumanteil des BHV-Bereichs wird mit 5 % angenommen; der zugehörige K_f-Wert mit 10^{-08} m s^{-1} – bei langfristiger Betrachtung. Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1x10^{8}$ m/s und $1x10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

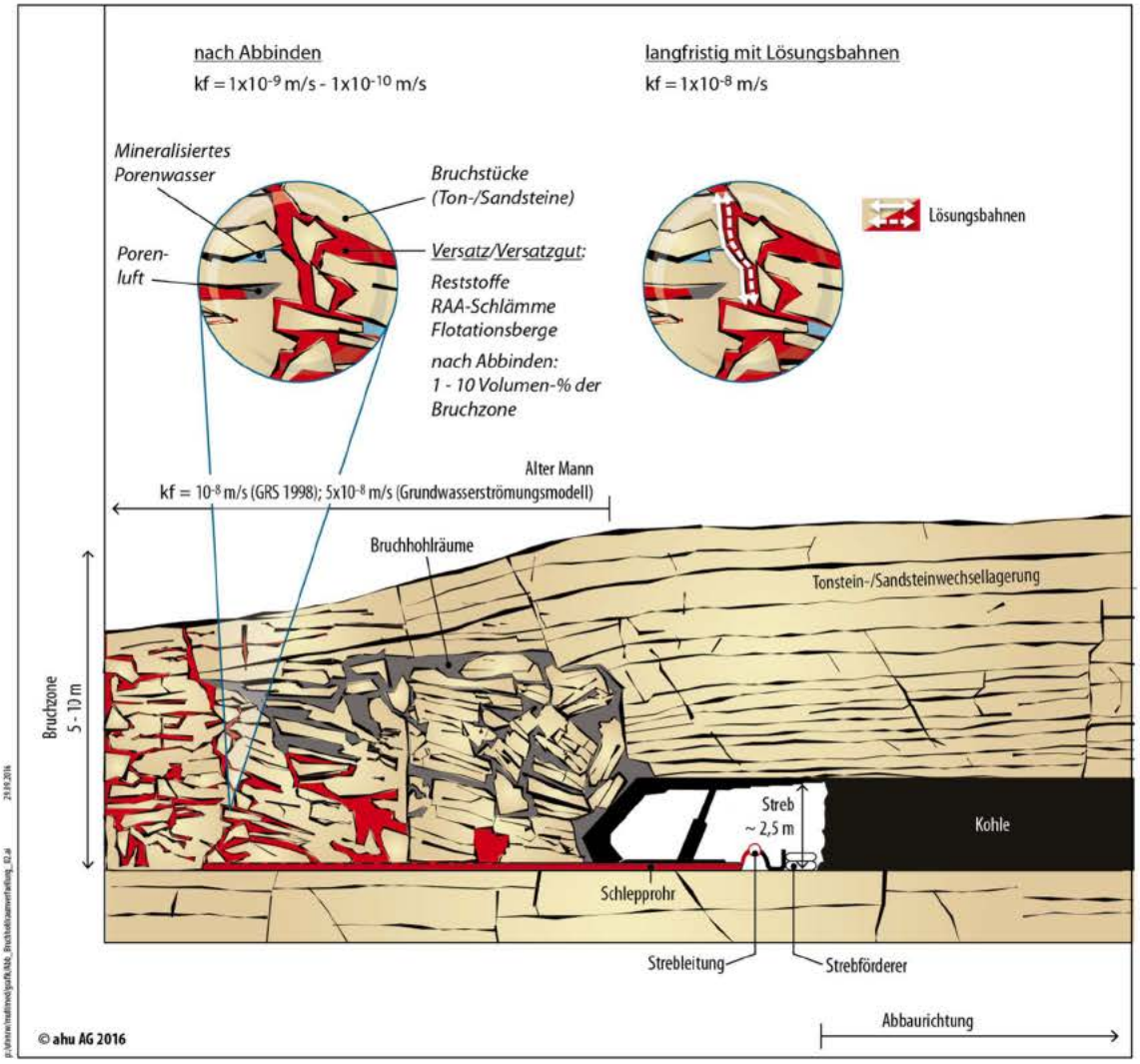


Abb. 44: Prinzipskizze zum Aufbau des BHV-Bereichs
Das konzeptionelle Modell vereinfacht diesen inhomogenen Aufbau.

Entlang der Länge des BHV-Bereichs von beispielsweise 100 Metern (in Fließrichtung) treibt eine Standrohrspiegelhöhendifferenz Δh von 1,0 Meter die Strömung des Tiefengrundwassers/Porenwassers entlang der Fließstrecke an. Daraus ergibt sich eine konzeptionelle Abstandsgeschwindigkeit v_a von (in der Größenordnung) 0,1 Meter pro Jahr (bzw. 1,0 Meter in 10 Jahren).

$v_f = k_f \times \Delta h \times \Delta l^{-1} = 10^{-08} \times 1{,}0 \times 100^{-1} = 10^{-10}\ m\ s^{-1} = 0{,}0032\ m\ a^{-1}$
$v_f \times n^{-1} = v_a = 0{,}0032\ m\ a^{-1} \times 20 = 0{,}063\ m\ a^{-1}$

Diese berechnete Abstandsgeschwindigkeit (0,063 m a^{-1}) wird zu 0,1 m a^{-1} gerundet, um die 1D-Stofftransportmodellierung mit der Zellenlänge von 1,0 Meter und der Zeitschrittlänge von 10 Jahren durchführen zu können und auch auf den kürzeren Fließstrecken (von 50, 25 und 10 Meter) zum Ansatz gebracht – unabhängig davon, ob die Durchströmung ausschließlich horizontal (100 Meter Fließstrecke) oder bevorzugt horizontal mit vertikaler Komponente (50 und 25 Meter Fließstrecke) oder ausschließlich vertikal (10 Meter Fließstrecke) erfolgt.

Das konzeptionelle Modelle vereinfacht damit die mit dem Strömungsmodellen des Projektpartners delta h berechnete instationäre Bewegung des Tiefengrundwassers zu einer stationären 1D-Strömung. Entsprechend der mit dem Strömungsmodellen des Projektpartners delta h berechneten Ergebnisse erfolgt die Durchströmung innerhalb einer Zeitspanne von einigen Jahren unmittelbar nach der Aufsättigung des Gebirges und des BHV-Bereichs mit recht kurzen Zeitspannen für den einmaligen Austausch des Porenwassers (PWA) auf der Fließstrecke durch den BHV-Bereich. In der Zeit danach erfolgt die Durchströmung des BHV-Bereichs mit deutlich längeren Zeitspannen für den einmaligen Austausch des Porenwassers auf der Fließstrecke. Während also das 1D-Modell mit einer konstanten Abstandsgeschwindigkeit rechnet, verändert sich die Abstandsgeschwindigkeit des den BHV-Bereich durchströmenden Porenwassers in der Realität und im Strömungsmodell des Projektpartners delta h. Innerhalb des vom 1D-Stofftransportmodell betrachteten Zeitraums dominiert die vertikale Durchströmung des BHV-Bereichs vom Hangendem zu dessen Liegendem.

Konzeptionell wird eine 100 Meter lange Fließstrecke mit 100 durchströmten, hintereinander geschalteten Reaktoren/Zellen unterteilt, die in der Fließrichtung jeweils eine Länge von 1,0 Meter aufweisen und deren wassererfülltes (Poren-) Hohlraumvolumen von 1,0 Liter einmal in 10 Jahren durch nachströmendes Porenwasser verdrängt und ausgetauscht wird: Q_{BHV} = 1,0 Liter in 10 Jahren. Entsprechend baut sich die 10 Meter lange Fließstrecke aus 10 durchströmten, hintereinander geschalteten Reaktoren/Zellen auf, die in der Fließrichtung jeweils eine Länge von 1,0 Meter aufweisen und deren wassererfülltes (Poren-) Hohlraumvolumen von 1,0 Liter einmal in 10 Jahren durch nachströmendes Porenwasser verdrängt und ausgetauscht wird: Q_{BHV} = 1,0 Liter in 10 Jahren

Alle hier in diesem Zusammenhang gemachten Aussagen zu zeitlichen Aspekten basieren auf der Annahme, dass die fiktive, konditionale und konstante Abstandsgeschwindigkeit des sich durch den BHV-Bereich bewegenden Porenwassers den auf Annahmen basierenden Betrag von 0,1 Meter pro Jahr (bzw. 1,0 Meter in 10 Jahren) aufweist. Der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft hat mit seinen Modellierungen zur Strömung des Tiefengrundwassers (s. Detailbericht 5) konkrete Abstandsgeschwindigkeiten berechnen und damit konkrete Zeitspannen mit den Angaben zur Anzahl der Porenwasseraustausche N [-] und zum kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis verknüpfen.

Die in diesem Abschnitt des Berichts dokumentierten grafischen Darstellungen der mit dem 1D-Stofftransportmodell berechneten chemischen Zusammensetzung des Porenwassers in dem jeweils letzten Reaktor auf der Fließstrecke (‚Quellterm') zeigen die Entwicklung dieser chemischen Zusammensetzung in Abhängigkeit von der Anzahl N der Porenwasseraustausche.

Bei einem wassererfüllten Hohlraumvolumen von 1,0 Liter, der sich in dem 5% (Poren-) Hohlraumanteil befindet, beträgt das Gesamtvolumen eines einzelnen Reaktors (V_{tot}) 20,0 Liter (0,020 m^3).

0,020 m^3 × 0,05 [-] = 0,001 m^3 bzw. 1,0 Liter wassererfülltes Hohlraumvolumen

Von den 20,0 Litern des Gesamtvolumens eines Reaktors werden also 19,0 Liter durch Feststoffe (Mineralphasen des Versatzes und des verstürzten Gebirges) eingenommen. Bei einer (angenommenen) mittleren Dichte der Feststoffe von 2,65 kg l^{-1} entspricht das einer Feststoffmasse von 50,35 kg im Reaktor. Davon bestehen 2 % aus den Mineralphasen der versetzten Reststoffe (ca. 1,0 kg; ohne glasige Bestandteile) sowie 98 % aus den Mineralphasen der RAA-Schlämme und des verstürzten Gebirges im BHV-Bereich (ca. 49 kg). Bei angenommenen mittleren Molmassen i) des Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischs von ca. 200 g mol^{-1} und ii) der Mineralphasen in den Flotationsbergen und im verstürzten Nebengestein von ca. 70 g mol^{-1} sind dies: ca. 5,0 mol Mineralphasen der versetzten Reststoffe sowie 700 mol Mineralphasen der Flotationsberge und des verstürzten Gebirges.

Angenommen wird, dass jeweils nur ein Zehntel dieser Molmengen in Reaktionskontakt mit dem einem Liter Porenwasser im Reaktor kommt und entlang der ‚Lösungsbahnen' (s. Abb. 44) für die hydrogeochemischen Wechselwirkungen als Vorrat in jedem Reaktor zur Verfügung steht: 0,5 mol Reststoff-bürtige Mineralphasen und 70 mol Mineralphasen der RAA-Schlämme und des verstürzten Gebirges im BHV-Bereich. Diese Annahme zum ‚hydrogeochemisch reaktiven' Phasenvorrat der Minerale im Reaktor ‚ein Zehntel dieser Molmengen steht für die Wechselwirkungen als Vorrat im Reaktor zur Verfügung' begründet sich qualitativ mit den in der Abbildung 44 skizzierten Vorstellungen.

Die 100 Reaktoren/Zellen auf der 100 Meter langen Fließstrecke enthalten 100 x 1,0 kg Wasser (100 kg H_2O des Tiefengrundwassers), die von 100 x 50,35 kg (5.035 kg) Feststoff umgeben sind. Zu Beginn der Durchströmung, wenn das (Poren-) Hohlraumvolumen des BHV-Bereich erstmalig mit 100 kg H_2O des Tiefengrundwassers gefüllt ist, beträgt das Wasser/Feststoff-Verhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) also 100 kg/5035 kg (= 0,019861). Mit dem folgenden Porenwasseraustausch N für die gesamte Fließstrecke – 100 kg H_2O des Porenwassers werden innerhalb von 100 Zeitschritten verdrängt und ersetzt durch ‚frische' 100 kg H_2O des zutretenden Tiefengrundwassers – erhöht sich also das WFV von 100 kg/5035 kg (= 0,019861) auf ‚kumulierte' 200 kg/5035 kg (= 0,039722). Mit jedem weiteren vollständigen Porenwasseraustausch N für die gesamte Fließstrecke nimmt das ‚kumulierte' Wasser/Feststoffverhältnis WFV_{kum} zu. Auf diese Weise hängt die Anzahl der Porenwasseraustausche N mit dem sich dabei ändernden ‚kumulierten' Wasser/Feststoffverhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) zusammen.

Hinsichtlich der Zusammensetzung dieser Phasenvorräte in jeweils einem der Reaktoren auf der Fließstrecke wird angenommen, dass die 0,5 mol Reststoffe jeweils 0,05 mol an Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O, Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$, Portlandit/$Ca(OH)_2$, Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$, Anhydrit/$CaSO_4$, Calcit/$CaCO_3$ enthalten; dazu kommen jeweils 0,005 mol an Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$; 0,09 mol Quarz vervollständigen den ‚hydrogeochemisch reaktiven' Phasenvorrat an Reststoff-bürtigen Mineralphasen im Reaktor, der insgesamt für die Reaktion mit dem Porenwasser zur Verfügung steht. Quantitative Angaben zur mineralischen Zusammensetzung des versetzten Reststoff-bürtigen Mineralgemischs liegen nicht vor; insofern sind die Anteile der einzelnen Phasen am Gemisch lediglich nicht näher begründbare Annahmen; die Gesamtmolmenge des Reststoff-bürtigen Mineralgemischs ergibt sich jedoch aus den zuvor hergeleitetem Angaben. Mit jeweils 0,005 mol machen die Molmengen an Cerrusit/$PbCO_3$ und Smithsonit/$ZnCO_3$ im Reaktor jeweils ein Prozent der Gesamtmolmenge des Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischs (0,5 mol) aus; das begründet sich mit den in den ‚Basisgutachten' angegebenen Gehalten an Blei und

Zink (Größenordnung) in den Reststoffen. Diese hier erwähnten Gehalte betreffen die chemische (elementare) Zusammensetzung der Reststoffe – nicht aber deren mineralische Zusammensetzung.

Hinsichtlich der Zusammensetzung der ‚nicht-Reststoff-bürtigen' Phasenvorräte in jeweils einem der Reaktoren auf der Fließstrecke wird angenommen, dass die 70 mol Mineralphasen des verstürzten Gebirges und der RAA-Schlämme im Versatz 1,0 mol Kaolinit, 0,1 mol Calcit, 0,01 mol Siderit und 0,001 mol Pyrit sowie 68,889 mol Quarz enthalten. Konkret verwertbare quantitative Angaben zur mineralischen Zusammensetzung liegen nicht vor; insofern sind die Anteile der einzelnen Phasen am Gemisch lediglich nicht näher begründbare Annahmen – die Gesamtmolmenge ergibt sich jedoch aus den zuvor hergeleitetem Angaben. Weitere Szenarien der Modellierung könnten unterschiedliche mineralische Zusammensetzungen der ‚nicht-Reststoff-bürtigen' Phasenvorräte berücksichtigen.

Die mit diesen Phasenvorräten und dem einem Liter Porenwasser (das in den BHV-Bereich übergetretene Tiefengrundwasser) ausgestatten Reaktoren auf der 100 Meter langen Fließstrecke weisen bei einer Länge von jeweils 1,0 Meter und bei einer Mächtigkeit von 10,0 Meter eine durchströmte Breite von 2,0 Millimeter auf.

$0{,}020\ m^3\ (V_{tot}) = 1{,}0\ m \times 10{,}0\ m \times 0{,}002\ m$

Das konzeptionelle Modell für die PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich bildet also den BHV-Bereich in der Form eines lediglich 2,0 Millimeter dicken (Y-Achse) Profilschnitts ab, der 100 Meter lang (X-Achse) und 10 Meter hoch (Z-Achse) ist und aus 100 einzelnen, jeweils (in Fließrichtung; X-Achse)) 1,0 Meter langen Reaktoren aufgebaut ist. Auf die gesamte durchströmte Breite des realen BHV-Bereichs bezogen, bedeutete dies, dass hier entsprechend viele dieser lediglich 2,0 Millimeter dicken Profilschnitte nebeneinander liegen. Bei 100 Meter durchströmter Breite sind dies 50.000 vom Aufbau her identische Profilschnitte. Die Berechnung erfasst lediglich einen dieser Profilschnitte. Mit einem Zeitschritt von 10 Jahren wird das sie füllende Porenwasser vollständig verdrängt: in dem ersten der hintereinander geschalteten Reaktoren von 1,0 Liter zutretenden ‚frischen' Tiefengrundwasser, in den ‚nachgeschalteten' Reaktoren durch 1,0 Liter Porenwasser aus dem jeweils ‚vorgeschalteten' Reaktor. Für jeden der Reaktoren auf der dominierenden, vorwiegend vertikal ausgerichteten Fließstrecke der Durchströmung des BHV-Bereichs gilt ebenfalls: Die mit den genannten Phasenvorräten und dem einem Liter Porenwasser (das in den BHV-Bereich übergetretene Tiefengrundwasser) ausgestatten Reaktoren auf der 10 Meter langen Fließstrecke weisen bei einer Länge von jeweils 1,0 Meter (in Fließrichtung; Z-Achse) ein Gesamtvolumen von 0,020 m^3 auf.

$0{,}020\ m^3\ (V_{tot}) = 1{,}0\ m \times 10{,}0\ m \times 0{,}002\ m$

Vor dem ersten Zeitschritt ist der (Poren-) Hohlraum auf der gesamten Fließstrecke des Modells mit – aus dem Hangendem des BHV-Bereichs – zugetretenem Tiefengrundwasser gefüllt.

Die Modellierung geht davon aus, dass sich innerhalb des Zeitschritts, also innerhalb der Aufenthaltszeit der Porenwässer in den einzelnen Reaktoren, der chemisch-thermodynamische Gleichgewichtszustand bei den Reaktionen zwischen den Mineralphasen und dem Porenwasser – also bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen – so einstellt, wie er durch die entsprechenden Gleichgewichtskon-

stanten für die Gleichgewichtsreaktionen vorgegeben ist (Datensatz wateq4f.dat; llnl.dat). Je länger der reale, einmalige Porenwasseraustausch andauert, umso wahrscheinlicher ist es, dass sich ein solcher chemisch-thermodynamischer Gleichgewichtszustand auch einstellt. Relativ gut wasserlösliche Mineralphasen wie Halit/NaCl, Sylvin/KCl, Ca-Hydroxochloridphasen/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O, Portlandit/$Ca(OH)_2$, Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$ und Anhydrit/$CaSO_4$ werden wahrscheinlich die Einstellung des Löslichkeitsgleichgewichts schneller erreichen als dies für relativ schlecht wasserlösliche Phasen wie Quarz möglich ist.

Als ‚Quellterm' für die numerische Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nahfeld' und ‚Fernfeld' des BHV-Bereichs (Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft) wird diejenige chemische Zusammensetzung des Porenwassers angegeben, die zu den 5000 einzelnen Zeitschritten am Ende der jeweiligen Fließstrecke des Porenwassers durch den BHV-Bereich auftreten. Der die beiden Modellierungen – die hydrogeochemische 1D-Modellierung der Stofffreisetzung im BHV-Bereich und die 3D-Strömungs- bzw. Transportmodellierung für das ‚Nahfeld' und ‚Fernfeld'– verknüpfende Parameter ist die Anzahl der Porenwasseraustausche N auf der gesamten Fließstrecke mit dem zutretenden Tiefengrundwasser bzw. dem ehemaligen Tiefengrundwasser, das sich hydrogeochemisch zum Porenwasser im BHV-Bereich entwickelt.

Für die jeweils letzte Zelle auf der Fließstrecke des Tiefengrundwassers als Porenwasser durch den BHV-Körper, aus dem dieses Porenwasser in den Tiefengrundwasserraum des unmittelbaren Nahfeldes übertreten wird, wird angegeben

- die jeweilige Anzahl der Porenwasseraustausche N [-] im gesamten BHV-Bereich (auf 10 Meter, 25, 50 oder 100 Meter der Fließstrecke)

- das dementsprechende kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) im gesamten BHV-Bereich, das sich mit der Anzahl der Porenwasseraustausche N kontinuierlich erhöht und

- für die jeweilige Anzahl der Porenwasseraustausche N und das kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis (WFV_{kum} [kg/kg]) die berechnete chemische Zusammensetzung des Porenwassers – einschließlich der pH-Werte und der Blei- und Zinkkonzentrationen in der Einheit mol/kgw und mg/kgw (kgw: ‚Kilogramm H_2O' wird hier vereinfachend ‚Liter Lösung' gleichgesetzt).

Die Anzahl N der Porenwasseraustausche im gesamten BHV-Bereich ergibt sich aus der Abstandsgeschwindigkeit v_a von 0,1 Meter pro Jahr, der gesamten Länge der jeweiligen Fließstrecke und derjenigen Fließzeit des Porenwassers, die dementsprechend notwendig ist, damit das zugetretene Tiefengrundwasser vom ersten der Reaktoren bis zum jeweils letzten der Reaktoren auf der jeweiligen Fließstrecke gelangt. In dieser Fließzeit ist dann das gesamte (Poren-) Hohlraumvolumen des BHV-Bereichs einmal durch das zugetretene Tiefengrundwasser ausgetauscht worden: Dann ist N = 1.

10 m Fließstrecke/0,1 m a^{-1} Abstandsgeschwindigkeit = 100 a Fließzeit für 10 m;
Somit ist N = 1 für die gesamte Fließstrecke von 10 Meter nach 100 Jahren Fließzeit bzw. nach 10 Zeitschritten von jeweils 10 Jahren erreicht.

25 m Fließstrecke/0,1 m a^{-1} Abstandsgeschwindigkeit = 250 a Fließzeit für 25 m;

Somit ist N = 1 für die gesamte Fließstrecke von 25 Meter nach 250 Jahren Fließzeit bzw. nach 25 Zeitschritten von jeweils 10 Jahren erreicht.
50 m Fließstrecke/0,1 m a^{-1} Abstandsgeschwindigkeit = 500 a Fließzeit für 50 m;

Somit ist N = 1 für die gesamte Fließstrecke von 50 Meter nach 500 Jahren Fließzeit bzw. nach 50 Zeitschritten von jeweils 10 Jahren erreicht.

100 m Fließstrecke/0,1 m a^{-1} Abstandsgeschwindigkeit = 1000 a Fließzeit für 100 m;
Somit ist N = 1 für die gesamte Fließstrecke von 100 Meter durch den BHV-Körper nach 1000 Jahren Fließzeit bzw. nach 100 Zeitschritten von jeweils 10 Jahren erreicht.

Für die einheitlich gewählte Zeitspanne von 50.000 Jahren als die betrachtete Dauer des Zutritts von Tiefengrundwasser, für die einheitliche Abstandsgeschwindigkeit, für den einheitlichen Zeitschritt von 10 Jahren und die einheitliche Länge der Reaktoren in Fließrichtung durch den BHV-Bereich ergeben sich also unterschiedliche Anzahlen N der Porenwasseraustausche für die unterschiedlich langen Fließstrecken:

N von 0,1 bis 500 für die Fließstrecke von 10 Meter Länge;
N von 0,04 bis 200 für die Fließstrecke von 25 Meter Länge;
N von 0,02 bis 100 für die Fließstrecke von 50 Meter Länge;
N von 0,01 bis 50 für die Fließstrecke von 100 Meter Länge.

Für die Fließstrecke von 10 Meter Länge mit N bis zu 500 (nach 50.000 Jahren) kumuliert das WFV_{kum} von anfänglich 0,019861 (bei oder nach dem ersten Zeitschritt von 10 Jahren) auf 500 X 0,019861 = 9,9305 (bei oder nach dem 5000. Zeitschritt von 10 Jahren).

Für die Fließstrecke von 25 Meter Länge mit N bis zu 200 (nach 50.000 Jahren) kumuliert das WFV_{kum} von anfänglich 0,019861 (bei oder nach dem ersten Zeitschritt von 10 Jahren) auf 200 X 0,019861 = 3,9722 (bei oder nach dem 5000. Zeitschritt von 10 Jahren).

Für die Fließstrecke von 50 Meter Länge mit N bis zu 100 (nach 50.000 Jahren) kumuliert das WFV_{kum} von anfänglich 0,019861 (bei oder nach dem ersten Zeitschritt von 10 Jahren) auf 100 X 0,019861 = 1,9861 (bei oder nach dem 5000. Zeitschritt von 10 Jahren).

Für die Fließstrecke von 100 Meter Länge mit N bis zu 50 (nach 50.000 Jahren) kumuliert das WFV_{kum} von anfänglich 0,019861 (bei oder nach dem ersten Zeitschritt von 10 Jahren) auf 50 X 0,019861 = 0,99305 (bei oder nach dem 5000. Zeitschritt von 10 Jahren).

Die hier gemachten Angaben zu zeitlichen Aspekten mit konkreten Zeitangaben in Jahren gelten lediglich für die willkürlich gewählte Abstandsgeschwindigkeit der Porenwasserdurchströmung. Der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft hat mit seinen Modellierungen zur Strömung des Tiefengrundwassers (s. Detailbericht 5) konkrete Abstandsgeschwindigkeiten berechnen und damit konkrete Zeitspannen mit den Angaben zur Anzahl der Porenwasseraustausche N [-] und zum kumulierte Wasser/Feststoffverhältnis verknüpfen.

Die Tabellen 11 bis 14 geben einen zusammenfassenden Überblick über die Parameter, mit denen das 1D-Stofftransportmodell ausgestattet ist.

Tab. 11: Tabellarischer Überblick über die geohydraulischen Parameter für den zu modellierende BHV-Bereich
(*: noch zu definieren)

Geohydraulische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Auswirkung im 1D-Stofftransportmodell	Sicherheit der Angabe
1D-Fließstrecke des Porenwassers Ausgewählte Werte für eine – in der Realität und im 3D-geohydraulischen Modell des regionalen Strömungsfeldes auftretende – beliebig große Zahl von Fließstreckenlängen zwischen 1 und 100 Meter durch den BHV-Bereich	- 100 Meter bei überwiegender horizontaler Durchströmung des BHV - 50 Meter bei horizontaler/vertikaler Durchströmung des BHV - 25 Meter bei horizontaler/vertikaler Durchströmung des BHV - 10 Meter bei ausschließlich vertikaler Durchströmung des BHV Werte ergeben sich aus der Geometrie des BHV-Bereichs und dem regionalen 3D-Grundwasserströmungsfeld	- 1D-Fließzeit des Porenwassers durch den BHV-Bereich - Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Anhand der 3D-geohydraulischen Modellierung des regionalen Strömungsfeldes kann die vorrangige Fließstrecke abgeschätzt werden .
Hydraulischer Gradient (Größenordnung; Annahme) *I*	0,01 m/m 1,0 Meter Δh auf 100 Meter Fließstrecke Δl Wert in der Größenordnung aus der 3D-geohydraulischen Modellierung des regio-nalen Strömungsfeldes (Projektpartner delta h)	- 1D-Fließzeit des Porenwassers durch den BHV-Bereich - Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	So sicher, wie die 3D-geohydraulische Modellierung des regionalen Strömungsfeldes (Projektpartner delta h) es vorgibt
Durchlässigkeitsbeiwert (Größenordnung; Annahme) k_f für Tiefengrundwasser/ Porenwasser mit 39°C und hohen Konzentrati-onen gelöster Stoffe	10E-08 m/s In der langfristigen Sicht (siehe Abbildung 1) Im 3D-Grundwassermodell auch 10E-09 m/s	- 1D-Fließzeit des Porenwassers durch den BHV-Bereich - Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Unsichere Annahme Durchlässigkeitsbeiwert ändert sich in der Zeit infolge der Mineral-Auflösungs, -Umwand-lungs- und Ausfällungs-reaktionen. Tendenziell und langfristig wird die Durchlässigkeit durch die Lösung größer. Durch eine große Anfangsdurchlässigkeit (10E-08 m/s) wurde dies berücksichtigt
Porosität *n* (Durchflusswirksam)	0,05 [-] Im 3D-Grundwassermodell auch 0,005 Bei mehreren WD-Tests an einem BHV-Bereich im BW	- 1D-Fließzeit des Porenwassers durch den BHV-Bereich - Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-	Unsichere Annahme Porosität ändert sich in der Zeit infolge der Mineral-Auflösungs, -Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen

Geohydraulische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Auswirkung im 1D-Stofftransportmodell	Sicherheit der Angabe
	Walsum wurde nach acht Monaten ein sehr geringes durchflusswirksames Porenvolumen des noch nicht gefluteten BHV-Bereichs oder des Versatzes festgestellt Beton kann einen ähnlichen (Luft-) Porenanteil von ca. 0,01 bis 0,07 aufweisen	Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Änderungen sind quantitativ nicht einzuschätzen
Durchströmte Mächtigkeit *m*	10 m (siehe Abbildung 1)	Geometrie und räumliche Diskretisierung der Zellen/Reaktoren	Gut einzuschätzen
Abstandsgeschwindigkeit (Annahme) v_a	0,1 Meter pro Jahr (in der Größenordnung)	- 1D-Fließzeit des Porenwassers durch den BHV-Bereich - Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Unsichere Einschätzung Unter Berücksichtigung i) der nicht exakt bekannten und in der Zeit veränderlichen Werte für *l*, k_f und *n* sowie ii) der realen inhomogenen räumlichen Verteilung von k_f, *n* und der Anteile von Versatz zu verstürztem Gebirge ist einzuschätzen, dass v_a zwischen 0,01 und 0,1 Meter pro Jahr variieren kann
1D-Fließzeit des Porenwassers Bei einer Abstandsgeschwindigkeit v_a von 0,1 Meter pro Jahr (in der Größenordnung)	Fließzeit für die ausgewählten Fließstrecken - 1000 Jahre für 100 Meter - 500 Jahre für 50 Meter - 250 Jahre für 25 Meter - 100 Jahre für 10 Meter	- Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Unsichere Einschätzung Die Fließzeit ist – über die Abstandsgeschwin-digkeit v_a – von der Po-rosität *n* und dem Durchlässigkeits- beiwert k_f des BHV-Be-reichs abhängig und *n* und k_f können sich in der Zeit infolge der Mineral-Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen ändern

Tab. 12: Tabellarischer Überblick über den Aufbau des hydrogeochemischen 1D-Stofftransportmodells mit den geohydraulischen Parametern für den BHV-Bereich
Alle Angaben gelten für die gesamte BHV-Modell-Fließstrecke, für eine räumlich homogene Verteilung und ohne zeitliche Änderung. Berechnet wird der advektiv-diffusive Stofftransport.

Geohydraulische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Umsetzung im 1D-Stofftransportmodell	Anmerkung
1D-Fließstrecke des Porenwassers	- 100 Meter bei überwiegender horizontaler Durchströmung des BHV	100 Zellen/Reaktoren von jeweils 1,0 Meter Länge in Fließrichtung	Die Zellen/Reaktoren sind in Fließrichtung ‚in Reihe hintereinander geschaltet'
	- 50 Meter bei horizontaler/vertikaler Durchströmung des BHV	50 Zellen/Reaktoren von jeweils 1,0 Meter Länge in Fließrichtung	Das die Zellen/Reaktoren füllende Porenwasser wird vollständig aus deren (Poren-) Hohlraumvolumen verdrängt; in dem ersten der hintereinander geschalteten Reaktoren von zutretenden ‚frischen' Tiefengrundwässern aus dem ‚Nahfeld'; in den ‚nach-geschalteten' Reaktoren durch Porenwasser aus dem jeweils ‚vorgeschal-teten' Reaktor
	- 25 Meter bei horizontaler/vertikaler Durchströmung des BHV	25 Zellen/Reaktoren von jeweils 1,0 Meter Länge in Fließrichtung	
	- 10 Meter bei ausschließlich vertikaler Durchströmung des BHV	10 Zellen/Reaktoren von jeweils 1,0 Meter Länge in Fließrichtung	
Hydraulischer Gradient *I*	0,01 Meter pro Meter		$v_f = k_f \times \Delta h \times \Delta l^{-1} =$ $= 10^{-08} \times 1,0 \times 100^{-1}$ $= 10^{-10}$ m s^{-1} $= 0,0032$ m a^{-1} $v_f \times n^{-1} = v_a$ $= 0,0032$ m a^{-1} x 20 $= 0,063$ m a^{-1}
	Wird mit einer konzeptionellen Abstandsgeschwindigkeit v_a im Modell zum Ansatz gebracht	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells umgesetzt werden	Wird zu 0,1 m a^{-1} gerundet, um die 1D-Stofftransport-modellierung mit - der Zellenlänge (= 1,0 Meter) und - der Zeitschrittlänge (= 10 Jahre) durchführen zu können
Durchlässigkeitsbeiwert k_f für Tiefengrundwasser/ Porenwasser mit 39°C und hohen Konzentrati-onen gelöster Stoffe	10E-08 m/s Wird mit einer konzeptionellen Abstandsgeschwindigkeit v_a im Modell zum Ansatz gebracht	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells umgesetzt werden	$v_f = k_f \times \Delta h \times \Delta l^{-1} =$ $= 10^{-08} \times 1,0 \times 100^{-1}$ $= 10^{-10}$ m s^{-1} $= 0,0032$ m a^{-1} $v_f \times n^{-1} = v_a$ $= 0,0032$ m a^{-1} x 20 $= 0,063$ m a^{-1}

Geohydraulische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Umsetzung im 1D-Stofftransportmodell	Anmerkung
			Wird zu 0,1 m a^{-1} gerundet, um die 1D-Stofftransport-modellierung mit - der Zellenlänge (= 1,0 Meter) und - der Zeitschrittlänge (= 10 Jahre) durchführen zu können
Porosität *n* (Durchflusswirksam)	0,05 Geht in die Berechnung der Abstandsgeschwindigkeit v_a ein Geht in geometrische Dimensionierung der Zellen/Reaktoren ein Bestimmt die Masse der initial in den Zellen/Reaktoren vorhanden Versatz-Mineralphasen	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells umgesetzt werden	$v_f = k_f \times \Delta h \times \Delta l^{-1}$ = = $10^{-08} \times 1,0 \times 100^{-1}$ = 10^{-10} m s^{-1} = 0,0032 m a^{-1} $v_f \times n^{-1} = v_a$ = 0,0032 m a^{-1} x 20 = 0,063 m a^{-1} Wird zu 0,1 m a^{-1} gerundet Die Zellen/Reaktoren sind normiert durch ein wasser-erfülltes (Poren-) Hohl-raumvolumen von 1,0 Liter Bei einem (Poren-) Hohlraumanteil von 5% (auf 1,0 Liter normiert) beträgt das Gesamtvo-lumen eines einzelnen Reaktors (V_{tot}) 20,0 Liter (0,020 m^3). 0,020 m^3 x 0,05 [-] = 0,001 m^3 bzw. 1,0 Liter wassererfülltes Hohl-raumvolumen Von den 20,0 Litern des Gesamtvolumens eines Reaktors werden also 19,0 Liter durch Feststoffe (Mineralphasen des Versatzes und des verstürzten Gebirges) eingenommen
Durchströmte Mächtigkeit *m*	10 Meter Bestimmt zusammen mit der Länge und dem Gesamt-volumen der Zellen/Reak-toren (V_{tot}) die Breite der durchströmten Quer-schnittsfläche	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells umgesetzt werden	0,020 m^3 (V_{tot}) = 10 m Mächtigkeit x 1,0 m Länge x 0,002 m Breite
Abstandsgeschwindigkeit v_a	0,1 Meter pro Jahr	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-	

Geohydraulische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Umsetzung im 1D-Stofftransportmodell	Anmerkung
	Wird als konzeptionelle Abstandsgeschwindigkeit im Modell definiert durch die Länge der Zellen/Reaktoren in Fließrichtung (1,0 Meter) und durch die Länge des Zeitschritts (10 Jahre), in dem das wassererfüllte (Poren-) Hohlraumvolumen der Zellen/Reaktoren von 1,0 Liter einmal vollständig ausgetauscht wird	Stoffransportmodells umgesetzt werden Der Zeitschritt (‚time_step') ist der Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells	1,0 m (Zellen-Länge) / 10 a (Zeitschritt) = 0,1 m a^{-1}
1D-Fließzeit des Porenwassers für die Fließstrecke	1000 Jahre für 100 Meter: 100 Jahre für 10 Meter Erg bt sich aus der der Länge der Fließstrecke und der Abstandsgeschwindigkeit	Kann nicht direkt als Eingabe-Parameter des PHREEQC-1D-Stoffransportmodells umgesetzt werden	100 m / 0,1 m a^{-1} = 1000 a 10 m / 0, 1 m a^{-1} = 100 a
Betrachteter Zeitraum der Durchströmung	50.000 Jahre Erg bt sich aus dem Zeitschritt (‚time_step') und der Anzahl seiner Wiederholung (‚shifts')	 10 a (‚time_step') x 5000 (‚shifts') = 50.000 a	Zunächst frei gewählt. Die Machbarkeitsstudie (1991) nennt Zeiträume von mehr als Zehntausend Jahren.
Anzahl der Porenwasser-austausche der gesamten Fließstrecke im betrachteten Zeitraum *N*	*N* = 50 für 100 Meter Fließstrecke In diesem BHV-Bereich wird in 50.000 Jahren das gesamte Porenwasser 50-mal vollständig ausgetauscht *N* = 500 Für 10 Meter Fließstrecke In diesem BHV-Bereich wird in 50.000 Jahren das gesamte Porenwasser 500-mal vollständig ausgetauscht	‚shifts' = 5000 ‚shifts' = 5000	5000 ‚shifts' / 100 m = 50 5000 ‚shifts' / 10 m = 500

Tab. 13: Tabellarischer Überblick über die hydrogeochemischen Parameter für den zu modellierenden BHV-Bereich
Alle Angaben gelten für den gesamten BHV-Bereich und für eine räumlich homogene Verteilung.

Hydrogeochemische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Auswirkung im 1D-Stofftransportmodell	Sicherheit der Angabe
Art der Mineralphasen des Versatzes (initial vorhanden) Reststoffe & Gesteinsbruchstücke des verstürzten Gebirges RAA-Schlämme	Halit/NaCl Sylvin/KCl, Quarz/SiO_2 Ca-Hydroxochlorid/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$ Portlandit/$Ca(OH)_2$ Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$ Anhydrit/$CaSO_4$ Calcit/$CaCO_3$ Cerrusit/$PbCO_3$ Smithsonit/$ZnCO_3$ Angaben der ‚Basisgutachten' (bis auf Smithsonit/$ZnCO_3$) Quarz/SiO_2 Kaolinit/$Al_2Si_2O_5(OH)_4$ Calcit/$CaCO_3$ Siderit/$FeCO_3$ Pyrit/FeS_2	- Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Es ist fraglich, ob diese Auflistung vollständig ist – und korrekt insbe-sondere hinsichtlich der Zink- und Bleiphasen Zusätzlich sind ‚glasige' Bestandteile im Versatz vorhanden, die nicht in die Modellierung eingehen In Abhängigkeit von der Art und der Menge nicht berücksichtigter Phasen können insbesondere die Zink- und Blei-Konzentrationen in den Porenwässern beein-flusst werden
Anteil Versatz	2 bis 5%	- Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevante' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Aus Messwerten sicher einzuschätzen
Anteil (am Feststoff im BHV) Reststoff-Mineralphasen (ohne glasige Bestandteile)	1 bis 3% (bei ca. 80% Reststoffen im Versatz)		Aus Messwerten sicher einzuschätzen
Anteil (am Feststoff im BHV) Mineralphasen der Gesteinsbruchstücke des verstürzten Gebirges plus Flotationsberge	99 bis ca. 97,0%		Aus Messwerten sicher einzuschätzen
Chemische Zusammensetzung des zutretenden Tiefengrundwassers	Analyse des Tiefengrundwassers ‚Z2-Haus Aden/Monopol' (Wede-wardt), das rechnerisch (mit PHREEQC) in das Löslichkeitsgleichgewicht mit Quarz/SiO_2 Kaolinit/$Al_2Si_2O_5(OH)_4$ Calcit/$CaCO_3$ Siderit/$FeCO_3$ Pyrit/FeS_2 gebracht wurde	- Zeitpunkt und Zeitspanne, zu dem und in der ‚relevan-te*' Zink- und Blei-Konzentrationen mit den Porenwässern aus dem BHV-Bereich in das ‚Nahfeld' übertreten (Stoffaustrag)	Aus Messwerten einer plausiblen Wasserana-lyse gut einzuschätzen (Plausibilität mittels PHREEQC-Berech-nungen von ELF und IBF geprüft Fraglich ist, ob diese Analyse auch für die sich zukünftig (in Tausenden bis zu Zehntausenden von Jahren) entwickelnden Tiefengrundwässer als repräsentativ gelten kann.

Hydrogeochemische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Auswirkung im 1D-Stofftransportmodell	Sicherheit der Angabe
			Allerdings ist die Sensitivität bei Verdünnung gering (Kapitel 5.7.4).

Tab. 14: Tabellarischer Überblick über den Aufbau des hydrogeochemischen 1D-Stofftransportmodells mit den hydrogeochemischen Parametern
Alle Angaben gelten für die gesamte BHV-Modell-Fließstrecke und für eine räumlich homogene Verteilung. Innerhalb eines Zeitschritts von 10 Jahren stellt sich für alle beteiligten das chemische Gleichgewicht so ein, wie es durch die chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten vorgegeben ist.
(*: Die vollständige Herleitung dazu findet sich im Text.)

Hydrogeochemische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Umsetzung im 1D-Transportmodell	Anmerkung
Art der Mineralphasen des Versatzes (initial vorhanden) Reststoffe	Halit/NaCl Sylvin/KCl, Quarz/SiO_2 Ca-Hydroxochlorid/$Ca_2Cl_2(OH)_2$:H_2O Ettringit/$Ca_6Al_2(SO_4)_3(OH)_{12}$:$26H_2O$ Portlandit/$Ca(OH)_2$ Glauberit/$Na_2Ca(SO_4)_2$ Anhydrit/$CaSO_4$ Calcit/$CaCO_3$ Cerrusit/$PbCO_3$ Smithsonit/$ZnCO_3$	Diese Mineralphasen bauen mit einem definierten (initialen) Vorrat den Feststoff-anteil der Zellen/Reaktoren auf	Es ist fraglich, ob diese Auflistung vollständig und korrekt ist – insbesondere hinsichtlich der Zink- und Bleiphasen. Für eine weitere Absicherung fehlen Laboruntersuchungen zur Plausibilitätsprüfung der bekannten chemisch-thermodynamischen Daten zur Löslichkeit (wateq4f.dat; llnl.dat) und zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen
& Gesteinsbruchstücke des verstürzten Gebirges und RAA-Schlämme	Quarz/SiO_2 Kaolinit/$Al_2Si_2O_5(OH)_4$ Calcit/$CaCO_3$ Siderit/$FeCO_3$ Pyrit/FeS_2 Bekannte chemisch-thermodynamische Daten zur Löslichkeit (wateq4f.dat; llnl.dat)	Diese Mineralphasen bauen mit einem definierten (initialen) Vorrat den Feststoff-anteil der Zellen/Reaktoren auf	Zusätzlich sind ‚glasige' Bestandteile im Versatz vorhanden, die nicht in die Modellierung eingehen
Art der Mineralphasen die potentiell neu gebildet werden können bei Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen	Insgesamt 83 Mineralphasen (siehe Tabelle 14; potentielle sekundäre Phasen in der PHREEQC-Eingabedatei) Aufgebaut aus Komponenten der initial vorhandenen Phasen und des zutretenden Tiefengrundwas-sers Bekannte chemisch-thermodynamische Daten zur Löslichkeit (wateq4f.dat; llnl.dat)		Es ist fraglich, ob diese Auflistung vollständig und korrekt ist Für eine weitere Absicherung fehlen Laboruntersuchungen zur Plausibilitätsprüfung der bekannten chemisch-thermodynamischen Daten zur Löslichkeit (wateq4f.dat; llnl.dat) und zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen
Vorrat der Mineralphasen	Quantifiziert die Menge der genannten Phasen (in mol), die in einer Zelle/einem Reaktor für die Reaktion mit dem 1,0 Liter Porenwasser zur Verfügung steht	Diese Mineralphasen-Vorräte bauen den Feststoffanteil der Zellen/Reaktoren auf	In die Berechnung dieses Vorrates gehen ein*: - V_{tot} = 20,0 Liter für einen Reaktor - $V_{Feststoff}$ = 19 Liter - $V_{Hohlraum}$ = 1,0 Liter - Mittlere Feststoffdichte

Hydrogeochemische Parameter	Parameter-Wert und Erklärung	Umsetzung im 1D-Transportmodell	Anmerkung
			(2,65 kg/l) - $M_{Feststoff}$ = ca. 50 kg - ca. 1,0 kg Reststoff-bürtige Phasen - ca 49 kg nicht-Reststoff-bürtige Phasen - mittlere Molmasse der Reststoff-bürtigen Phasen: ca. 200 g/mol - ca. 5 mol Reststoff-bürtige Phasen - mittlere Molmasse der nicht-Reststoff-bürtigen Phasen: ca. 70 g/mol - ca. 700 mol nicht-reststoffbürtige Phasen - angenommener Anteil des Vorrates, der mit dem strömenden Porenwasser in Reaktionskontakt kommt: 10%; 0,5 mol bzw. 70 mol

5.7.3.2 Begrenzung der Aussagesicherheit – Parameter-Werte und Modellierungsansatz

Die auf der Grundlage dieses konzeptionellen Modells errechneten Ergebnisse, nämlich die räumlich-zeitliche Entwicklung der chemischen Zusammensetzung der Porenwässer auf der Fließstrecke durch den BHV-Bereich und der ‚Quellterm', werden vom Zusammenwirken aller im Modell zum Ansatz gebrachten Parameter-Werte bestimmt. Insbesondere die folgend aufgeführten Parameter und ihre Werte sind dabei von großem Einfluss u.a. darauf, zu welchem Zeitpunkt und über welche Zeitspanne ‚relevante' Zink- und Blei-Konzentrationen aus dem BHV-Bereich austreten werden.

- Abstandsgeschwindigkeiten und Fließzeiten des Porenwassers (über 50.000 Jahre Betrachtungszeitraum) in den Zellen / Reaktoren des BHV-Bereichs, die abhängen von
  - den hydraulischen Gradienten
  - dem Durchlässigkeitsbeiwert
  - der Porosität
- Molmengen der einzelnen Bestandteile des versetzten Reststoff-Mineralphasengemischs in den Zellen / Reaktoren des BHV-Bereichs, die abhängen von
  - der Zusammensetzung der versetzten Reststoffe
  - der Porosität in den Zellen/Reaktoren des BHV-Bereichs

  - dem Anteil der Molmengen des versetzten Reststoff-Mineralphasengemischs im BHV-Bereich, der in den Zellen/Reaktoren für die Reaktion mit Porenwasser zur Verfügung steht

- Art der sich potentiell bei den Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen neubildenden Mineralphasen

- Zusammensetzung des dem BHV-Bereich zutretenden Tiefengrundwassers.

Es ist davon auszugehen, dass alle diese Parameter

- mit ihren Werten in der Zeit veränderlich sind und/oder

- mit ihren (initialen) Werten räumlich inhomogen verteilt sind und/oder

- nicht mit exakten, belegbaren, bekannten Werten quantifiziert werden können.

Deshalb müssen die jeweiligen Parameter-Werte abgeschätzt bzw. dazu plausible Annahmen getroffen werden. Es ist im Rahmen des Auftrages nicht möglich, aufwendige Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen durchzuführen, bei denen die Parameter-Werte systematisch, einzeln und in allen (sinnvoll erscheinenden) Kombinationen verändert werden.

Da es ohne entsprechende Modellierungsstudien nicht möglich ist, ‚worst case' Szenarien zu identifizieren, kann die PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms' auch nicht mit solchen Parameter-Werten – und deren Kombinationen – durchgeführt werden, die zu ‚worst case' Auswirkungen führen würden. Das gilt insbesondere deshalb, weil noch nicht definiert ist, was denn ‚worst case' Auswirkungen der Stofffreisetzung sein sollen:

i) ‚*Sehr hohe' Zink- und/oder Bleikonzentrationen* am Ende der jeweiligen Fließstrecke durch den BHV-Bereich?

ii) ‚Relevante' (oberhalb background; Faktor 10 oberhalb background; Faktor 100 oberhalb background?) Zink- und/oder Bleikonzentrationen, die am Ende der Fließstrecke durch den BHV-Bereich *schon nach relativ kurzen Zeiträumen* (Zehner; Hunderte; Tausende; Zehntausende Jahre?) auftreten?

iii) *Zeitlich sehr lang anhaltende Kontamination des Porenwassers* am Ende der Fließstrecke durch den BHV-Bereich – mit ‚relevanten' Zink- und/oder Bleikonzentrationen?

iv) *Insgesamt große, in das Porenwasser freisetzbare Stoffmassenströme* – losgelöst von zeitlich-räumlichen Aspekten?

Die PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich basiert auf den Prinzipien und Gesetzmäßigkeiten der chemischen Gleichgewichtsthermodynamik für wässrige Lösungen in Reaktion mit Feststoffphasen. Konkret auf die Reaktoren/Zellen des Modells bezogen, bedeutet das: Innerhalb eines Zeitschritts von 10 Jahren, der der Aufenthaltszeit des Porenwassers in einem Reaktor

entspricht, stellt sich für alle beteiligten Reaktionen bei den Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen das chemische Gleichgewicht so ein, wie es durch die chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten (Datensatz wateq4f.dat; llnl.dat) vorgegeben ist. Ob das tatsächlich so der Fall ist, ob mehr Zeit zur Gleichgewichtseinstellung benötigt wird, weil reaktionskinetische Prozesse die Gleichgewichtseinstellung verzögern und/oder ob der sich tatsächlich einstellende Gleichgewichtszustand durch die genutzten chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten korrekt beschrieben wird, dazu liegen keine Beobachtungen und Messwerte vor. Da bei diesen Reaktionen meist eher strukturell einfach aufgebaute ‚Salze' bzw. ‚salz-artige' Mineralphasen beteiligt sind, erscheint diese Annahme ‚Reaktionsgleichgewichtseinstellung innerhalb von 10 Jahren' zwar nicht als ungerechtfertigt, muss aber mit aufwendigen Plausibilitätsprüfungen des Modells abgesichert (oder widerlegt) werden.

Bei den durchgeführten 1D-Stofftransportmodellierungen sind betrachtet und als ‚Quellterm' an delta h übergeben worden: pH-Wert, Zink, Blei; sowie (in alphabetischer Reihung) Aluminium, Barium, Carbonat-Kohlenstoff, Calcium, Chlorid, Eisen, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat- und Sulfid-Schwefel, Silizium und Strontium.

5.7.3.3 Anforderungen an eine Kalibrierung – Plausibilitätsprüfung

Da der BHV-Bereich noch nicht geflutet bzw. wassergesättigt ist, was erst ein stationäres Durchströmen mit Porenwasser ermöglicht, liegen keine Messwerte zur räumlich-zeitlichen Entwicklung der chemischen Zusammensetzung von realen Porenwässern auf ihrer Fließstrecke durch existierende BHV-Bereiche vor – das gilt aus naheliegenden Gründen insbesondere unter dem Gesichtspunkt der Langzeitperspektive im Bereich von einigen Zehner bis zu einigen Tausend Jahren. Eine Kalibrierung der Modellierungen in dem Sinne, dass modellierte und gemessene Werte zur räumlich-zeitlichen Entwicklung realer chemischen Zusammensetzungen der Porenwässer auf der Fließstrecke durch existierende BHV-Bereiche mit einander verglichen werden, ist aus diesem Grund nicht möglich. Das PHREEQC-Modell des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms' ist deshalb semi-generischer Natur. Dies bedeutet:

- Das Modell bildet den BHV-Bereich unter geohydraulischen und hydrogeochemischen Gesichtspunkten als einen intern homogen aufgebauten Körper ab
- Es vereinfacht zudem die komplexen geohydraulischen Prozesse zu einer stationären und gleichförmigen Advektion
- Es berücksichtigt keine reaktionskinetischen Aspekte[111]
- Es vereinfacht zudem den Stofftransport zu einem advektiv-diffusiven Prozess

[111] Allerdings ist es auch wohl begründete hydrogeochemische Modellierungspraxis, zunächst mit chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtsberechnungen zu prüfen, ob und in welche Richtung bestimmte Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen ablaufen, bevor man – eventuell dann für chemisch-thermodynamisch ‚unmögliche' Reaktionen reaktionskinetische Betrachtungen anstellt oder sie gar modelliert!

- Es ist – anhand von Vergleichen zwischen gemessenen und modellierten Werten zur räumlich-zeitlichen Entwicklung der chemischen Zusammensetzung der Porenwässer auf Fließstrecken durch BHV-Bereiche – nicht kalibriert

- Es ist nicht auf seine Plausibilität getestet. Dies könnte anhand von Batch-Laborversuchen erfolge, wo gemessenen Werte mit den modellierten Werten der Zusammensetzung von Wässern und Mineralgemischen im Reaktionsgleichgewicht verglichen werden

- Es erlaubt nur Aussagen auf Grundlage der gewählten Parameter-Werte und deren Kombination sowie für die definierten Rand- und Startbedingungen.

Für eine Kalibrierung eines solchen Modells müssten v.a. folgende Daten und Informationen zu den Eigenschaften des BHV-Bereichs beigebracht werden. Dabei sollen diese Daten und Informationen sowohl die initialen Verhältnisse (vor dem Beginn der Füllung des Hohlraumanteils mit zutretendem Tiefengrundwasser) als auch deren zeitliche Entwicklung unter *in situ* Bedingungen und in räumlicher Verteilung angeben:

- Abstandsgeschwindigkeiten und Fließzeiten des Porenwassers, die abhängen von
  - den hydraulischen Gradienten im BHV-Bereich
  - dem Durchlässigkeitsbeiwert im BHV-Bereich
  - der Porosität im BHV-Bereich

- Molmengen der einzelnen Bestandteile des versetzten Reststoff-Mineralphasengemischs, die abhängen von
  - der mineralischen Zusammensetzung der versetzten Reststoffe
  - der Porosität des Versatzes
  - dem Anteil der Molmengen des versetzten Reststoff-Mineralphasengemischs im BHV-Bereich, der für die Reaktion mit Porenwasser zur Verfügung steht

- Art der sich potentiell bei den Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen neubildenden Mineralphasen

- Chemische Zusammensetzung des dem BHV-Bereich zutretenden Tiefengrundwassers

- Chemische Zusammensetzung des Porenwassers auf der Fließstrecke durch den BHV-Bereich.

Es ist fraglich, insbesondere in der Langzeitperspektive, ob und in wie weit diese Anforderungen an eine Kalibrierung auch praktisch zu erfüllen sind. Als realistisch anzusehen ist folgende Vorgehensweise: Ein erster Schritt beim weiteren Vorgehen, mit dem die Aussagesicherheit des PHRREQC-Modells ‚1D-Stoffransport bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des Quellterms' gestärkt werden könnte, wäre die Durchführung einer Plausibilitätsprüfung des hydrogeochemischen Modells. Eine solche Plausibilitätsprüfung der PHREEQC-Modellierungen kann – aus offensichtlichen Gründen – nicht auf einer beobachteten, mit gemessenen Werten zur räumlich-langzeitlichen Entwicklung der chemischen Zusammensetzung

von Wässern in Reaktionskontakt mit BHV-ähnlichen Mineralphasengemischen beruhen, eben weil keine Messwerte dazu vorliegen und diese für eine lange Zeit noch nicht vorliegen werden. Eine jedoch rein prinzipielle hydrogeochemische Entwicklung, die losgelöst von räumlichen-zeitlichen Dimensionen – sozusagen ‚Null-dimensional' – betrachtet wird, ist ein ausreichend aussagekräftiges hydrogeochemisches Signal für eine Plausibilitätsprüfung. Ein solches Signal kann bei aufeinander abgestimmten ‚Becherglas-Versuchen' im Labor und – dazu vollständig analog aufgebauten – PHREEQC-‚Batch'-Modellierungen erzeugt werden.

Die Plausibilitätsprüfung besteht darin, die ‚im Labor' bei ‚Becherglas-Versuchen' gemessen Werte (Stoffkonzentrationsveränderungen in wässrigen Lösungen und dazugehörige chemisch-mineralogische Veränderungen der BHV-ähnlichen Mineralphasengemische durch Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen) mit den durch die PHREEQC Batch-Modellierung erzeugten Werten zu vergleichen. Als plausibel sollten Ergebnisse solcher Batch-Modellierungen akzeptiert werden, die mit dem chemisch-thermodynamischen Ansatz der Einstellung von Gleichgewichten (entsprechend den verwendeten Gleichgewichtskonstanten) hinreichend exakt die beobachteten bzw. gemessenen Stoffkonzentrationsveränderungen in den wässrigen Lösungen, die chemisch-mineralogischen Veränderungen der BHV-ähnlichen Mineralphasengemische und damit die Wirkung der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen nachvollziehen können. Als Maßstab zur Bewertung einer ‚hinreichenden Exaktheit' können die ‚Exaktheit und Reproduzierbarkeit' der gemessenen Werte genutzt werden. Plausible ‚Batch'-Modellierungen, welche die bei Becherglasversuchen gemessene Wirkung der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen nachvollziehen können, dürfen genutzt werden, um daraus – zusammen mit einem geohydraulischen Modellteil (Zelllänge, Zeitschritt, Abstandsgeschwindigkeit) – den hydrogeochemischen Modellteil eines 1D-PHREEQC-Modells des reaktiven Stofftransports aufzubauen.

Die Projektpartner delta h und Prof. [redacted] haben eine solche Vorgehensweise zur Plausibilitätsprüfung bei der PHREEQC-Modellierung des 1D-Stofftransports von Uran mit Flutungswässern der Uranerzgrube ‚Königstein' (Bundeseigene WISMUT GmbH) erfolgreich eingesetzt. Damit liegen Erfahrungen vor, die auf den BHV-Bereich – prinzipiell – übertragbar wären.

5.7.3.4 Das PHREEQC-Modell des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms' - Eingabedatei

Dem konzeptionellen Modell entsprechend aufgebaut ist die PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10') für die Fließstrecke von 10 Meter durch den BHV-Bereich (Tabelle 15).

Tab. 15: Ein-dimensionales PHREEQC-Modell für die Stofffreisetzung im BHV-Bereich und den reaktiven, advektiv-diffusiven Transport von Stoffen auf einer Fließstrecke von 10 Metern durch diesen BHV-Bereich (Kommentierte Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10')

```
TITLE 1D_AdvektionDiffusion_10

PRINT
-reset false # es wird keine umfangreiche Ausgabedatei erzeugt

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O +12.0000 H+  =  + 2.0000 Al+++ + 3.0000 SO4-- + 6.0000
Ca++ + 38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H       -382.451       kJ/mol #    Calculated    enthalpy    of    reaction
        Ettringite
#       Enthalpy of formation: -4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H       17.4347 kJ/mol  # Calculated enthalpy of reaction    Sylvite
#       Enthalpy of formation: -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H       0              # Not possible to calculate enthalpy of reaction
        Glauberite
#       Enthalpy of formation: 0 kcal/mol

SELECTED_OUTPUT
-file 1D_AdvektionDiffusion_10.xls
#-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
#Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
#Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite
#Dolomite Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydromagnesite
#Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite
#Melanterite Mirabilite Nahcolite Natron Nesquehonite Phillipsite Pyrite Siderite
#Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenardite Thermonatrite
#Trona Witherite Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
#Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
#Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
#Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
#Smithsonite Bianchite Sphalerite Zincite(c) Zincosite Zn(OH)2-a Zn(OH)2-b Zn(OH)2-c
#Zn(OH)2-e Zn(OH)2-g Zn2(OH)2SO4 Zn2(OH)3Cl Zn3O(SO4)2 Zn4(OH)6SO4 Zn5(OH)8Cl2
#ZnCl2 ZnCO3:H2O ZnMetal ZnO(a) ZnS(a) ZnSiO3 ZnSO4:H2O
-totals Li Pb Zn Al Ba C(4) Ca Cl Fe K Mg Mn Na S(6) S(-2) Si Sr
-water

SOLUTION 0        # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
                  # im Löslichkeitsgleichgewicht mit Quartz, Kaolinite, Calcite,
                  #Siderite, Pyrite
                  # tritt dem BHV-Körper zu und durchströmt ihn
-pH     6.316
-pe    -2.493
-temp   39.0
-density 1.0976              # gemessen
```

```
-units  mol/kgw
Al                  8.706e-09
Ba                  1.871e-02
Br                  1.882e-03
C                   1.267e-03
Ca                  2.368e-01
Cl                  2.542e+00
Fe                  5.945e-04
K                   1.140e-02
Mg                  9.462e-02
Mn                  2.091e-05
Na                  1.819e+00
Pb                  2.509e-07
S                   4.131e-05
Si                  7.148e-05
Sr                  5.646e-03
Zn                  8.364e-08
Li                  1.000e-09    # Tracer

SOLUTION 1-10   # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
                # im Löslichkeitsgleichgewicht mit Quartz, Kaolinite, Calcite, Siderite,
                #Pyrite
                 # füllt vor dem Beginn der Durchströmung des BHV-Körpers dessen
                 #Hohlraumanteil in den 10 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke
-pH     6.316
-pe    -2.493
-temp   39.0
-density 1.0976              # gemessen
-units  mol/kgw
Al                  8.706e-09
Ba                  1.871e-02
Br                  1.882e-03
C                   1.267e-03
Ca                  2.368e-01
Cl                  2.542e+00
Fe                  5.945e-04
K                   1.140e-02
Mg                  9.462e-02
Mn                  2.091e-05
Na                  1.819e+00
Pb                  2.509e-07
S                   4.131e-05
Si                  7.148e-05
Sr                  5.646e-03
Zn                  8.364e-08

EQUILIBRIUM_PHASES 1-10 # 10 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
Quartz                0.0  0.09 dissolve_only # Reststoff-bürtig
Halite                0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Sylvite         0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Ca2Cl2(OH)2:H2O 0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Ettringite            0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Portlandite     0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Glauberite      0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Anhydrite       0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Calcite         0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Cerrusite       0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
Smithsonite     0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
#Quartz               0.0 23.4 dissolve_only  # Verstürztes Nebengestein & Kondit.
#Calcite        0.0  0.1                # Verstürztes Nebengestein & Kondit.
Kaolinite       0.0  1.0                # Verstürztes Nebengestein & Kondit.
Siderite        0.0  0.010              # Verstürztes Nebengestein & Kondit.
Pyrite          0.0  0.001              # Verstürztes Nebengestein & Kondit.
#------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia       0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)      0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite         0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK           0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite         0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime        0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite       0.0  0.0  # PbSO4
#Annite         0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite      0.0  0.0  # CaAl2Si2O8
Aragonite       0.0  0.0  # CaCO3
```

```
Artinite          0.0   0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite            0.0   0.0  # BaSO4
Basaluminite      0.0   0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite       0.0   0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite         0.0   0.0  # AlOOH
Brucite           0.0   0.0  # Mg(OH)2
Celestite         0.0   0.0  # SrSO4
#CH4(g)           0.0   0.0  # CH4
Chalcedony        0.0   0.0  # SiO2
#Chlorite14A      0.0   0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A       0.0   0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile       0.0   0.0  # Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite   0.0   0.0  # MgSiO3
#CO2(g)           0.0   0.0  # CO2
Cotunnite         0.0   0.0  # PbCl2
Cristobalite      0.0   0.0  # SiO2
#Diaspore         0.0   0.0  # AlOOH
#Diopside         0.0   0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite          0.0   0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite          0.0   0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)        0.0   0.0  # Fe(OH)3
#Fe3(OH)8         0.0   0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)         0.0   0.0  # FeS
#Forsterite       0.0   0.0  # Mg2SiO4
Galena            0.0   0.0  # PbS
Gibbsite          0.0   0.0  # Al(OH)3
#Goethite         0.0   0.0  # FeOOH
#Greenalite       0.0   0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite         0.0   0.0  # Fe3S4
Gypsum            0.0   0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)            0.0   0.0  # H2
#H2O(g)           0.0   0.0  # H2O
#H2S(g)           0.0   0.0  # H2S
#Hematite         0.0   0.0  # Fe2O3
Huntite           0.0   0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite    0.0   0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite    0.0   0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite           0.0   0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)      0.0   0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K        0.0   0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na       0.0   0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH         0.0   0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite         0.0   0.0  # AlOHSO4
#Kmica            0.0   0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite         0.0   0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite       0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite        0.0   0.0  # PbOHCl
#Leonhardite      0.0   0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge          0.0   0.0  # PbO
#Mackinawite      0.0   0.0  # FeS
Magadiite         0.0   0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite        0.0   0.0  # Fe2O3
Magnesite         0.0   0.0  # MgCO3
#Magnetite        0.0   0.0  # Fe3O4
Massicot          0.0   0.0  # PbO
Melanterite       0.0   0.0  # FeSO4:7H2O
Minium            0.0   0.0  # Pb3O4
Mirabilite        0.0   0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0   0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0   0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca   0.0   0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite         0.0   0.0  # NaHCO3
Natron            0.0   0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite      0.0   0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)            0.0   0.0  # O2
Pb(OH)2           0.0   0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl        0.0   0.0  # Pb2(OH)3Cl
Pb2O(OH)2         0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3             0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3           0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4           0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3          0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4          0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4       0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
```

```
Pb4O3SO4          0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal           0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O        0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3            0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite       0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite       0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite        0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite       0.0   0.0  # 46.82  PbO2
#Prehnite         0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite     0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite        0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)     0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)   0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel         0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)           0.0   0.0  # SiO2
Strontianite      0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur            0.0   0.0  # S
#Talc             0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite        0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite     0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite        0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona             0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite        0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite         0.0   0.0  # BaCO3
Bianchite         0.0   0.0  # ZnSO4:6H2O
Sphalerite        0.0   0.0  # ZnS
#Zincite(c)        0.0   0.0 # ZnO
Zincosite         0.0   0.0  # ZnSO4
Zn(OH)2-a         0.0   0.0
Zn(OH)2-b         0.0   0.0
Zn(OH)2-c         0.0   0.0
Zn(OH)2-e         0.0   0.0
Zn(OH)2-g         0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4       0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl        0.0   0.0
Zn3O(SO4)2        0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4       0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2       0.0   0.0
ZnCl2             0.0   0.0
ZnCO3:H2O         0.0   0.0
ZnMetal           0.0   0.0
ZnO(a)            0.0   0.0
ZnS(a)            0.0   0.0
#ZnSiO3           0.0   0.0
ZnSO4:H2O         0.0   0.0
#Willemite         0.0   0.0  # Zn2SiO4
#Wurtzite          0.0   0.0  # ZnS

TRANSPORT
-cells                          10
-lengths                        10*1.0          # Meter
#-dispersivities                0.05            # Meter
-diffusion_coefficient          1.0e-10
-flow_direction                 forward
-boundary_conditions            flux flux
-time_step                      3153.6e05       # Sekunden = 10 Jahre
-shifts                         5000
END
```

Für die Fließstrecken von 25, 50 und 100 Meter durch den BHV-Bereich werden – im Vergleich zur Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10' lediglich folgende Zeilen in den Eingabedateien ‚1D_AdvektionDiffusion_25',‚1D_AdvektionDiffusion_50' und ‚1D_AdvektionDiffusion_100' geändert:

```
SOLUTION 1-25   # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
SOLUTION 1-50   # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
SOLUTION 1-100  # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)

EQUILIBRIUM_PHASES 1-25  # 25 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
EQUILIBRIUM_PHASES 1-50  # 50 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
EQUILIBRIUM_PHASES 1-100 #100 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper

-cells                              25
-lengths                            25*1.0        # Meter

-cells                              50
-lengths                            50*1.0        # Meter

-cells                              100
-lengths                            100*1.0       # Meter
```

Die zugehörigen Modellierungsergebnisse für die Eingabedateien ‚1D_AdvektionDiffusion_10', ‚1D_AdvektionDiffusion_25',‚1D_AdvektionDiffusion_50' und ‚1D_AdvektionDiffusion_100' sind mit den Abbildungen 45 bis 48 dargestellt – hinsichtlich der Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des jeweils letzten der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche.

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten hohe Zinkkonzentrationen von 37 mg/kgw (entspricht ~ 37 mg/l) nach einigen wenigen PWA (ca. 15) erstmals bei Durchströmung des BHV-Bereichs auf. Diese Belastung der Porenwässer hält über einige PWA an (ca. 5) und geht zurück auf eine Belastung mit Zinkkonzentrationen, die sich rhythmisch zwischen ca. 6 und 0,2 mg/kgw verändert – innerhalb der folgenden PWA.

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten hohe Bleikonzentration von 30 mg/kgw (entspricht ~ 30 mg/l) nach 360 PWA erstmals bei der Durchströmung des BHV-Bereichs auf. Diese Belastung der Porenwässer hält über ca. 20 PWA an und geht zurück auf eine Belastung mit Bleikonzentrationen, die sich zunächst auf ca. ein mg/kgw und danach auf Werte unterhalb von 0,5 mg/kgw vermindert. Zur Einordnung dieser berechneten Konzentrationsentwicklung: In den Tiefengrundwässern des Bergwerkes ‚Haus Aden/Monopol', in den Teufen mit BHV-Bereichen, traten – nach Analysen von Wedewardt, 1995 – Mittelwerte der Zinkkonzentration von 0,5 mg/l auf. Alle gemessenen Bleikonzentrationen lagen unterhalb von 0,5 mg/l (die damalige Bestimmungsgrenze lag bei Wedewardt (1995) bei sehr hohen 0,5 mg/).

An den Projektpartner delta h wird als ‚Quellterm' für die Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' des BHV-Bereichs eine EXCEL-Datei übergeben, die für jeden der 5000 Zeitschritte mit den PWA die berechneten Werte in dem letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich für u.a. folgende Parameter in der angibt:

Am Ende der 25 Meter langen Fließstrecke durch den BHV-Bereich zeigt sich die in der Abbildung 45 dargestellte zeitliche Entwicklung der Porenwasserzusammensetzung.

Tab. 16: ‚Quellterm' (ausschnittsweise) für die Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich
N: Anzahl der Porenwasseraustausche der gesamten Fließstrecke; WFVkum: Kumulierte Wasser/Feststoff-Verhältnis; Konzentrationsangaben in mol/kgw, falls nicht anders angegeben
Zusätzlich angegeben, hier jedoch als Platzgründen nicht dargestellt, sind neben den Konzentrationen von Lithium (Tracer), Blei und Zink die Konzentrationen von Aluminium, Barium, Karbonatkohlenstoff, Calcium, Chlorid, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat, Sulfid, Silizium, und Sr sowie der pe-Wert.

Zelle/Reaktor	N [-]	WFVkum [-]	step	pH [-]	pe	Li	Pb	cBlei [mg/kgw]	Zn	cZink [mg/kgw]
10	15.3	0.30387	153	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	0.019	3.02E-05	1.971
10	15.4	0.30586	154	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	0.019	3.02E-05	1.971
10	15.5	0.30785	155	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	0.019	3.02E-05	1.971
10	15.6	0.30983	156	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	0.019	3.02E-05	1.971
10	15.7	0.31182	157	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	0.019	3.02E-05	1.971
10	15.8	0.31380	158	7.99406	-4.30008	1.00E-09	1.74E-06	0.361	2.55E-04	16.645
10	15.9	0.31579	159	7.76866	-4.02898	1.00E-09	4.92E-06	1.020	5.67E-04	37.096
10	16.0	0.31778	160	7.76425	-4.02367	1.00E-09	5.02E-06	1.041	5.77E-04	37.688
10	16.1	0.31976	161	7.76412	-4.02351	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.2	0.32175	162	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.3	0.32373	163	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.4	0.32572	164	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.5	0.32771	165	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.6	0.32969	166	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.7	0.33168	167	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.8	0.33366	168	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	16.9	0.33565	169	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.0	0.33764	170	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.1	0.33962	171	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.2	0.34161	172	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.3	0.34360	173	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.4	0.34558	174	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.5	0.34757	175	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.6	0.34955	176	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.7	0.35154	177	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.8	0.35353	178	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	17.9	0.35551	179	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	18.0	0.35750	180	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	18.1	0.35948	181	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707
10	18.2	0.36147	182	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	1.042	5.77E-04	37.707

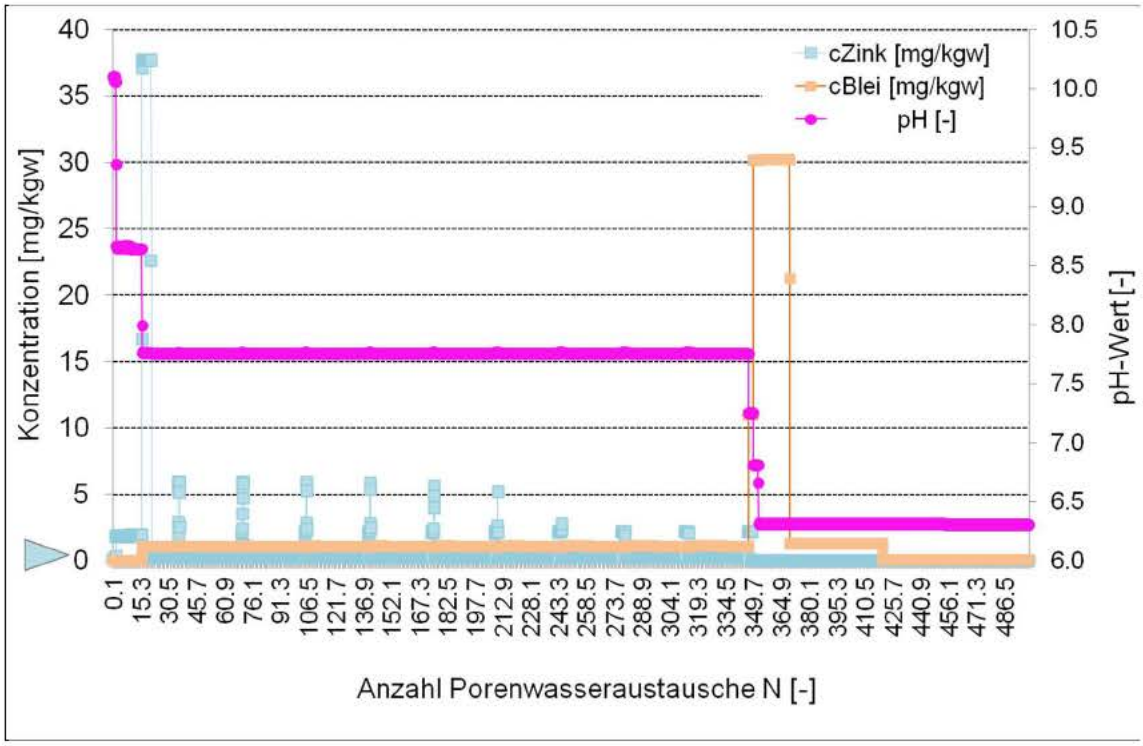


Abb. 45: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10'[112]

[112] Zeit auf der Zeitachse mit dem ‚Tausender Trennungsstrich'; Anzahl Porenwasseraustausche: Dezimalpunkt entspricht dem Dezimalkomma

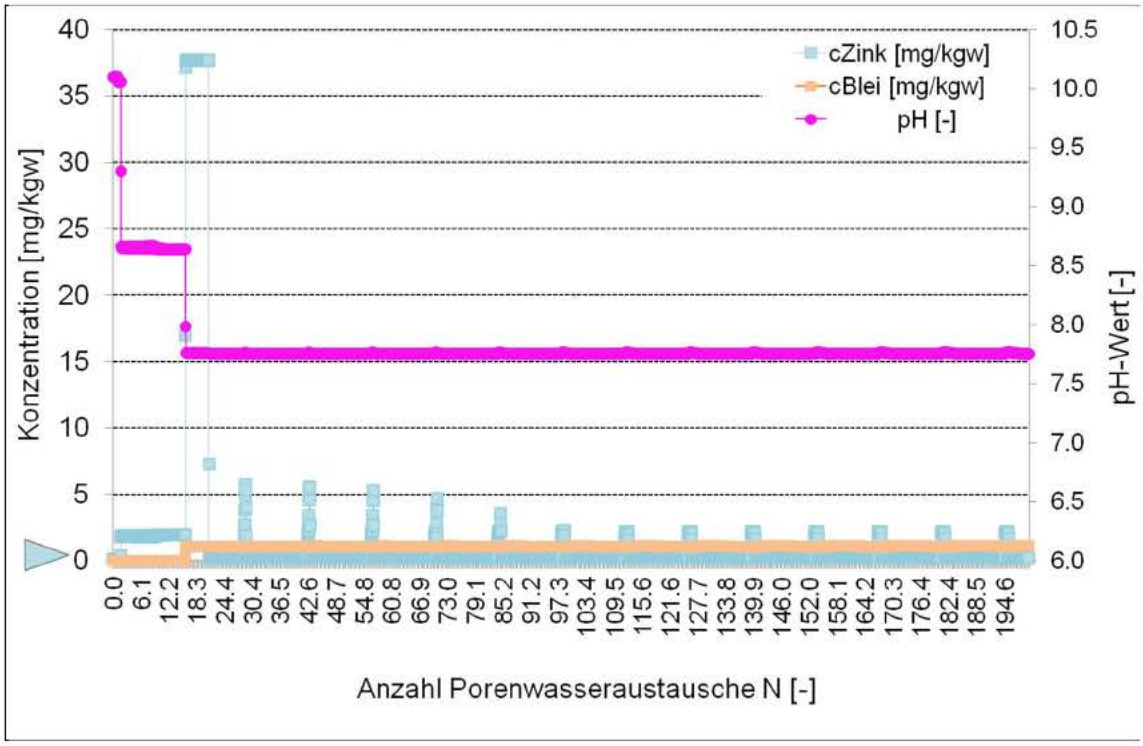


Abb. 46: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 25.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_25'

An den Projektpartner delta h wird als ‚Quellterm' für die Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' des BHV-Bereichs eine EXCEL-Datei übergeben, die für jeden der 5.000 Zeitschritte die berechneten Werte in dem letzten (im 25.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 25 Metern durch den BHV-Bereich für die zuvor genannten Parameter angibt.

Am Ende der 50 Meter langen Fließstrecke durch den BHV-Bereich zeigt sich die in der Abbildung 47 dargestellte zeitliche Entwicklung der Porenwasserzusammensetzung.

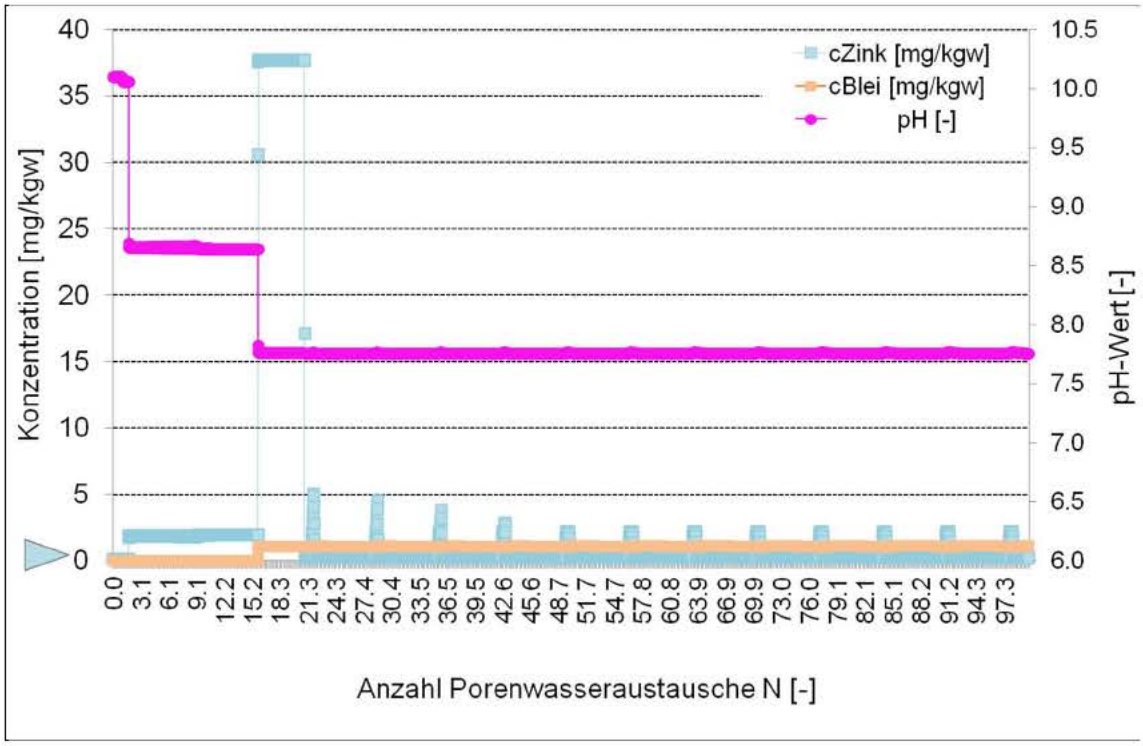


Abb. 47: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 50.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_50'

An den Projektpartner delta h wird als ‚Quellterm' für die Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' des BHV-Bereichs eine EXCEL-Datei übergeben, die für jeden der 5.000 Zeitschritte die berechneten Werte in dem letzten (im 50.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 50 Metern durch den BHV-Bereich für die zuvor genannten Parameter angibt.

Am Ende der 100 Meter langen Fließstrecke durch den BHV-Bereich zeigt sich die in der Abbildung 48 dargestellte zeitliche Entwicklung der Porenwasserzusammensetzung.

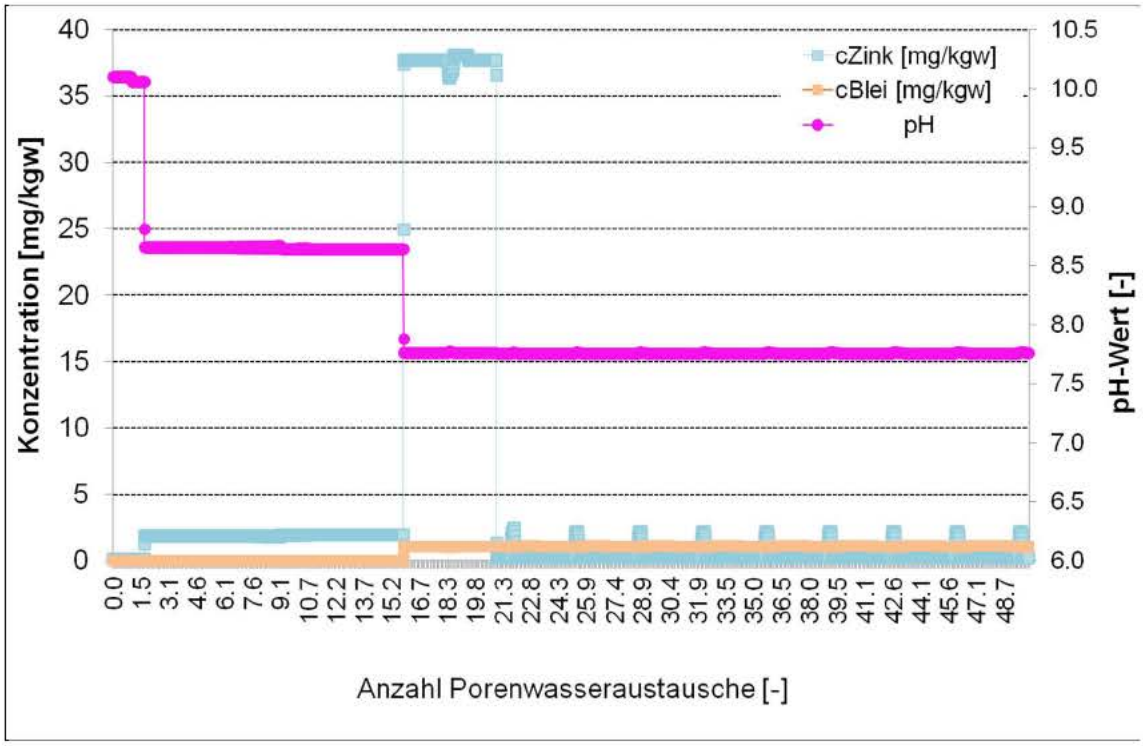


Abb. 48: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 100.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche. Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_100'

An den Projektpartner delta h wird als ‚Quellterm' für die Modellierung der Stoffausbreitung im ‚Nah- und Fernfeld' des BHV-Bereichs eine EXCEL-Datei übergeben, die für jeden der 5.000 Zeitschritte die berechneten Werte in dem letzten (im 100.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 100 Metern durch den BHV-Bereich für die zuvor genannten Parameter angibt.

Die Abbildungen 45 bis 48 machen deutlich, dass sich bei sonst gleicher Parametrisierung und bezogen auf die chemische Zusammensetzung der Porenwässer am Ende der jeweiligen Fließstrecke mit der Zunahme der Länge der Fließstrecke durch den BHV-Bereich

- die auftretenden Niveaus der Zink- und Bleikonzentrationen nicht ändern (weil sich pH-abhängig Löslichkeitsgleichgewichte einstellen),

- das Auftreten der Zink- und Bleikonzentrationen zwar zu gleichen Anzahlen der PWA erfolgt, aber sich zu absolut späteren Zeitpunkten hin verschiebt, weil ein PWA für die 10 Meter Fließstrecke weniger Zeit in Anspruch nimmt als ein PWA für den kompletten Austausch des Porenwassers auf der 100 Meter Fließstrecke,

- das Auftreten der hohen Zink- und Bleikonzentrationen über eine größere Anzahl von PWA bzw. eine größere Zeitspanne anhält und

- das Auftreten der hohen Zink- und Bleikonzentrationen an eine identische Entwicklung der pH-Werte zu niedrigeren pH-Niveaus gebunden ist (siehe dazu auch Kap. 5.7.1 und 5.7.2).

Das Standardszenario mit 15 Meter Fließstrecke und 20 Jahren Fließzeit

Der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft hat mit seinen Modellierungen zur instationären und 3D-Strömung des Tiefengrundwassers (Detailbericht 5) konkrete Abstandsgeschwindigkeiten für die Porenwässer innerhalb der BHV-Bereiche berechnet. Damit ist es möglich, für die verschiedenen BHV-Bereiche (BHV_1_1 bis BHV_3_9) die unterschiedlichen Fließzeiten (in Jahren) und Fließstrecken (in Metern) des Tiefengrundwassers/Porenwassers durch den jeweiligen BHV-Bereich anzugeben und den hier im Detailbericht 4 verwendeten PWA konkrete Zeitmaßstäbe zuzuordnen.

Aus den Ergebnissen dieser Modellierungen hat die delta h Ingenieurgesellschaft eine (über alle BHV-Bereiche) mittlere Fließzeit von 34 Jahren für eine mittlere Fließstrecke von 15 Meter durch die BHV-Bereiche ermittelt. Unter Berücksichtigung der dort auf dieser Fließstrecke zur Reaktion mit Porenwässern kommenden Mengen der rückstandsbürtigen Mineralphasen des Versatzes (Anteil 10%; Annahme) ist damit das Standardszenario „1D_15_34_Standard“ für die Modellierung definiert. Dafür ist die entsprechende PHREEQC-Eingabedatei (1D_15_34_Standard; Tabelle 16) aufgebaut sowie der ‚Quellterm‘ berechnet worden (Tabelle 17).

Tab. 17: Eingabedatei 1D_15_34_Standard

```
TITLE 1D_15_34_Standard

PRINT
-reset false # es wird keine umfangreiche Ausgabedatei erzeugt

PHASES  # from llnl.dat
Ettringite
        Ca6Al2(SO4)3(OH)12:26H2O  +12.0000  H+   =   + 2.0000  Al+++  + 3.0000  SO4--  + 6.0000  Ca++  +
38.0000 H2O
        log_k           62.5362
        -delta_H -382.451 kJ/mol   # Calculated enthalpy of reaction Ettringite
#       Enthalpy of formation:    -4193 kcal/mol
        -analytic -1.0576e+003 -1.1585e-001 5.9580e+004 3.8585e+002 1.0121e+003
#       -Range:  0-200

Ca2Cl2(OH)2:H2O
       Ca2Cl2(OH)2:H2O +2.0000 H+  =  + 2.0000 Ca++ + 2.0000 Cl- + 3.0000 H2O
        log_k           26.2901
        -delta_H 0               # Not possible to calculate enthalpy of reaction  Ca2Cl2(OH)2:H2O
#       Enthalpy of formation:    0 kcal/mol

Sylvite
        KCl  =  + 1.0000 Cl- + 1.0000 K+
        log_k           0.8459
        -delta_H 17.4347  kJ/mol   # Calculated enthalpy of reaction Sylvite
#       Enthalpy of formation:    -104.37 kcal/mol
        -analytic -8.1204e+001 -3.3074e-002 8.2819e+002 3.6014e+001 1.2947e+001
#       -Range:  0-300

Glauberite
        Na2Ca(SO4)2  =  + 1.0000 Ca++ + 2.0000 Na+ + 2.0000 SO4--
        log_k           -5.4690
        -delta_H 0               # Not possible to calculate enthalpy of reaction  Glauberite
#       Enthalpy of formation:    0 kcal/mol

SELECTED_OUTPUT
```

```
-file 1D_AdvektionDiffusion_15_StandardSzenario.xls
#-equilibrium_phases Quartz Halite Sylvite Ca2Cl2(OH)2:H2O Ettringite Portlandite
#Glauberite Anhydrite Calcite Al(OH)3(a) AlumK Alunite Analcime Aragonite
#Artinite Barite Basaluminite Brucite Celestite Chalcedony Cristobalite
#Dolomite Epsomite Fe(OH)3(a) Gibbsite Gypsum Huntite Hydromagnesite
#Jarosite(ss) Jarosite-K Jarosite-Na JarositeH Jurbanite Kaolinite Magadiite Magnesite
#Melanterite Mirabilite Nahcolite Natron
#Nesquehonite Phillipsite Pyrite Siderite Silicagel SiO2(a) Strontianite Sulfur Thenardite
#Thermonatrite
#Trona Witherite
#Cerrusite Galena Laurionite Pb(OH)2 Phosgenite
#Anglesite Cotunnite Hydrocerrusite Larnakite Litharge Massicot Minium
#Pb2(OH)3Cl Pb2O(OH)2 Pb2O3 Pb2OCO3 Pb2SiO4 Pb3O2CO3 Pb3O2SO4
#Pb4(OH)6SO4 Pb4O3SO4 PbMetal PbO:0.3H2O PbSiO3 Plattnerite
#Smithsonite Bianchite Sphalerite Zincite(c) Zincosite Zn(OH)2-a Zn(OH)2-b Zn(OH)2-c
#Zn(OH)2-e Zn(OH)2-g
#Zn2(OH)2SO4     Zn2(OH)3Cl Zn3O(SO4)2  Zn4(OH)6SO4 Zn5(OH)8Cl2  ZnCl2 ZnCO3:H2O ZnMetal
#ZnO(a) ZnS(a) ZnSiO3 ZnSO4:H2O  CdMetal Cd(gamma) Otavite CdCl2 CdCl2:H2O CdCl2:2.5H2O
-totals Li Pb Zn Al Ba C(4) Ca Cl Fe K Mg Mn Na S(6) S(-2) Si Sr
#-water

SOLUTION 0      # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
                # im Löslichkeitsgleichgewicht mit Quartz, Kaolinite, Calcite, Siderite, Pyrite
                # tritt dem BHV-Körper zu und durchströmt ihn
-pH     6.316
-pe    -2.493
-temp    39.0
-density 1.0976               # gemessen
-units   mol/kgw
Al                 8.706e-09
Ba                 1.871e-02
Br                 1.882e-03
C                  1.267e-03
Ca                 2.368e-01
Cl                 2.542e+00
Fe                 5.945e-04
K                  1.140e-02
Mg                 9.462e-02
Mn                 2.091e-05
Na                 1.819e+00
Pb                 2.509e-07
S                  4.131e-05
Si                 7.148e-05
Sr                 5.646e-03
Zn                 8.364e-08
Li                 1.000e-09    # Tracer

SOLUTION 1-15 # Tiefengrundwasser/HausAden/Z2/Ohne B, J, Li, N(-3) und N(5)
# im Löslichkeitsgleichgewicht mit Quartz, Kaolinite, Cal#cite, Siderite, Pyrite
# füllt vor dem Beginn der Durchströmung des BHV-Körpers dessen Hohlraumanteil
# in den 15 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke
-pH     6.316
-pe    -2.493
-temp    39.0
-density 1.0976               # gemessen
-units   mol/kgw
Al                 8.706e-09
Ba                 1.871e-02
Br                 1.882e-03
C                  1.267e-03
Ca                 2.368e-01
Cl                 2.542e+00
Fe                 5.945e-04
K                  1.140e-02
Mg                 9.462e-02
Mn                 2.091e-05
Na                 1.819e+00
Pb                 2.509e-07
S                  4.131e-05
Si                 7.148e-05
Sr                 5.646e-03
Zn                 8.364e-08

EQUILIBRIUM_PHASES 1-15 # 15 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
Quartz           0.0  0.09 dissolve_only # Reststoff-bürtig
Halite           0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Sylvite          0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Ca2Cl2(OH)2:H2O  0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Ettringite       0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Portlandite      0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Glauberite       0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Anhydrite        0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Calcite          0.0  0.05               # Reststoff-bürtig
Cerrusite        0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
```

```
Smithsonite      0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
#Quartz          0.0 23.4 dissolve_only  # Verstürztes Nebengestein & Flotationsberge
#Calcite         0.0  0.1                # Verstürztes Nebengestein & Flotationsberge
Kaolinite        0.0  1.0                # Verstürztes Nebengestein & Flotationsberge
Siderite         0.0  0.010              # Verstürztes Nebengestein & Flotationsberge
Pyrite           0.0  0.001              # Verstürztes Nebengestein & Flotationsberge
#-------------------------- Potentielle sekundäre Phasen (ohne führendes #-Zeichen)
#Adularia        0.0  0.0  # KAlSi3O8
Al(OH)3(a)       0.0  0.0  # Al(OH)3
#Albite          0.0  0.0  # NaAlSi3O8
AlumK            0.0  0.0  # KAl(SO4)2:12H2O
Alunite          0.0  0.0  # KAl3(SO4)2(OH)6
Analcime         0.0  0.0  # NaAlSi2O6:H2O
Anglesite        0.0  0.0  # PbSO4
#Annite          0.0  0.0  # KFe3AlSi3O10(OH)2
#Anorthite       0.0  0.0  # CaAl2Si2O8
Aragonite        0.0  0.0  # CaCO3
Artinite         0.0  0.0  # MgCO3:Mg(OH)2:3H2O
Barite           0.0  0.0  # BaSO4
Basaluminite     0.0  0.0  # Al4(OH)10SO4
#Beidellite      0.0  0.0  # (NaKMg0.5)0.11Al2.33Si3.67O10(OH)2
#Boehmite        0.0  0.0  # AlOOH
Brucite          0.0  0.0  # Mg(OH)2
Celestite        0.0  0.0  # SrSO4
#CH4(g)          0.0  0.0  # CH4
Chalcedony       0.0  0.0  # SiO2
#Chlorite14A     0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chlorite7A      0.0  0.0  # Mg5Al2Si3O10(OH)8
#Chrysotile      0.0  0.0  # Mg3Si2O5(OH)4
#Clinoenstatite  0.0  0.0  # MgSiO3
#CO2(g)          0.0  0.0  # CO2
Cotunnite        0.0  0.0  # PbCl2
Cristobalite     0.0  0.0  # SiO2
#Diaspore        0.0  0.0  # AlOOH
#Diopside        0.0  0.0  # CaMgSi2O6
Dolomite         0.0  0.0  # CaMg(CO3)2
Epsomite         0.0  0.0  # MgSO4:7H2O
Fe(OH)3(a)       0.0  0.0  # Fe(OH)3
#Fe3(OH)8        0.0  0.0  # Fe3(OH)8
#FeS(ppt)        0.0  0.0  # FeS
#Forsterite      0.0  0.0  # Mg2SiO4
Galena           0.0  0.0  # PbS
Gibbsite         0.0  0.0  # Al(OH)3
#Goethite        0.0  0.0  # FeOOH
#Greenalite      0.0  0.0  # Fe3Si2O5(OH)4
#Greigite        0.0  0.0  # Fe3S4
Gypsum           0.0  0.0  # CaSO4:2H2O
#H2(g)           0.0  0.0  # H2
#H2O(g)          0.0  0.0  # H2O
#H2S(g)          0.0  0.0  # H2S
#Hematite        0.0  0.0  # Fe2O3
Huntite          0.0  0.0  # CaMg3(CO3)4
Hydrocerrusite   0.0  0.0  # Pb(OH)2:2PbCO3
Hydromagnesite   0.0  0.0  # Mg5(CO3)4(OH)2:4H2O
#Illite          0.0  0.0  # K0.6Mg0.25Al2.3Si3.5O10(OH)2
Jarosite(ss)     0.0  0.0  #(K0.77Na0.03H0.2)Fe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-K       0.0  0.0  # KFe3(SO4)2(OH)6
Jarosite-Na      0.0  0.0  # NaFe3(SO4)2(OH)6
JarositeH        0.0  0.0  #(H3O)Fe3(SO4)2(OH)6
Jurbanite        0.0  0.0  # AlOHSO4
#Kmica           0.0  0.0  # KAl3Si3O10(OH)2
Larnakite        0.0  0.0  # PbO:PbSO4
#Laumontite      0.0  0.0  # CaAl2Si4O12:4H2O
Laurionite       0.0  0.0  # PbOHCl
#Leonhardite     0.0  0.0  # Ca2Al4Si8O24:7H2O
Litharge         0.0  0.0  # PbO
#Mackinawite     0.0  0.0  # FeS
Magadiite        0.0  0.0  # NaSi7O13(OH)3:3H2O
#Maghemite       0.0  0.0  # Fe2O3
Magnesite        0.0  0.0  # MgCO3
#Magnetite       0.0  0.0  # Fe3O4
Massicot         0.0  0.0  # PbO
Melanterite      0.0  0.0  # FeSO4:7H2O
Minium           0.0  0.0  # Pb3O4
Mirabilite       0.0  0.0  # Na2SO4:10H2O
#Montmorillonite-Aberdeen    0.0  0.0  #(HNaK)0.14Mg0.45Fe0.33Al1.47Si3.82O10(OH)2
#Montmorillonite-BelleFourche    0.0  0.0  #(HNaK)0.09Mg0.29Fe0.24Al1.57Si3.93O10(OH)2
#Montmorillonite-Ca  0.0  0.0  # Ca0.165Al2.33Si3.67O10(OH)2
Nahcolite        0.0  0.0  # NaHCO3
Natron           0.0  0.0  # Na2CO3:10H2O
Nesquehonite     0.0  0.0  # MgCO3:3H2O
#O2(g)           0.0  0.0  # O2
Pb(OH)2          0.0  0.0  # Pb(OH)2
Pb2(OH)3Cl       0.0  0.0  # Pb2(OH)3Cl
```

```
Pb2O(OH)2          0.0   0.0  # PbO:Pb(OH)2
Pb2O3              0.0   0.0  # Pb2O3
Pb2OCO3            0.0   0.0  # PbO:PbCO3
Pb2SiO4            0.0   0.0  # Pb2SiO4
Pb3O2CO3           0.0   0.0  # PbCO3:2PbO
Pb3O2SO4           0.0   0.0  # PbSO4:2PbO
Pb4(OH)6SO4        0.0   0.0  # Pb4(OH)6SO4
Pb4O3SO4           0.0   0.0  # PbSO4:3PbO
PbMetal            0.0   0.0  # Pb
PbO:0.3H2O         0.0   0.0  # PbO:0.33H2O
PbSiO3             0.0   0.0  # PbSiO3
Phillipsite        0.0   0.0  # Na0.5K0.5AlSi3O8:H2O
#Phlogopite        0.0   0.0  # KMg3AlSi3O10(OH)2
Phosgenite         0.0   0.0  # PbCl2:PbCO3
Plattnerite        0.0   0.0  # 46.82  PbO2
#Prehnite          0.0   0.0  # Ca2Al2Si3O10(OH)2
#Pyrophyllite      0.0   0.0  # Al2Si4O10(OH)2
#Sepiolite         0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Sepiolite(d)      0.0   0.0  # Mg2Si3O7.5OH:3H2O
#Siderite(d)(3)    0.0   0.0  # FeCO3
Silicagel          0.0   0.0  # SiO2
SiO2(a)            0.0   0.0  # SiO2
Strontianite       0.0   0.0  # SrCO3
Sulfur             0.0   0.0  # S
#Talc              0.0   0.0  # Mg3Si4O10(OH)2
Thenardite         0.0   0.0  # Na2SO4
Thermonatrite      0.0   0.0  # Na2CO3:H2O
#Tremolite         0.0   0.0  # Ca2Mg5Si8O22(OH)2
Trona              0.0   0.0  # NaHCO3:Na2CO3:2H2O
#Wairakite         0.0   0.0  # CaAl2Si4O12:2H2O
Witherite          0.0   0.0  # BaCO3
Bianchite          0.0   0.0  # ZnSO4:6H2O
Sphalerite         0.0   0.0  # ZnS
#Zincite(c)         0.0   0.0 # ZnO
Zincosite          0.0   0.0  # ZnSO4
Zn(OH)2-a          0.0   0.0
Zn(OH)2-b          0.0   0.0
Zn(OH)2-c          0.0   0.0
Zn(OH)2-e          0.0   0.0
Zn(OH)2-g          0.0   0.0
Zn2(OH)2SO4        0.0   0.0
Zn2(OH)3Cl         0.0   0.0
Zn3O(SO4)2         0.0   0.0
Zn4(OH)6SO4        0.0   0.0
Zn5(OH)8Cl2        0.0   0.0
ZnCl2              0.0   0.0
ZnCO3:H2O          0.0   0.0
ZnMetal            0.0   0.0
ZnO(a)             0.0   0.0
ZnS(a)             0.0   0.0
#ZnSiO3            0.0   0.0
ZnSO4:H2O          0.0   0.0
#Willemite          0.0   0.0  # Zn2SiO4
#Wurtzite           0.0   0.0  # ZnS


TRANSPORT
-cells                          15
-lengths                        15*1.0          # Meter
#-dispersivities                0.05            # Meter
-diffusion_coefficient          1.0e-10
-flow_direction                 forward
-boundary_conditions            flux flux
-time_step                      71.4816e06  # Sekunden = 2.26666 a (pro Meter)(bzw 15X2.27 = 34 a)
-shifts                         6000
END
```

Tab. 18: Der mit der Eingabedatei „1D_15_34_Standard“ für das Standardszenario berechnete Quellterm (auszugsweise mit dem beginnenden Konzentration-Peak von Zn)
N: Anzahl der Porenwasseraustausche der gesamten Fließstrecke von 15 Meter; Konzentrationsangaben in mol/kgw, falls nicht anders angegeben. Zusätzlich angegeben, hier jedoch als Platzgründen nicht dargestellt, sind neben den Konzentrationen von Lithium (Tracer), Blei und Zink die Konzentrationen von Aluminium, Barium, Karbonatkohlenstoff, Calcium, Chlorid, Kalium, Magnesium, Mangan, Natrium, Sulfat, Sulfid, Silizium, und Sr sowie der pe-Wert.

Zelle/Reaktor	N [-]	step	pH	pe	Li	Pb	Zn	cPb [mg/kgw]	cZn [mg/kgw]
15	15.6	234	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	3.02E-05	1 85E-02	1.97E+00
15	15.7	235	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	3.02E-05	1 85E-02	1.97E+00
15	15.7	236	8.6423	-5.07829	1.00E-09	8.94E-08	3.02E-05	1 85E-02	1.97E+00
15	15.8	237	8.60068	-5.02836	1.00E-09	1.08E-07	3.42E-05	2 24E-02	2.23E+00
15	15.9	238	7.76502	-4.0246	1.00E-09	5.01E-06	5.75E-04	1.04E+00	3.76E+01
15	15.9	239	7.76412	-4.02351	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.0	240	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.1	241	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.1	242	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.2	243	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.3	244	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.3	245	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.4	246	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.5	247	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.5	248	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.6	249	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.7	250	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.7	251	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.8	252	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.9	253	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	16.9	254	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.0	255	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.1	256	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.1	257	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.2	258	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.3	259	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.3	260	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.4	261	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.5	262	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.5	263	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.6	264	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.7	265	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.7	266	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.8	267	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.9	268	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	17.9	269	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.0	270	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.1	271	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.1	272	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.2	273	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.3	274	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01
15	18.3	275	7.76411	-4.0235	1.00E-09	5.03E-06	5.77E-04	1.04E+00	3.77E+01

Mit dem vollständigen ‚Quellterm‘ für das Standardszenario modelliert der Projektpartner delta h Ingenieurgesellschaft die (nicht-reaktive) Ausbreitung dieser aus den BHV-Bereichen austretenden Porenwässer (Detailbericht 5).

Die Abbildung 49 stellt die Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 15.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche und der entsprechenden Zeit (34 Jahre für einen Porenwasseraustausch) dar.

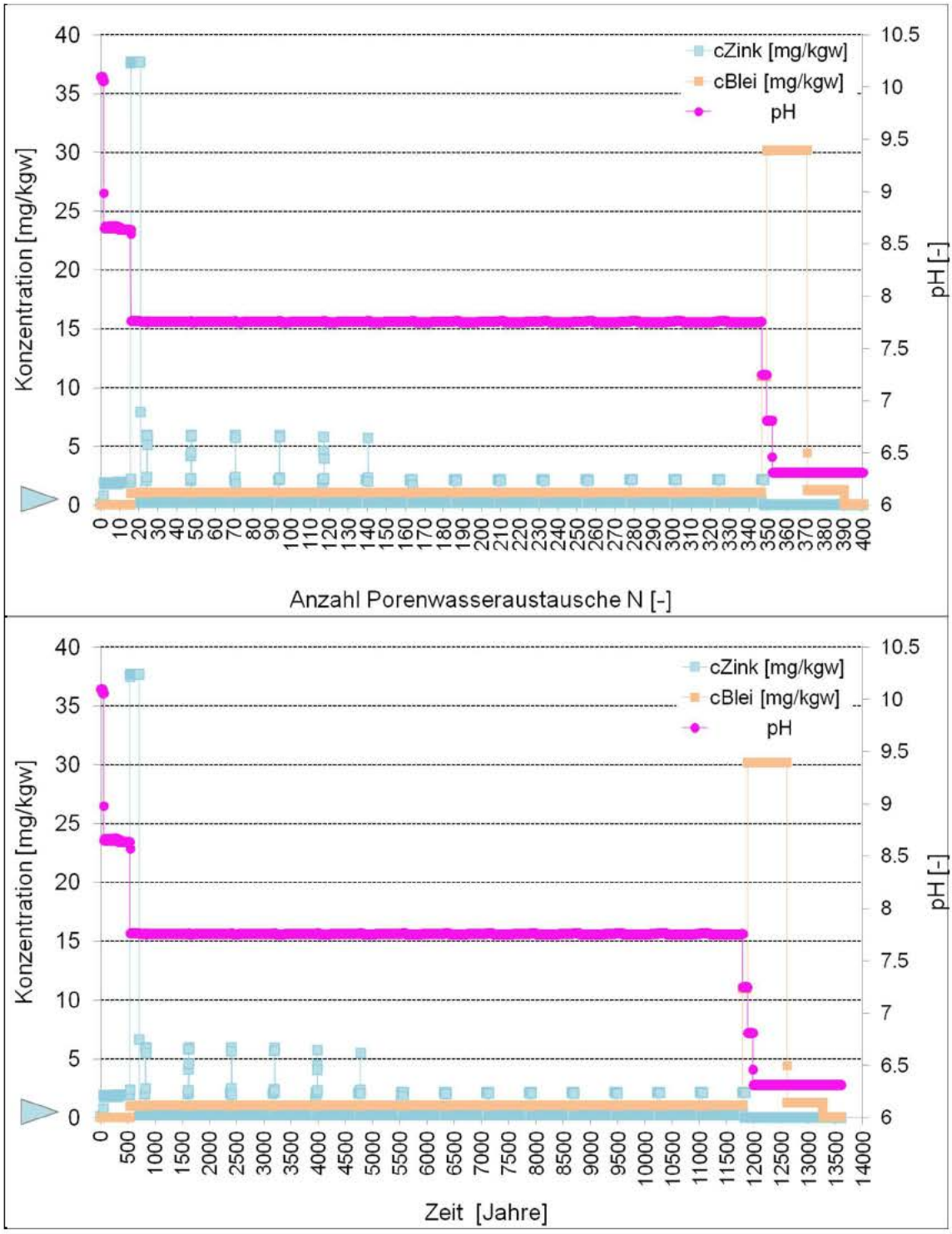


Abb. 49: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 15.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche und der entsprechenden Zeit (34 Jahre für einen Porenwasseraustausch). Eingabedatei „1D_15_34_Standard“

5.7.4 PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol': Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen und Modellerweiterungen

Die auf der Grundlage dieses konzeptionellen Modells errechneten Ergebnisse (Abbildungen 45 bis 47; Tabelle 16) werden vom Zusammenwirken aller im Modell zum Ansatz gebrachten Parameter-Werte bestimmt. Insbesondere die folgend aufgeführten Parameter und ihre Werte sind dabei von großem Einfluss u.a. darauf, zu welchem Zeitpunkt und über welche Zeitspanne ‚relevante' Zink- und Blei-Konzentrationen aus dem BHV-Bereich austreten werden.

- Abstandsgeschwindigkeiten und Fließzeiten des Porenwassers (über 50.000 Jahre Betrachtungszeitraum) in den Zellen/Reaktoren des BHV-Bereichs, die abhängen von
  - den hydraulischen Gradienten
  - dem Durchlässigkeitsbeiwert
  - der Porosität
- Molmengen der einzelnen Bestandteile des versetzten Reststoff-Mineralphasengemischs in den Zellen/Reaktoren des BHV-Bereichs, die abhängen von
  - der Zusammensetzung der versetzten Reststoffe
  - der Porosität in den Zellen/Reaktoren des BHV-Bereichs
  - dem Anteil der Molmengen des versetzten Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischs im BHV-Bereich, der in den Zellen/Reaktoren für die Reaktion mit Porenwasser zur Verfügung steht
- Art der sich potentiell bei den Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen neubildenden Mineralphasen
- Zusammensetzung des dem BHV-Bereich zutretenden Tiefengrundwassers.

Hinzu kommt ein möglicher Einfluss der zusammen mit den Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischen im BHV-Bereich versetzten RAA-Schlämme.

Es ist davon auszugehen, dass alle diese Parameter

- mit ihren Werten in der Zeit veränderlich sind und/oder
- mit ihren (initialen) Werten räumlich inhomogen verteilt sind und/oder
- nicht mit exakten, belegbaren, bekannten Werten quantifiziert werden können.

Für die PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' sind deshalb die jeweiligen Parameter-Werte abgeschätzt bzw. dazu plausible Annahmen getroffen worden (Tabellen 11 bis 14; Konzeptionelles Modell).

Es ist im Rahmen des Auftrags nicht möglich,

- zunächst mit aufwendigen Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen, mit einer großen Zahl von Modellierungen herauszufinden, welche die Prozess-dominierenden Parameter sind, die relativ am stärksten über unterschiedliche Parameter-Werte den Austrag von Zink und Blei beeinflussen und danach

- bei weiteren aufwendigen Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen die Parameter-Werte systematisch, einzeln und in allen (sinnvoll erscheinenden) Kombinationen innerhalb einer großen Spannbreite zu ändern, um zu berechnen, wie die Auswirkungen auf den Austrag von Zink und Blei aus dem modellierten BHV-Bereich dadurch beeinflusst werden.

Deshalb beschränken sich weitere Modellierungsszenarien[113] im Rahnen der Parameterstudien bzw. Sensitivitätsanalysen auf veränderte Molmengen des versetzten Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischs im BHV-Bereich, der in den Zellen/Reaktoren des Modells für die Reaktion mit Porenwasser zur Verfügung steht. In drei Szenarien werden die Annahmen getroffen, dass i) lediglich die Hälfte, ii) lediglich ein Zehntel und iii) das Zehnfache der im Standardszenario (entsprechend Tabellen 11 bis 15) zum Ansatz gebrachten Molmengen des versetzten Reststoff-bürtigen Mineralphasengemischs im BHV-Bereich für die Reaktion mit dem Porenwasser zur Verfügung steht. Das betrifft alle Reststoff-bürtigen Mineralphasen – einschließlich der primären (initial vorhandenen) Zink- und Bleiphasen.

In zusätzlichen Modellierungsszenarien wird getestet, ob ergänzende, im Standardszenario nicht berücksichtigte hydrogeochemische Prozesse

- der Kationenaustausch

- die ‚Sorption' bzw. die Oberflächenkomplexierung an Eisen(III)-Hydroxiden und

- die Anwesenheit calcitischer/sulfatischer RAA-Schlämme (Gipsschlämme)

einen wesentlichen Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich haben.

Veränderte Molmengen des versetzten reststoffbürtigen Mineralphasengemischs im BHV-Bereich

A1) Halbierter Phasenvorrat

Wie alle übrigen Modellierungsszenarien zu veränderten Phasenvorräten wird auch das Modellierungsszenario ‚halbierter Phasenvorrat' für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde. Allerdings wird in

[113] Die Modellierungen zu den unterschiedlich langen Fließstrecken des Porenwassers durch den BHV-Bereich (10, 25, 50 und 100 Meter), die für das 1D-Modell stark vereinfachend die unterschiedlichen Richtungen der real 3D-Durchströmung des BHV-Bereichs abbilden, sind in diesem Sinne ebenfalls Modellierungsszenarien.

den folgenden Abbildungen die Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Blei-Konzentrationen lediglich in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche dargestellt.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (1D_AdvektionDiffusion_10VX0.5) wird hier verzichtet.

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚halbierter Phasenvorrat' sind in der Abbildung 50 dargestellt.

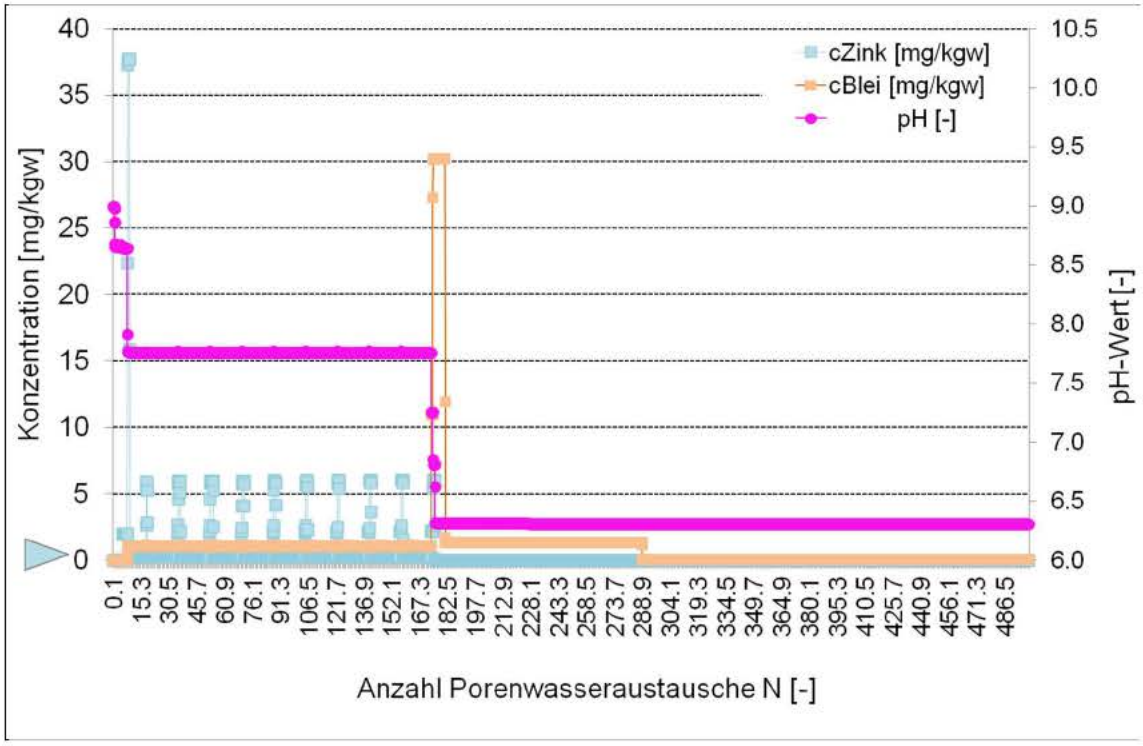


Abb. 50: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚halbierter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX0.5')

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten hohe Zinkkonzentrationen von 37 mg/kgw (entspricht ~ 37 mg/l) schon nach ca. 8 Porenwasseraustauschen (ca. 16 Porenwasseraustausche im Standardszenario; Abbildung 45) der stationären Durchströmung des BHV-Bereichs auf. Diese Belastung der Porenwässer hält über lediglich ein bis zwei Porenwasseraustausche an (ca. 5 Porenwasseraustausche im Standardszenario; Abbildung 45) und geht zurück auf eine Belastung mit Zinkkonzentrationen, die sich rhythmisch zwischen ca. 6 und 0,2 mg/kgw verändert – über ca. 170 Porenwasseraustausche.

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten hohe Bleikonzentration von 30 mg/kgw (entspricht ~ 30 mg/l) nach ca. 175 Porenwasseraustauschen (ca. 350 Porenwasseraustausche im Standardszenario; Abbildung 45) bei der Durchströmung des BHV-Bereichs auf. Diese Belastung der Porenwässer hält über ca. 6 Porenwasseraustausche an und geht zurück auf eine Belastung mit Bleikonzentrationen, die sich zunächst auf ca. ein mg/kgw und danach auf Werte unterhalb von 0,5 mg/kgw vermindert.

Zusammenfassend und im Vergleich zum Standardszenario lässt sich die Auswirkung des halbierten Phasenvorrats auf die Entwicklung der Zink- und Blei-Konzentrationen in Abhängigkeit von der Zeit wie folgt beschreiben.

- Der Austrag von Blei und Zink mit hohen Konzentrationen (ca. 37 bzw. 30 mg/l) erfolgt bei halbiertem Phasenvorrat deutlich früher nach dem Beginn der stationären Durchströmung des BHV-Bereichs.

- Der Austrag von Blei und Zink mit hohen Konzentrationen (ca. 37 bzw. 30 mg/l) hält bei halbiertem Phasenvorrat deutlich kürzer an.

- Das Konzentrationsniveau von Zink und Blei – sowohl der Spitzenkonzentration (ca. 37 bzw. 30 mg/l) wie auch der übrigen Konzentrationen in der Zeit vor und/oder nach der Spitzenkonzentration ist gleich.

A2) Auf ein Zehntel verminderter Phasenvorrat

Wie alle übrigen Modellierungsszenarien zu veränderten Phasenvorräten wird auch das Modellierungsszenario ‚auf ein Zehntel verminderter Phasenvorrat' für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde. Allerdings wird in den folgenden Abbildungen die Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Blei-Konzentrationen lediglich in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche dargestellt.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (1D_AdvektionDiffusion_10VX0.1) wird hier verzichtet.

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚auf ein Zehntel verminderter Phasenvorrat ' sind in der Abbildung 51 dargestellt.

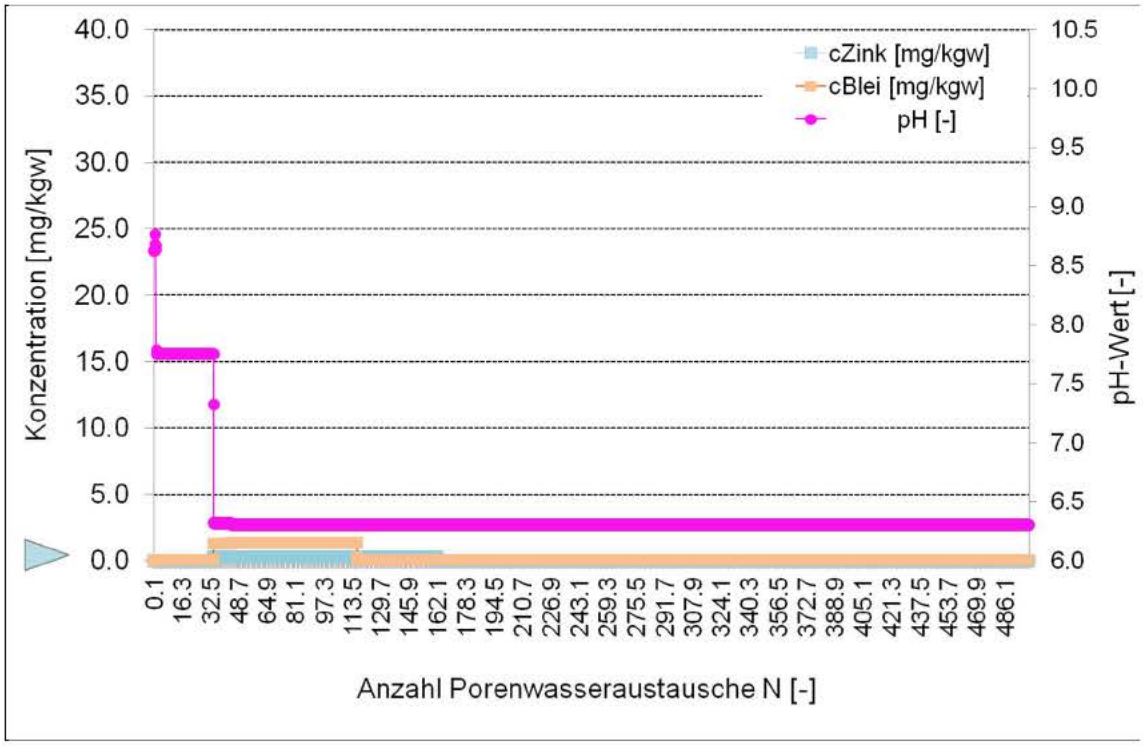


Abb. 51: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs
(Modellierungsszenario ‚auf ein Zehntel verminderter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX0.1')

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten keine hohen Spitzenkonzentrationen von Zink (ca. 37 mg/l; Standardszenario und Szenario ‚halbierter Phasenvorrat') auf. Das gilt entsprechend auch für Blei. Auch die pH-Werte (maximal ca. 8,7) erreichen nicht mehr das hohe Niveau von ca. 10,1 (Standardszenario; Abbildung 45) bzw. 9,0 (Szenario ‚halbierter Phasenvorrat'; Abbildung 49).

Die höchsten auftretenden Konzentrationen liegen bei ca. 0,3 mg/l Zink bzw. 1,3 mg/l Blei. Sie zeigen einen relativ lang anhaltenden Austrag von Zink und von Blei an.

A3) Auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat

Wie alle übrigen Modellierungsszenarien zu veränderten Phasenvorräten wird auch das Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat' für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standard-Szenario gewählt wurde.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10VX10') wird hier verzichtet.

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚halbierter Phasenvorrat' sind in der Abbildung 52 dargestellt.

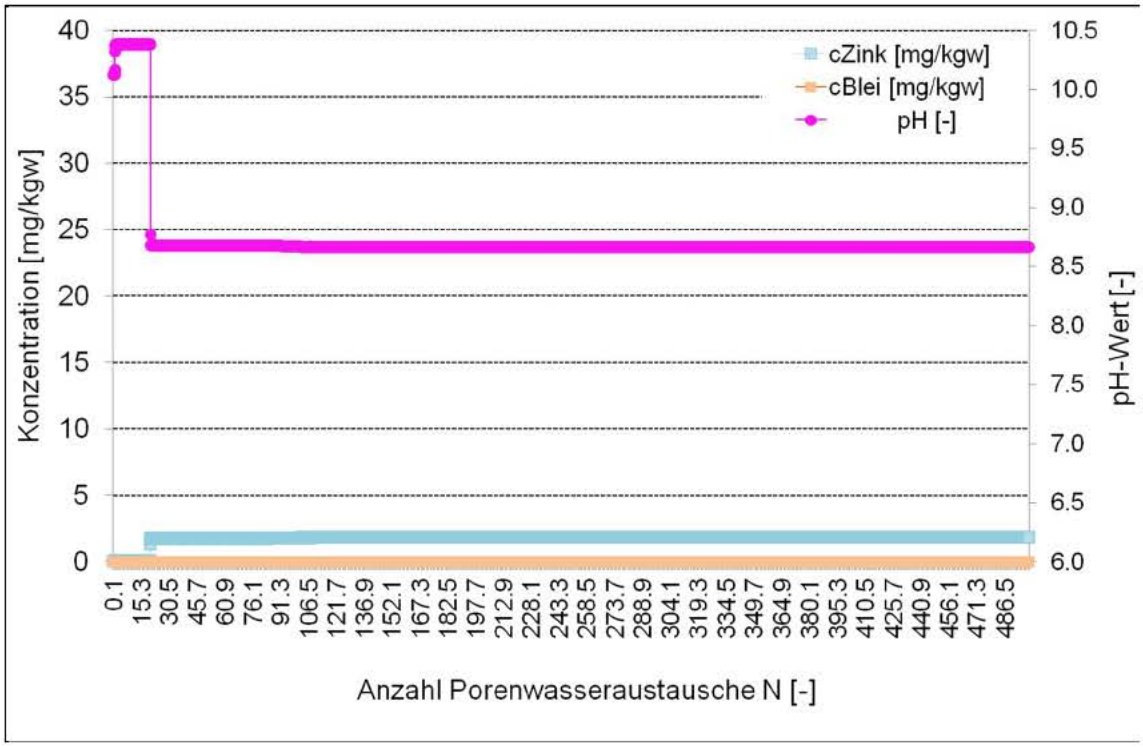


Abb. 52: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs
(Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10VX10')

Im letzten (im 10.) der Reaktoren auf der Fließstrecke von 10 Metern durch den BHV-Bereich treten keine hohen Spitzenkonzentrationen von Zink (ca. 37 mg/l; Standardszenario und Szenario ‚halbierter Phasenvorrat' auf – innerhalb des betrachteten Zeitraumes von 500 Porenwasseraustauschen. Das bedeutet nicht, dass ein solcher Stoffaustrag mit Spitzenkonzentrationen von ca. 37 mg/l gar nicht auftritt. Im Gegenteil, er wird zu späteren Zeitpunkten (> 500 PWA) und dann lang in der Zeit anhaltend auftreten. Das gilt entsprechend auch für Blei.

Innerhalb des betrachteten Zeitraums von 500 Porenwasseraustauschen treten deshalb keine hohen Spitzenkonzentrationen von Zink (ca. 37 mg/l; Standardszenario und Szenario ‚halbierter Phasenvorrat') und von Blei (ca. 30 mg/l; Standardszenario und Szenario ‚halbierter Phasenvorrat') auf, weil das pH-Wertniveau während der 500 Porenwasseraustausche nicht unter pH 8,7 bzw. unter pH 7,7 abfällt. Bei der pH-Werterniedrigung von 8,7 auf 7,8 würde Zink mobilisiert und mit Spitzenkonzentrationen auftreten; bei der pH-Werterniedrigung von 7,8 auf 6,3 würde Blei mobilisiert und mit Spitzenkonzentrationen auftreten.

Die höchsten, innerhalb von 500 Porenwasseraustauschen auftretenden Konzentrationen liegen bei ca. 2 mg/l Zink bzw. 0,02 mg/l Blei, weil die pH-Werte nicht unter 8,7 absinken.

B) Sorption

In den GRS- und DMT-Berichten wurde der ‚Sorption' eine relevante Bedeutung zugeordnet (s. Kapitel 7).

Im Folgenden werden hierzu die Auswirkungen mehrerer Prozesse, die einer ‚Sorption' zugerechnet werden können, abgeschätzt. Hierzu gehören der Kationenaustausch (v.a. an Tonmineralen), der im Reaktionskontakt der Porenwässer mit den Gesteinsbruchstücken innerhalb der BHV-Bereiche eine Rolle spielen kann sowie die Oberflächenkomplexierung an neu gebildeten Eisen(III)hydroxiden.

Berücksichtigung des Kationenaustauschs

Ohne dass dazu Messwerte vorliegen, wird angenommen, dass die gesamte Kationenaustauschkapazität in den einzelnen Reaktoren des 1D Modells entweder bei 1,0 oder bei 10,0 mol liegt.

B1) 1,0 mol Kationenaustauschkapazität in den Reaktoren

Wie alle übrigen Modellierungsszenarien mit berücksichtigter Kationenaustauschkapazität wird auch das Modellierungsszenario ‚1,0 mol Kationenaustauschkapazität' für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10KA') wird hier verzichtet. Es wird in die Eingabedatei für das Standardszenario lediglich eingefügt:

```
EXCHANGE 1-10
X   1.0                    # KAK in moles
-equilibrate 1-10          # Initiale Austauscherbelegung
```

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚1,0 mol Kationenaustauschkapazität' sind in der Abbildung 53 dargestellt. Mit den Ergebnissen des Modellierungsszenarios ‚1,0 mol Kationenaustauschkapazität' (Abbildung 53) zeigt sich, dass eine Kationenaustauschkapazität in der Größenordnung von einem Mol im Reaktor keinen relevanten Einfluss auf die zeitliche Entwicklung der Zink- und Bleikonzentrationen hat.

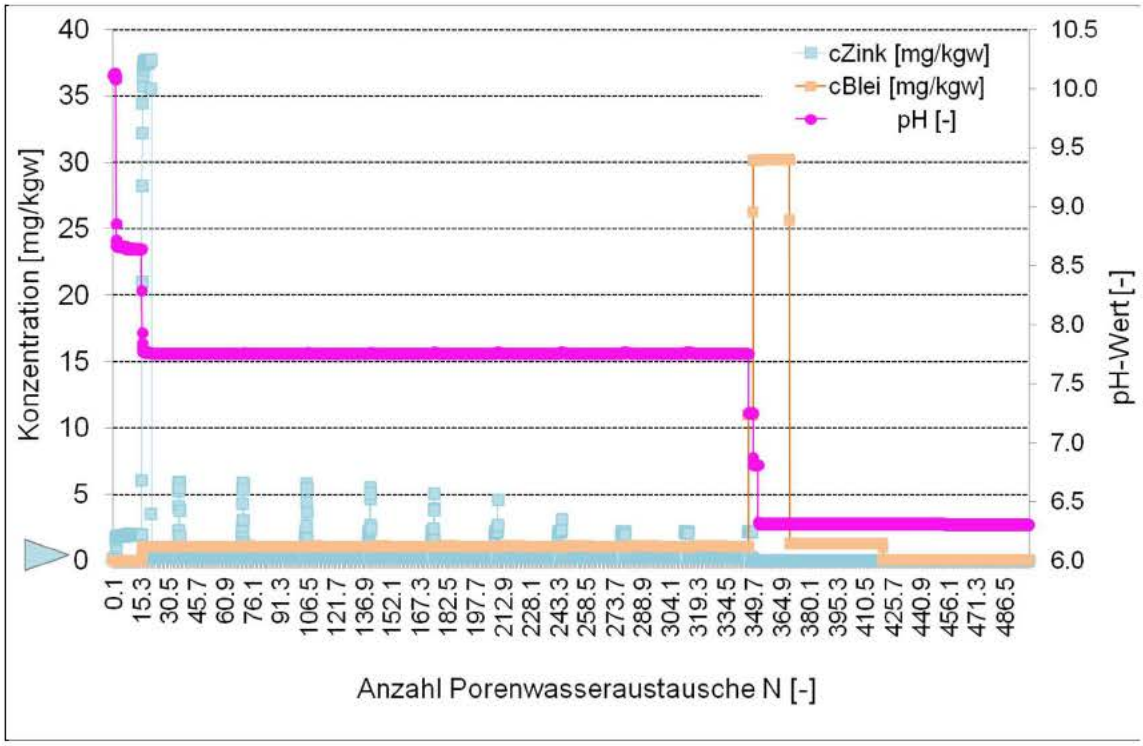


Abb. 53: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs
(Modellierungsszenario ‚1,0 mol Kationenaustauschkapazität'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10KA')

B2) 10,0 mol Kationenaustauschkapazität in den Reaktoren

Wie alle übrigen Modellierungsszenarien mit berücksichtigter Kationenaustauschkapazität wird auch das Modellierungsszenario ‚10,0 mol Kationenaustauschkapazität' für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10KA10') wird hier verzichtet. Es wird in die Eingabedatei für das Standardszenario lediglich eingefügt:

```
EXCHANGE 1-10
X   10.0                    # KAK in moles
-equilibrate 1-10           # Initiale Austauscherbelegung
```

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚10,0 mol Kationenaustauschkapazität' sind in Abbildung 54 dargestellt.

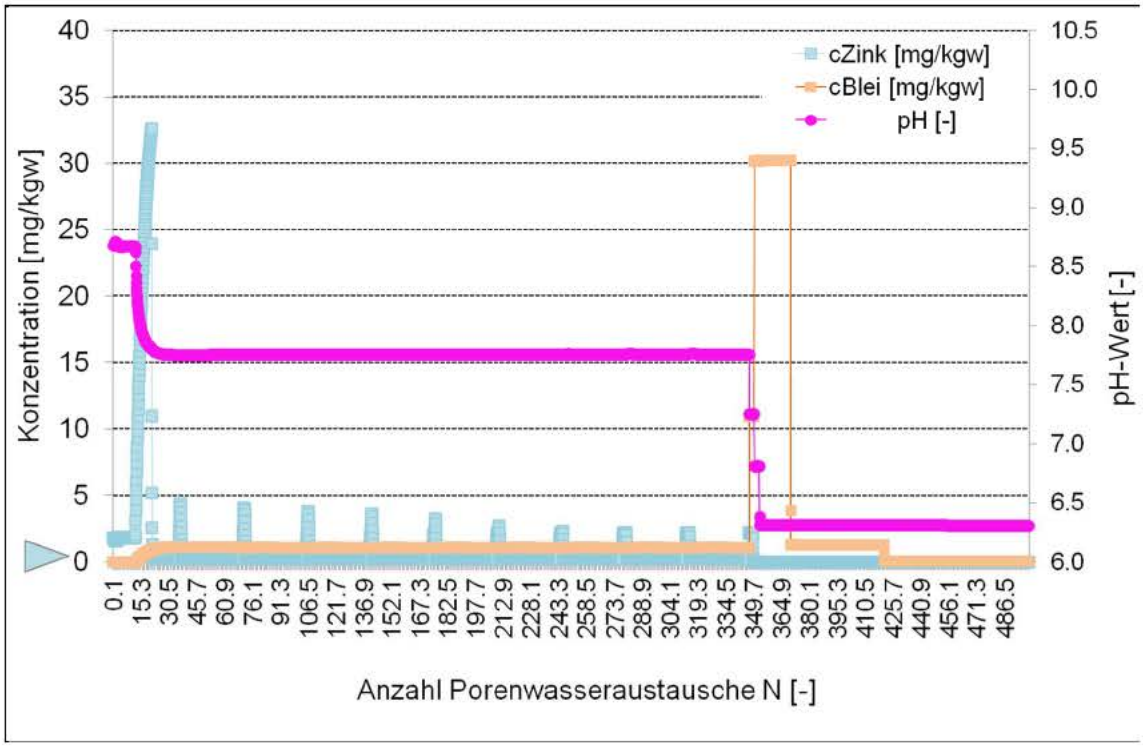


Abb. 54: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs dargestellt (Modellierungsszenario ‚10,0 mol Kationenaustauschkapazität'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10KA10')

Mit den Ergebnissen des Modellierungsszenarios ‚10,0 mol Kationenaustauschkapazität' (Abbildung 54) zeigt sich, dass eine Kationenaustauschkapazität in der Größenordnung von zehn Mol im Reaktor keinen relevanten Einfluss auf die zeitliche Entwicklung der Zink- und Bleikonzentrationen hat. Der schwache Einfluss einer sehr großen Kationenaustauschkapazität macht sich lediglich dahingehend bemerkbar, dass die Spitzenkonzentrationen von Zink nicht ca. 37 mg/l (Standardszenario ohne Kationenaustauschkapazität) sondern nur ca. 33 mg/l erreichen – dafür aber über eine etwas längere Zeitspanne verteilt auftreten, im Vergleich zum Standardszenario. Zudem macht sich der schwache Einfluss einer großen Kationenaustauschkapazität auf den pH-Wert bemerkbar: die hohen Anfangs-pH-Werte von ca. 10,1 (Standardszenario) werden nicht erreicht, es stellen sich anfänglich lediglich pH-Werte um 8,7 ein.

C) Berücksichtigung der Oberflächenkomplexierung an Eisen(III)-Hydroxiden

In einem zusätzlichen Modellierungsszenario wird getestet, ob der im Standardszenario nicht berücksichtigte hydrogeochemische Prozess der ‚Sorption' bzw. der Oberflächenkomplexierung an Eisen(III)-Hydroxiden (Surface_Complexation in der

PHREEQC-Begrifflichkeit) einen wesentlichen Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat.

Auch das Modellierungsszenario ‚mit Surface_Complexation' wird für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde.

Auf die Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10SC') wird hier verzichtet. Es wird in die Eingabedatei für das Standardszenario lediglich eingefügt:

```
SURFACE 1-10
-equilibrate 1-10
       Hfo_w   Fe(OH)3(a) equilibrium_phase 0.91     5.0e4
       Hfo_s   Fe(OH)3(a) equilibrium_phase 0.01
```

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚mit Surface_Complexation' sind in der Abbildung 55 dargestellt.

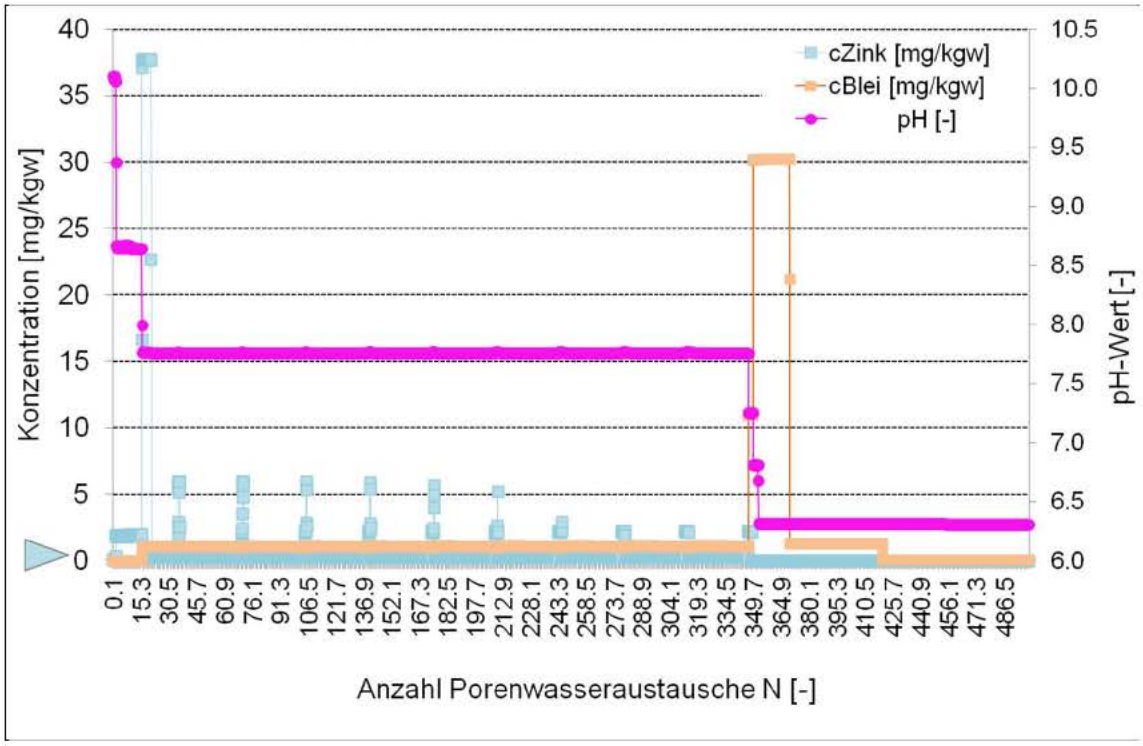


Abb. 55: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚mit Surface_Complexation'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10SC')

Mit den Ergebnissen des Modellierungsszenarios ‚mit Surface_Complexation' (Abbildung 55) zeigt sich, dass hydrogeochemische Prozess der ‚Sorption' bzw. der Oberflächenkomplexierung an Eisen(III)-Hydroxiden keinen relevanten Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat.

Im Kapitel 7 findet sich eine bewertende Stellungnahme zur ‚Sorption'.

D) Berücksichtigung calcitischer/sulfatischer RAA-Schlämme im Versatz

Bei den RAA-Schlämmen handelt es sich überwiegend um Gips-Schlämme aus der Abwasseraufbereitung der Rauchgasentschwefelung (s. Detailbericht 3). Zwar sieht die Aufgabenstellung vor, sich allein auf die Darstellungen in den ‚Basisgutachten' zu beziehen. Dort wird nicht darauf eingegangen, dass die in ‚Haus Aden/Monopol' versetzten rückstandsbürtigen Mineralphasengemische zusammen mit RAA-Schlämmen in BHV-Bereiche verbracht wurden. Trotzdem soll hier mit einem weiteren Modellierungsszenario getestet werden, ob die im Standardszenario nicht berücksichtigte potentielle Reaktion solcher RAA-Schlämme einen wesentlichen Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat.

Auch das Modellierungsszenario ‚mit calcitischen/sulfatischen RAA-Schlämmen' wird für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde.

Auf die vollständige Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei wird hier verzichtet. Es wird in die Eingabedatei für das Standardszenario lediglich geändert:

```
EQUILIBRIUM_PHASES 1-10 # 10 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
Calcite         0.0  0.05              # Reststoff-bürtig
```

zu

```
EQUILIBRIUM_PHASES 1-10 # 10 Zellen/Reaktoren auf der Fließstrecke durch den BHV-Körper
Calcite         0.0  0.5               # Reststoff-bürtig plus RAA (0.05 + 0.45)
```

Die Ergebnisse dieses Modellierungsszenarios sind in der Abbildung 56 dargestellt.

Mit den Ergebnissen des Modellierungsszenarios ‚mit calcitischen RAA-Konditionierungsstoffen' (Abbildung 53) zeigt sich, dass die Anwesenheit von calcitisch/sulfatischen RAA-Schlämmen im BHV-Bereich sowie deren hydrogeochemische Reaktion keinen relevanten Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat.

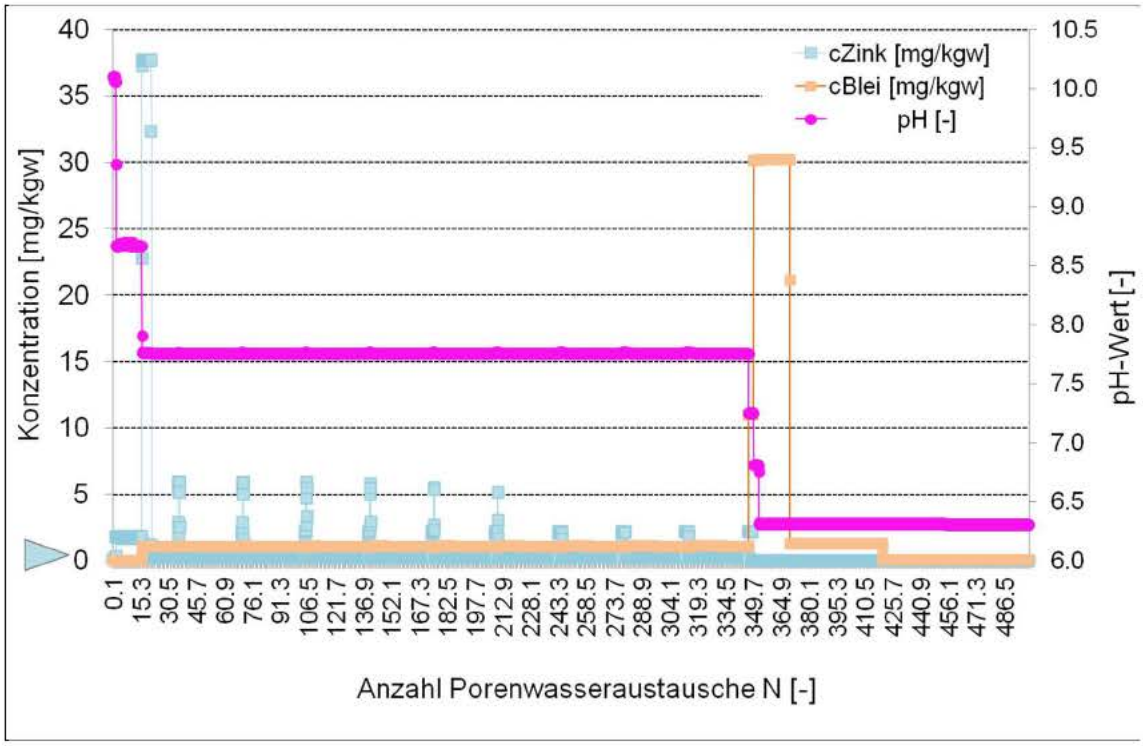


Abb. 56: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚mit calcitischen/sulfatischen RAA-Schlämmen'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10RAA')

E) Veränderte Zusammensetzung des zutretenden Tiefengrundwassers

Mit einem weiteren Modellierungsszenario soll getestet werden, ob eine gegenüber dem Standardszenario veränderte chemische Zusammensetzung des zutretenden Tiefengrundwassers einen wesentlichen Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat. Das entsprechende Modellierungsszenario nutzt ein Tiefengrundwasser, das aus dem Tiefengrundwasser Z2 (Standardszenario) durch Verdünnung mit einem 10%-Volumenanteil der Lösung 2 (‚so gut wie reines Wasser')

```
SOLUTION 2
-pH      6.84
-temp   39.0
#density 1.08  # geschätzt
-units  mmol/l
Na       0.00000001 charge
```

errechnet wurde.

Bei der Gleichgewichtseinstellung dieser verdünnten Mischung mit den primären, im Steinkohlengebirge vorhandenen Mineralphasen

```
EQUILIBRIUM_PHASES 12
# Im Steinkohlengebirge vorhanden; stellen Löslichkeitsgleichgewicht ein
Quartz          0.0 10.0
Kaolinite       0.0 10.0
Calcite         0.0 10.0
Siderite        0.0 10.0
Pyrite          0.0 10.0
```

entwickelt sich das verdünnte Tiefengrundwasser, das den Hohlraumanteil des BHV-Bereichs füllt und ihn durchströmt.

```
-pH     6.397
-pe    -2.589
-temp   39.0
#-density 1.0976               # gemessen
-units  mol/kgw
Al                  1.060e-08
Ba                  1.684e-02
Br                  1.694e-03
C                   1.145e-03
Ca                  2.131e-01
Cl                  2.288e+00
Fe                  5.267e-04
K                   1.026e-02
Mg                  8.516e-02
Mn                  1.882e-05
Na                  1.637e+00
Pb                  2.258e-07
S                   3.718e-05
Si                  7.776e-05
Sr                  5.081e-03
Zn                  7.528e-08
```

Auf die vollständige Darstellung der entsprechenden PHREEQC-Eingabedatei (‚1D_AdvektionDiffusion_10_VerdZ2_B') wird hier verzichtet.

Auch das Modellierungsszenario ‚Verdünnt' wird für die Fließstrecke von 10 Meter gerechnet – die Ergebnisse sind deshalb im Vergleich zur Abbildung 45 zu betrachten. Die Ergebnisse der Modellierung sind deshalb in der Form grafisch dargestellt, wie sie auch in der Abbildung 45 für das Standardszenario gewählt wurde. Allerdings wird in den folgenden Abbildungen die Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Blei-Konzentrationen lediglich in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche dargestellt.

Die Ergebnisse des Modellierungsszenarios ‚Verdünnt' sind in der Abbildung 57 dargestellt.

Mit den Ergebnissen des Modellierungsszenarios ‚1D_AdvektionDiffusion_10_VerdZ2_B' (Abbildung 54) zeigt sich, dass eine veränderte chemische Zusammensetzung des zutretenden Tiefengrundwassers einen erkennbaren, allerdings keinen wesentlichen Einfluss auf den Stoffaustrag von Zink und Blei aus dem Modell-BHV-Bereich hat. Die Spitzenkonzentrationen von Zink und Blei sind leicht vermindert (gegenüber dem Standardszenario), und die Blei-Spitzenkonzentrationen treten erst nach einer größeren Anzahl von Porenwasseraustauschen auf – im Vergleich zum Standardszenario. Die generelle Entwicklung der Stofffreisetzung und des Stoffaustrags aus dem BHV-Bereich entspricht jedoch derjenigen des Standardszenarios.

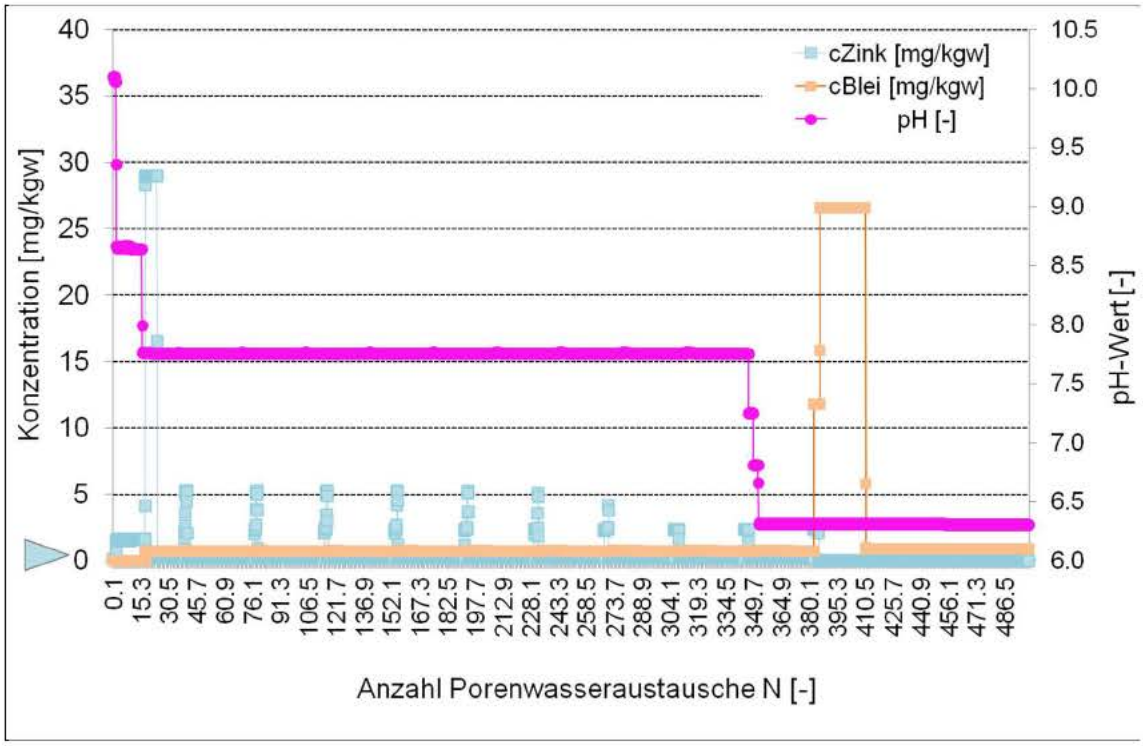


Abb. 57: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink- und Bleikonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs (Modellierungsszenario ‚Verdünnt'; Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10_VerdZ2_B')

5.7.5 Einbeziehung von Cadmium und Quecksilber

Zusätzlich zu den Elementen Zink und Blei wird in diesem Abschnitt das Element Cadmium in die Modellierungen zur Stofffreisetzung und zum Stofftransport innerhalb des BHV-Bereichs einbezogen. Dabei wird davon ausgegangen, ohne dass dazu mit den ‚Basisgutachten' konkrete Hinweise oder Informationen bzw. Daten vorliegen, dass Cadmium – so wie auch Zink und Blei – primär in karbonatischer Bindungsform im rückstandsbürtigen Mineralphasengemisch auftritt. Der Gehalt an Cadmium in dem versetzten rückstandsbürtigen Mineralphasengemisch wird in der Modellierung mit einem Zehntel des Gehalts von Zink und Blei angenommen.

Deshalb enthält die um Cadmium erweiterte Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10_Cd' – im Vergleich zur Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10' (Tabelle 14) die Zeile

```
Otavite          0.0   0.0005              # Reststoff-bürtig
```

zusätzlich zu den Angaben für Blei- und Zink-Karbonat

```
Cerrusite       0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
Smithsonite     0.0  0.005              # Reststoff-bürtig
```

Als potentielle sekundäre Cadmium-Phasen werden in der Eingabedatei ‚1D_AdvektionDiffusion_10_Cd' die Mineralphasen

```
CdMetal
Cd(gamma)
CdCl2
CdCl2:H2O
CdCl2:2.5H2O
Cd(OH)2(a)
Cd(OH)2
CdOHCl
Cd3(OH)4SO4
Cd3(OH)2(SO4)2
Cd4(OH)6SO4
Monteponite
CdSiO3
CdSO4
CdSO4:H2O
CdSO4:2.7H2O
Greenockite
```

berücksichtigt.

Die Abbildung 55 zeigt, wie sich die Cadmium-Konzentration im Porenwasser des letzten (des 10.) Reaktors auf der 10 Meter langen Fließstrecke durch den BHV-Bereich unter diesen Bedingungen mit zunehmendem Porenwasseraustausch entwickeln. Zum Vergleich sind die entsprechenden Entwicklungen der Zink- und der Blei-Konzentrationen dargestellt.

Cadmium zeigt ein dem Zink vergleichbares Stofffreisetzungsverhalten: Zeitlich parallel zum Zink wird es in die Porenwässer freigesetzt (nach ca. 15 Porenwasseraustauschen beginnend) – deutlich vor der Freisetzung des Bleis. Allerdings sind die sich dabei einstellenden Cadmium-Konzentrationen am Ende der Fließstrecke durch den BHV-Bereich mit ca. 0,2 bis 0,3 mg/l deutlich geringer als die entsprechenden Zink-Konzentrationen (ca. 35 bis 40 mg/l).

Kommt jedoch der gesamte Vorrat des Reststoff-bürtigen Mineralgemischs – und damit auch der gesamte Vorrat an Cadmiumkarbonat (Otavite) – in Reaktionskontakt mit dem Porengrundwasser (Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat'), dann können auch Cadmium-Spitzenkonzentrationen im Bereich von wenigen Zehner Milligramm pro Liter (20 bis 25 mg/l) am Ende der Fließstrecke durch den BHV-Bereich auftreten (Abbildung 58; vgl. auch Abbildung 49). Diese Cadmiumfreisetzung erfolgt schon in sehr frühen Phasen des Porenwasseraustauschs.

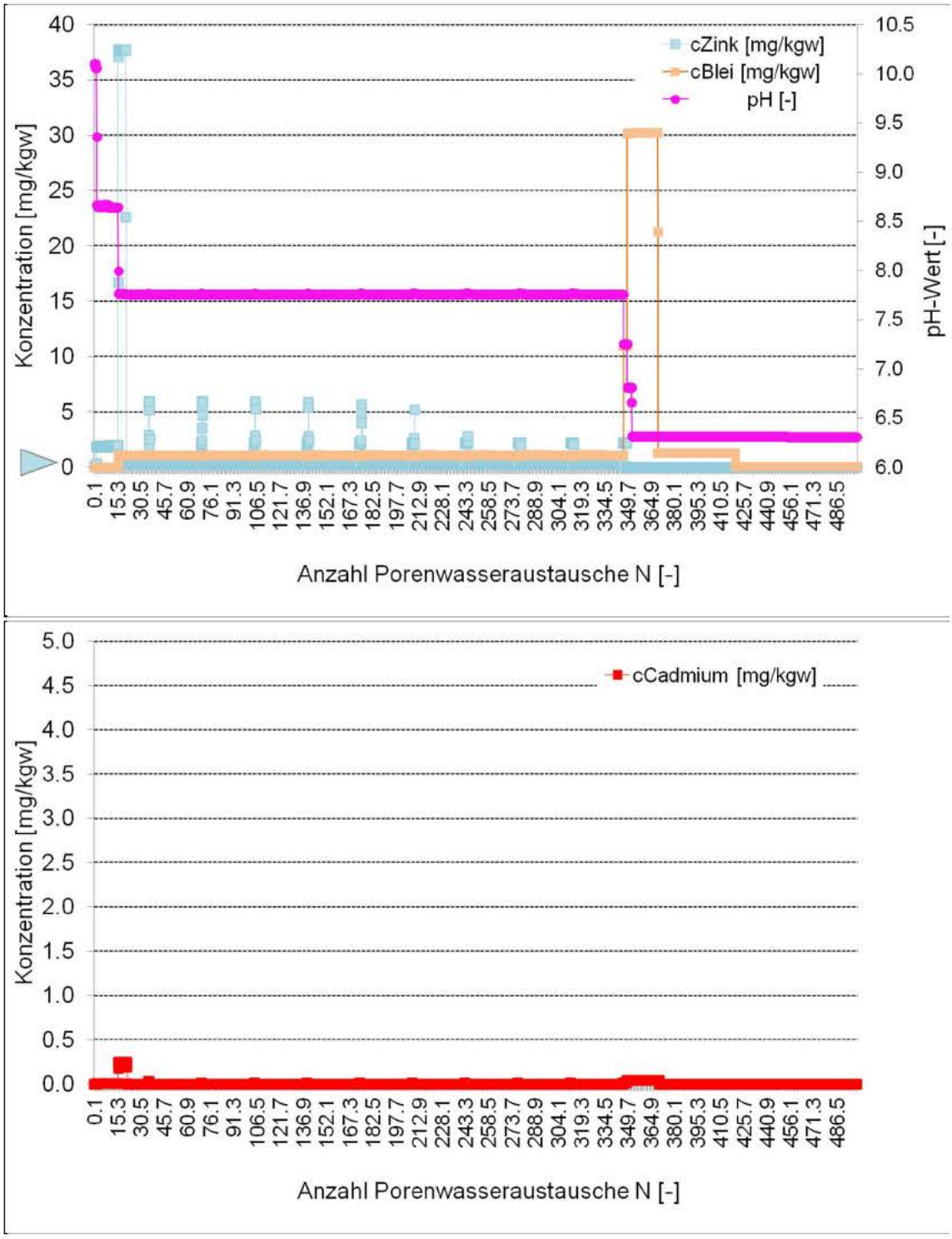


Abb. 58: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink-, Blei- und Cadmiumkonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von Anzahl der Porenwasseraustausche (Eingabedateien ‚1D_AdvektionDiffusion_10' und ‚1D_AdvektionDiffusion_10_Cd')

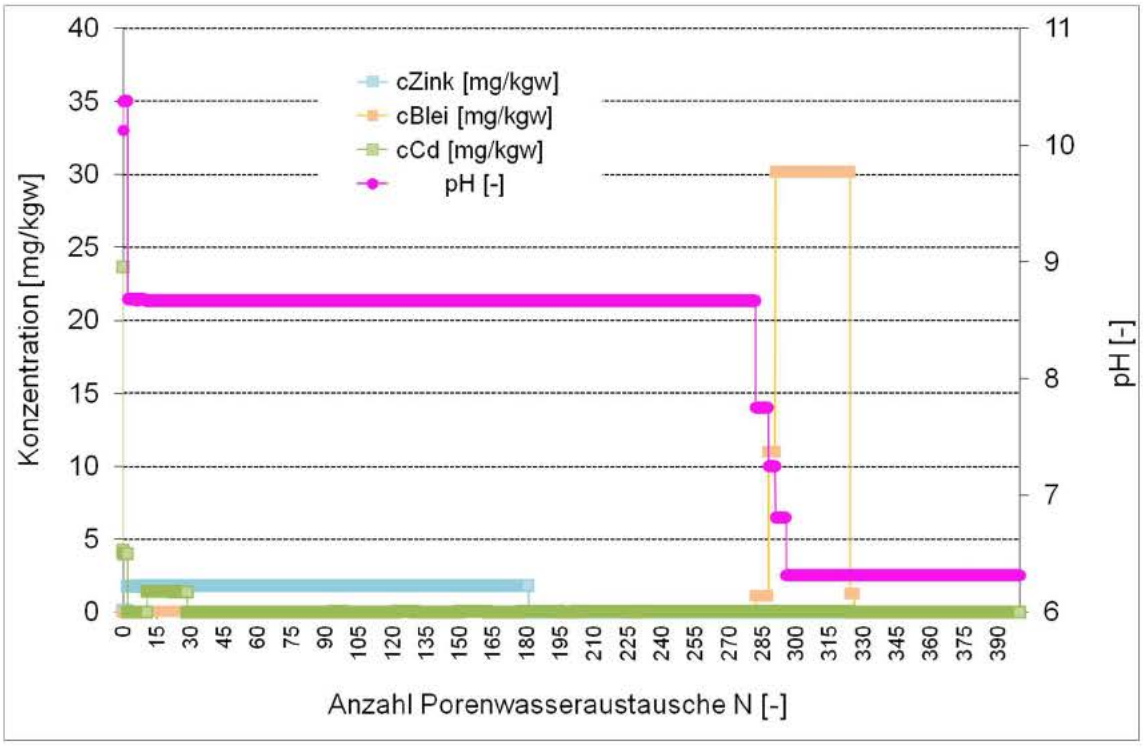


Abb. 59: Entwicklung der pH-Werte sowie der Zink-, Blei- und Cadmiumkonzentrationen in den Porenwässern des letzten (des 10.) der Reaktoren/Zellen auf der Fließstrecke, in Abhängigkeit von der Anzahl der Porenwasseraustausche bei der Durchströmung des BHV-Bereichs. Modellierungsszenario ‚auf das Zehnfache erhöhter Phasenvorrat'

Einbeziehung von Quecksilber

Quecksilber ist in den Reststoffen mit vergleichsweise geringen Gehalten enthalten. In der Bauhöhe Gb2 liegt der Mittelwert bei 6 mg/kg; der Z2-Wert liegt bei 5 mg/kg. Für die anderen Bauhöhen liegen keine Werte vor (s. Detailbericht 3).

Aufgrund der Bedeutung von Quecksilber in der Umweltdiskussion und der sich ergebenden Unsicherheiten wird wird beispielhaft ein ‚Quellterm' für das Element Quecksilber mit einem Ansatz hergeleitet, der auf Worst-case-Annahmen beruht. Hiermit kann die Stofffreisetzung und Stoffausbreitung im BHV-Bereich abgeschätzt werden.

Auf der chemischen Thermodynamik für Reaktionsgleichgewichte beruhende 1D-Stofftransportmodellierungen zeigen, dass die Konzentration von Schwermetallen wie Zink und Blei im Porenwasser, das aus BHV-Bereichen austritt, durch die Einstellung von Löslichkeitsgleichgewichten begrenzt wird: ‚Mehr an einer bestimmten Schwermetall-Mineralphase löst sich nicht unter diesen hydrogeochemischen Bedingungen; die Sättigung des Wassers an dieser Löslichkeits-kontrollierenden Schwermetall-Mineralphase ist erreicht; die Konzentration des Schwermetalls im Porenwasser kann nicht höher werden – unter diesen hydrogeochemischen Bedingungen' (vgl. Kap. 5).

In der Konsequenz dieser Einstellung von Löslichkeits-kontrollierenden Gleichgewichtsreaktionen bestimmter Schwermetall-Mineralphasen wird auch der Zeitpunkt und die Zeitspanne beeinflusst, zu dem und über die die limitierten Konzentrationen freigesetzt werden. So beginnt beispielsweise die Freisetzung der höchsten Bleikonzentrationen erst nach vergleichsweise oftmaligem Porenwasseraustausch (‚spät und stark verzögert') im BHV-Bereich (vgl. Kap. 5).

Der für den ‚Quellterm' des Elementes Quecksilber genutzte ‚worst-case'-Ansatz lässt eine solche ‚Limitierung/Begrenzung/Verzögerung' unberücksichtigt. Dementsprechend wird sich deshalb die gesamte, in einem BHV-Bereich vorhandene Menge des rückstandsbürtigen Elements Quecksilber

- nach kurzer Zeit und

- über lediglich kurze Zeitspannen verteilt und entsprechend konzentriert

in das Porenwasserwasser des BHV-Bereichs freisetzen bzw. darin lösen. Daraus ergibt sich der ‚Worst-case-Quellterm' für solche Bestandteile des anorganischen Stoffinventars, die – aus den zuvor genannten Gründen – einer aussagesicheren, chemisch-thermodynamisch basierten hydrogeochemische Gleichgewichts- und Stofftransportmodellierung zu den Auflösungs-, Umwandlungs- und Fällungsreaktionen in den Rückständen im Kontakt mit Tiefengrundwässern (bei der derzeitigen Daten- und Erkenntnis-Lage) nicht zugänglich sind.

5.7.6 Fazit aus den PHREEQC-Modellierung des 1D-Stoffransports bei der Stofffreisetzung im BHV-Bereich ‚Haus Aden/Monopol' zur Abschätzung des ‚Quellterms'

Die Ergebnisse der hier vorgestellten 1D-Modellierungszenarien erlauben es – von der Größenordnung her und mit Einschränkungen hinsichtlich der Aussagesicherheit – auf die zu erwartenden Stoffausträge aus realen BHV-Bereichen zu schließen. Dabei sind folgende Zusammenhänge von zentraler Bedeutung zu berücksichtigen.

- Die reale Durchströmung des BHV-Bereichs erfolgt instationär in einem 3D-Strömungsfeld, während im Modell die Durchströmung in einem stationärem 1D-Strömungsfeld vereinfachend abgebildet wird. Die sich daraus ergebenden Unterschiede im Stoffaustragsverhalten des BHV-Bereichs werden – näherungsweise – durch die Modellierung der unterschiedlich langen Fließstrecken durch den Modell-BHV-Bereich (10, 25, 50 und 100 Meter) abgebildet und gehen in den ‚Quellterm' ein.

- Auf den unterschiedlich langen Fließstrecken des Porenwassers durch den BHV-Bereich kommt dieses Wasser in Reaktionskontakt mit Versatzmaterial, das mit unterschiedlichen Mengen, mit unterschiedlichen Anteilen verschiedener rückstandsbürtiger Mineralphasen und mit unterschiedlicher Porosität sowie unterschiedlicher Durchlässigkeit am Aufbau des BHV-Bereichs beteiligt ist.

  Die das Standardszenario ergänzenden Modellierungsszenarien geben u.a. an, wie sich unterschiedlichen Mengen und unterschiedlichen Anteile der rückstandsbürtigen Mineralphasen auf den ‚Quellterm' auswirken (s. Kapitel 5.7.4).

- Im gesamten BHV-Bereich sind diese Eigenschaften (Mengen, Anteile verschiedener rückstandsbürtiger Mineralphasen, Porosität, Durchlässigkeit) inhomogen verteilt. Im Gegensatz dazu ist der BHV-Bereich im 1D-Transportmodell gleichförmig aufgebaut.

  Während die Porosität des Versatzmaterials die Mengen und Anteile verschiedener rückstandsbürtiger Mineralphasen im Versatz und im BHV-Bereich beeinflusst und damit auf die hydrogeochemische Entwicklung einwirkt, wirkt sich die Durchlässigkeit rein geohydraulisch über die Abstandsgeschwindigkeit auf die zeitliche Entwicklung des Stoffaustrags aus. Diese Zusammenhänge lassen sich realitätsnah nur mit einem entsprechend inhomogen aufgebauten 3D-Modellierungsansatz für den Stofftransport abbilden – nicht aber mit einem einfachen 1D-Modell.

Porosität und Durchlässigkeit des eigentlichen Versatzes sowie des gesamten BHV-Bereichs sind nicht nur inhomogen verteilt; sie ändern sich zudem in der Zeit in Folge der Auflösungs-, Umwandlungs- und Ausfällungsreaktionen bei dessen Durchströmung mit Tiefengrundwasser. Bei den instationären Modellierungen der Grundwasserströmung wurden diese möglichen Veränderungen der Durchlässigkeit der BHV-Bereiche berücksichtigt. In einer Sensitivitätsanalyse wurden für die Durchlässigkeit der BHV-Bereiche Werte von $1X10^{-8}$ m/s und $1X10^{-9}$ m/s sowie Porositäten von 0,05 und 0,005 angenommen (s. Detailbericht 5).

Unter Berücksichtigung dieser Zusammenhänge und der modellierten Szenarien können folgende Aussagen zum Stoffaustrag von Zink, Blei und Cadmium mit Porenwässern aus dem BHV-Bereich über dessen abstromige Ränder gemacht werden.

I. Die eingebrachten Reststoffe wirken auf Grund ihrer mineralogischen Zusammensetzung – mit ihrem Vorrat an OH-Ionen-haltigen Mineralphasen – als ein wirksamer Puffer gegen eine pH-Absenkung im Porenwasser des BHV-Bereichs (von ca. pH 11 oder 10 ausgehend), die zwangsläufig und langfristig durch die zutretenden Tiefengrundwässer mit pH-Werten zwischen ca. 6,5 und 7,0 einsetzen muss. Je größer der Vorrat an OH^--Ionen-haltigen Mineralphasen ist, umso mehr OH-Ionen werden daraus in das Porenwasser freigesetzt, umso höher wird der pH-Wert des Porenwassers sein und desto länger bleibt der pH-Wert auf dieser Höhe. Der pH-Wert kennzeichnet die ‚Konzentration' der OH-Ionen.

   Die diese pH-Puffer-Wirkung beeinflussende Größe ist der Vorrat an OH-Ionen-freisetzenden Mineralphasen im BHV-Bereich, der in Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser kommt. Deshalb sind sowohl die eingebrachte Menge der rückstandsbürtigen Mineralphasen, ihre Zusammensetzung, ihr Anteil im Reaktionskontakt als auch die Fließstrecke des Porenwassers durch den BHV-Bereich in diesem Sinne Prozess-dominant.

II. Da nicht bekannt ist, welche Anteile der versetzten Reststoffe in Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser kommen werden – im Laufe der zeitlichen Entwicklung dieser stofffreisetzenden Reaktionen, wurden entsprechende Bandbreiten dieser Anteile zum Ansatz gebracht: Anteil 1%, 5%, 50 % und 100 % (Abb. 47 bis 49).

Da die Fließstrecken des Porenwassers durch den BHV-Bereich unterschiedlich lang sein werden, wurden auch unterschiedliche Fließstrecken zum Ansatz gebracht (10, 25, 50 und 100 Meter; Abb. 43 bis 46).

III. Der Zeitraum, der von den Modellierungen abgebildet wird, ist auf 50.000 Jahre begrenzt.

IV. Stellvertretend für die relativ mobilen (schnell und leicht freisetzbaren) Schwermetalle wurde das Verhalten von Zink modelliert; stellvertretend für die weniger leicht mobilisierbaren Schwermetalle wurde das Verhalten von Blei modelliert; Cadmium zeigt das Verhalten eines relativ relativ mobilen (schnell und leicht freisetzbaren) Schwermetalls.

V. Es werden – zeitweise – Zink- und Bleikonzentrationen von jeweils einigen Zehner Milligramm pro Liter in den aus dem BHV-Bereich abströmenden Porenwässern auftreten.
Im Vergleich dazu werden deutlich geringere Cadmiumkonzentrationen von einigen Hundert Mikrogramm pro Liter auftreten.

VI. Diese Zink- und Bleikonzentrationen sowie die deutlich geringeren Cadmiumkonzentrationen in den abströmenden Porenwässern werden auf den verschieden lokalisierten abstromigen BHV-Rändern zu unterschiedlichen Zeitpunkten erstmalig auftreten. Je nach der Länge der Fließstrecke durch den BHV-Bereich und den dort auf der jeweiligen Fließstrecke zur Reaktion mit Porenwässern gekommenen Mengen der rückstandsbürtigen Mineralphasen des Versatzes setzt das Auftreten der Zink- und Bleikonzentrationen nach einigen Jahren bis einigen Tausend Jahren ein – kann aber auch erst nach einigen Zehntausend bis zu Hunderttausend Jahren beginnen. Cadmium wird dabei ein dem Zink ähnliches Stofffreisetzungsverhalten in der Zeit zeigen.

VII. Die Zinkkonzentrationen und die Cadmiumkonzentrationen treten zeitlich früher als die Bleikonzentrationen auf.

VIII. Auch die Zeitdauer, über die die Zink- und Bleikonzentrationen von jeweils einigen Zehner Milligramm pro Liter in den aus dem BHV-Bereich abströmenden Porenwässern auftreten, hängt von der Länge der Fließstrecke durch den BHV-Bereich und den dort zur Reaktion mit Porenwässern gekommenen Mengen der rückstandsbürtigen Mineralphasen des Versatzes ab. Das gilt auch für die deutlich geringeren Cadmiumkonzentrationen.

Setzt der Stoffaustrag solcher Zink- und Bleikonzentrationen relativ rasch nach der ‚Aufsättigung des BHV-Bereichs' mit Tiefengrundwasser nach nach einigen Jahren bis einigen Hundert Jahren bzw. nach einigen Tausend bis einigen Zehntausend Jahren ein, dauert der Stoffaustrag auch nur über eine relativ kurze Zeitspanne von einigen Jahren bis Zehner Jahren bzw. von einigen Tausend Jahren bis zu einigen Zehntausend Jahren an – auf relativ kurzen Fließstrecken durch den BHV-Bereich.

Auf relativ langen Fließstrecken durch den BHV-Bereich setzt der Stoffaustrag der Zink- und Bleikonzentrationen vergleichsweise spät ein (ca. eine Zehnerpotenz im Vergleich zu den relativ kurzen Fließstrecken) und hält der

Stoffaustrag über eine längere Zeitspanne (ca. eine Zehnerpotenz im Vergleich zu den relativ kurzen Fließstrecken) an.

IX. Zeitlich vor und nach dem Auftreten der Zinkkonzentrationen in den abströmenden Porenwässern sind die Porenwässer mit Zinkkonzentrationen von maximal einigen Zehntel bis zu wenigen Milligramm pro Liter belastet, solange bis der in den Reststoff-bürtigen Mineralphasen gebundene Zinkvorrat ausgetragen ist.

X. Zeitlich vor und nach dem Auftreten der Bleikonzentrationen in den abströmenden Porenwässern sind die Porenwässer mit Bleikonzentrationen von maximal einigen Zehntel bis zu wenigen Milligramm pro Liter belastet, solange bis der in den Reststoff-bürtigen Mineralphasen gebundene Bleivorrat ausgetragen ist.

XI. Die räumlich-zeitliche Entwicklung und Differenzierung des Austrages der Zink- und Bleikonzentrationen sowie von deutlich geringeren Cadmium-konzentrationen in den abströmenden Porenwässern ist an die Entwicklung der pH-Werte in den über die BHV-Ränder austretenden Porenwässer gebunden.

XII. Von anfänglich hohen pH-Wertniveaus zwischen pH 11 und pH 9 vermindert sich der pH-Wert – über bestimmte ‚Pufferniveaus' – auf das Niveau des zutretenden Tiefengrundwassers.

6 Das Geosystem, soweit es für die Standort-unabhängige Beschreibung von Stofffreisetzungspotentialen relevant ist

6.1 Grundannahmen zum Geosystem

Die GRS-Berichte unterteilen das Geosystem ‚Tiefengrundwasser im nahen und fernen Festgesteinsumfeld von BHV-Bereichen anhand der sich in diesem Umfeld räumlich-zeitlich entwickelnden hydraulischen und hydrogeochemischen Prozesse.

Hinsichtlich der hydrogeochemischen Prozesse definieren sie – wie auch der Abschlussbericht der DMT– eine „innere geochemische Barriere“ (vgl. Abschnitt 5). Hier können, so argumentiert der GRS-Bericht 140, die „verbrachten Abfälle“ (Rückstände) „chemisch mit den Inhaltsstoffen der Sickerwässer reagieren und damit eine Schadstoffausbreitung verhindern“. Dieser Teil des Geosystems umfasst neben den versetzten Rückständen selbst und den verstürzten Nebengesteinen auch die Rand- bzw. Kontaktbereiche der verfüllten Hohlräume zu den geklüfteten Festgesteinen des Karbons.

Den Gesteinen außerhalb dieser „inneren geochemischen Barriere“ ordnet der GRS-Bericht 140 ebenfalls eine „geochemische Barrierewirksamkeit“ zu und definiert sie damit als „äußere Barriere“.

Losgelöst von dieser Sichtweise, dass das gesamte Geosystem (einschließlich der verbrachten, bergbaufremden Rückstände), für das ein Tool zum Langzeitsicherheitsnachweis entwickelt wurde, aus geochemischen Barrieren (vgl. dazu Abschnitt 5) aufgebaut ist, gliedern die GRS-Berichte folgende räumliche Teile des Geosystems und zeitliche Entwicklungsabschnitte aus:

Zusammen mit den verstürzten Nebengesteinen der ausgekohlten Flöze (ca. 95 Vol.-%) bauen die bergbaufremden Rückstände (ca. 5 Vol.-%) den BHV-Bereich auf. Dessen konzeptionelle Mächtigkeit liegt in der Größenordnung von zehn Metern (Abbildung 42). Nach den Zeiträumen, in denen die potenziellen Wasserwegsamkeiten für das Tiefengrundwasser im umgebenden Festgestein (Kluft- und Porenhohlräume) noch wasserungesättigt und mit Sickerwasser, Haftwasser und/oder Gas gefüllt sind, werden mit und nach dem Wiederanstieg des Grundwassers die wasserwegsamen Hohlräume in diesem Kontaktbereich und in dem BHV-Bereich selbst vom ansteigenden Tiefengrundwasser gefüllt und durchströmt. Dann wird dieser Kontaktbereich zum Transferbereich durch den hindurch Stoffausträge aus den Rückständen in das umgebende (vorwiegend Kluft-) Tiefengrundwasser erfolgen können. Nach der stark instationären Phase des Wiederanstiegs des Tiefengrundwassers (‚Flutungsphase‘) kann dieser Transferbereich für lange Zeiträume vom Tiefengrundwasser durch- oder auch teilweise umströmt werden, je nach den Unterschieden der Gebirgsdurchlässigkeit von verfüllten Hohlräumen, Transferbereichen im Kontakt zum umgebenden Festgesteinen und in diesen Festgesteinen selbst.

Aus den verfüllten rückstandsbürtigen Mineralphasen freigesetzte Stoffe gelangen in solche Tiefengrundwässer (Porenwässer), welche die in den Rückständen vorhandenen, leitend miteinander verbundenen Hohlräume füllen und diese dann durchströmen[114]. Zunächst sind dies Sickerwässer und später Tiefengrundwässer in

[114] Bei sehr geringen Durchlässigkeitsbeiwerten.

der instationären und in der stationären Phase der Tiefengrundwasserbewegung im Strömungsfeld. Mit den aus den BHV-Bereich abströmenden Porenwässern (ehemalige, zugetretene Tiefengrundwässer) und auch durch molekulare Diffusion gelangen die mobilisierten, gelösten Stoffe in das außerhalb des BHV-Bereichs gelegene Festgesteinsumfeld: zunächst durch die Transferbereiche in die durch bergbauliche Eingriffe überprägten Bereiche und dann nach mehreren hundert Meter Fließstrecke durch das umgebende karbonische Gebirge – solange noch die Grubenwasserhaltung aktiv ist – in das gehobene Grubenwasser, nachdem sie zuvor erheblich verdünnt wurden (‚Röhrenströmung'). Ohne eine Grubenwasserhaltung werden die Porenwässer aus dem BHV-Bereich in das regionale Strömungsfeld des Tiefengrundwassers aufgenommen.

Auf die weiteren, abstromig zu dem BHV-Bereich gelegenen karbonischen Gesteinsfolgen und das Deckgebirge, in denen sich das regionale Strömungsfeld des Tiefengrundwassers entwickelt, kann der Transport rückstandsbürtiger Stoffe mit solchen strömenden Tiefengrundwässern einwirken, die im unmittelbaren Kontakt mit den Rückständen standen. Je nach den geologischen Verhältnissen am Standort kann das nicht-karbonische Deckgebirge aus Schichtfolgen des Zechsteins bis zum Bottroper Mergel aufgebaut sein.[115]

Wo (in welchen Teufen; in welchen Grundwasserleitern; erst im Vorfluter) das regionale Strömungsfeld des Tiefengrundwassers in Kontakt mit Biosphäre kommt oder möglicherweise zum Teil der Biosphäre wird, ist einer noch nicht erfolgten Definition überlassen.

Der DMT-Abschlussbericht beschreibt das Geosystem im Hinblick auf das Stoffaustragverhalten der versetzten Rückstände folgendermaßen: „Modellrechnungen für die Phase 3 nach dem Volllaufen aller Grubenbaue und vollständiger Sättigung des Kluftnetzes zeigen, daß bei überwiegend horizontaler Grundwasserströmung" „der größte Teil der Grundwässer in den noch offenen Grubenbauen fließen und der Deponiekörper" (der BHV-Bereiche; „K_f-Wert 3.0^{-9} m/s", vgl. 2.2.2.) umströmt werden müßte, was einen sehr langsamen Schadstoffaustrag zur Folge hätte." „Dennoch scheint eine Prüfung der chemischen Barrierewirkung als zusätzliche Langzeitsicherung für den Fall des Versagens des vollständigen Einschlusses unverzichtbar."[116]

6.2 Bewertende Stellungnahme zu den Grundannahmen zum Geosystem

Die an den jeweils ablaufenden Prozessen ausgerichtete räumlich-zeitliche Unterteilung des Geosystems ‚Tiefengrundwasser im nahen und fernen Festgesteinsumfeld von BHV-Bereichen' ist in den GRS-Berichten konsistent hergeleitet, sachgerecht und nachvollziehbar dargestellt. Soweit die Machbarkeitsstudie und der DMT-Abschlussbericht auf die Art und den prinzipiellen Aufbau des Geosystems Bezug nehmen, gilt diese Aussage auch für diese Basisgutachten – mit der Ausnahme, dass ein Durchlässigkeitsbeiwert von 3 X 10^{-09} m/s für den BHV-Bereich auch unter

[115] Diese Ausführungen beziehen sich nicht spezifisch auf die Verhältnisse im BW ‚Haus Aden / Monopol'.

[116] Obwohl unverzichtbar, ist eine solche Prüfung, sowohl im Labor als auch unter in-situ Bedingungen, im Rahmen der ‚Basisgutachten' jedoch nicht erfolgt.

Langzeitsicherheitsaspekten als gültig akzeptiert werden kann (nähere Erläuterungen dazu in den Abschnitten 4 und 5 des hier vorliegenden Berichtes ‚Stofffreisetzung').

Gemessen an der Menge und Qualität von Daten, die zur Beschreibung konkreter Geosystemteile realer Standorte und der sich darin zeitlich entwickelnden Prozesse verfügbar sind oder verfügbar gemacht werden könnten, ist diese Unterteilung auch angemessen detailliert bzw. ausreichend fein auflösend. Das gilt auch im Hinblick darauf, wie detailliert die Modellierungen des sorptions-kontrollierten Stofftransports zum Langzeitsicherheitsnachweis die Struktur des Geosystems abbilden und entsprechend mit Parametern und zugehörigen Messwerten ausstatten können.

Allerdings geht aus den Ausführungen der GRS-Berichte nicht hervor, welcher Teil des gegliederten Geosystems der Biosphäre zugeordnet wird. Eine solche Zuordnung ist aber die Voraussetzung dafür, dass der Langzeitsicherheitsnachweis nach dem Prinzip des ‚vollständigen Einschlusses' u.a. für die Schwermetalle Blei und Zink geführt werden kann. Die Modellierung des sorptions-kontrollierten Stofftransports zum Sicherheitsnachweis mit dem Langzeitsicherheits-Tool errechnet die Konzentrationen von Schwermetallen im Tiefengrundwasser für gewählte räumliche Koordinaten des Geosystems und gewählte Zeitpunkte der zeitlichen Prozessentwicklung im Geosystem. Damit stellt sich folgende Frage im Zusammenhang mit dem Sicherheitsnachweis.

- Welche dieser räumlichen Koordinaten repräsentieren die Biosphäre im untergliederten Geosystem und im Transportmodell?

Dass die Aussagen der GRS-Berichte hinsichtlich der räumlich-zeitlichen Unterteilung des Geosystems konsistent hergeleitet, sachgerecht und nachvollziehbar dargestellt sind, gilt allerdings nicht für die Aussage des GRS-Berichts 140, dass die „verbrachten Abfälle" (Rückstände) „chemisch mit den Inhaltsstoffen der Sickerwässer reagieren und damit eine Schadstoffausbreitung verhindern". Damit wird der Teil des Geosystems, der mit seinem „toxischen Potential" in Form der darin „enthaltenen Schwermetalle" einen Langzeitsicherheitsnachweis über komplexe Stofftransportmodellierungen erforderlich macht, von einer potenziellen Quelle des SchadStoffaustrags („Quellterm") zu einer finalen Senke für Schadstoffe umgedeutet. Träfe diese Deutung zu, würden hier, so die Konsequenz aus dieser Deutung, sowohl die rückstandsbürtigen Schadstoffe selbst als auch die möglicherweise mit Sicker- oder Grundwässern zutretenden Schadstoffe feststoffgebunden bleiben bzw. gebunden werden und nicht – auch langfristig nicht – in wässrige Lösungen freigesetzt (vgl. dazu Kap. 5).

7 Die aus Laboruntersuchungen zur Ermittlung des Sorptionsverhaltens der Schwermetalle hergeleiteten ‚Grundannahmen und Kernaussagen' und deren Bewertung

Mit den ‚Basisgutachten' ist ein Langzeitsicherheits-Tool für eine Sicherheitsanalyse der Verbringung bergbaufremder Rückstände erarbeitet worden, auf dem damaligen Stand von Wissenschaft und Technik. Dieses Tool arbeitet mit numerischen Modellierungen (Simulationen) des Transports von in Grundwässern gelösten Schwermetallen – unter Berücksichtigung des „toxischen Potentials der Versatzstoffe". Die GRS hat im Rahmen einer „Sicherheitsanalyse Standortmodelle zur Beschreibung der Grundwasserströmungssituation und des Schadstofftransports" entwickelt „und in numerische Rechenmodelle umgesetzt. Mit diesen Rechenmodellen wurden dann die Transportvorgänge simuliert". Damit soll das Transportverhalten rückstandsbürtiger Schwermetalle im Geosystem ‚Tiefengrundwasser im BHV-Bereich und in dessen Festgesteinsumfeld' abgebildet werden.

Die Ausführungen in den GRS-Berichten zu den „Geochemischen Eingangsdaten für die Stofftransportmodellierung" machen deutlich, dass diese numerische Modellierung der hydrogeochemischen Prozesse beim reaktiven Stofftransport allein auf stoffspezifischen Sorptionskennwerten[117] für Schwermetalle beruht. Die in dieser Modellierung mit den stoffspezifischen Sorptionskennwerten quantifizierte ‚Sorption' ist konzeptionell der einzige hydrogeochemische Prozess, mit dem das Modell die Mobilität der Schwermetalle abbildet. Die Untersuchungen, Aussagen, Grundannahmen und Modellierungen der GRS-Berichte zur hydrogeochemischen Mobilität bzw. zur Stoffausbreitung beziehen auch das Element Blei ein.

Seitens der GRS[118], die das Langzeitsicherheits-Tool entwickelt und angewandt hat, wird klar dargelegt, dass diese Modellierungen zur ‚Sorption' u.a. von Blei bei dessen Stoffausbreitung im BHV-Bereich sowie in den Festgesteinsgrundwasserleitern im ‚Nahfeld' der BHV-Bereiche, welche das bei Labor-Sorptionsversuchen ermittelte ‚Sorptionsverhalten' u.a. von Blei numerisch modellierend berücksichtigen, nicht auf andere hydrogeochemische Verhältnisse[119] übertragen werden darf: „Eine Interpolation" (der bei Labor-Sorptionsversuchen ermittelten stoffspezifischen Sorptionskennwerte) „auf andere Milieubedingungen" (hydrogeochemische Verhältnisse) „ist nicht zulässig"[120]. „Darüber hinaus müssen bei der Anwendung dieser Isothermen" (das Sorpti-

---

[117] Der Verteilungskoeffizient K_D-Wert bzw. der K_{Fr}-Wert mit dem zugehörigen N-Werten für Freundlich Isothermen. Diese Werte kennzeichnen die Mobilität der Schwermetalle in wässrigen Lösungen, die in Sorptions-Wechselwirkung mit den Gesteinskörpern stehen. Modellierungen dieser Sorptionswechselwirkungen („Sorptionsverhalten") erlauben es – unter der Annahme, dass die Sorption der einzige mobilitätsbestimmende Prozess ist – zu berechnen, wie hoch die Konzentration der Schwermetalle in solchen wässrigen Lösungen (z.B. Grundwässer im Festgestein) ist, wenn sich das Sorptionsgleichgewicht zwischen wässriger Lösung und sorbierendem Festgestein eingestellt hat. Die dazu notwendigen K_D- bzw. K_{Fr}-und zugehörigen N-Wert werden empirisch für unterschiedliche hydrogeochemische Milieus ermittelt. Dazu wurden entsprechende Laborversuche durchgeführt.

[118] Brasser, Th., J. Mönig, C. Scherschel und M. Verhoff (2002): Sorptionsdatenbank SODA, Datenbank zur Bestandsaufnahme und Bewertung geochemischer Informationen zum Verhalten von Abfallinhaltsstoffen im Deckgebirge einer UTD/UTV; GRS-Bericht GRS – 182; 116 Seiten.

[119] Von den bei den Laborversuchen herrschenden hydrogeochemischen Verhältnissen abweichende Verhältnisse, die durch pH, E_H, und die Konzentrationen/Aktivitäten aller gelösten Stoffe gekennzeichnet sind.

[120] Zitat aus GRS – 182; Seite 14.

onsverhalten u.a. von Blei kennzeichnenden Funktionen für ein bestimmtes hydrogeochemisches Milieu), so die GRS weiter, „in Stofftransportberechnungen folgende Bedingungen erfüllt sein“: Es dürfen u.a. sowohl keine Veränderungen des hydrogeochemischen Milieus als auch „keine Fällungsreaktionen“[121] ablaufen.

Die mit dem hier vorliegenden Bericht dargestellten Modellierungsergebnisse zum reaktiven 1D-Stofftransport bei der Freisetzung von Stoffen aus BHV-Bereichen (Abschnitt 5) lassen aber klar erkennen, i) dass sich im BHV-Bereich selbst wie auch in dessen ‚Nahfeld‘ das hydrogeochemische Milieu insbesondere hinsichtlich des wesentlichen Parameters pH-Wert drastisch in der Zeit ändert (von pH 6,5 auf pH 10 und danach wieder auf pH 6,5) und ii) dass über lange Zeiträume Ausfällungsreaktionen (und auch Auflösungs- bzw. Umwandlungsreaktionen) u.a. von Bleiphasen ablaufen[122].

Insofern sind die mit dem Langzeitsicherheits-Tool erarbeiteten ‚Kernaussagen‘ der ‚Basisgutachten‘ hinsichtlich der Stoffausbreitung, dass „kein nennenswerter Anteil des Schadstoffes aus dem Versatzbereich in den umgebenden Modellraum des Nahbereichs freigesetzt“ wird und dass „die aus dem Abfall gelösten Schadstoffe im Verbruchbereich der Auffahrung (Abfall und verbrochenes Gebirge definieren den Versatzbereich) wieder sorbiert“, also wieder an Feststoffe gebunden, demobilisiert und aus dem Tiefengrundwasser an die Feststoffe umverteilt werden, unzulässig[123] (s. Kapitel 5.7.4; s. die folgenden Absätze).

Auf der Grundlage der mit diesem Bericht vorgestellten Modellierungsergebnisse sind die ‚Kernaussagen‘, dass „kein nennenswerter Anteil des Schadstoffes aus dem Versatzbereich“ (BHV-Bereich) „in den umgebenden Modellraum des Nahbereichs freigesetzt“ wird und dass „die aus dem Abfall gelösten Schadstoffe im Verbruchbereich der Auffahrung (Abfall und verbrochenes Gebirge definieren den Versatzbereich) wieder sorbiert“ werden, als zumindest ‚nicht vollständig sachgerecht‘, als ‚nicht nachgewiesen‘ und insbesondere unter dem Gesichtspunkt der Langzeitsicherheit als ‚nicht gültig‘ zu bewerten (s. Kapitel 5.7.4; s. die folgenden Absätze)..

Bei der argumentativen Inanspruchnahme der ‚Sorption‘ in dem Sinne, dass das ‚sorbierende‘ Feststoffgerüst der Grundwasserleiter u.a. Schwermetallionen bindet und damit aus dem Porenwasser heraus an das Feststoffgerüst umverteilt, müssen folgende Zusammenhänge berücksichtigt werden

i) ‚Sorption‘, wie sie mit den K_D- und K_{Fr}-Wert sowie mit dem zugehörigen N-Werten in Simulationen abgebildet wird, erfolgt als reversibler Prozess. ‚Sorbierte‘ Stoffe werden langfristig wieder desorbiert, vom Feststoffgerüst wieder an das Porenwasser umverteilt, abgegeben, wenn sich die hydrogeochemischen Bedingungen wieder derart ändern, dass z.B. geringere Schwermetallkonzentration in den Porenwässern in Reakti-

---

[121] Zitat aus GRS – 182; Seite 14.

[122] Auch wenn das ‚Sorptionsverhalten‘ von Blei im Labor für unterschiedliche hydrogeochemische Milieus ermittelt wurde, so muss doch ein Transportmodell, das ein solches ‚Sorptionsverhalten‘ simuliert und dabei den Kriterien der GRS für die Zulässigkeit solcher Berechnungen entspricht, simultan auch die Entwicklung aller daran gekoppelten hydrogeochemischen Reaktionen berechnen, insbesondere die sich dabei einstellenden pH-Werte. Das leistet das mit den Basisgutachten‘ vorgestellte Langzeitsicherheits-Tool für eine Sicherheitsanalyse nicht.

[123] Den von der GRS selbst definierten Gültigkeitsbedingungen entsprechend; weil sich eben doch Veränderungen der hydrogeochemischen Milieubedingungen entwickeln und zudem auch Fällungsreaktionen ablaufen.

onskontakt mit dem ‚sorbierenden' Feststoffgerüst kommen. Damit ist die Umverteilung z.B. der gelösten und mobilen Schwermetalle an das Feststoffgerüst nicht dauerhaft; sie führt lediglich zur Verzögerung (‚Retardation') des Schwermetalltransports und zur und zeitlich-räumlichen ‚Verschmierung' der gelösten Schwermetallkonzentrationen.

ii) ‚Sorbiert' werden nicht ausschließlich die im Fokus der Argumentation stehenden Stoffe (z.B. Schwermetallionen) sondern alle, unter den vorgegebenen Bedingungen ‚sorbierbaren' Stoffe, seien es Anionen oder Kationen, seien sie freie Ionen oder komplexe Anionen oder Kationen. Je nach ihren Eigenschaften (u.a. Art und Größe der Ladung, Größe des hydratisierten Stoffes) und ihrer Konzentration bzw. Aktivität in der wässrigen Lösung konkurrieren diese Stoffe um die ‚Sorptionskapazität' des Feststoffgerüstes. So konkurrieren die Schwermetallionen (Anionen oder Kationen, freie Ionen oder komplexe Anionen oder Kationen) mit den gelösten ionaren Hauptbestandteilen der aus dem BHV-Bereich austretenden Porenwässer, deren Konzentration um einige Zehnerpotenzen größer ist, als die der Schwermetallionen.

Einzelne, der mit dem Sammelbegriff ‚Sorption' umschriebenen hydrogeochemischen Prozesse, wie der Austausch von im Tiefengrundwasser gelösten Kationen mit der kationenaustauschenden Kapazität des Feststoffgerüstes und die komplexierende Bindung bestimmter Anionen und Kationen an bestimmten, mit komplexierenden Oberflächen ausgestatteten Mineralphasen (z.B. SURFACE_COMPLEXATION an $Fe(OH)_{3(a)}$) können mit den chemisch-thermodynamisch basierten 1D-Stofftransportmodellierungen (PHREEQC) abgebildet werden (s. Kapitel 5.7.4). Allerdings müssen für eine solche Modellierung auch die spezifischen Eigenschaften des Feststoffgerüstes bzw. der es aufbauenden Mineralphasen bekannt sein, u.a. die zur Reaktion zur Verfügung stehende Kationenaustauschkapazität und die Art der Belegung dieser Kapazität sowie die ‚Bindungskapazitäten' der komplexierenden Oberflächen. Dazu machen die ‚Basisgutachten' keine Angaben (s. Kapitel 5.7.4).

Allerdings muss an dieser Stelle nochmals deutlich gemacht werden, dass die mit dem hier vorliegenden Bericht vorgestellten Modellierungsergebnisse zur Stofffreisetzung im BHV-Bereich (und zur Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld') mit einem einfachen Modell erzeugt wurden, das i) nicht kalibriert ist, ii) nicht auf Plausibilität geprüft ist, iii) dessen geohydraulischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter (Durchlässigkeit, Porosität, hydraulischer Gradient) beruht, iv) dessen hydrogeochemischer Teil auf vereinfachenden Annahmen zu noch unbekannten und in der Zeit veränderlichen Werten der chemischen Beschaffenheit des Tiefengrundwassers beruht, v) dessen hydrogeochemischer Teil lediglich auf vereinfachenden Annahmen zu noch nicht vollständig bekannten und in der Zeit veränderlichen Werten mehrerer Parameter des versetzten Rückstandes (u.a. mineralogische Zusammensetzung, Porosität, Verhältnis der Masse des Tiefengrundwassers im Porenhohlraum zur Masse der damit in Reaktionskontakt stehenden rückstandsbürtigen Feststoffe) beruht, vi) und das deshalb lediglich semigenerischer Natur ist.

Dessen ungeachtet sind diese Modellierungen in der Lage, die prinzipielle Entwicklung solcher Systeme mit ihrer Entwicklungsrichtung und den Größenordnungen der dabei auftretenden Stoffkonzentrationen im Wasser, der Mineralphasenvorräte sowie der räumlichen und zeitlichen Dimension solcher Entwicklungen zu beschreiben. Denn eine solche Entwicklung ist die unabwendbare Folge der chemisch-thermodynamischen Natur solcher Prozesse, die an die Bewegung von Wasser in porösen/geklüfteten Medien gekoppelt sind.

8 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen in den Teilen des Geosystems und die Abbildung dieser Prozesse in den Modellen des Langzeitsicherheit-Tools

8.1 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen in den Porenräumen der versetzten Rückstände bei der Stofffreisetzung

Die ‚Basisgutachten' versuchen die hydrogeochemischen Prozesse der Stofffreisetzung aus den versetzten Rückständen in die sie füllenden Porenwässer mit rein empirisch ermittelten Daten, den Ergebnissen kleinmaßstäblicher Kurzzeit-Laborversuche, abzubilden. Dazu stellen die ‚Basisgutachten' selbst bewertend fest, dass die angewandten „üblichen Labormethoden" (kleinmaßstäbliche Kurzzeit-Laborversuche), „seien es Batch- oder Perkolationsversuche mit hohen hydraulischen Gradienten und kurzen Reaktionszeiten, die vielfältigen geochemischen Prozesse im Versatz" (beim Kontakt mit wässrigen Lösungen) „nicht widerspiegeln können". Hierzu sind sicherlich noch weitere Forschungsarbeiten sinnvoll und notwendig." „Einen Schritt in die Richtung zu *in situ* nahen Bedingungen stellen Containerversuche im Technikumsmaßstab dar".

Weiterhin treffen die ‚Basisgutachten' folgende generelle Aussage zu den hydrogeochemischen Prozessen der Stofffreisetzung: „Das Szenario von Auflösung und Ausfällung von Stoffen wird von den element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften sowie von dem, auch durch die Zusammensetzung des Stoffgemischs selbst bedingten, chemischen Milieu der Lösungsphase und den Wechselwirkungen zwischen den gelösten Ionen und der Festsubstanz, Kontaktfläche, Kontaktzeit usw. bestimmt". „Alle theoretischen Beschreibungen dieser Reaktionen stellen durch die Reduzierung auf wenige Teilaspekte und Elemente immer Vereinfachungen gegenüber den komplexen realen Systemen dar, und können somit lediglich Anhaltspunkte zur Interpretation von Lösungsreaktionen bieten." Damit verweisen auch die ‚Basisgutachten' deutlich darauf, dass chemisch-thermodynamisch kontrollierte Löslichkeitsgleichgewichte zwischen Feststoffphasen und wässrigen Lösungen sowie andere Gleichgewichtsreaktionen der aquatischen Speziesverteilung die Freisetzung von Stoffen aus den Rückständen bzw. das physikalisch-chemischen Verhalten der Rückstände beim Reaktionskontakt mit Tiefengrundwässern steuern können. Allerdings werden diese Erkenntnisse (zur „Auflösung und Ausfällung von Stoffen" und deren „element- und mineralspezifischen thermodynamischen Eigenschaften") in den ‚Basisgutachten' nicht zu quantitativen Aussagen, und zu praktisch nutzbaren Ergebnissen umgesetzt – insbesondere nicht hinsichtlich langfristiger Entwicklungen.

8.2 Die Grundannahmen/Kernaussagen zu den hydrogeochemischen Prozessen bei der Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld'

Zu den Grundannahme/Kernaussagen der ‚Basisgutachten' zu den hydrogeochemischen Prozessen bei der Stoffausbreitung im unmittelbaren ‚Nahfeld' von BHV-Bereichen (‚Sorption') geht ausführlich der Abschnitt 7 des hier vorliegenden Berichtes ein, auf den hier verwiesen wird.

9 Für weitere Detailberichte anderer Projektarbeitsgruppen bereitgestellte Sachverhalte, Überlegungen und Einschätzungen

9.1 Chemische Beschaffenheit der Tiefengrundwässer im ‚Nahfeld' im Hinblick auf die Bewertung einer ‚immissionsneutralen Ablagerung' sowie auf eine Abgrenzung der chemischen Beschaffenheit der Tiefengrundwässer von der Beschaffenheit von Porenwässern, die aus den versetzten Rückständen in die Tiefengrundwässer des ‚Nahfelds' übertreten können

Der Teil 1 des Gutachtens betrachtet die Bruchhohlraumverfüllung im BW ‚Haus Aden/Monopol', die nach dem Prinzip des vollständigen Einschlusses durchgeführt wurde. Der – noch nicht bearbeitete – Teil 2 des Gutachtens soll auch dem Prinzip der Immissionsneutralität entsprechend bewerten. Die bisher erarbeiteten Ergebnisse geben hierzu erste Hinweise.

Zum Nachweis eines immissionsneutralen Versatzes von bergbaufremden Rückständen in BHV-Bereich, der tatsächlich Ursache/Wirkungs-Beziehungen berücksichtigt, wäre es notwendig,

- die chemische Beschaffenheit der jeweils in den BHV-Bereich eindringenden Tiefengrundwässer hinsichtlich ihrer pH-Werte und der Stoffkonzentrationen aller relevanten Parameter[124] mit ihrer zeitlichen und räumlichen Veränderlichkeit zu messen[125]

- die chemische Beschaffenheit der jeweils aus dem BHV-Bereich austretenden Porenwässer/Tiefengrundwässer in dessen unmittelbares, ‚abstromiges Nahfeld' hinsichtlich ihrer pH-Werte und der Stoffkonzentrationen aller relevanten Parameter mit ihrer zeitlichen und räumlichen Veränderlichkeit zu messen sowie

- diese beiden Beschaffenheiten zu vergleichen.

Angesichts des komplexen Aufbaus des zu untersuchenden Geosystems, der Zeitskala, auf der sich die hydrogeochemischen Prozesse entwickeln werden und angesichts der zu erwartenden Schwierigkeiten bei der Beprobung und des dazu notwendigen Aufwandes scheint eine solche Vorgehensweise ‚praktisch nicht umsetzbar'. Sollten deshalb alternative, leichter umsetzbare Vorgehensweisen zum tatsächlichen Nachweis eines immissionsneutralen Versatzes vorgeschlagen werden, muss gefragt werden, ob denn damit tatsächlich ein kausaler Zusammenhang nachgewiesen werden kann.

---

[124] Als relevant gelten alle die Stoffe, die aus den bergbaufremden Rückständen freigesetzt werden können. Weder die Untersuchungen mit den kleinmaßstäblichen Kurzeit-Elutionsversuchen an den bergbaufremden Rückständen noch die mit dem hier vorliegenden Bericht vorgestellten Modellierungsergebnisse können dazu vollständige, sichere und auf Plausibilität geprüfte Aussagen liefern.

[125] Über einen Zeitraum von Jahrzehnten bis Jahrzentausenden, in dem sich die Stofffreisetzung und die Stoffausbreitung mit unterschiedlichen hydrochemischen Beschaffenheiten der Poren- und Tiefengrundwässer entwickeln kann.

Eine Bewertung einer potentiellen Immissionsneutralität allein anhand von Messwerten zur Beschaffenheit von Wässern aus Grubenwasserhaltungen muss angesichts

- der zu erwartenden ‚Verdünnungseffekte' bzw. der Anteile der aus dem BHV-Bereiche austretenden ehemaligen Porenwässer an dem gesamten gehobenen Volumenstrom an ‚Grubenwasser',

- der auf der Fließstrecke der ehemaligen Porenwässer möglicherweise ablaufenden hydrogeochemischen Prozesse und

- der räumlich-zeitlich stark variierenden Beschaffenheit der geogenen Tiefengrundwässer und gehobenen Grubenwässer

mit großer Aussage-Unsicherheit behaftet sein.

Zu solchen Unsicherheiten tragen künstliche, ungewollte Beeinflussungen bei, die u.a. bei der Beprobung und in der Zeit zwischen Beprobung und Analyse auf die Beschaffenheit der untersuchten Tiefengrundwässer verändernd einwirken (insbesondere auf den pH-Wert). Auf solche Effekte gehen die ‚Basisgutachten' nicht ein. Zusammenfassend gilt, dass – aus den vorgenannten Gründen – keine, den Ansprüchen an eine Bewertung der Immissionsneutralität genügenden Daten zur chemischen Beschaffenheit der Tiefengrundwässer im ‚Nahfeld' vorliegen.

Mehr noch, die mit diesem hier vorliegenden Bericht vorgestellten Ergebnisse der semi-generischen, chemisch-thermodynamisch basierten Modellierungen erlauben es nicht, abzuleiten,

- welche hydrochemischen und geochemischen Parameter zur Beschreibung geogener/anthropogener Hintergrundwerte im Hinblick auf die numerische Modellierung des Stofftransports für einen Langzeitsicherheitsnachweis besonders relevant sind,

- welche hydrogeochemischen Prozesse im Hinblick auf die numerische Modellierung des Stofftransports im ‚Nah- und Fernfeld' für einen Langzeitsicherheitsnachweis besonders relevant sind,

- welche durch die Probenahme der tiefen Grundwässer (meist mit der Wasserhaltung gehobene Grubenwässer) verursachten Effekte auf die gemessene Beschaffenheit der Wässer so eingewirkt haben können, dass deren Beschaffenheit sich deutlich von der *in situ* Beschaffenheit der Tiefengrundwässer unterscheidet[126].

[126] Das betrifft auch die Beprobung der *in situ* Tiefengrundwässer z.B. im BW ‚Haus Aden / Monopol' (‚Z2-Wasser').

9.2 Bedeutung geohydraulischer Modellierungen für den Nachweis eines „vollständigen Einschlusses“ der Rückstände und ihrer Stoffausträge aus den BHV-Bereichen

Ist – wie zuvor beschrieben – ein Nachweis einer potentiellen Immissionsneutralität unter den Bedingungen der Praxis nicht möglich, kommt dem Nachweis, dass „die Abfälle“ (Rückstände) „und deren Stoffausträge von der Biosphäre weitgehend und dauerhaft ferngehalten werden“ (Prinzip des vollständigen Einschlusses), die entscheidende Bedeutung bei der Bewertung der Auswirkungen zu.

Zwar können dazu solche geohydraulischen Stofftransportmodellierungen eingesetzt werden, welche die mit dem ‚Quellterm‘ eingetragenen Stoffe lediglich als ‚nicht-reaktive, ideale Tracer‘ behandeln. Allerdings dürfen sie nur dann eingesetzt werden, wenn nachgewiesen ist, dass keine hydrogeochemischen Prozesse der wiederholten Stoff-Demobilisation und der nachfolgenden Stoff-Remobilisation (‚Roll-Front Transportverhalten‘) auf der Fließstrecke des durch den Stoffaustrag aus dem BHV-Bereich beeinflussten ehemaligen Porenwassers/Tiefengrundwassers über die Grubenwasserableitungen zur Biosphäre ablaufen.

Das ist bisher weder nachgewiesen noch ausgeschlossen. Ein solches ‚Roll-Front Transportverhalten‘ könnte, ähnlich dem bekannten Redox-Roll-Front Transportverhalten von Uran, dazu führen, dass auf der Fließstrecke lokal und zeitweilig – an der jeweiligen ‚Front‘ – Stoffkonzentrationsspitzen im Tiefengrundwasser auftreten, die sich auf der Fließstrecke bewegen. Das wäre die Folge einer temporären, stabilen Bildung von u.a. Schwermetallfeststoffphasen im Feststoffgerüst der betroffenen Grundwasserleiter und der damit verbundenen Demobilisierung der daran beteiligten Schwermetalle. Dabei reichern sich diese Schwermetalle dort an. Werden diese, zunächst stabil gebildeten Schwermetallfeststoffphasen – im Zuge der weiteren zeitlichen Entwicklung des Stofftransportprozesses – wieder instabil (weil sich u.a. die pH/E_H-Bedingungen verändert haben), lösen sie sich mit ihren zuvor angereicherten Phasenvorräten in den davon betroffenen Grundwässern wieder auf. Damit verbunden wäre ein Anstieg der Konzentrationen derjenigen Schwermetalle im Grundwasser, aus denen sich die ausgefällten Schwermetallfeststoffphasen aufgebaut haben (Remobilisation). Auf der weiteren Fließstrecke können auch diese mit den Konzentrationsspitzen verfrachteten Schwermetallmengen wieder demobilisiert und anschließend wieder remobilisiert werden. Laufen solche hydrogeochemischen Prozesse ab, kann die Stoffausbreitung – auf der Grundlage von ‚Quelltermen‘ – nicht mit solchen rein geohydraulischen numerischen Transportmodellierungen abgebildet werden, welche die mit dem ‚Quellterm‘ eingetragenen Stoffe lediglich als ‚nicht-reaktive, ideale Tracer‘ behandeln.

Mit den einfachen, semi-generischen, chemisch-thermodynamischen basierten Modellierungen zur Stofffreisetzung aus dem rückstandsbürtigen Mineralphasengemisch und zur Stoffausbreitung im BHV-Bereich (Kapitel 5) konnte der Frage nach dem Auftreten solcher ‚Roll-Front Transportprozesse‘ nicht nachgegangen werden. Sollten solche ‚Roll-Front Transportprozesse‘ u.a. von Schwermetallen nicht ausgeschlossen werden können, werden Modellierungen des reaktiven Stofftransports notwendig, deren hydrogeochemischer Modellteil auf chemisch-thermodynamischen Gesetzmäßigkeiten beruht; lediglich empirisch begründete und nachgewiesenermaßen unzulässige Modellierungen des ‚Sorptions-Verhaltens‘ können nicht dazu beitragen, das ‚Roll-Front Transportverhalten‘ von Schwermetallen sachgerecht einzuschätzen (siehe dazu auch Kapitel 7). Auch die für den Detailbericht 4 durchgeführten Modellierungen wurden nicht eigens dazu aufgebaut, solche Roll-Front-Transportprozesse abzubilden.

GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCH-HOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 5:

Modellierung des Stofffreisetzungspotentials und der Stoffausbreitung über die Grundwasserströmung

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten

Prof. Dr.-Ing. [redacted]

Dr.-Ing. [redacted]

Dr. [redacted]

[redacted] B.Sc.

Abgabe April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen (Dr. [redacted])

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof. Dr. [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr [redacted])

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum: 16.07.2015

INHALTSVERZEICHNIS

0 Vorbemerkung 1
0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1
0.2 Untersuchungsraum 2

1 Grundlagen 4
1.1 Ausbreitungspotential anorganischer Schadstoffe 4
1.2 Modellkonzept 4
1.2.1 Zweistufiges Modellkonzept 4
1.2.2 Hydrogeologisches Strukturmodell 6
1.2.3 Bruchhohlraumversatzbereiche 11
1.3 Fernfeldmodell 14

2 Modellaufbau 15
2.1 Modellränder und Diskretisierung 15
2.2 Randbedingungen 17
2.3 Parametrisierung 17
2.4 Kalibrierung 17
2.4.1 Kalibrierung der quartären Durchlässigkeiten und Leakagekoeffizienten 17
2.4.2 Sensitivitätsbetrachtung der Teilströme im Karbon (Bilanzbetrachtung) 19
2.4.3 Variation des Leakage-Koeffizienten der untertägigen Hauptwasserwege 21
2.4.4 Variation der k_f-Werte des Karbons 22
2.4.5 Dispersivitäten 24

3 Flutungsmodell Nahfeld 25
3.1 Modellaufbau 25
3.2 Durchlässigkeiten 27
3.3 Ungesättigtes Gebirge 27

4 Prognoseberechnungen des Flutungsvorgangs (Nahfeldmodell) 32
4.1 Flutung 32
4.2 Bedeutung Durchlässigkeit der BHV 33
4.3 Dauer des Flutungsvorgangs und Porenwasseraustausche 34
4.4 Strömungsfeld und Konzentrationsentwicklung während der Flutung 35

5 Prognoserechnungen mit dem Fernfeldmodell 42
5.1 Berechnungsparameter 42
5.2 Strömungsfeld 42
5.2.1 Störungen 44
5.2.2 Bedeutung der durchflusswirksamen Strecken im Strömungssystem 44
5.3 Ergebnisse der instationären Tracer-Berechnung 46
5.3.1 Ausgangszeitpunkt für die Ausbreitungsberechnung 52
5.3.2 Fließlängenbetrachtung 53
5.3.3 Dauer eines Porenwasseraustauschs (PWA) 55
5.3.4 Quellterme 57
5.3.5 Ergebnisse der Ausbreitungsprognose Zink 61
5.3.6 Ergebnisse der Ausbreitungsprognose Blei 62
5.4 Gesamtbilanz der Fernfeldprognosen 64
5.5 Fazit 66
6 Offene Fragen und weiteres Vorgehen 68
7 Literatur 69

ABBILDUNGEN:

Abb. 1:	Aufbau und Inhalt des Gutachtens	1
Abb. 2:	Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1	3
Abb. 3:	Modellbereiche im Anfangszustand	5
Abb. 4:	Gesamtes Modellgebiet: Hauptwasserwege (Blau), Bruchhohlraum-verbringung (Rot), Modellrand (unterbrochene schwarze Linie), Störungen (Schwarz), Schollennummern	8
Abb. 5:	Roh-Daten vom GD aus KVB für Röttgersbank ergänzt mit Abbaufeldern als blaue Linien	9
Abb. 6:	Geologie 3D-Ansicht Karbon (blau, rot), Kreide (orange), Quartär (blau)	10
Abb. 7:	Streckensystem mit Dämmen und Schächten	11
Abb. 8:	Abbaufelder im Flöz Grimberg (orange), die BHV-Bereiche (rot) mit Höhenangaben und den ursprünglichen Bezeichnungen	12
Abb. 9:	Lage und Bezeichnung der BHV	13
Abb. 10:	3D-Ansicht mit Störungssystem	14
Abb. 11:	Horizontales FE-Netz des 3D-Fernfeldmodells mit den netzbestimmen-den Strukturen und den Gewässerbezeichnungen	15
Abb. 12:	Netzbestimmende Strukturen	16
Abb. 13:	Grundwassergleichen des quartären Grundwasserleiters mit Abweichung von den gemessenen Werten	18
Abb. 14:	Crossplot gerechnete/gemessene Grundwasserstände	19
Abb. 15:	Vertikale Schichtung und äußere Teilströme	20
Abb. 16:	Grundwasserbürtige Teilströme in m³/min	21
Abb. 17:	Resultierender Grundwasserandrang in Abhängigkeit des Leakage-Koeffizienten	22
Abb. 18:	Resultierender Grundwasserandrang in Abhängigkeit des Leakage-Koeffizienten und der kf-Werte des Karbons	23
Abb. 19:	Longitudinale Dispersivität [1]	24
Abb. 20:	Übersicht Nahfeldmodelle	25
Abb. 21:	3D-Ansicht des Flutungs-Modellgebietes um die BHV 3	26
Abb. 22:	Vertikalschnitt durch BHV 2 mit horizontalen kf-Werten	27
Abb. 23:	Modellvorstellung eines teilgesättigten geklüfteten Gesteins (aus [8]) Der Pfeil zeigt die mögliche Fließrichtung durch die kleinsten Poren	29
Abb. 24:	Charakteristische Sättigungs-Druck- bzw. Durchlässigkeits-Druckkurve für Kluft und Matrix	30
Abb. 25:	Durchlässigkeits-Sättigungsfunktion für die Klüfte	30
Abb. 26:	Wasserstandsverlauf für die Instationäre Flutung	32

Abb. 27:	PWA bei unterschiedlichen Durchlässigkeiten der BHV 1 in der instationären und der stationären Phase	33
Abb. 28:	Porenwasserdurchfluss für alle 3 BHV Bereiche	35
Abb. 29:	Tracer-Konzentrationsverteilung in der Flutungsphase des BHV 1 nach 180 (oben) und 250 (unten) Monaten	36
Abb. 30:	Vertikalschnitt durch BHV 1 nach 110 (oben) und 250 (unten) Monaten mit Strömungspathlets, Konzentrationsverteilung und freie Oberfläche	37
Abb. 31:	Tracer-Konzentrationsverteilung in der Flutungsphase des BHV 2 nach 120 (oben) und 180 (unten) Monaten	38
Abb. 32:	Vertikalschnitt durch BHV 2 nach 100 (oben), 180 (Mitte) und 250 (unten) Monaten mit Strömungspathlets, Konzentrationsverteilung und freie Oberfläche	39
Abb. 33:	Tracer-Konzentrationsverteilung in der Flutungsphase des BHV 3 nach 120 (oben) und 230 (unten) Monaten	40
Abb. 34:	Schnitt durch BHV 3.1 nach Flutung mit Strömungspathlets mit den offenen Strecken in Türkis	41
Abb. 35:	Quasistationäres Strömungsfeld in der Ebene des BHV als Ausgangszustand für die Ausbreitungsberechnung	43
Abb. 36:	Drainierende Modellknoten (Vorflutwirkung) im Röhrensystem ohne Störung	45
Abb. 37:	Drainierende Modellknoten (Vorflutwirkung) im Röhrensystem mit Störung	46
Abb. 38:	Lage der Knotenpunkte	47
Abb. 39:	Tracer-Konzentrationsganglinien an 4 Knoten mit Störung	47
Abb. 40:	Tracer-Konzentrationsganglinien an 4 Knoten ohne Störung	48
Abb. 41:	Bahnlinen mit Startpunkten (rot, blau, violett), Potential-Isolinine (türkis) und Konzentrationsverteilung (farbige Flächen) bei der Tracer-Berechnung ohne Störung. Abstrom nur nach Süden.	49
Abb. 42:	Strömungsfeld wie Abb. 41 auf der Ebene des BHV und Tracer-Konzentration ohne Störung	50
Abb. 43:	Bahnlinen mit Startpunkten (rot, blau, violett), Potential-Isolinine (türkis), Potential-Isolininen (blau) und Konzentrationsverteilung (farbige Flächen) bei der Tracer-Berechnung mit Störung. Abstrom nach Süden und Nordwesten	51
Abb. 44:	Strömungsfeld wie Abb. 43 auf der Ebene des BHV und Tracer-Konzentration mit Störung	52
Abb. 45:	Durchströmte Fließlänge in Metern ohne (oben) und mit (unten) Störung	54
Abb. 46:	Fließlängen durch die BHV 1 für alle Modellknoten in der stationären Phase mit Störung	55
Abb. 48:	Mittlere Fließzeit für einen PWA mit volumengewichtetem Mittelwert mit Störung	57

Abb. 49: Funktion der Blei- und Zinkkonzentrationen in Abhängigkeit von PWA 58
Abb. 50: Freisetzung von Zink aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (ohne Störung) 59
Abb. 51: Freisetzung von Blei aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (ohne Störung) 59
Abb. 52: Freisetzung von Zink aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (mit Störung) 60
Abb. 53: Freisetzung von Blei aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (mit Störung) 60
Abb. 54: Zink-Konzentrationsganglinien an den entsprechenden Knoten mit Störung noch ohne Vermischung mit Grubenwasser 61
Abb. 55: Kumulative Zinkfracht im drainierenden Röhrensystem mit und ohne Störung 62
Abb. 56: Blei-Konzentrationsganglinien an den entsprechenden Knoten mit Störung noch ohne Vermischung mit Grubenwasser 63
Abb. 57: Kumulative Bleifracht im drainierenden Röhrensystem mit und ohne Störung 63
Abb. 58: Zink- und Bleifrachten in der ZWH 64
Abb. 59: Gesamtbilanz in der ZWH 65
Abb. 60: Erhöhungen der Zink- und Bleikonzentrationen in der Zentralen Wasserhaltung ohne Störung (ungünstige Annahme). 66

TABELLEN:

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten 2
Tab. 2: Modellkonzept 6
Tab. 3: Geometrie und Porenraum der BHV 13
Tab. 4: Minimale Entfernungen der Teil-BHV zum nächsten Hauptwasserweg 14
Tab. 5: Modellparameter 23
Tab. 6: Charakteristik der Nahfeldmodelle 26
Tab. 7: Modellkenngrößen Nahfeldmodell 26
Tab. 8: Berechnungsparameter 42
Tab. 9: Volumenströme im Vergleich mit und ohne Störung 45

0 Vorbemerkung

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die a-hu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte die in der Abb. 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z. T. über die in der Abb. 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

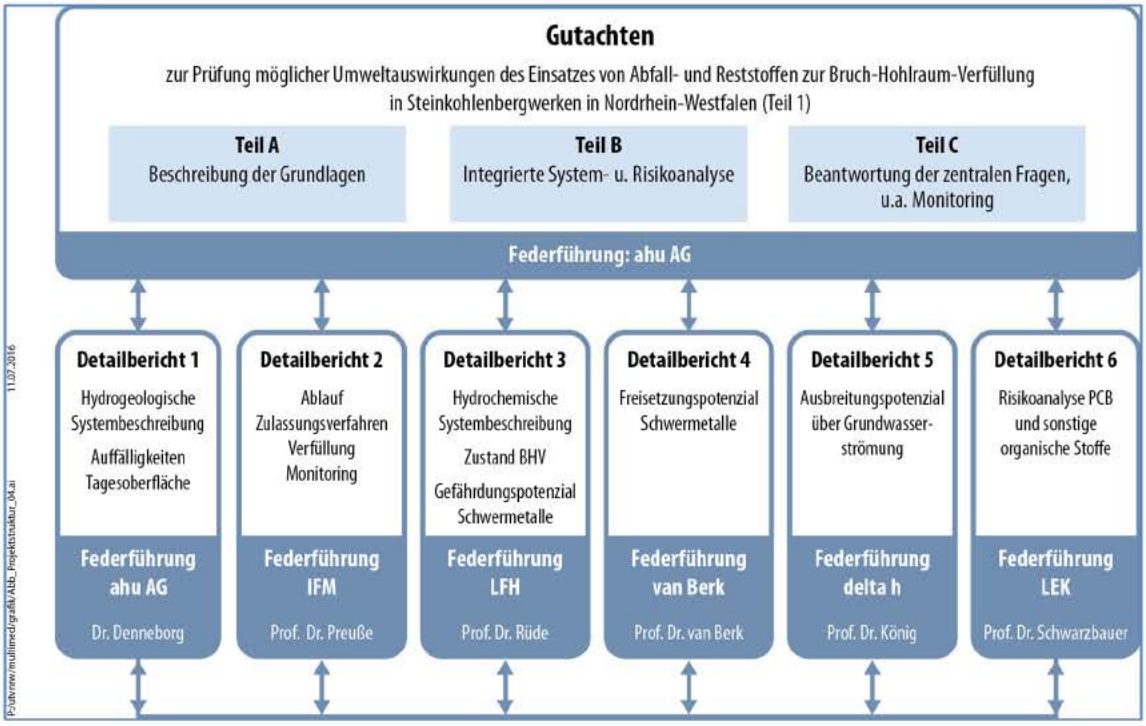


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u.a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Tab. 1: Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten

Nr	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter / Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulassungsverfahrens, der Bruchhohlraumverfüllung und des Monitorings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahren und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfüllung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungspotential 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 5.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (private landwirtschaftliche Flächen westlich von Bergkamen) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abb. 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgt in einer Tiefe zwischen -800 mNHN und -920 mNHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind noch zugänglich.

Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

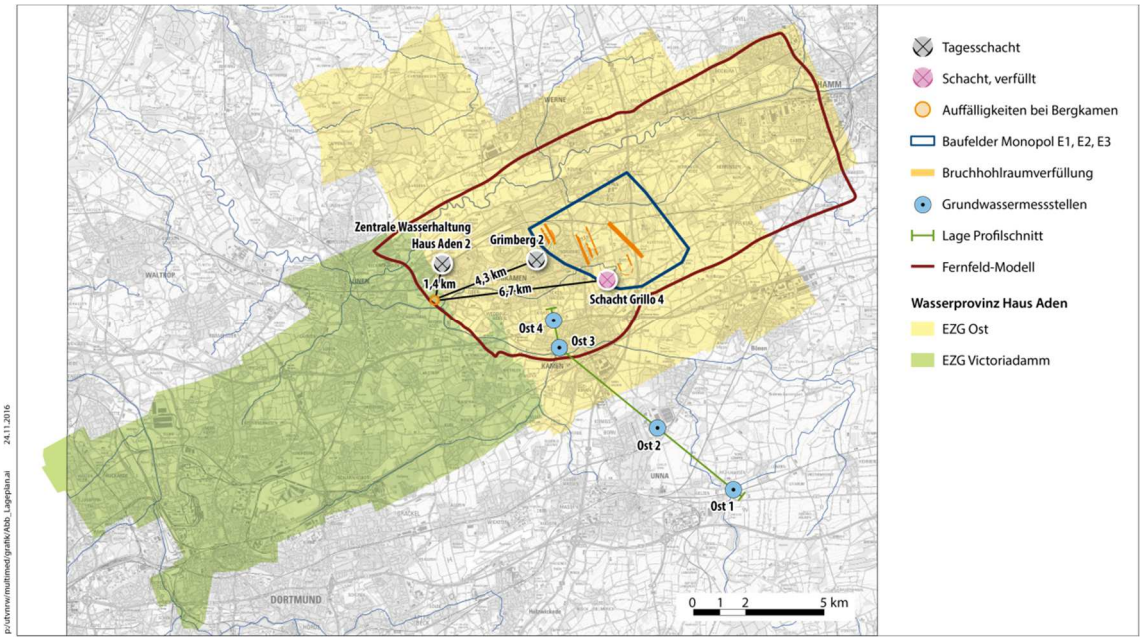


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 Grundlagen

1.1 Ausbreitungspotential anorganischer Schadstoffe

Eine Ausbreitung der in dem Bruchhohlraumversatz verbrachten anorganischen Schadstoffe kann nur über den Wasserpfad nach Flutung der Bergwerke erfolgen. Die Ausbreitung der anorganischen Schadstoffe im gefluteten Gebirge ist grundsätzlich durch drei unterschiedliche Transportprozesse zu charakterisieren: Dabei ist nach dem Grubenwasseranstieg bis auf das Niveau -670 mNHN und Aufsättigung des umgebenden Gebirges der advektive Transport gelöster Stoffe im Strömungsfeld des Tiefengrundwassers ist dominant.

Weitere Möglichkeiten einer Ausbreitung der anorganischen Schadstoffe sind:

- Diffusionsprozesse sind maßgebend bei sehr geringen Durchlässigkeiten und Gradienten und bei den vorliegenden hydrogeologischen Verhältnissen relevant. Diese Transportmechanismen werden bei der Prognose der Ausbreitungsprozesse berücksichtigt.

- Partikelgebundener Transport kann nur bei sehr hohen Fließgeschwindigkeiten in Klüften oder Röhren während der instationären Phase der Flutung auftreten. Doch auch hier wäre der advektive Transport der gelösten Stoffe noch maßgebend. Nach Flutung und Aufsättigung der BHV ist ein partikelgebundener Transport nicht mehr relevant. Diese Transportmechanismen werden bei der Prognose der Ausbreitungsprozesse nicht berücksichtigt.

- Sorptionsprozesse können die Konzentration auf dem Fließweg verringern. Langfristig haben sie aber nur einen geringen Einfluss, weil Stoffe auch wieder freigesetzt werden können. Die Sorption wird deshalb bei der Prognose der Ausbreitungsprozesse nicht berücksichtigt (s. auch Detailbericht 4).

1.2 Modellkonzept

1.2.1 Zweistufiges Modellkonzept

Die numerischen Grundwassersimulationen geben darüber Aufschluss, in wie weit sich das Porenwasser in der BHV insbesondere in der Phase des Grubenwasserwiederanstiegs austauscht und in welchem Zeitrahmen freigesetzte Stoffe sich über die Grundwasserströmung im Gebirge ausbreiten. Die numerischen Berechnungen wurden mit dem Programmsystem SPRING [10] durchgeführt. Die hydrogeochemischen Randbedingungen sind im Detailbericht 4 dargestellt. Die hydrochemischen Prozesse bei der Freisetzung und die geohydraulischen Prozesse bei der Ausbreitung wurden in enger Abstimmung zwischen Prof. [redacted] (Detailbericht 4), Prof. [redacted] (Detailbericht 5), Prof[redacted] (Detailbericht 3) und Dr. [redacted] (Detailbericht 1) erarbeitet.

Aufgrund der Komplexität der bestimmenden Prozesse wird ein zweistufiges Modellkonzept entwickelt. Das Fernfeld-Modell umschließt den Bereich des Grubengebäudes vollständig. Das Nahfeld-Modell umfasst den Teilbereich des Fernfeldmodells, der die untertägig verbrachten Reststoffe (Bruchhohlraumverfüllung: BHV) beinhaltet (Abb. 3).

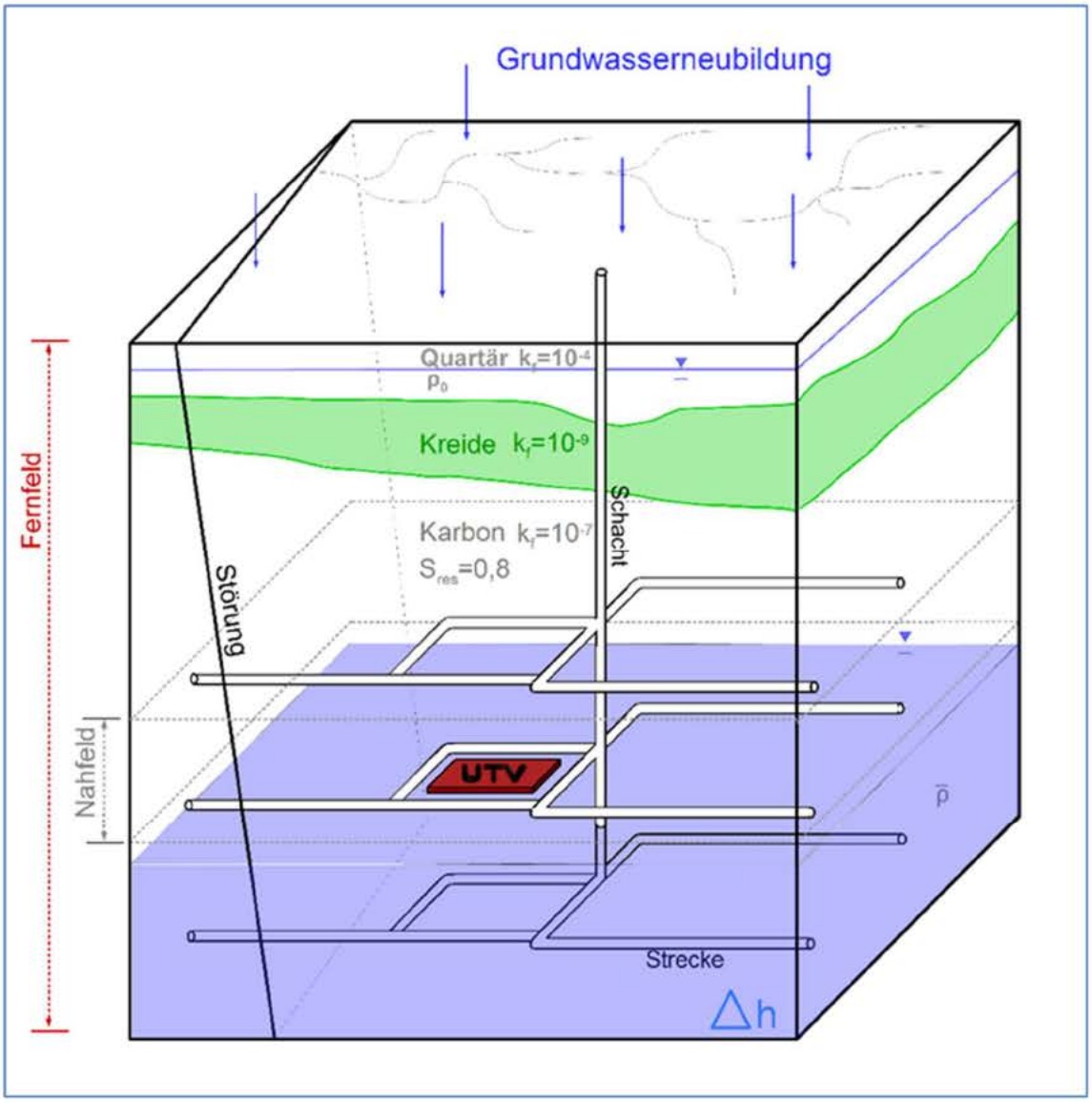


Abb. 3: Modellbereiche im Anfangszustand (delta h)

Die Prognosen mit dem Fernfeld-Modell liefern zum einen die Randbedingungen und Anfangsbedingungen für das Nahfeld-Modell, zum anderen kann die Ausbreitung von Stoffen simuliert werden. Damit ist es auch möglich, aus dem Nahbereich freigesetzte Stoffe aus der BHV in ihrem Ausbreitungsverhalten im Gebirge zu berechnen. Tabelle 2 liefert einen Überblick zum Modellkonzept.

Beide Modelle, das Fernfeldmodell und das Nahfeldmodell, sind dreidimensionale Finite-Elemente-Modelle und simulieren die Strömung des Grundwassers unter Berücksichtigung der Dichteschichtung und temperaturabhängig nach Darcy. Die Stoffverteilung erfolgt innerhalb dieser Modelle über den advektiven, dispersiven und diffusiven Transport ohne Retardation. Der Aufsättigungsvorgang der BHV wird mit dem Nahfeldmodell simuliert, der Ausbreitungsvorgang im gesättigten Gebirge mit dem Fernfeldmodell.

Dabei liefert das Fernfeldmodell folgende Erkenntnisse:

- Großräumiges Grundwasserfließsystem mit der Bedeutung von Störungen (am Beispiel des Königsborner Sprunges) und der Aussage darüber, welcher Anteil des Grundwassers im Modellgebiet über das ungestörte Gebirge und welches über die Störung den Rändern der BHV zufließt;
- Hydraulische Randbedingungen für das Nahfeldmodell;
- Ausbreitung der Konzentrationen ausgehend von der BHV bis zu den offenen Strecken (Röhrensystem) mit Zeitskalen, maximalen Konzentrationen und Frachten.
- Durchschnittliche Fließlängen durch die BHV
- Das Nahfeldmodell dient der Beantwortung der folgenden Fragen:
- Dauer bis zur Gebirgssättigung und Beginn der stationären Durchströmung der BHV;
- Sensitivität unterschiedlicher Durchlässigkeiten der BHV;
- Dauer der Porenwasseraustausche (PWA) in der instationären und stationären Phase, sowie deren Durchschnittswert;

Tab. 2: Modellkonzept

	Modell	Ergebnis	Verwendung
Fernfeld	3D, abhängig von Dichte und Temperatur	Grundwasserpotentiale, Dichte und Geschwindigkeiten regional, advektive Stoffausbreitung	Stoffausbreitung zur Biosphäre, Potential-RB für das Nahfeld, regionales Grundwasserfließsystem
Nahfeld	3D, abhängig von Dichte und Temperatur	Grundwasserpotentiale, Dichte und Geschwindigkeiten im BHV umgebenden Gebirge, advektive Stoffausbreitung	Aufsättigungsvorgang, Porenwasseraustausch, Fließlängen, Parametervariation BHV

1.2.2 Hydrogeologisches Strukturmodell

Grundlage für das numerische Modellkonzept ist das hydrogeologische Strukturmodell, in dem die wesentlichen hydrogeologischen Informationen im Modellgebiet zusammengeführt werden.

Die vermessenen Höhendaten [4] für die Basisflächen der abgebauten Flächen liegen mit einer Angabe zur bereichsweise mittleren Flözmächtigkeit vor:

- Flöz C von -608 bis -659 mNHN
- Flöz B1 von -640 bis -677 mNHN

- Flöz Zollverein 3 von -736 bis -766 mNHN
- Flöz Zollverein 5 Oberbank von -687 bis -795 mNHN
- Flöz Zollverein 6 Oberbank von -704 bis -785 mNHN
- Flöz Zollverein 6 Unterbank von -729 bis -772 mNHN
- Flöz Zollverein 8 von -761 bis -790 mNHN
- Flöz Grimberg 2-3 von -795 bis -920 mNHN
- Flöz Röttgersbank von -1.394 bis -1.460 mNHN
- Flöz Wilhelm von -1.385 bis -1.480 mNHN

Weitere von der RAG [4] gelieferte Daten beinhalten die Informationen über die Raumlage der Schächte und Strecken. Das der Wasserhaltung dienende offene Streckensystem ist unverdämmt und wird bei der Modellierung auch langfristig als wasserwegsam angenommen. Die verdämmten Streckenbereiche finden als vorflutwirksame Strukturen Berücksichtigung, der hydraulische Kontakt zu dem durchgehenden Röhrensystem der Wasserhaltung ist jedoch aufgrund der Dämme deutlich geringer.

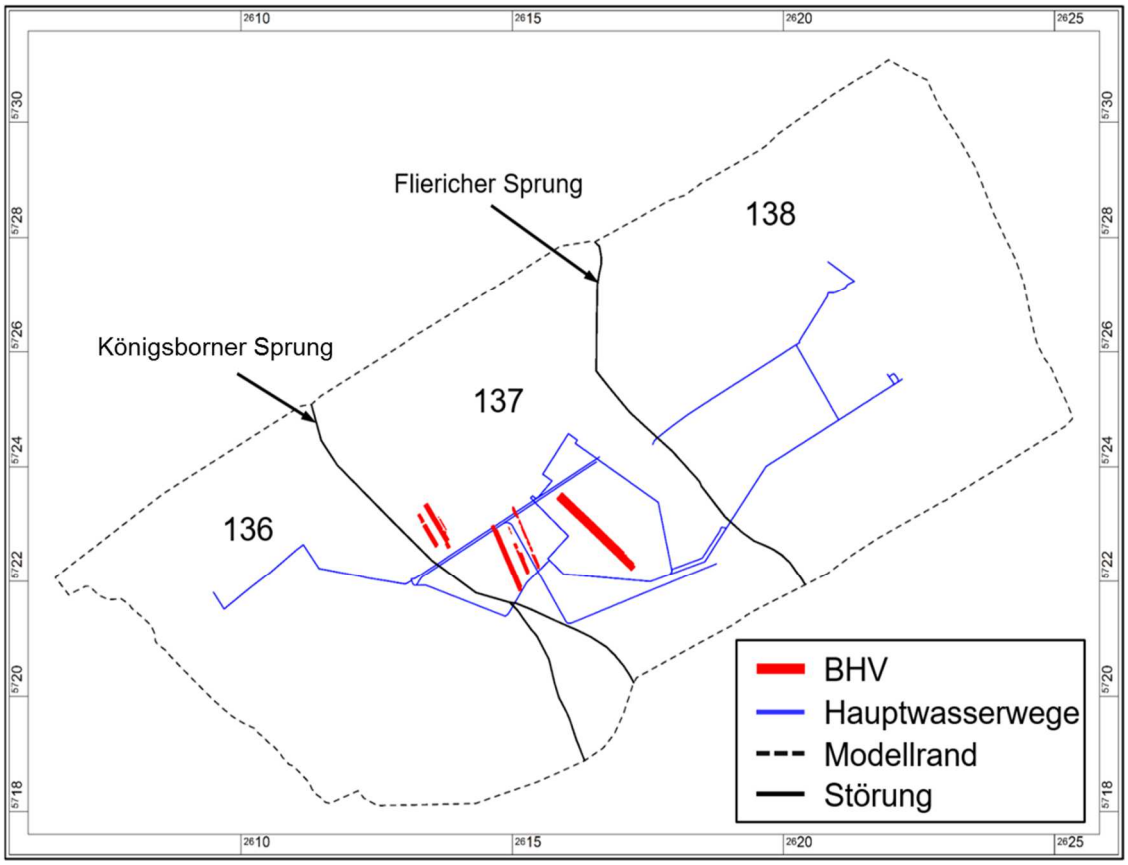


Abb. 4: Gesamtes Modellgebiet: Hauptwasserwege (Blau), Bruchhohlraumverbringung (Rot), Modellrand (unterbrochene schwarze Linie), Störungen (Schwarz), Schollennummern (delta h)

In den Daten wird daher differenziert nach verdämmten und offenen Strecken. Die Lage der vorhandenen Dämme ist enthalten (Abb. 7). Auch die Schächte werden zwischen verfüllt und offen unterschieden.

Vom Geologischen Dienst (GD) NRW wurden Daten aus dem Bestand des Projekts Kohlevorratsberechnung (KVB) für die drei Großschollen 136, 137 und 138 geliefert (Abb. 4) [3]. Ein Bruchhohlraumversatz erfolgte ausschließlich auf der zentralen Großscholle 137, die im SW durch den Königsborner Sprung gegen die Großscholle 136 und im NE durch den Flierichter Sprung gegen die Großscholle 138 abgegrenzt wird. Der Datensatz beschreibt die Lage der einzelnen Flözbasisflächen im Raum (Abb. 5). Diese Flächen wurden auf der Basis von Bohrungsdaten vor der Durchführung des Kohleabbaus konstruiert. Somit sind die Daten der RAG in den Bereichen des Abbaus genauer, da sie der vermessenen Lage des Flözes folgen. Außerhalb der Abbauflächen liegen aus dem RAG-Datenbestand keine Informationen über die Flözlage vor. Daher wurden die KVB-Daten des GD genutzt, um die Lücken zwischen den RAG-Daten plausibel zu schließen.

Darüber hinaus wurde vom GD NRW für jede Großscholle ein Standardprofil erstellt, das die generalisierte Schichtenfolge dieser Scholle beschreibt (Detailbericht 1). Diese Profile wurden genutzt, um verbleibende Lücken in den Flächendaten über einen Mächtigkeitsansatz zu schließen.

Auf dieser Datengrundlage wurde die räumliche Lage der relevanten Flözflächen konstruiert. Die Gesamtstruktur bildet eine langgestreckte variszisch streichende Mulde. Der Kohleabbau erfolgte ausschließlich im flach lagernden Kern der Muldenstruktur (Abb. 6).

Das Karbon wird diskordant von Sedimenten der Kreide (Cenoman, Turon, Emschermergel) überlagert, die im Süden ausstreichen und nach NNW zum Münsterländer Kreide-Becken hin einfallen. Die Basisfläche der Kreidesedimente wurde aus den Daten zur Kohlenvorratsberechnungen und den Geologischen Profilen (Detailbericht 1) übernommen (Abb. 6). Die Kreide wird oberflächennah von geringmächtigen quartären Ablagerungen überdeckt. Die Mächtigkeit wurde aus den Bohrprofilen und die Geländeoberfläche aus dem NRW Gesamtmodell [5] interpoliert (Abb. 6).

Der so konstruierte Flächenverband einschließlich der regional bedeutenden Störungen (Königsborner Sprung und Fliericher Sprung) bildet das hydrogeologische Strukturmodell, auf dessen Basis das 3-dimensionale Grundwassermodell aufgebaut wurde. Die beiden genannten Hauptstörungen wurden dabei als vertikal (saiger) angesetzt. Die Spuren der Störungen wurden aus dem Tiefenniveau des Flözes Grimberg, in dem der BHV durchgeführt wurde, abgegriffen, so dass die Störungslage in dem für die Modellierung des Stoffaustrags relevanten Tiefenniveau korrekt abgebildet ist. Da die Hauptstörungen allgemein sehr steil stehen, ist die Abweichung von der realen Raumlage vor dem Hintergrund der vorliegenden Fragestellung als vernachlässigbar anzusehen (Abb. 10).

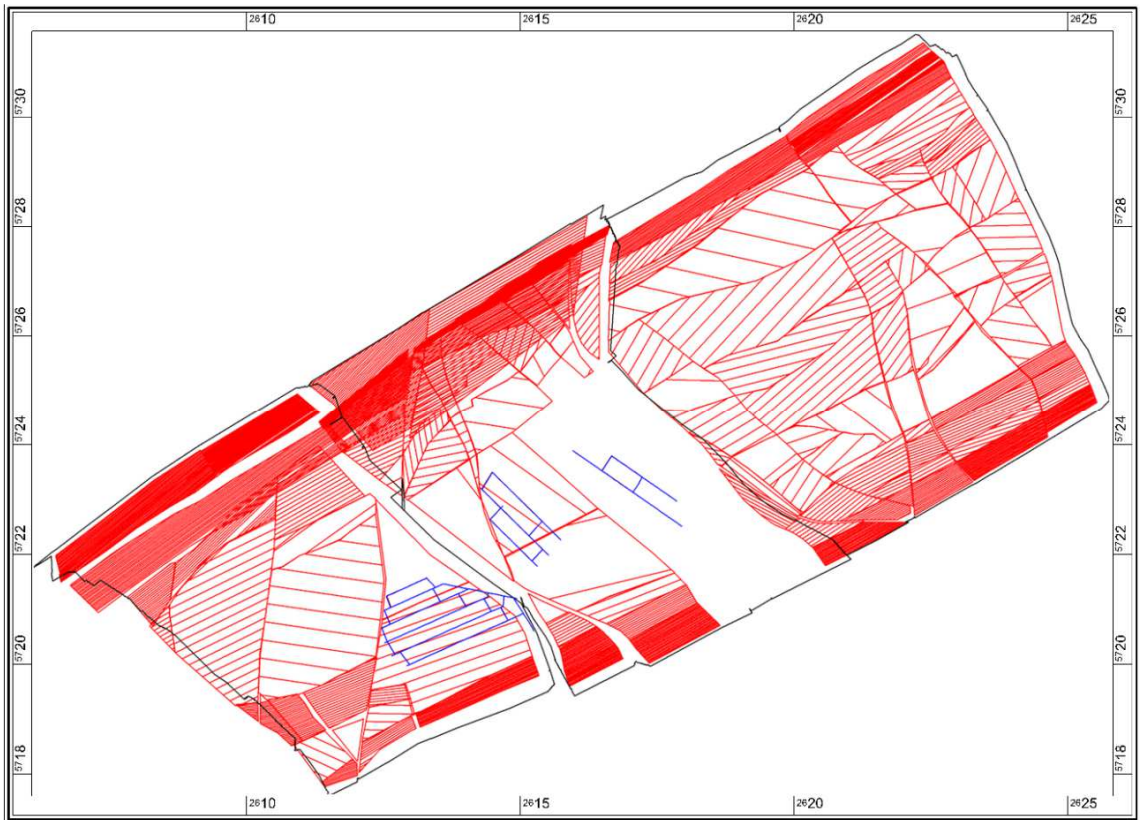


Abb. 5: Roh-Daten vom GD aus KVB für Röttgersbank ergänzt mit Abbaufeldern als blaue Linien (delta h)

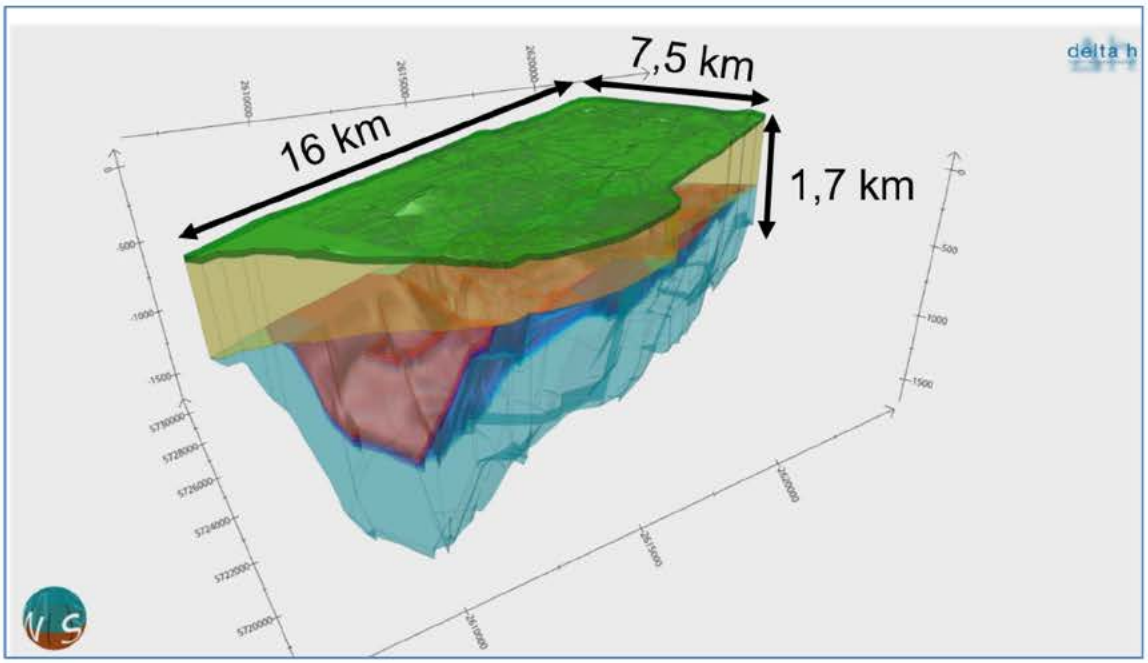


Abb. 6: Geologie 3D-Ansicht Karbon (blau, rot), Kreide (orange), Quartär (blau)

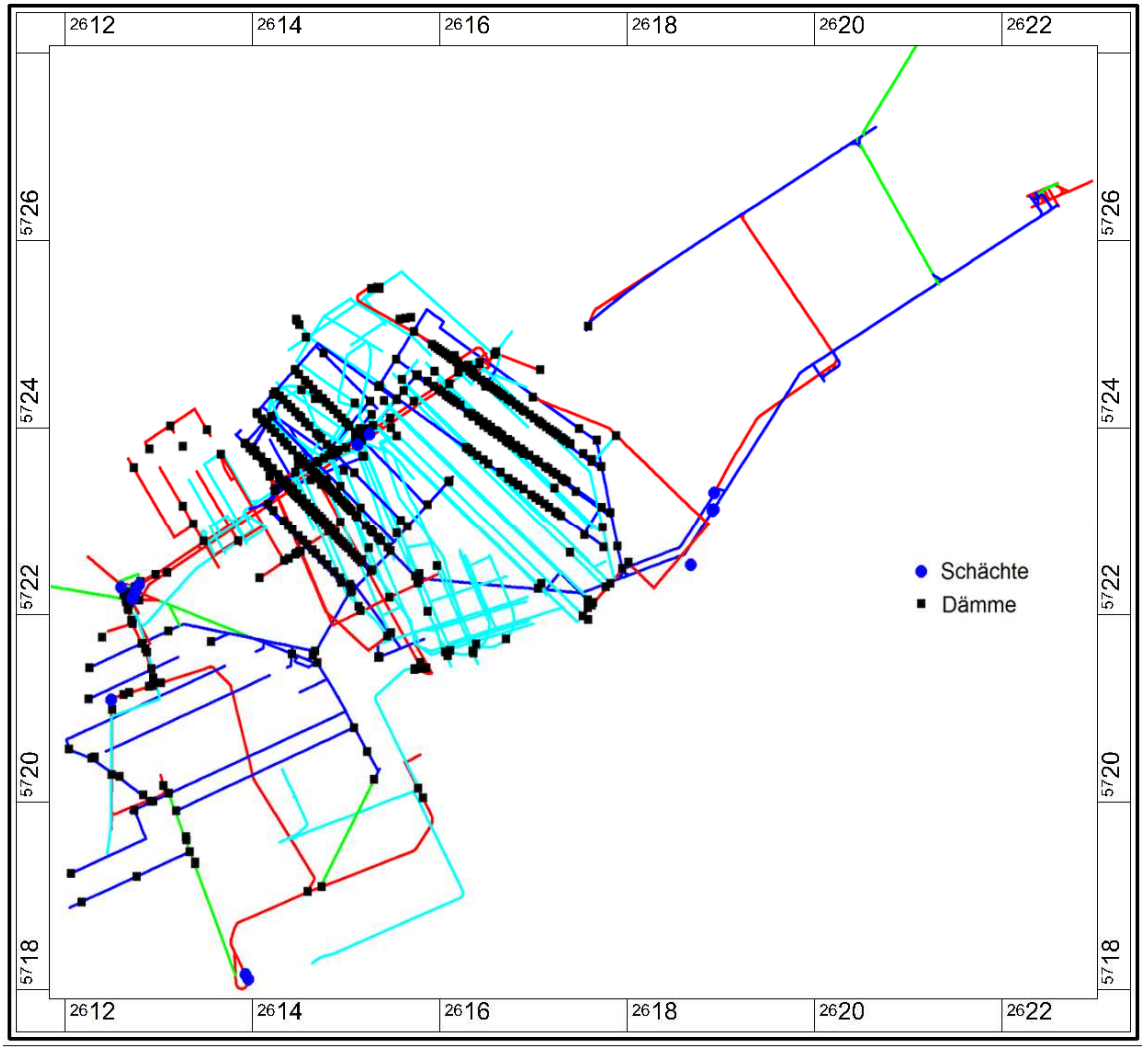


Abb. 7: Streckensystem mit Dämmen und Schächten (delta h)

1.2.3 Bruchhohlraumversatzbereiche

Die Abb. 8 gibt einen Überblick über die Bereiche des Bruchhohlraumversatzes des Bergwerks Haus Aden/Monopol mit Teufen, Abbaugrenzen und Bezeichnungen der RAG. Die in diesem Bericht verwendeten Bezeichnungen für die einzelnen Teilbereiche des Versatzes ist in Abb. 9 mit der Draufsicht des Streckennetzes und der Störungen als Ausschnitt aus den Modellnetzstrukturen zu sehen. Das System offener Strecken (blau) liegt innerhalb zweier Hauptebenen auf ca. -950 mNHN und auf ca. -1.400 mNHN. Die charakteristischen Geometrien und das Porenraumvolumen der BHV Teilbereiche listet Tabelle 3 auf.

Die minimalen Entfernungen von Teilbereichen des BHV zu dem System offener Strecken sind in Tabelle 4 dargestellt. Die Entfernung ist in der späteren Ergebnisauswertung maßgebend für die Ausbreitung der verbrachten anorganischen Schadstoffe.

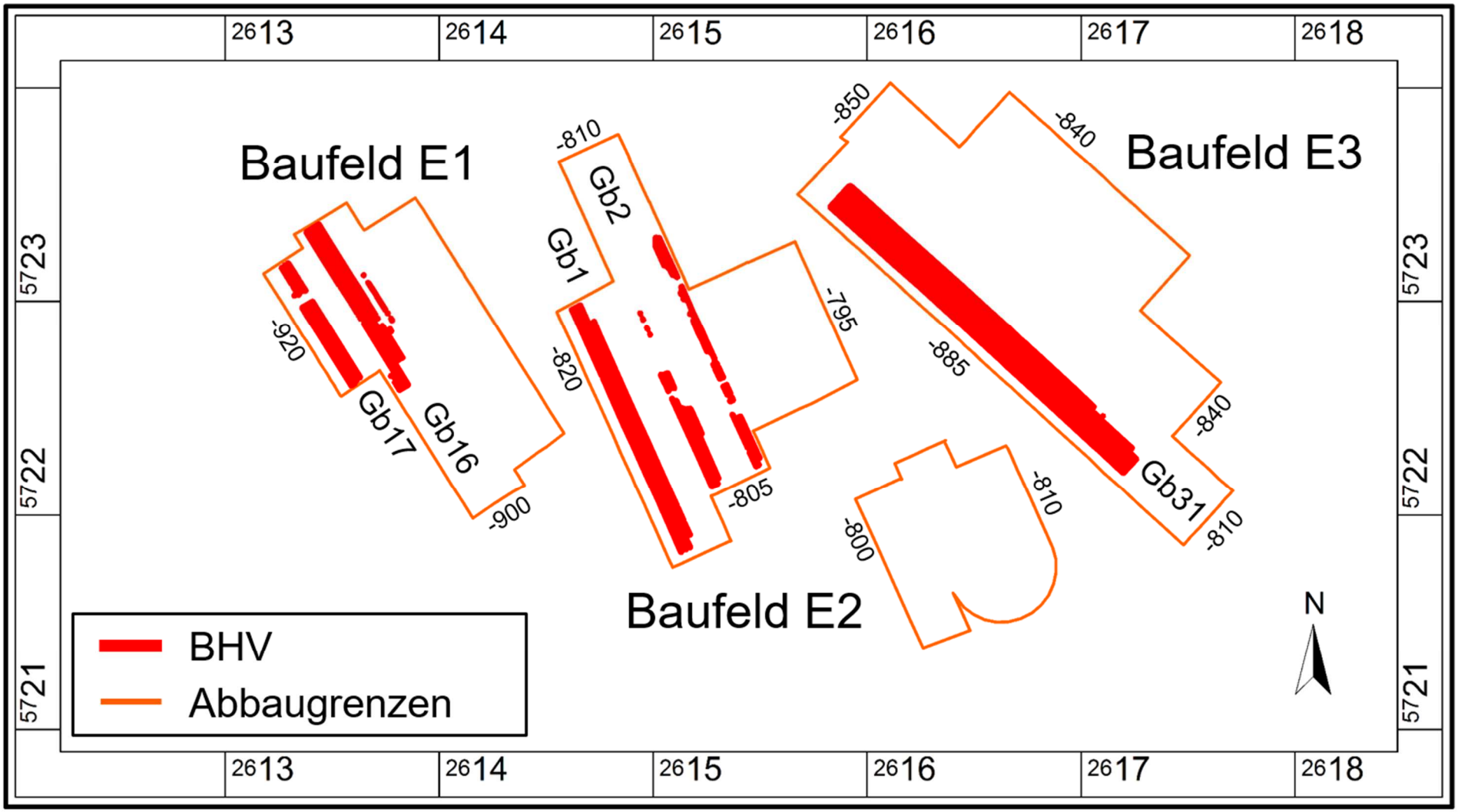


Abb. 8: Abbaufelder im Flöz Grimberg (orange), die BHV-Bereiche (rot) mit Höhenangaben und den ursprünglichen Bezeichnungen (delta h)

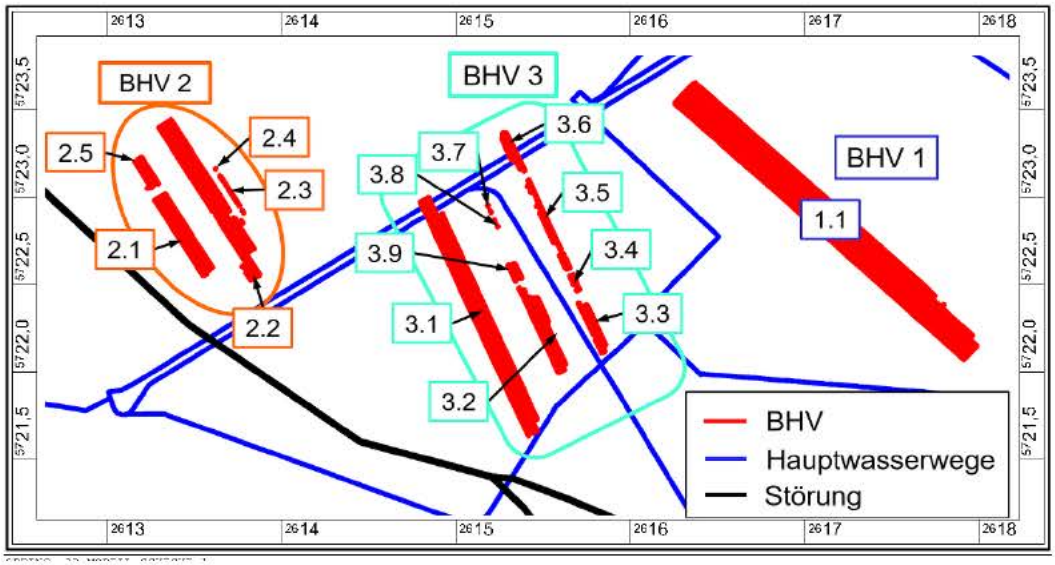


Abb. 9: Lage und Bezeichnung der BHV (delta h)

Tab. 3: Geometrie und Porenraum der BHV (delta h)

BHV	Fläche [m²]	Volumen [m³]	Porenraum [m³]	Länge Nord-Süd [m]
1.1	302.043	3.020.431	90.613	1.800
2.1	38.669	386.686	11.601	450
2.2	83.445	834.446	25.033	900
2.3	6.603	66.030	1.981	240
2.4	664	6.640	199	30
2.5	12.029	120.290	3.609	190
3.1	121.369	1.213.689	36.411	1.300
3.2	34.529	345.289	10.359	500
3.3	16.083	160.832	4.825	300
3.4	4.358	43.584	1.308	100
3.5	20.357	203.570	6.107	500
3.6	12.325	123.254	3.698	250
3.7	1.529	15.293	459	60
3.8	1.461	14.615	438	60
3.9	6.199	61.989	1.860	300

Tab. 4: Minimale Entfernungen der Teil-BHV zum nächsten Hauptwasserweg (delta h)

BHV	Entfernung zum nächstgelegenen Hauptwasserweg [m]
2.2	126
3.1	144
3.3	159
3.6	145
1	139

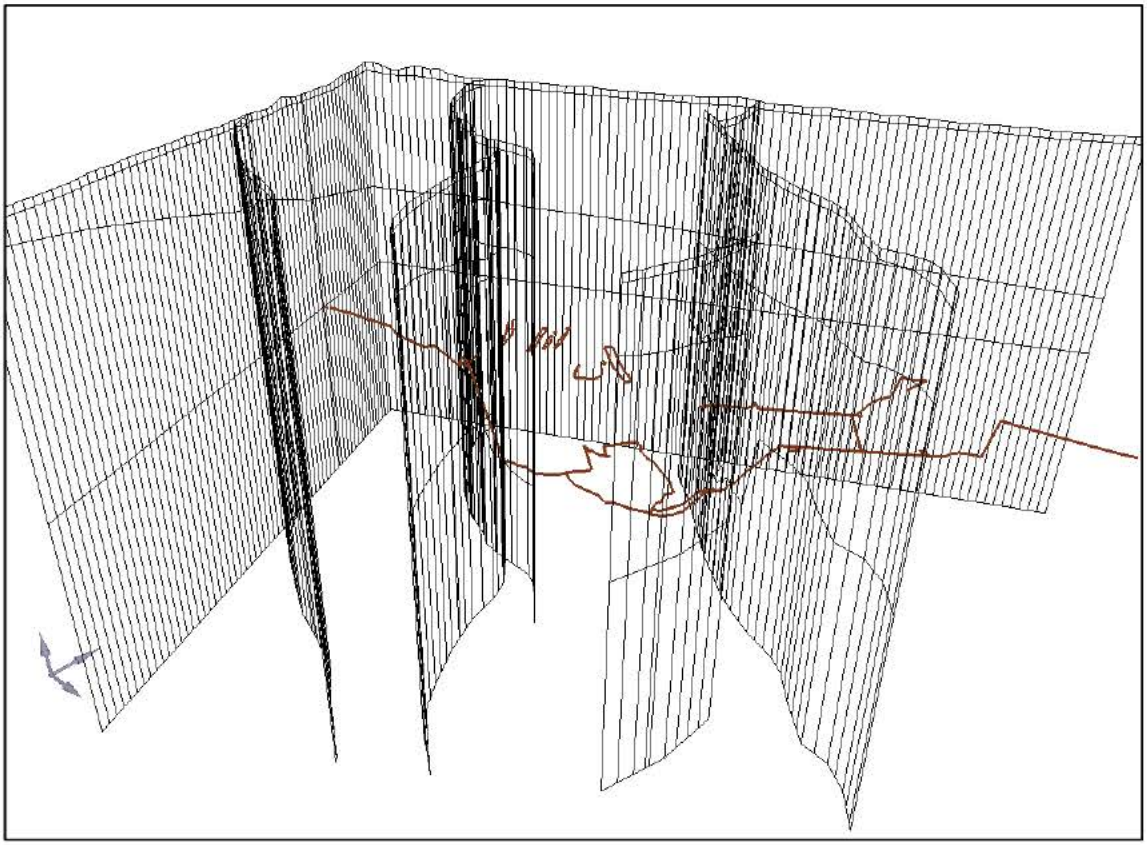


Abb. 10: 3D-Ansicht mit Störungssystem (delta h)

1.3 Fernfeldmodell

Auf Grundlage des hydrogeologischen Strukturmodells wird das Fernfeldmodell aufgebaut und kalibriert. Die Nahfeldmodelle der Bruchhohlraumversatzbereiche werden aus dem Fernfeldmodell als Detailmodelle herausgeschnitten.

2 Modellaufbau

2.1 Modellränder und Diskretisierung

Der Rand des Fernfeldmodells folgt im SW und NE den Randstörungen der Großschollen 136 und 138, die beide vollständig im Modellgebiet liegen. Der Nordrand folgt der nördlichen Begrenzung der drei Großschollen 136, 137 und 138 [3][4]. Im Süden reicht das Modellgebiet über die Ausdehnung der Großschollen hinaus, um den Einfluss der gewählten Randbedingungen auf den zentralen Aussageraum zu verringern. Das Fernfeldmodell hat eine horizontale Ausdehnung von etwa 120 km² und geht damit über den Bereich des Grubengebäudes deutlich hinaus.

Das Grubengebäude innerhalb des Karbons mit seinem Streckensystem, der Bereich des BHV sowie die bedeutenden Störungen sind in ihrer Geometrie sowohl horizontal als auch in den Höhenlagen netzbestimmend [4].

Zunächst erfolgt eine horizontale Diskretisierung der Geländeoberfläche, bei der die Lage des Gewässersystems und der Grundwassermessstellen, sowie die Aufrisse der Störungen, der BHV, der Abbauflächen, der offenen Strecken und der Streckendämme berücksichtigt werden (Abb. 11).

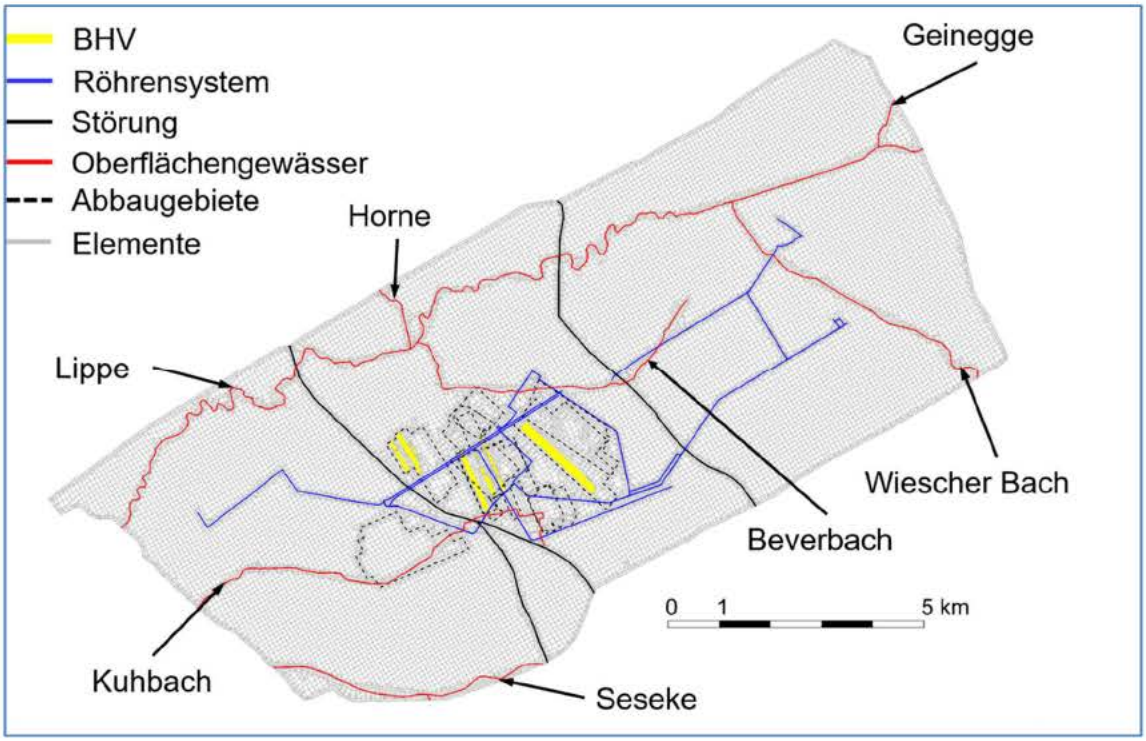


Abb. 11: Horizontales FE-Netz des 3D-Fernfeldmodells mit den netzbestimmenden Strukturen und den Gewässerbezeichnungen (delta h)

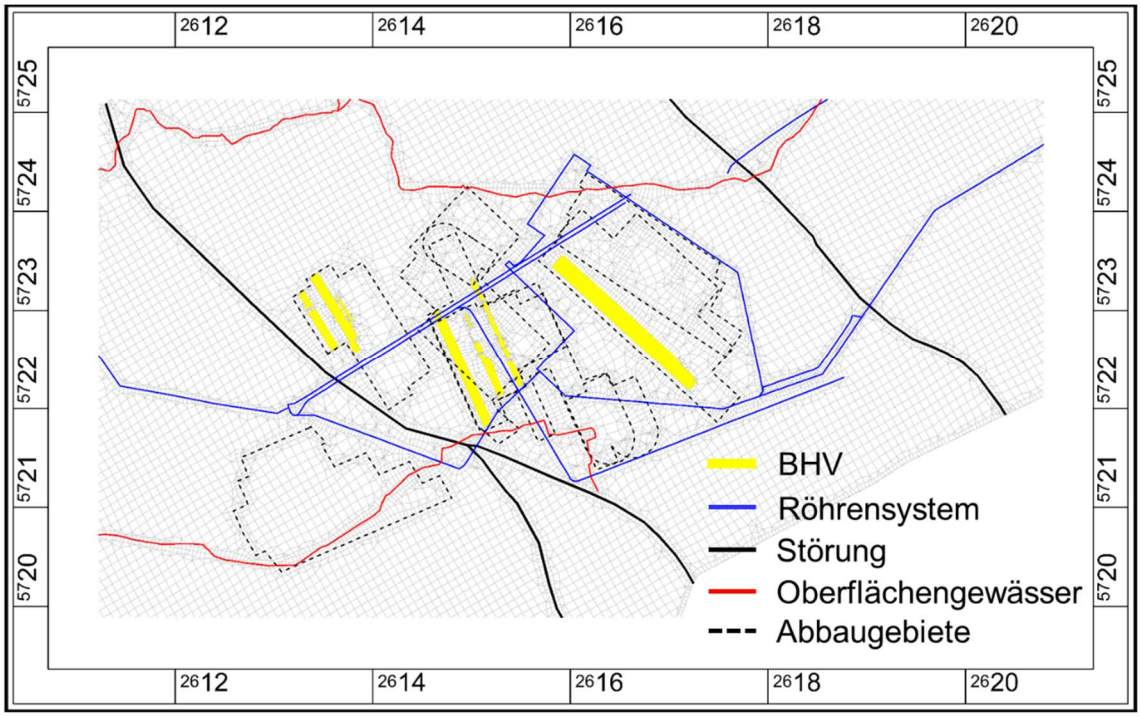


Abb. 12: Netzbestimmende Strukturen (delta h)

Bei der vertikalen Diskretisierung wird das so entstandene horizontale Netz auf die darunterliegenden Schichtgrenzen projiziert und anschließend entsprechend numerischer Qualitätskriterien verfeinert. Elementschichten auslaufender geologischer Schichteinheiten sind dabei nur innerhalb des Verbreitungsgebiets der Schichteinheit vorhanden. Als Schichtgrenzen werden folgende geologische Flächen auf der Grundlage des hydrogeologischen Strukturmodells berücksichtigt:

- Geländeoberfläche mit Vorflutersystem
- Basis des Quartärs
- Basis der Kreide
- Basis des Flözes Zollverein 8
- Basis des Flözes Grimberg 2-3
- Basis der Flöze Röttgersbank (Großschollen 136 und 138) / Wilhelm (Großscholle 137) in Abhängigkeit von Abbausituation und der jeweiligen Großscholle
- Modellbasisfläche bei -1700 mNHN

Insgesamt hat das Fernfeldmodell 31841 Knoten und 35524 Elemente mit einer mittleren horizontalen Elementlänge von 80 m in bis zu 65 Elementschichten.

2.2 Randbedingungen

Die Grundwasserneubildung im obersten quartären Grundwasserleiter wurde auf Grundlage des Niederschlags, des Bodentyps, des Geländereliefs und der Landnutzung nach dem Verfahren von Schroeder & Wyrwich (1990) [2] flächendifferenziert bestimmt. Die mittlere Neubildungsrate auf dem Modellgebiet liegt bei 215 mm/a.

Das Gewässersystem wird mittels der Leakage-Randbedingung abgebildet, wobei die Leakagekoeffizienten im Rahmen der Kalibrierung angepasst wurden. Für die Gewässer werden vorliegende Wasserstandsdaten verwendet.

Das Streckensystem innerhalb des Modellgebietes wurde gleichermaßen über die Leakage-Randbedingung modelliert, dabei wurde zwischen verdämmten Strecken mit geringerem Leakagekoeffizienten und durchgehenden Strecken mit höherem Leakagekoeffizienten differenziert. Die Leakagekoeffizienten wurden auch hier im Rahmen der Kalibrierung angepasst.

Die Wasserspiegel an den Rändern, der seitliche Zustrom über Cenoman und Turon sowie die Durchsickerung durch den Emschermergel wird durch eine Bilanzierung der zutretenden Grubenwässer abgeschätzt.

2.3 Parametrisierung

Das hydrogeologische Strukturmodell liefert die Materialeigenschaften, mit denen die Elemente und Knoten der einzelnen Strukturelemente parametrisiert werden. Zusätzlich werden die Durchlässigkeiten und Porositäten innerhalb des Karbons variiert: nicht abgebaute und abgebaute Flöze, das verbrochene Gebirge oberhalb der Abbaufelder und das unverbrochene Nebengestein sowie die BHV Bereiche (bis 10 m über Flözsohle) bekommen unterschiedliche Werte zugewiesen (siehe 2.4.4).

Die bedeutenden Störungen im Modellgebiet wurden in ihrer Durchlässigkeit innerhalb der Prognosen variiert, da diese den wesentlichen Ausbreitungsparameter darstellen.

Die Abb. 6 zeigt eine 3D-Ansicht des Fernfeldmodells mit farblicher Abstufung der geologischen Einheiten. Im Inneren des Modells sind die BHV-Bereiche (rot) zu erkennen. Deutlich erkennbar überlagert die Kreidebasis die Muldenstruktur des Karbons diskordant.

2.4 Kalibrierung

2.4.1 Kalibrierung der quartären Durchlässigkeiten und Leakagekoeffizienten

Die Kalibrierung erfolgt mit dem Fernfeldmodell. Das Nahfeldmodell stellt ein Teilmodell des Fernfeldmodells dar, so dass die Kalibrierparameter für das Nahfeldmodell aus dem Fernfeldmodell übernommen werden konnten.

Im Quartär sind Daten von 634 Grundwassermessstellen und die Wasserstände der Lippe und ihrer Nebenflüsse bekannt (quasistationärer Kalibrierzustand Frühjahr 2013).

Anhand derer können die Durchlässigkeiten des Quartärs und die Leakagekoeffizienten der Gewässer in einer Kalibrierung abgeschätzt werden. Die Abb. 13 stellt in schwarz positive Abweichungen zwischen den berechneten Grundwasserhöhen und den Messungen an den Grundwassermessstellen dar. Hier wird der Grundwasserstand zu hoch eingeschätzt. Rote Zahlen beschreiben Abweichungen, welche einen zu niedrigen berechneten Wasserstand im Vergleich zum gemessenen aufweisen. Der Crossplot in Abb. 14 gibt einen Eindruck von der Kalibriergüte. Dabei ist die Kalibrierung umso besser zu bewerten, je näher die Einzelwerte der quadrantenhalbierenden Gerade sind.

Lokale Effekte wie kleine Gräben und Bäche haben im Fernfeldmodell keine Berücksichtigung gefunden, da der Fokus auf den Vorgängen im Karbon liegt. Die regionale Grundwasserströmung im quartären Grundwasserleiter wird durch die Kalibrierung in ausreichender Genauigkeit abgebildet. Deutlich ist die Überprägung der regionalen Grundwasserströmung durch die Vorfluter zu erkennen.

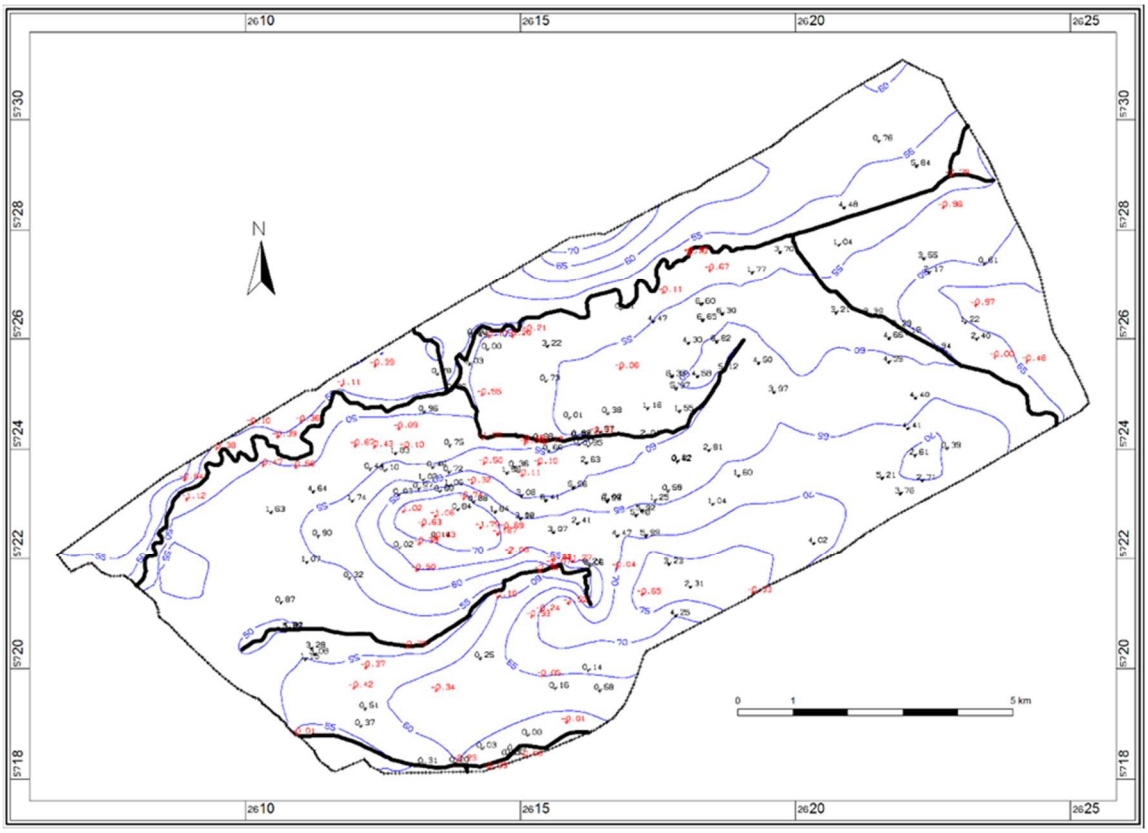


Abb. 13: Grundwassergleichen des quartären Grundwasserleiters mit Abweichung von den gemessenen Werten (delta h)

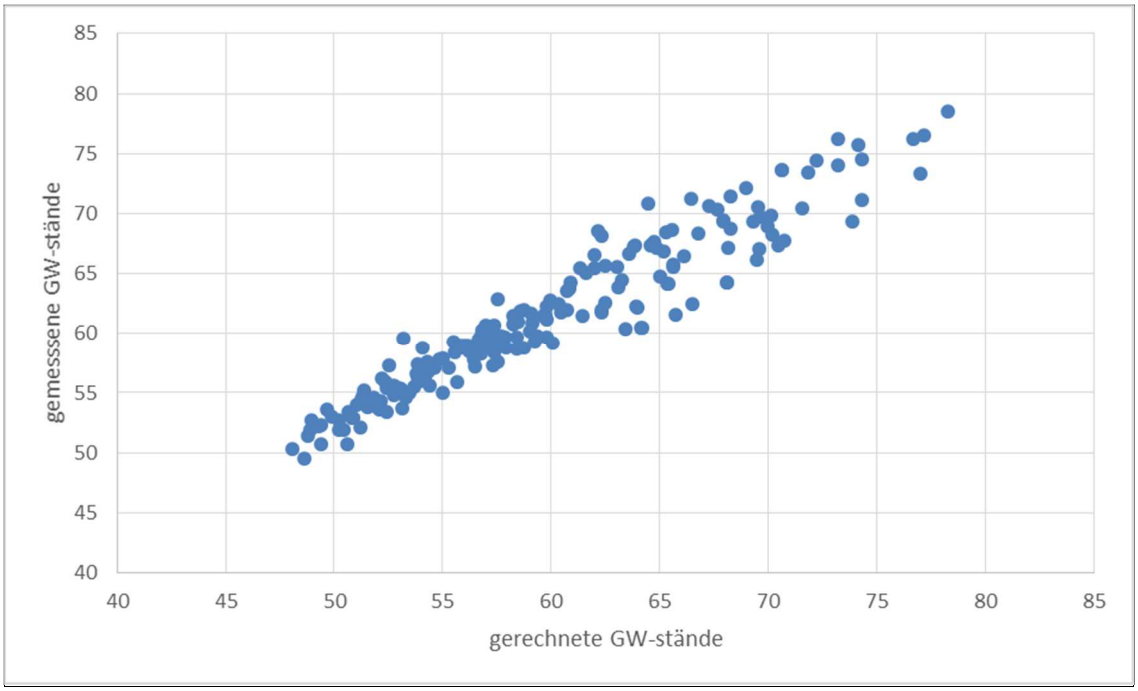


Abb. 14: Crossplot gerechnete/gemessene Grundwasserstände (delta h)

2.4.2 Sensitivitätsbetrachtung der Teilströme im Karbon (Bilanzbetrachtung)

Im Gegensatz zum Quartär, für das zahlreiche Messstellen zur Verfügung stehen, kann eine Kalibrierung der tieferen Modellschichten der Kreide und des Karbons lediglich über eine Bilanzierung der Wasserströme erfolgen. Die in das Modellgebiet einströmenden Mengen müssen mit den aus diesem Gebiet geförderten Mengen im Gleichgewicht stehen. Die Kalibrierung erfolgt im Ist-Zustand, in dem die Grubenwasserhaltung sich auf dem heutigen Niveau (2016) befindet.

Zur Abschätzung der grundwasserbürtigen Teilströme im regionalen Maßstab wird eine Bilanzierung für den Bereich der Grubenwasserhaltung der Zentralen Wasserhaltung (ZWH) Haus Aden durchgeführt.

Für die äußeren Modell-Randbedingungen ergeben sich die Teilströme gemäß Abb. 15:

- Zustrom-Anteile:
  - Grundwasserneubildung ($Q_{GW\text{-}Neubildung}$)
    Modellansatz: Neumann-Randbedingung
  - Randzustrom (Q_{Rand})
    Modellansatz: Dirichlet-Randbedingung

- Abstrom-Anteile:
  - Grundwasserbürtiger Abstrom über Gewässer ($Q_{Gewässer}$)
    Modellansatz: Cauchy-Randbedingung
  - Grundwasserbürtiger Anteil der Grubenwasserhaltung (Q_{Grube})
    Modellansatz: Cauchy-Randbedingung

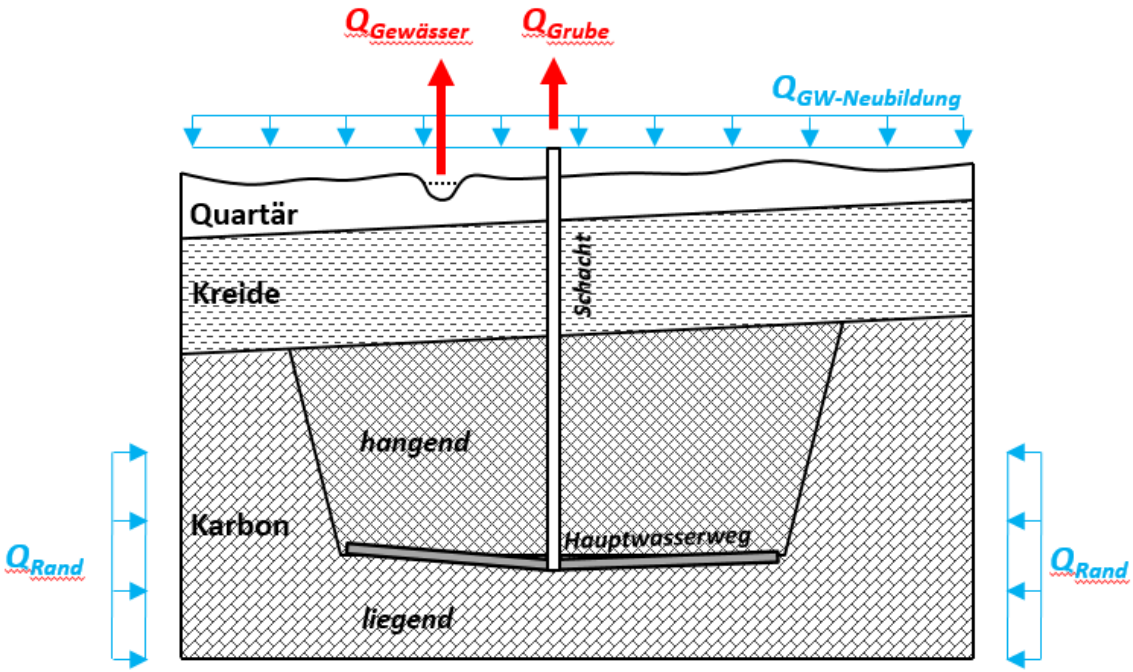


Abb. 15: Vertikale Schichtung und äußere Teilströme
(Systemskizze; rot: Abstrom, blau Zustrom in das Modellgebiet) (delta h)

Neben den bekannten Anteilen aus Grundwasserneubildung und grundwasserbürtigem Zustrom zum Grubensystem resultieren der Abstrom in die Gewässer und der Zustrom über die vertikale Modellberandung aus der Kalibrierung. Da jedoch die räumliche Verteilung des grundwasserbürtigen Zustroms in das Grubensystem auf die untertägigen Hauptwasserwege nicht bekannt ist (und auch nicht ermittelt werden kann), muss auch der Leakage-Koeffizient, der für den Widerstand der ungesättigten Zone um die Hauptwasserwege steht, kalibriert werden. Dies gilt analog auch für die Leakage-Koeffizienten der Gewässer, die die Kolmationseffekte an den Gewässersohlen abbilden. Allerdings können für Letztere gemessene Grundwasserstände in Gewässernähe herangezogen werden. Für die Kalibrierung des Leakage-Koeffizienten der Hauptwasserwege steht lediglich der grundwasserbürtige Anteil der Förderung aus der Grube zur Verfügung (rd. 2 m³/min).

Eine (Vor-)Kalibrierung des Bilanzmodells (nachfolgend als Variante 1 bezeichnet) ergab unter Ansatz der Parameter gemäß Tab. 5 die Teilströme gemäß Abb. 16. Aus den resultierenden Teilströmen lässt sich zudem der Grundwasser-Zutritt über die Kreide (Emscher-Mergel) ins Karbon mit rd. 1,5 m³/min (gleichbedeutend rd. 4 l/m²/a) ableiten.

Diese Zusickerung aus der Kreide in das Karbon beinhaltet auch Anteile, die seitlich über die Schichten des Cenoman und Turon unter dem Emschermergel dem Modellgebiet zufließen.

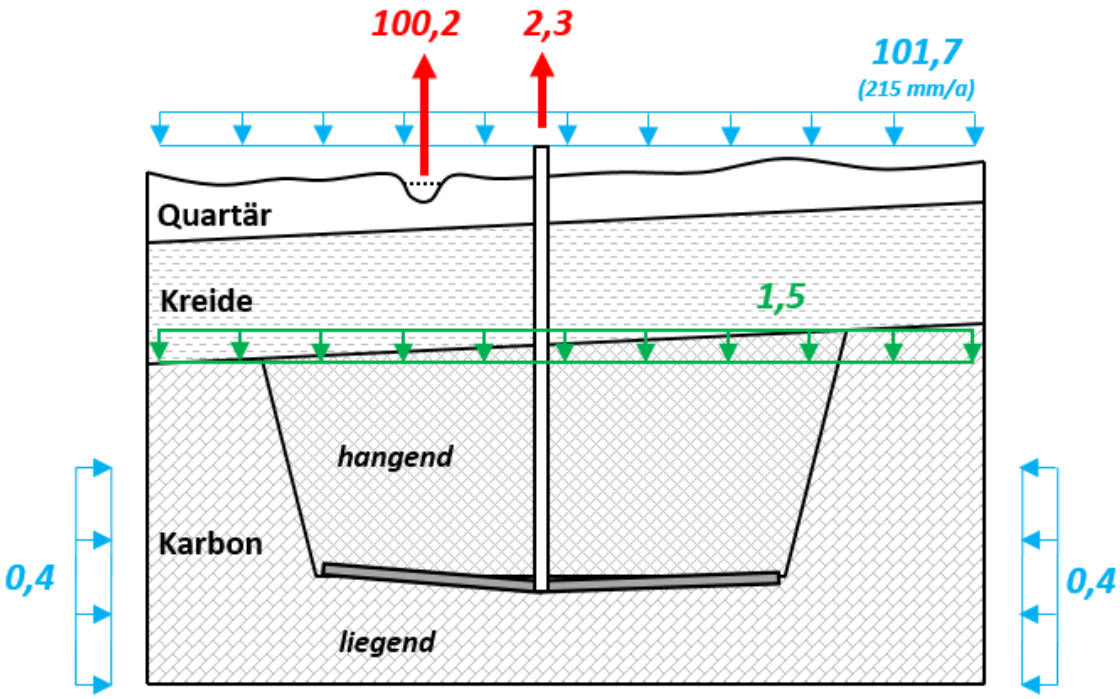


Abb. 16: Grundwasserbürtige Teilströme in m³/min (Systemskizze; rot: Abstrom, blau Zustrom in das Modellgebiet; grün: Karbon-Zusickerung über Kreide) (delta h)

2.4.3 Variation des Leakage-Koeffizienten der untertägigen Hauptwasserwege

Auf Grundlage des kalibrierten Bilanzmodells wurde anhand von Variationsrechnungen die Sensitivität des Leakage-Koeffizienten der Hauptwasserwege abgeschätzt. Hierzu wurde unter Beibehaltung aller sonstigen Modellparameter der Leakage-Koeffizient schrittweise um den Faktor zehn reduziert bzw. erhöht und der aus der jeweiligen Modellrechnung resultierenden Ausförderungsmenge (Grundwasserandrang: ca. 2 m³/min) gegenübergestellt (vgl. Abb. 17).

Die Ergebnisse zeigen, dass ausgehend vom Ergebnis der Kalibrierung eine Reduzierung des Leakage-Koeffizienten einen deutlich zu geringen Grundwasserandrang liefert. Es ist davon auszugehen, dass in diesem Fall der durch den Leakage-Koeffizienten repräsentierte Widerstand der ungesättigten Zone gegenüber dem gesättigten k_f-Wert überschätzt wird.

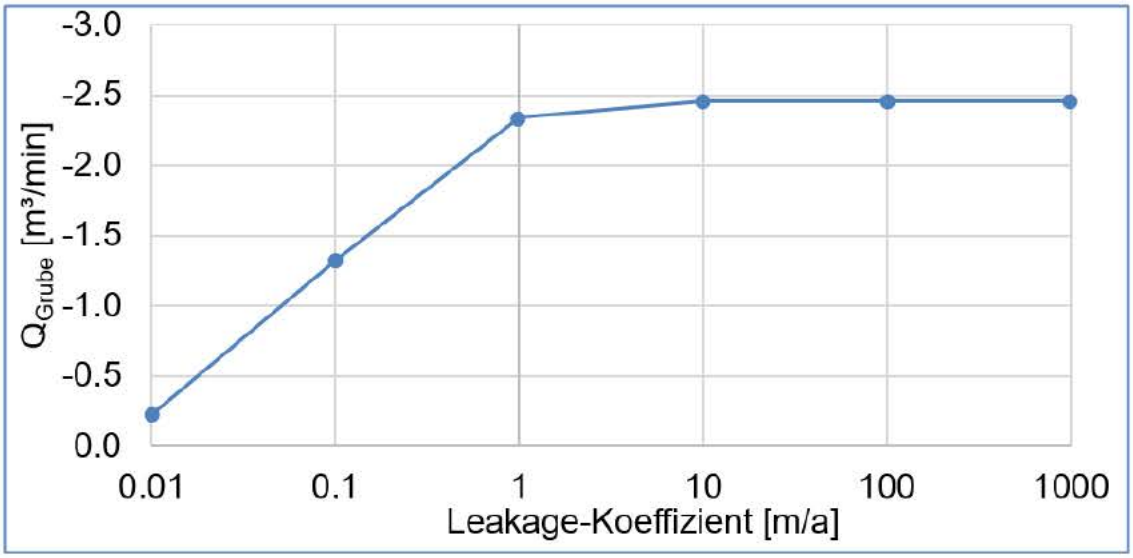


Abb. 17: Resultierender Grundwasserandrang in Abhängigkeit des Leakage-Koeffizienten

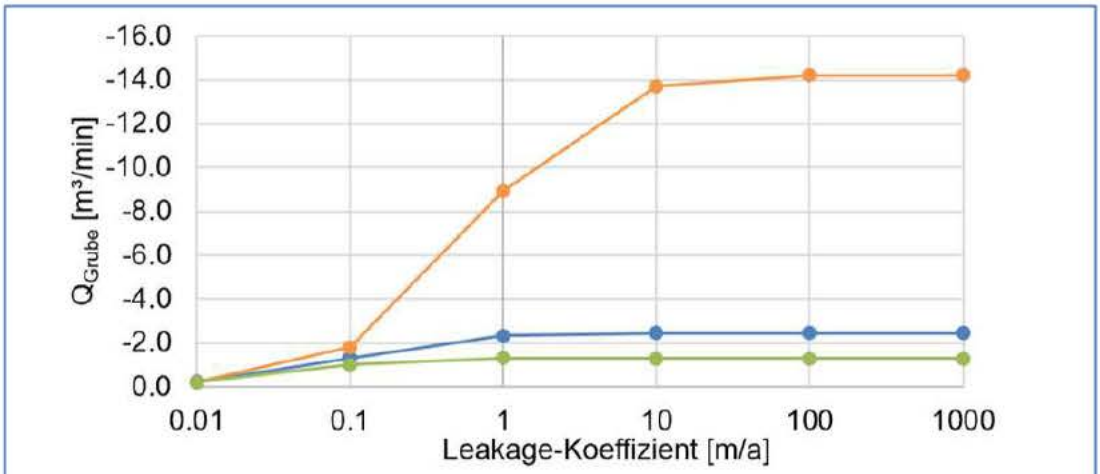
Eine Erhöhung des Leakage-Koeffizienten zeigt hingegen keine signifikante Änderung des Grundwasserandrangs gegenüber dem Kalibrierergebnis. Hieraus kann geschlussfolgert werden, dass für diesen Fall ausschließlich der k_f-Wert des Karbons die Limitierung des Grundwasserandrangs bestimmt und somit die verwendete Cauchy-Randbedingung (Leakage, 3. Art) durch eine Dirichlet-Randbedingung (Festpotenzial, 1. Art) ersetzt werden kann.

2.4.4 Variation der k_f-Werte des Karbons

In einem zweiten Schritt wurden, aufbauend auf der Variation des Leakage-Koeffizienten der Hauptwasserwege, zusätzlich die k_f-Werte des Karbons verändert. Die resultierenden grundwasserbürtigen Zutritte über die Hauptwasserwege der Grube wurden wiederum gegenübergestellt (vgl. Abb. 18).

Die Ergebnisse zeigen erwartungsgemäß unabhängig vom k_f-Werte des Karbons prinzipiell die gleiche Charakteristik. So zeigt die Erhöhung des Leakage-Koeffizienten schlussendlich für alle k_f-Wert-Varianten eine Limitierung des Grundwasserandrangs unabhängig vom Leakage-Koeffizienten.

Die Reduzierung des vertikalen k_f-Werts für das hangende Karbon auf 7×10^{-9} m/s zeigt, dass der Grundwasserandrang von rd. 2 m³/min unabhängig von der Größe des Leakage-Koeffizienten nicht mehr erreicht werden kann. Somit kann diese Durchlässigkeitsgrößenordnung für das Karbon als zu gering ausgeschlossen werden.



$k_{f,vertikal}$–Wert Karbon (hangend:liegend = 3:1)	Leakage-Faktor [m/a]					
	0,01	0,1	1	10	100	1000
4 x 10^{-7} m/s	0,2	1,8	9,0	13,7	14,2	14,2
5 x 10^{-8} m/s (Variante 1)	0,2	1,3	2,3	2,5	2,5	2,5
7 x 10^{-9} m/s	0,2	1,0	1,3	1,3	1,3	1,3

Abb. 18: Resultierender Grundwasserandrang in Abhängigkeit des Leakage-Koeffizienten und der k_f-Werte des Karbons (delta h)

Tab. 5: Modellparameter (delta h)

	Quartär	Kreide	Karbon
$k_{f,vertikal}$-Wert	5 • 10^{-5} m/s	5 • 10^{-10} m/s	1,6 • 10^{-8} m/s
Anisotropie (vertikal:horizontal)	1:10	1:5	1:3
Grundwasserneubildung	215 mm/a	-	-
Randpotenzial	-	-	-660 mNHN
Wasserstand Gewässer	Pegel-Daten, DGM	-	-
Leakage-Koeffizient Lippe (kf/d • b)	1000	-	-
Leakage-Koeffizient Nebengewässer (kf/d • b)	100	-	-
Wasserstand Röhrensystem	-	-	-670 mNHN
Leakage-Koeffizient Hauptwasserwege (kf/d • U)	-	-	15
Porenvolumen	0,18	0,05	0,03
BHV-Bereich	-	-	1 • 10^{-8} m/s
Alter Mann	-	-	5 • 10^{-8} m/s
Störung	-	-	1 • 10^{-5} m/s

2.4.5 Dispersivitäten

Bei der Berechnung mit einem Tracer benötigt die zu lösende Stofftransportgleichung die Angabe einer Dispersivität. Die Dispersion beschreibt die Vermischung von gleichen Inhaltstoffen im bewegten Porenwasser. Dieser Prozess wird durch die unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten in der Pore, die Porengrößenverteilung und die Weglänge, die die einzelnen Stoffteilchen zurücklegen können, verursacht. In Abb. 19 sind in der Literatur angegebene longitudinale Dispersivitäten dargestellt.

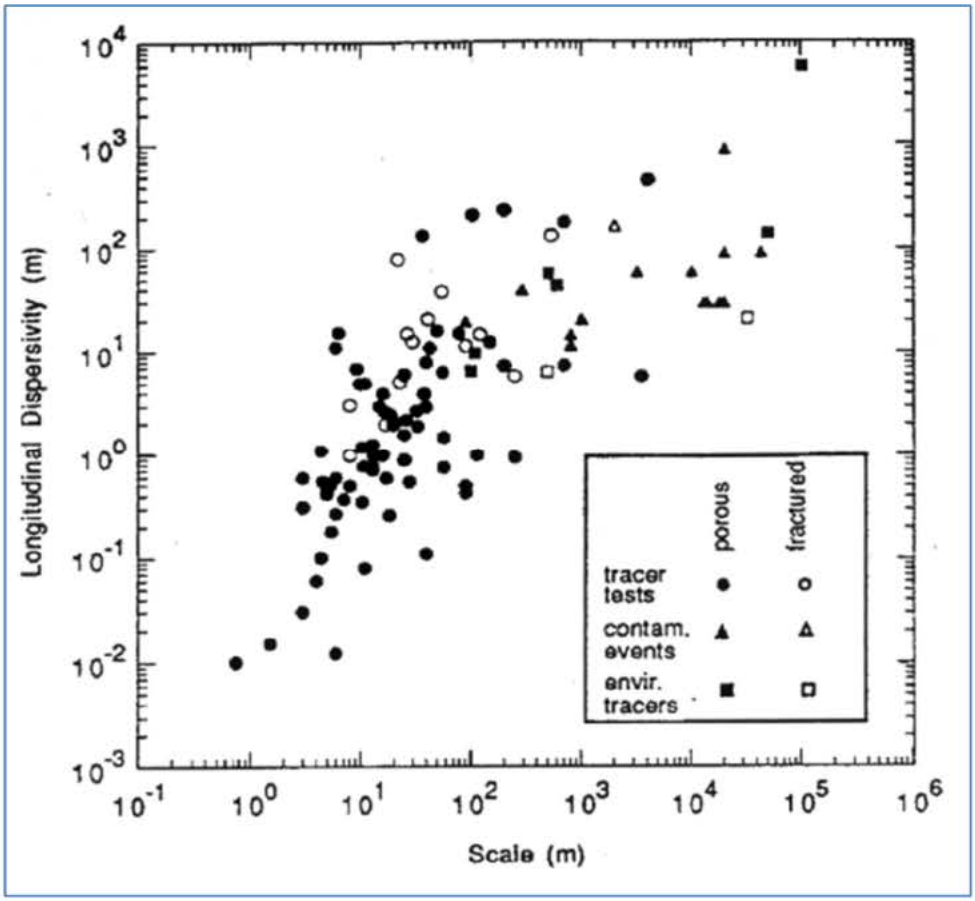


Abb. 19: Longitudinale Dispersivität [1] (delta h)

Im Modell werden eine longitudinale Dispersivität von 50 m, eine horizontal transversale Dispersivität von 5 m und eine vertikal transversale Dispersivität von 0,5 m angenommen. Die Dispersivität ist abhängig von der mittleren Ausbreitung der Schadstofffahne im Modellgebiet. Die angesetzten 50 m beziehen sich auf eine mittlere Schadstofffahnenlänge von ca. 1.000 m. Diese Werte ergeben sich aus dem Diagramm in Abb. 19.

3 Modell Nahfeld

Der instationäre Flutungsvorgang des Grubengebäudes und damit auch die Aufsättigung der BHV soll mit einem detaillierteren Nahfeldmodell simuliert werden, dessen Aufbau im Folgenden beschrieben wird.

3.1 Modellaufbau

Für das Nahfeldmodell der untertägig verbrachten Reststoffe werden 3 Teilmodelle aus dem hydrogeologischen Strukturmodell gebildet, in Abb. 20 sind diese in der Draufsicht dargestellt. Diese drei Teilmodelle werden im Folgenden als Ganzes mit „Nahfeldmodell“ bezeichnet, obschon die drei Teilmodelle voneinander unabhängig sind. Das Nahfeldmodell beinhaltet die BHV Bereiche und das umliegenden Gebirge. Nach unten werden die Modelle durch die Ebene, die auf Höhe der nächstgelegenen offenen Strecke liegt, begrenzt. Über den BHV Bereichen wurde jeweils auf der Höhe der nächstgelegene verdämmten Strecke (hellblaue Linie in Abb. 20) eine Grenzebene definiert. Die Störungen sind als schwarze Linien, die Verbringungsbereiche als rote Linien, die Wasserhaltung als blaue Linien, die verdämmten Strecken als hellblaue Linien und die jeweiligen Modellgrenzen als unterbrochene schwarze Linie dargestellt. Diese Strukturelemente wurden bei der Diskretisierung berücksichtigt, außerhalb dieser Elemente wurde horizontal in einem 10m x 10m Raster und vertikal in 1m dicke Elementschichten vernetzt. Die geometrischen Kennwerte der Teilmodelle sind in Tabelle 6, die Anzahl der Knoten, Elemente und Elementschichten in Tab. 7 aufgelistet.

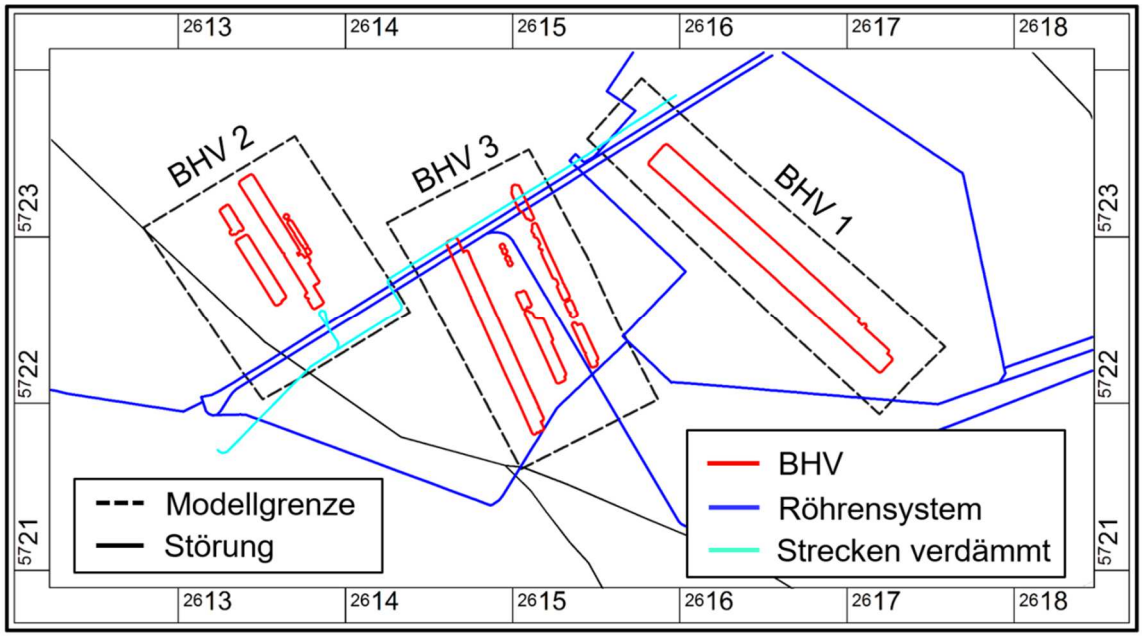


Abb. 20: Übersicht Nahfeldmodelle (delta h)

Tab. 6: Charakteristik der Nahfeldmodelle (delta h)

Teilbereich	Länge Nord-Süd	Länge West-Ost	Höhe
BHV 1	2450	550	250
BHV 2	1300	1000	190
BHV 3	1700	950	190

Tab. 7: Modellkenngrößen Nahfeldmodell (delta h)

Teilbereich	Knoten	Elemente	Elementschichten
BHV 1	3.235.390	3.336.500	250
BHV 2	2.571.433	2.663.040	190
BHV 3	3.071.662	3.178.320	190

Die Randbedingungen der Teilmodelle sind so definiert, dass über die Streckenbereiche am oberen und unteren Rand der Modelle der Flutungsverlauf (Abb. 26) als Randbedingung 1. Art (Dirichlet-Randbedingung) definiert wurde. Alle anderen Ränder sind mit einer no-flow Randbedingung (Neumann-Randbedingung, 2. Art) belegt. Die Anfangsbedingung gibt den Zustand des entwässerten Gebirges mit Residualsättigung wieder.

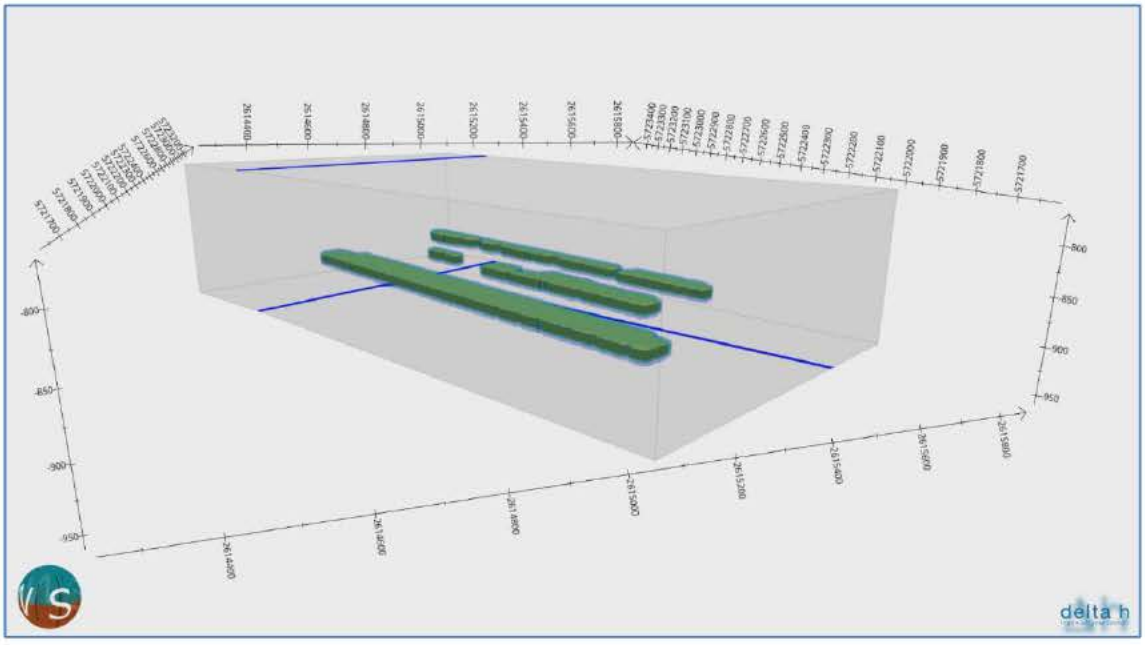


Abb. 21: 3D-Ansicht des Flutungs-Modellgebietes um die BHV 3 (delta h)

3.2 Durchlässigkeiten

Im Gegensatz zum Fernfeldmodell, in dem das Karbon mit einer gemittelten, kalibrierten Durchlässigkeit abgebildet wurde, gibt das Nahfeldmodell eine lokale Durchlässigkeitsdifferenzierung gemäß Abb. 22 wieder. Diese Schichtenfolge ist charakteristisch für die auftretenden geologischen Verhältnisse. Im Mittel entsprechen die Parameter einer Durchlässigkeit von 3 x 10^{-8} m/s, was der Durchlässigkeit von verbrochenem Schiefertongebirge entspricht. Der BHV Bereich (violett) ist durch die Verpressung undurchlässiger als der restliche verbrochene Bereich. Die Mächtigkeiten der Schichten variieren zwischen 10 und 20 m.

Die horizontalen Durchlässigkeiten sind der Legende der Abbildung zu entnehmen. Die Durchlässigkeit des BHV wurde im Zuge der Prognoserechnung variiert. Die vertikalen Durchlässigkeiten wurden mit 1/3 der horizontalen Durchlässigkeit im Umgebenden und mit 1/1 der horizontalen Durchlässigkeit im BHV-Bereich angesetzt. Die Porositäten wurden mit 0,02 und 0,03 im Umgebenden und mit 0,05 im BHV-Bereich abgeschätzt.

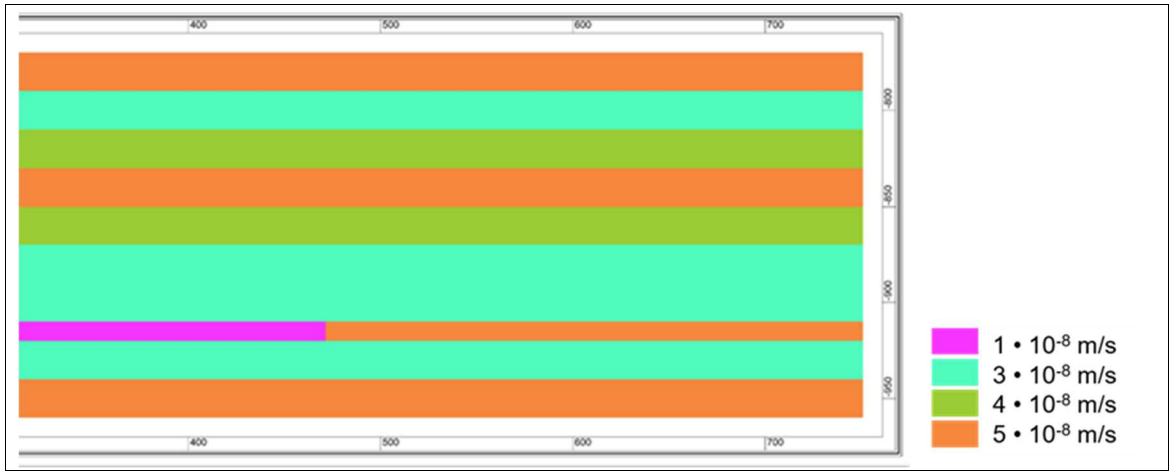


Abb. 22: Vertikalschnitt durch BHV 2 mit horizontalen k_f-Werten (delta h)

3.3 Ungesättigtes Gebirge

Da das Nahfeldmodell den Flutungsvorgang des Grubengebäudes im Bereich der BHV simulieren soll, ist die Abbildung der Strömung im ungesättigten Gebirge von zentraler Bedeutung. Die Strömung in ungesättigtem Gebirge ist eine Mehrphasenströmung.

Für ungesättigte Strömungsvorgänge wird in der Regel die Darcy-Gleichung verallgemeinert

$$q = -k_{rel}\boldsymbol{k}\frac{\rho g}{\mu}\nabla\left(\frac{p}{\rho g}\,z\right)$$

wobei k_{rel} eine Relation zwischen gesättigter und ungesättigter Durchlässigkeit als Funktion des Sättigungsgrades darstellt. Der Sättigungsgrad wiederum ist als eine Funktion des Wasserdruckes gegeben [10].

Die Durchlässigkeits-Sättigungsfunktion $k_{rel}(S_w)$ und Sättigungs-Druckfunktion $S_w(p)$ werden in Laborversuchen ermittelt. Die resultierenden Kurven werden meistens nach den Modellen von van Genuchten oder Brooks und Corey (Rawls und Brakensiek, 1988 [6]) geeicht.

Nach van Genuchten [7] wird die Sättigung mit

$$S_w = S_{w_{res}} + \left(1 - S_{w_{res}}\right)\left[\frac{1}{1+(\alpha_e p)^{\mu}}\right]^{\frac{\mu-1}{\mu}}$$

definiert, wobei S_{wres}, α_e und μ Konstante sind.

Die entsprechende Durchlässigkeits-Sättigungsfunktion wird durch

$$k_{rel} = \sqrt{S_w^*}\left[1 - \left(1 - S_w^{*\frac{\mu}{\mu-1}}\right)^{\frac{\mu-1}{\mu}}\right]^2$$

gegeben, wobei

$$S_w^* = \frac{S_w - S_{w_{res}}}{1 - S_{w_{res}}}$$

Grundlegende Überlegungen zu dem Thema geklüftetes Gestein haben Wang und Narasimhan (1985) [8] veröffentlicht. Diese Theorie wird hier zum Teil wiederholt. Die Öffnungsweite der Kluft ist nicht konstant, sodass sich in den schmaleren Bereichen Wasser befinden kann. Die Existenz von Luftblasen bietet jedoch einen großen Widerstand gegen die Strömung. Die Durchlässigkeit der Kluft wird um mehrere Größenordnungen gemindert und kann im Extremfall kleiner als die der Matrix werden. Infolgedessen findet in diesem Fall die Strömung normal zur Kluftrichtung über die kleinsten Poren statt. Diese Modellvorstellung ist in der Abb. 23 dargestellt.

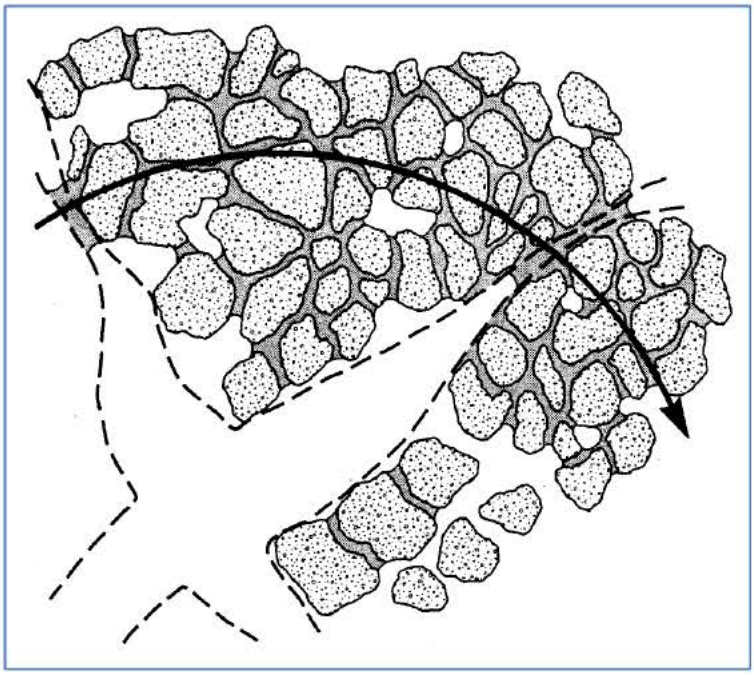


Abb. 23: Modellvorstellung eines teilgesättigten geklüfteten Gesteins (aus [8])
Der Pfeil zeigt die mögliche Fließrichtung durch die kleinsten Poren

Anders als im gesättigten Zustand spielt bei ungesättigter Strömung die Kapillarität eine wichtige Rolle. In der Bodenphysik ist allgemein anerkannt, dass der hydrostatische Druck im ungesättigten Boden kleiner ist als der atmosphärische Druck.

Die Differenz zwischen beiden ist der kapillare Druck, der als Funktion des effektiven Porenradius und der Oberflächenspannung zwischen Gestein und Flüssigkeit definiert wird. Der Sättigungsgrad des Bodens kann also als Funktion des kapillaren Drucks und somit des Porenradius betrachtet werden.

Daraus erkennt man, dass bei Drainage-Prozessen des Bodens zunächst die größeren Poren trockengelegt werden. Im geklüfteten Gestein bedeutet das, dass bei Teilsättigung die Klüfte trocken sind, während das Wasser durch Kapillarität in den feinen Poren der Matrix haftet.

Der Sättigungsprozess kann allerdings anders verlaufen. Experimentelle Beobachtungen sowie theoretische Analyse in Hinblick auf landwirtschaftliche Böden haben die Bedeutung von Makroporen auf Infiltrationsprozesse verdeutlicht. Ist die Neubildung durch Regen gering, wird das Wasser an der Oberfläche in die Mikroporen der Matrix gesaugt. Übersteigt die Neubildung die Infiltrationsrate der Matrix, findet ein Fließprozess in den Makroporen statt. In Bezug auf die Flutung des Grubengebäudes kann man sich vorstellen, dass beim Wiederanstieg des Grundwasserspiegels eine rasche Auffüllung der Klüfte stattfinden kann, sofern die nötige Wassermenge vom Gebirge geliefert wird.

Die Diagramme in der Abb. 24 zeigen, dass schon bei der kleinen Saugspannung von 0,1 m die Klüfte austrocknen und die Durchlässigkeit stark abfallen kann. Die unterschiedlichen Kurven für Kluft und Matrix stammen aus dem Beitrag von Wang und Narasimhan (1985) [8].

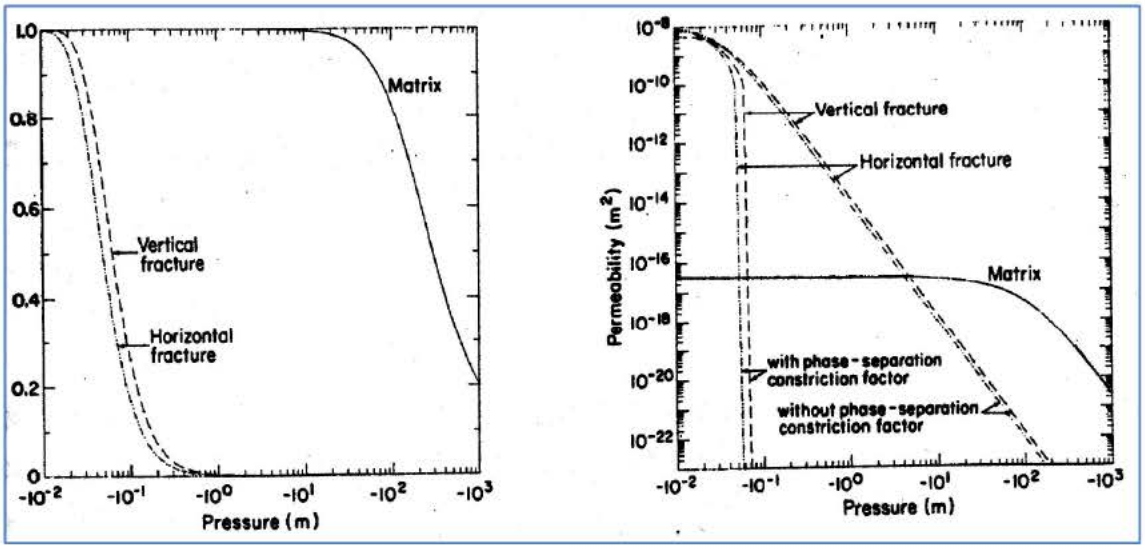


Abb. 24: Charakteristische Sättigungs-Druck- bzw. Durchlässigkeits-Druckkurve für Kluft und Matrix (aus Wang und Narasimhan [8])

Dem Problem Strömung im ungesättigten geklüfteten Gestein haben sich auch Martinez et al. (1992) [9] gewidmet. In der Arbeit wird der Einfluss von regelmäßig verteilten ungesättigten Klüften auf die Strömung untersucht. Wie von Wang und Narasimhan [8] werden die Klüfte als undurchlässig betrachtet. Analytische Lösungen wurden vorgeschlagen und numerisch untersucht. In Abhängigkeit von der geometrischen Regelmäßigkeit wird eine äquivalente Durchlässigkeit bestimmt. Das System kann durch ein homogenes Medium zur Beschreibung der ungesättigten Strömung ersetzt werden.

Bei der vorliegenden Untersuchung wird für die Klüfte zunächst eine vereinfachte $k_{rel}(S_w)$-Relation durch folgende Sprungfunktion definiert (Abb. 25).

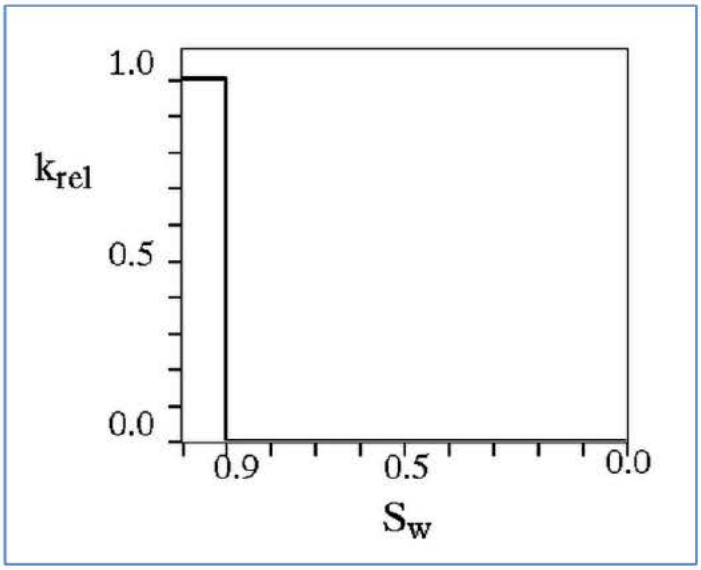


Abb. 25: Durchlässigkeits-Sättigungsfunktion für die Klüfte (delta h)

Die relative Permeabilität des Wassers ist gekennzeichnet durch einen schwachen Anstieg bei kleinen Sättigungen. Das Wasser füllt zunächst die kleinsten Poren, in denen aufgrund der starken molekularen Anziehungskräfte kaum Fließbewegungen möglich sind. Die größeren Poren und Klüfte werden erst bei größeren Sättigungen gefüllt.

Die für die Berechnung des Aufsättigungsvorgangs verwendeten funktionalen Zusammenhänge zwischen der Relativen Permeabilität und dem Kapillardruck von der Sättigung entsprechen denen von van Genuchten [7].

4 Prognoseberechnungen des Flutungs- und Aufsättigungsvorgangs (Nahfeldmodell)

Der Aufsättigungsvorgang des entwässerten Gebirgskörpers und des enthaltenen Grubengebäudes ist bis zur vollständigen Sättigung ein stark instationärer (zeitabhängiger) Vorgang. Die instationären Prognoseberechnungen dieses Vorgangs werden mit den Teilmodellen des Nahfelds für alle 3 BHV Bereiche durchgeführt. Dabei sollen insbesondere die Frage nach der Dauer des Aufsättigungsvorgangs und der Porenwasseraustausche beantwortet werden. Die Ausbreitungsvorgänge im sich anschließend einstellenden stationären Strömungsfeld werden hingegen mit dem Fernfeldmodell simuliert (Kapitel 0).

4.1 Flutung und Aufsättigung

Mit dem Nahfeldmodell wird der instationäre Anstieg des Grundwassers im Grubengebäude nach Abschalten der Wasserhaltung simuliert (Flutungsphase). Der Anstieg wird durch die Wasserhaltung auf -670 mNHN in den Schächten und offenen Strecken begrenzt (Abb. 26). Der Wasserspiegel steigt im System der offenen Strecken und Schächte vergleichsweise schnell an (ca. 3 Jahre). Es folgt, ausgehend von den bereits gefluteten Strecken und Schächten, sowie durch von oben zutretendes Sickerwasser, eine Aufsättigung des Karbons. Mit zunehmender Entfernung zum offenen Streckensystem wird die freie Oberfläche im Karbon in Abhängigkeit von den Sickerwassermengen und Gesteinsdurchlässigkeiten über das Niveau von -670 mNHN ansteigen, bis sich ein stationäres System einstellt.

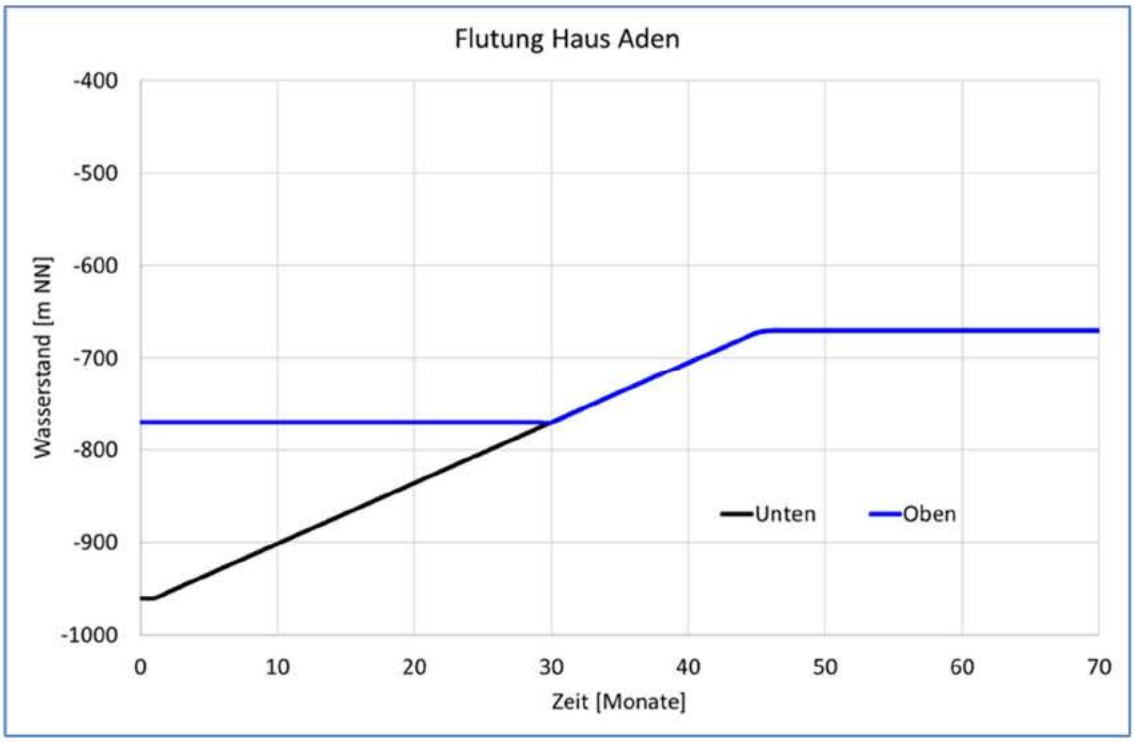


Abb. 26: Wasserstandsverlauf für die Instationäre Flutung des Grubengebäudes (delta h)

Abb. 26 stellt den Wasserstandsverlauf Oben und Unten während der instationären Flutung dar. Oben steigt der Wasserstand zwischen dem 30. und dem 45. Monat der Flutung von -780 mNHN auf -670 mNHN an. Unten steigt der Wasserstand von -960 mNHN ebenfalls auf -670 mNHN.

4.2 Bedeutung Durchlässigkeit der BHV

Die versetzten Reststoffe beinhalten auch wasserlösliche mineralische Bestandteile, die im Reaktionskontakt mit Porenwässern freigesetzt werden. Dies erhöht die Durchlässigkeit. Dadurch entstehen langfristig Lösungsbahnen höherer Durchlässigkeit innerhalb der BHV, auf denen die Durchströmung vorrangig erfolgt. Infolgedessen durchdringt die Lösungsfront die BHV ungleichmäßig.

Da diese Veränderungen nicht quantifizierbar sind, wurde zur Untersuchung der Sensitivität die BHV Durchlässigkeit variiert. Für den Beginn der Durchströmung wurde eine geringere Durchlässigkeit von10^{-9} m/s untersucht. Zur Abbildung des fortgeschrittenen Stadiums der BHV wurde im Vergleich dazu eine um eine Potenz höhere Durchlässigkeit angenommen (10^{-8} m/s).

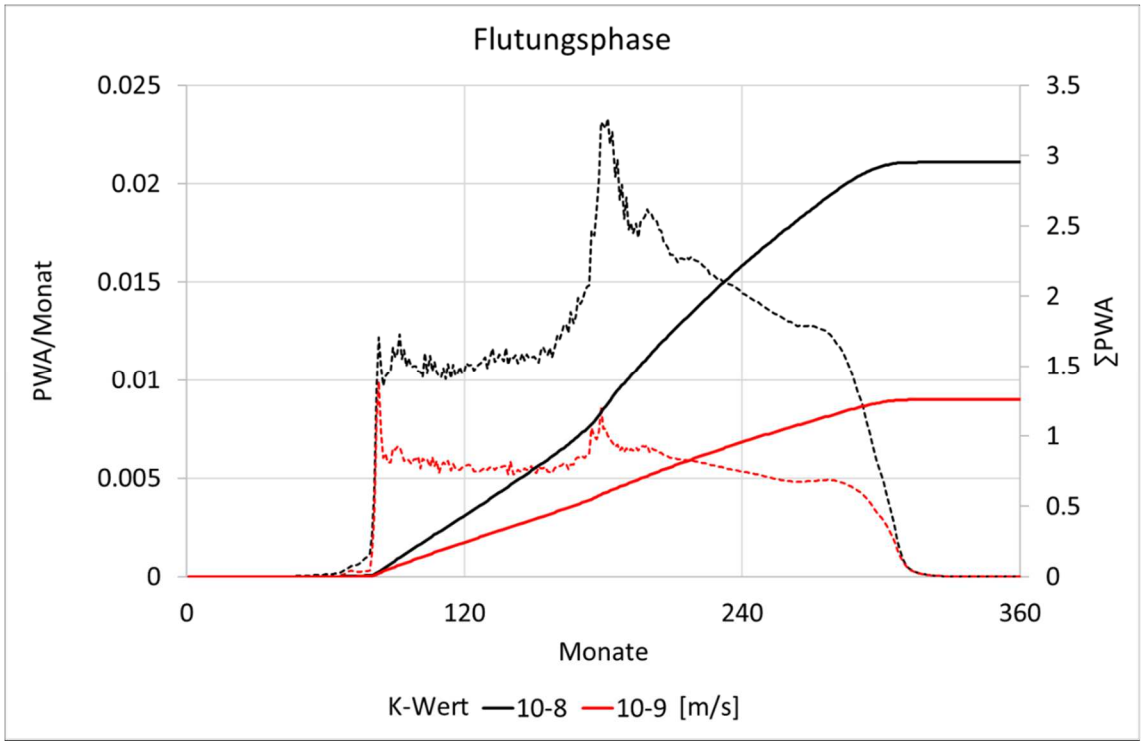


Abb. 27: Porenwasseraustausch bei unterschiedlichen Durchlässigkeiten der BHV 1 in der instationären und der stationären Phase, als Volumenstrom (linke Achse) und als summarische Kurve (rechte Achse) (delta h)

Die Ergebnisse dieser K-Wert-Variation für den Versatzbereich BHV 1 beinhaltet die Abb. 27. Der Volumenstrom durch die BHV bei Ansatz der Anfangsdurchlässigkeit ist in Rot gestrichelt, bezogen auf die Vertikalachse links in der Abbildung, die bei fortgeschrittener Durchlässigkeit schwarz dargestellt. Die Aufsummation beider Volument-

ströme ergibt die schwarze durchgezogene Linie bei höherer Durchlässigkeit und rot bei niedrigerer Durchlässigkeit (rechte Vertikalachse).

Für den Versatzbereich BHV 1 dauert demnach ein Porenwasseraustausch (PWA) bei einer fortgeschrittenen, höheren Durchlässigkeit von 10^{-8} m/s etwa 166 Monate gegenüber 246 Monaten bei der Anfangsdurchlässigkeit. Dies lässt den Schluss zu, dass die Auswirkungen einer 10mal höheren Durchlässigkeit nicht zu einer erheblichen Verkürzung der Zeit für einen PWA führen. Daher wurden die weiteren Modellrechnungen alle mit der höheren Durchlässigkeit von 10^{-8} m/s durchgeführt, die sich erst langfristig nach Lösungsvorgängen in der BHV einstellen wird.

Nach erfolgter Flutung der Teilmodelle erreicht das Strömungsfeld den stationären Zustand. Aufgrund der für die Flutung gewählten Randbedingungen, kommt die Durchströmung in diesen Modellen damit zum Erliegen, was nicht dem sich einstellenden stationären Fließzustand entspricht. Ab diesem Zeitpunkt gibt das Nahfeldmodell nicht mehr die abzubildenden Verhältnisse wieder, hier setzt das Fernfeldmodell an.

4.3 Dauer des Aufsättigungsvorgangs und Porenwasseraustausche

Die Dauer des Aufsättigungsvorgangs ist in der Prognose der Flutung als der Zeitpunkt ablesbar, zu dem der Durchfluss durch die BHV Bereiche unter den gewählten Randbedingungen zum Erliegen kommt. In der Abb. 27 erkennbar, liegt für die BHV 1 dieser Zeitpunkt unabhängig von der Durchlässigkeit bei etwa 310 Monaten. Dies entspricht auch dem Ergebnis der anderen BHV Bereiche.

Mit der in Kap. 4.2 gewählten Durchlässigkeit der BHV Bereiche wurde der Aufsättigungsvorgang für alle BHV Bereiche simuliert.

Während des Aufsättigungsvorgangs finden in allen BHV Bereichen zwischen einem und vier Porenwasseraustausche statt. Diese Anzahl ist, verglichen mit der notwendigen Anzahl für eine Freisetzung der anorganischen Schadstoffe, vernachlässigbar gering, so dass davon ausgegangen werden kann, dass der Vorgang der Flutung für die Ausbreitung der anorganischen Schadstoffe nicht vorrangig ist. Daher wurde bei der Berechnung der Fließlängen, die in Quelltermberechnung eingehen, der stationäre Strömungszustand nach Flutung des Grubengebäudes zugrunde gelegt.

Die Aufsättigungsdauer der drei BHV-Bereiche ist der Abb. 28 zu entnehmen.

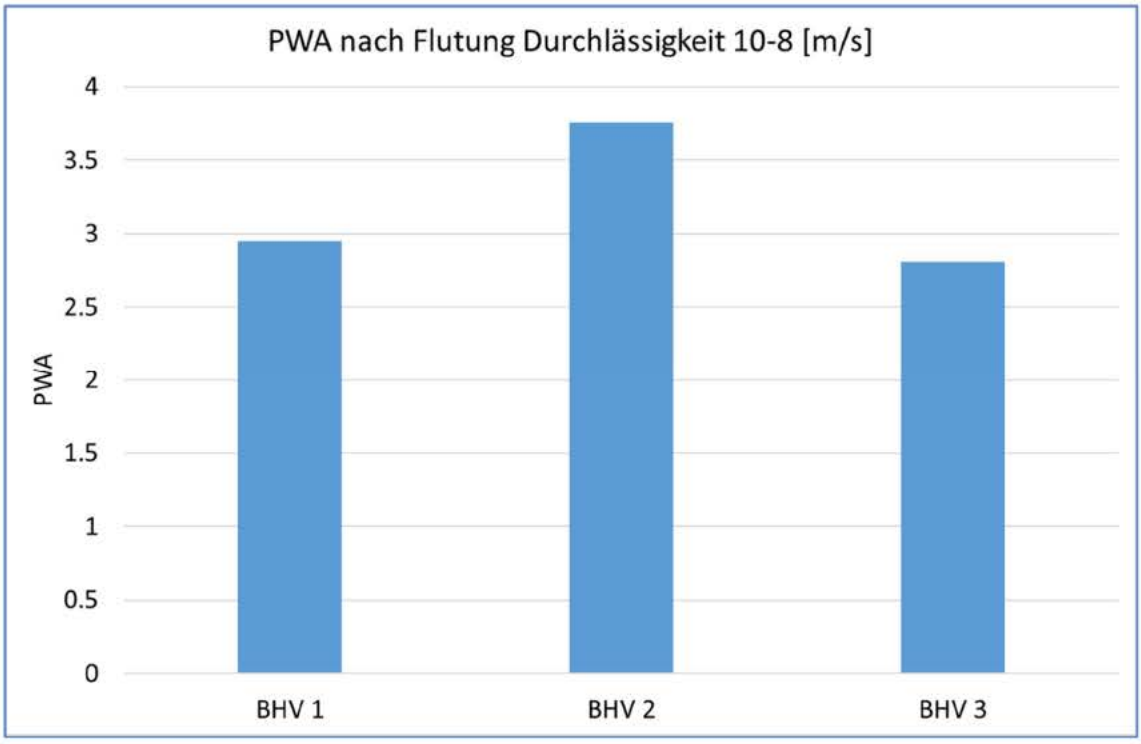


Abb. 28: Porenwasserdurchfluss für alle 3 BHV Bereiche (delta h)

4.4 Strömungsfeld und Konzentrationsentwicklung während der Flutung

Für die Prognose des Aufsättigungsvorgangs wurden die Potentiale in den Strecken am Rand des Modells entsprechend des Flutungsziels definiert, der Rand ansonsten mit einer No-Flow-Randbedingung abgebildet. Die Tracer-Konzentrationen wurden in den BHV-Bereichen zu 1 gesetzt und im gesamten übrigen Nahfeldmodell zu Null.

Die folgenden Abbildungen stellen den Prozess der Aufsättigung für alle untersuchten BHV-Bereiche dar. Dabei werden jeweils in einer 3D-Ansicht die Tracer-Konzentrationen zu zwei Zeitpunkten innerhalb der Aufsättigung dargestellt. Anschließend vermitteln Vertikalschnitte durch die Teilmodelle mit Strömungspathlets einen Eindruck von Strömungsrichtungen und –geschwindigkeiten, von der Sättigungsentwicklung und den Tracerkonzentrationen. Dabei kennzeichnen die blauen Linien den Verlauf der offenen Strecken am Rand der Teilmodelle.

Die obere Darstellung der Abb. 29 stellt die Tracerkonzentration um den BHV 1 nach 180 Monaten, die untere nach 250 Monaten dar. Ausgehend von den als blaue Linien erkennbaren Strecken kommt es zu der Aufsättigung, die in den Vertikalschnitten der Abb. 30 durch die Strömungspathlets gut erkennbar ist. Die Aufsättigung erfolgt aus Sicht des Betrachters von links hinten nach rechts vorne.

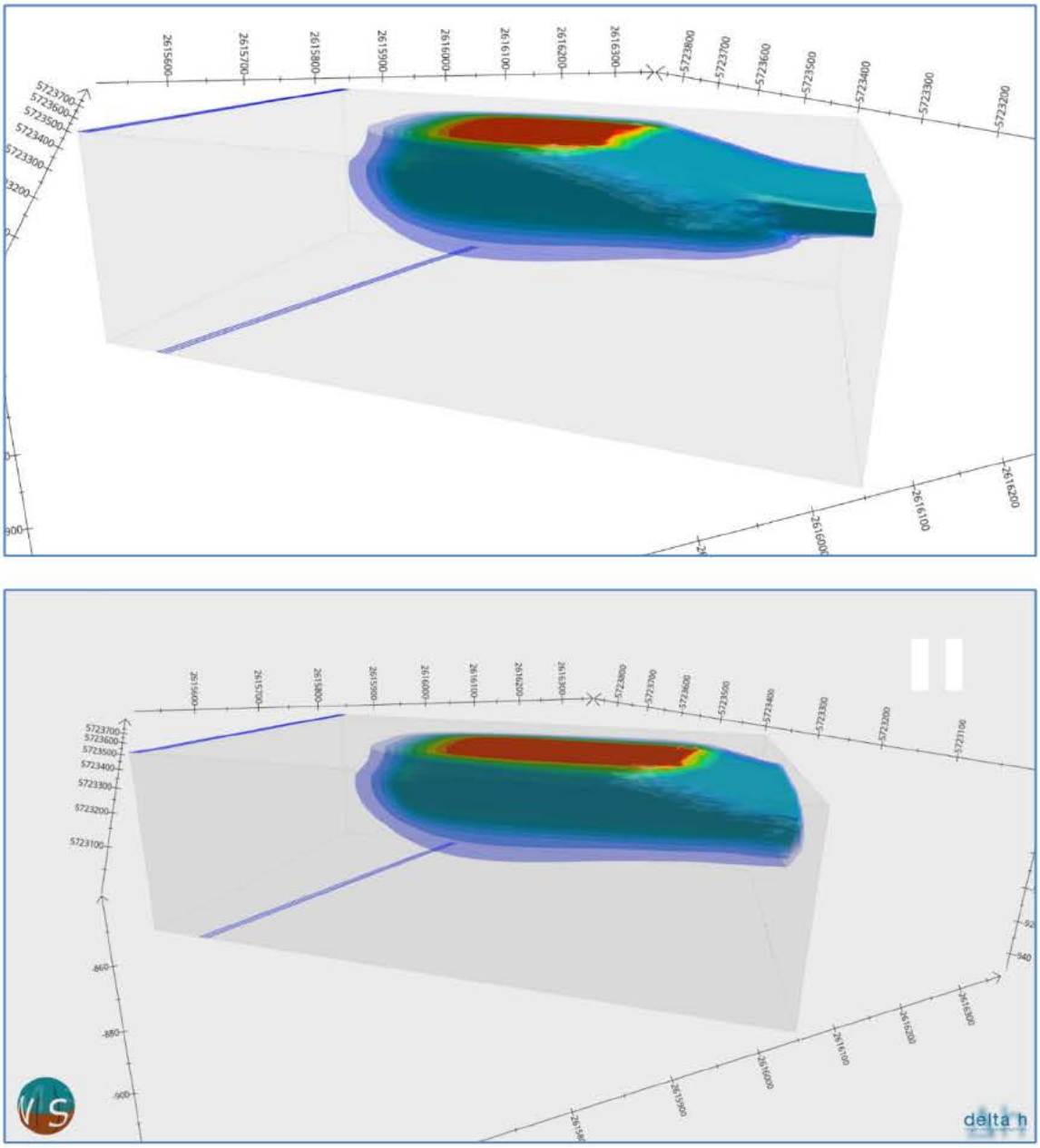


Abb. 29: Tracer-Konzentrationsverteilung in der Flutungsphase des BHV 1 nach 180 (oben) und 250 (unten) Monaten (delta h)

Ausgehend von der Strecke am unteren, in der Abb. 30 linken Bereich und in der oberen linken Ecke wird das Modell geflutet. Die Wasserfront breitet sich Richtung der BHV 1 aus und hat nach 250 Monaten fast den gesamten Modellbereich erfasst. Sobald dies der Fall ist, ist der Aufsättigungsvorgang abgeschlossen. Ab Erreichen der BHV durch das flutende Grundwasser, kommt es mittels Diffusion zu einer Konzentrationsverteilung auch entgegen der Strömungsrichtung.

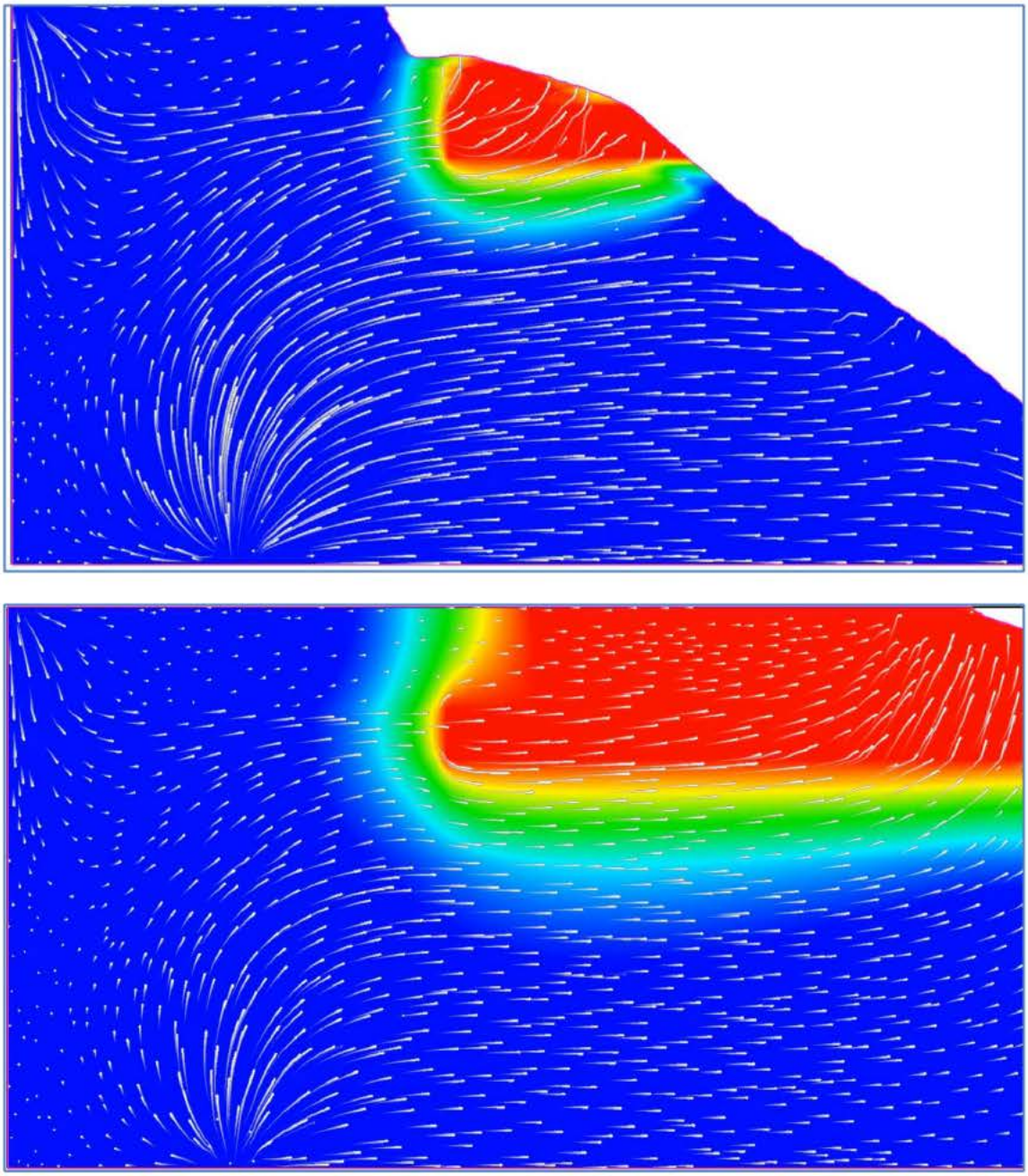


Abb. 30: Vertikalschnitt durch BHV 1 nach 110 (oben) und 250 (unten) Monaten mit Strömungspathlets, Konzentrationsverteilung und freie Oberfläche (delta h)

Die Lage der Strecken im Modell der BHV 2 ist der Abb. 31 zu entnehmen. Die Aufsättigung erfolgt hier ausgehend von den Strecken in das Bildinnere hinein. Die damit einhergehende Konzentrationsverteilung verteilt sich gleich einer Wolke um die beiden Teilbereiche der BHV 2, ein Vorgang, der nach 180 Monaten in der unteren Darstellung der Abbildung erkennbar vorangeschritten ist.

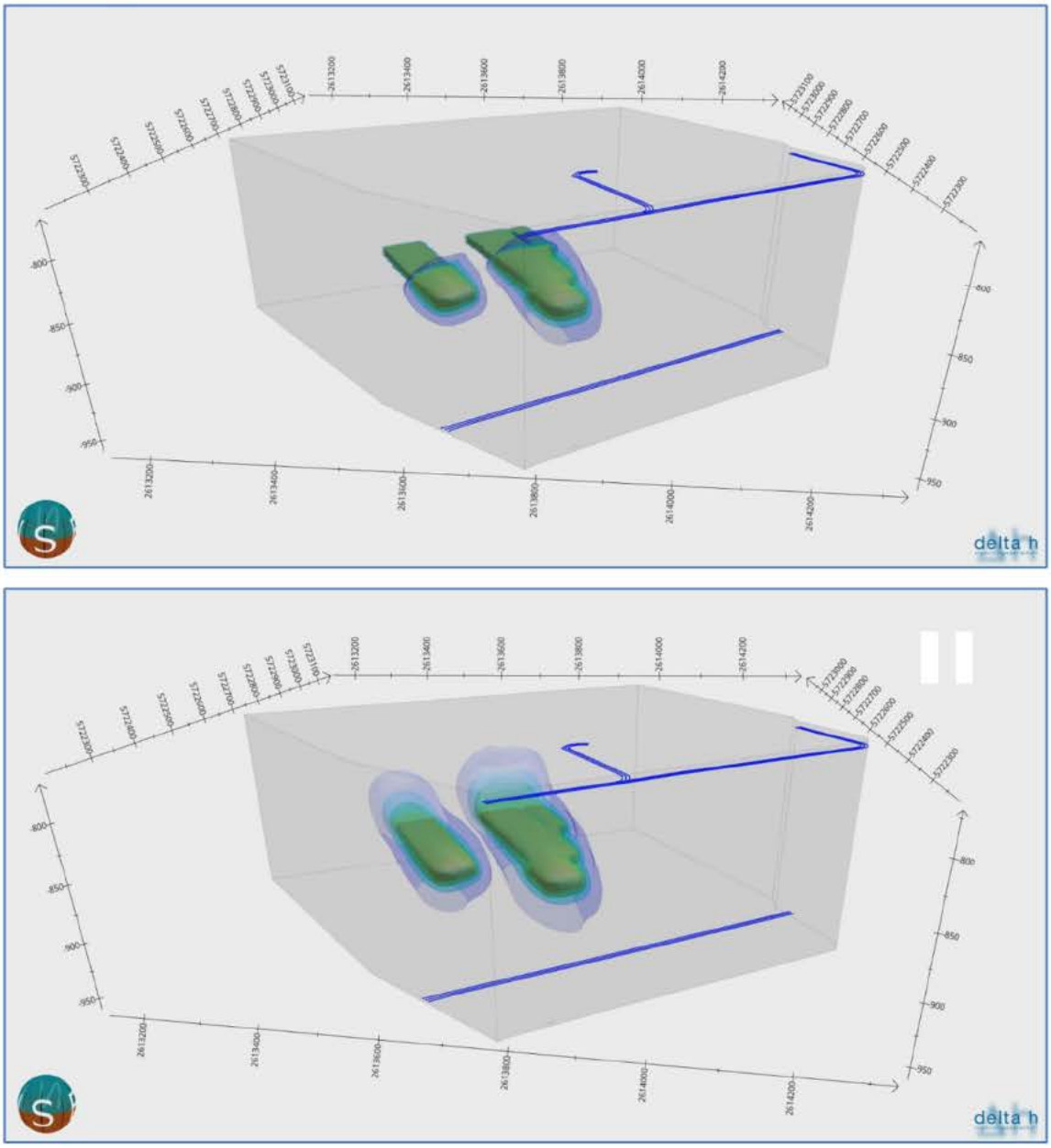


Abb. 31: Tracer-Konzentrationsverteilung in der Flutungsphase des BHV 2 nach 120 (oben) und 180 (unten) Monaten (delta h)

Die Abb. 32 stellt den Vorgang der Aufsättigung im Vertikalschnitt dar. Die Strecken liegen in diesem Schnitt im rechten Bereich des oberen und unteren Rands. Deutlich erkennbar erfolgt die Aufsättigung durch den höheren Druck stärker über den tiefer liegenden, unteren Rand. Auch hier ist nach 250 Monaten lediglich ein kleinerer Restbereich noch nicht geflutet.

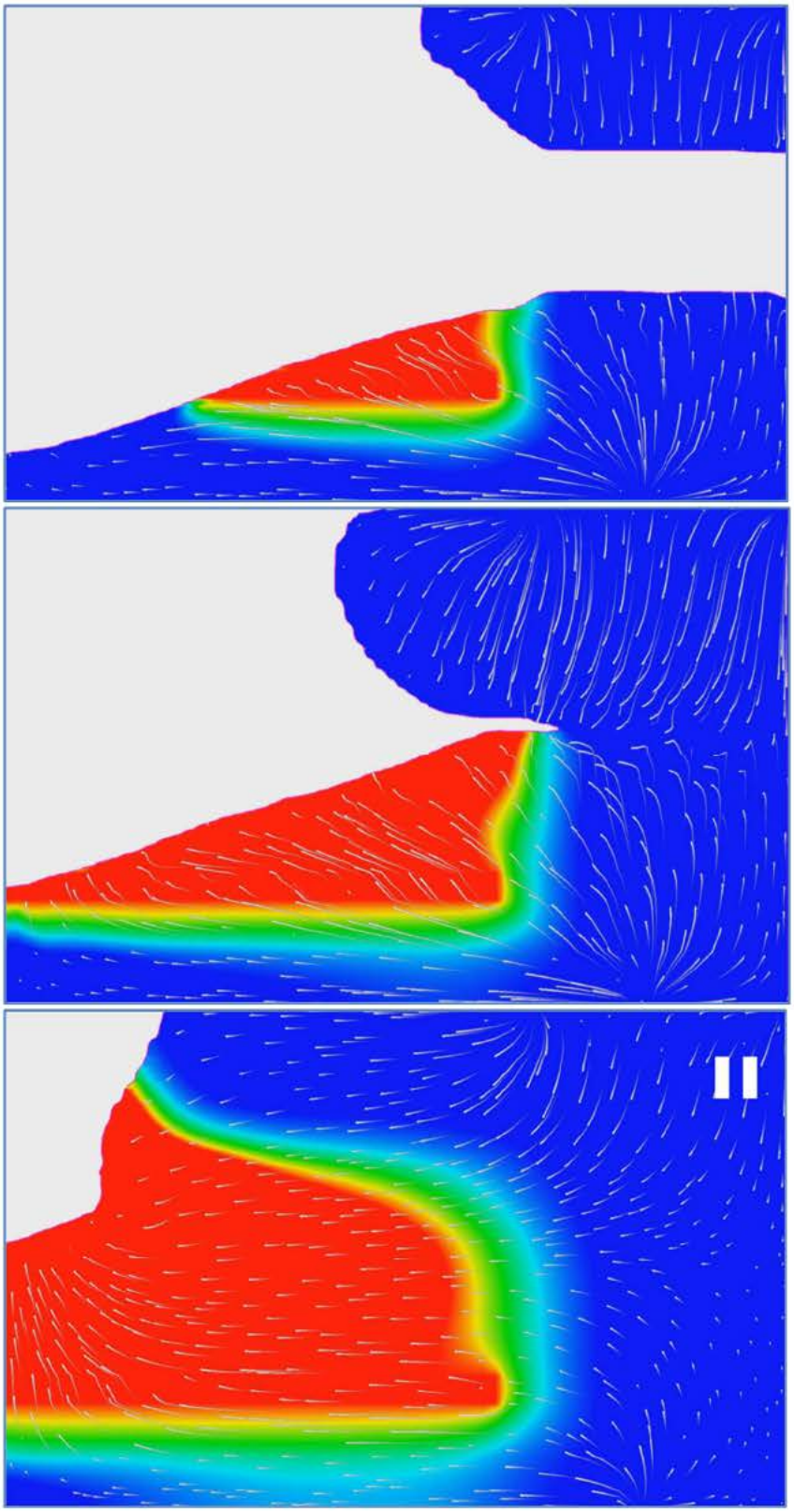


Abb. 32: Vertikalschnitt durch BHV 2 nach 100 (oben), 180 (Mitte) und 250 (unten) Monaten mit Strömungspathlets, Konzentrationsverteilung und freie Oberfläche (delta h)

In der Abb. 33 erkennbar nimmt die Aufsättigung für den BHV 3 ihren Ausgang in zwei am hinteren Bildrand liegenden nahezu parallelen Strecken sowie einer Strecke, die parallel zu längeren BHV Ausdehnung zwischen den in dieser Abbildung beiden rechten BHV Bereichen. Daher entwickelt sich die Konzentrationswolke zum einen auf den Betrachter zu und verschiebt sich zudem durch die zwischen den Bereichen liegende Strecke in den beiden linken BHV Bereichen nach links, im rechten Bereich nach rechts.

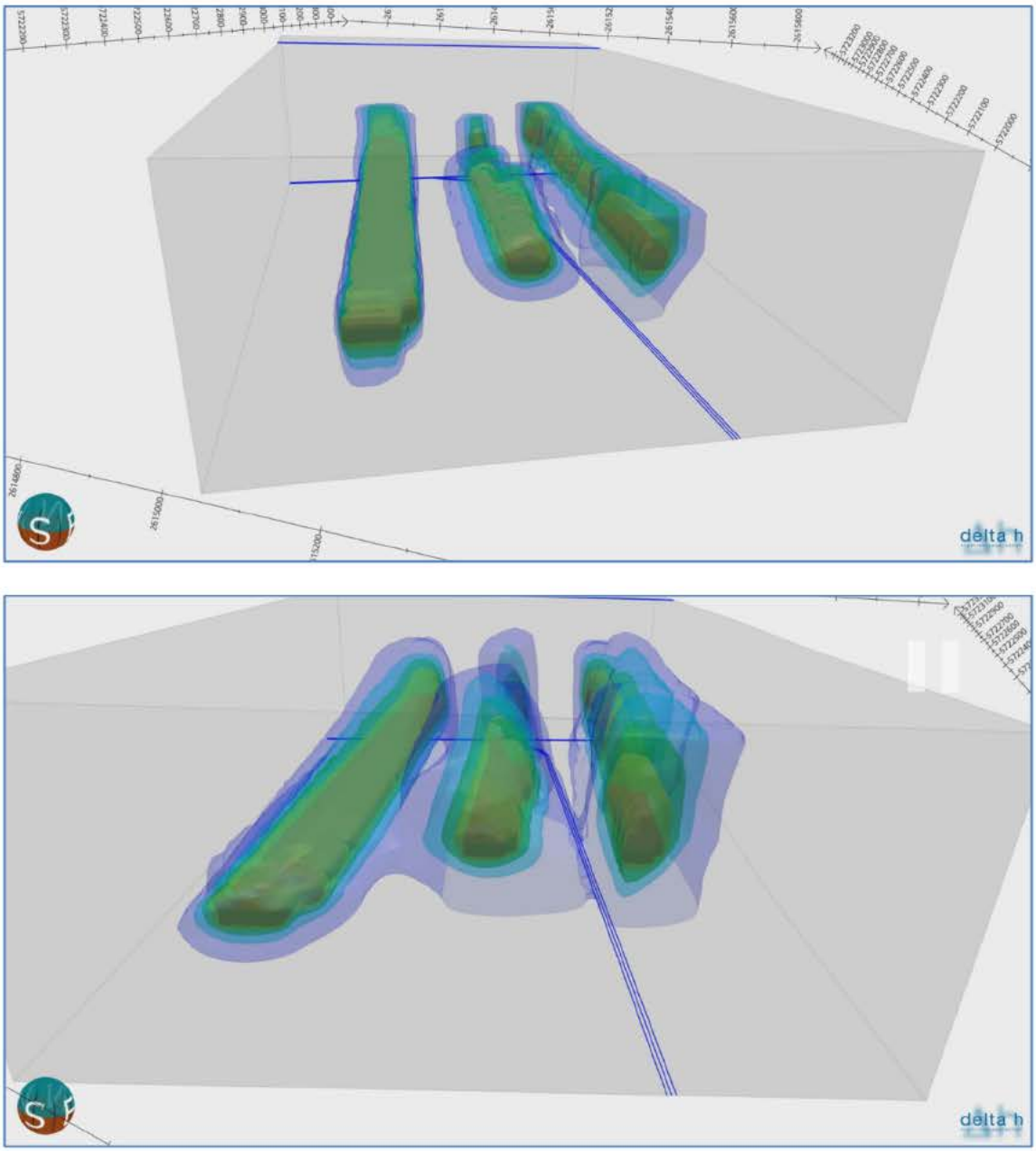


Abb. 33: Tracer-Konzentrationsverteilung in der Aufsättigungsphase des BHV 3 nach 120 (oben) und 230 (unten) Monaten (delta h)

Die Abb. 34 stellt einen Vertikalschnitt senkrecht zu den beiden Strecken am hinteren Bildrand der Abb. 33 dar. Die beiden Strecken sind als Hauptwasserwege gekennzeichnet.

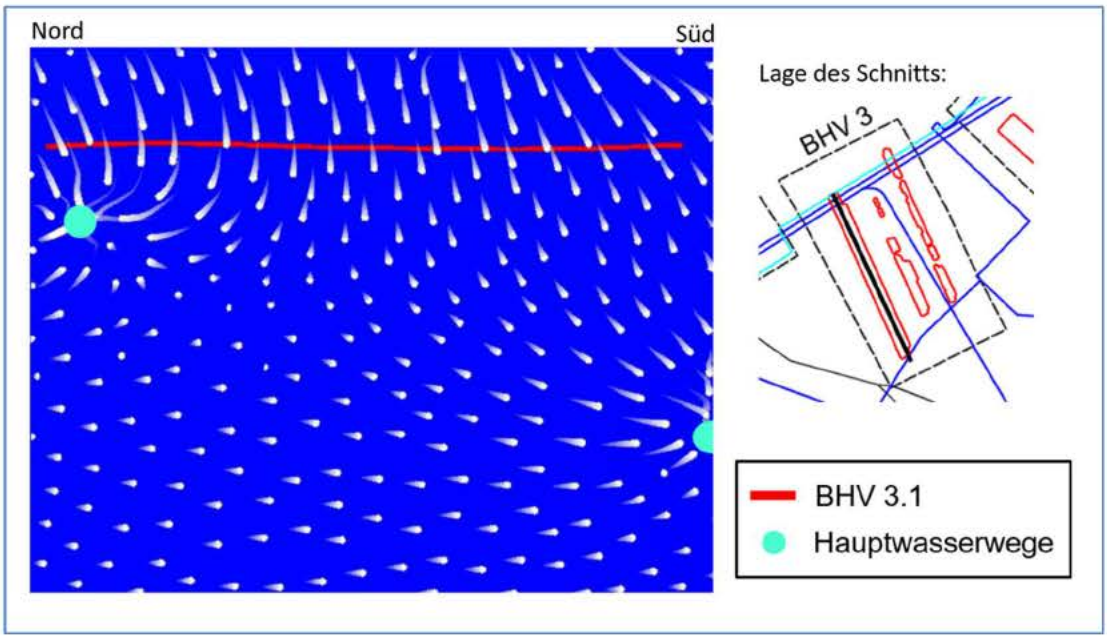


Abb. 34: Schnitt durch BHV 3.1 nach Aufsättigung mit Strömungspathlets mit den offenen Strecken in Türkis (delta h)

5 Prognoserechnungen mit dem Fernfeldmodell

Im Fernfeldmodell wird das nach dem Aufsättigungsvorgang sich einstellende quasistationäre Strömungsfeld mit dem instationären Stoffaustrag aus dem BHV simuliert.

Dem Quellterm, der die Ausgangsgröße für die Ausbreitungsberechnung der verbrachten Inhaltsstoffe darstellt, liegen die Ergebnisse des Detailberichts 4 zugrunde. Dabei ist der dort definierte Quellterm der untersuchten Stoffe eine Funktion des Reststoffgehalts im Reaktionskontakt, der Fließlänge und der Anzahl Porenwasseraustausche (PWA). Für die Ausbreitungsberechnung werden daher zunächst die Fließlänge und die Anzahl Porenwasseraustausche mittels der Prognose einer Tracerausbreitung bestimmt. Mit diesen Größen wird der instationäre Quellterm für die Reststoffe Zink und Blei als Randbedingung für deren Ausbreitungsberechnungen ermittelt.

5.1 Berechnungsparameter

Die Prognosen wurden für einen Berechnungszeitraum von 10.000 Jahren mit 20.000 Zeitschritten von jeweils 0,5 Jahren durchgeführt. Die Rechenzeit mit dem Fernfeldmodell beträgt pro Berechnung 9 CPU-Tage. Die der Berechnung zugrundeliegenden Parameter sind in Tab. 8 aufgeführt.

Tab. 8: Berechnungsparameter (delta h)

	Eingangsparameter	Einheit
Kompressibilität des Wassers	$4{,}4 \cdot 10^{-10}$	m^*s^2/kg
Dichte des Wassers	1142	kg/m^3
Kompressibilität der Matrix	$2{,}4 \cdot 10^{-10}$	m^*s^2/kg
Dichte des Gesteins	2650	kg/m^3
Molekularer Diffusionskoeffizient	$3{,}565 \cdot 10^{-6}$	m^2/s
Dispersivität Longitudinal	50	m
Dispersivität transversal horizontal	5	m
Dispersivität transversal vertikal	0,5	m
Temperatur	42	° C
Viskosität des Wassers	$8{,}42 \cdot 10^{-2}$	kg/ms

5.2 Strömungsfeld

Nach der vergleichsweise schnellen Flutung des Strecken- und Schachtsystems auf ein Niveau von -670 mNHN (ca. 3 Jahre) erfolgt eine zunehmende Aufsättigung des Gebirges, die nach etwa 25 Jahren beendet ist. Es stellt sich dann ein quasistationärer Fließzustand ein mit einer Ausrichtung der Grundwasserströmung auf das durchflussrelevante Streckensystem, dessen Vorflutpotenzial aufgrund der Zentralen Wasserhaltung bei ca. -670 mNHN verbleibt. Die freie Oberfläche, die sich im Karbon einstellt,

wird in Abhängigkeit von der Entfernung zum Streckensystem bei Werten oberhalb von -670 mNHN liegen.

Als Randbedingung wurde daher für alle Modellränder im Karbon ein Festpotenzial von - 610 mNHN gewählt. Da am Nord- und Südrand keine Wasserhaltungen aus Altbergbau an den Modellraum angrenzen, wäre hier auch die Annahme eines höheren Potenzials vertretbar. Da ein Einfluss von Wasserhaltungen der im Nordosten und Südwesten angrenzenden Bergwerke in diesen Raum jedoch nicht ausgeschlossen werden kann, wurde dieser Wert auch im Süden und Norden angesetzt. Dieser Wert ist als konservativ anzusehen, weil die Modellrechnung zeigt, dass es bei diesem Ansatz zu einem auf den südlichen Modellrand gerichteten Teil-Abstrom aus den BHV-Bereichen kommt. Läge das Randpotenzial höher, käme dieser Abstromanteil zum Erliegen und der Austrag aus dem BHV würde über das Streckensystem vollständig zur Zentralen Wasserhaltung fließen. Damit stellt die Modellsituation, vor allem in der Variante mit der als grundwasserleitend angenommenen Königsborner Sprung, eine ungünstige Situation dar. Aus Sicht der Gefahrenabschätzung ist das Untersuchungsergebnis damit also als auf der sicheren Seite liegend anzusehen.

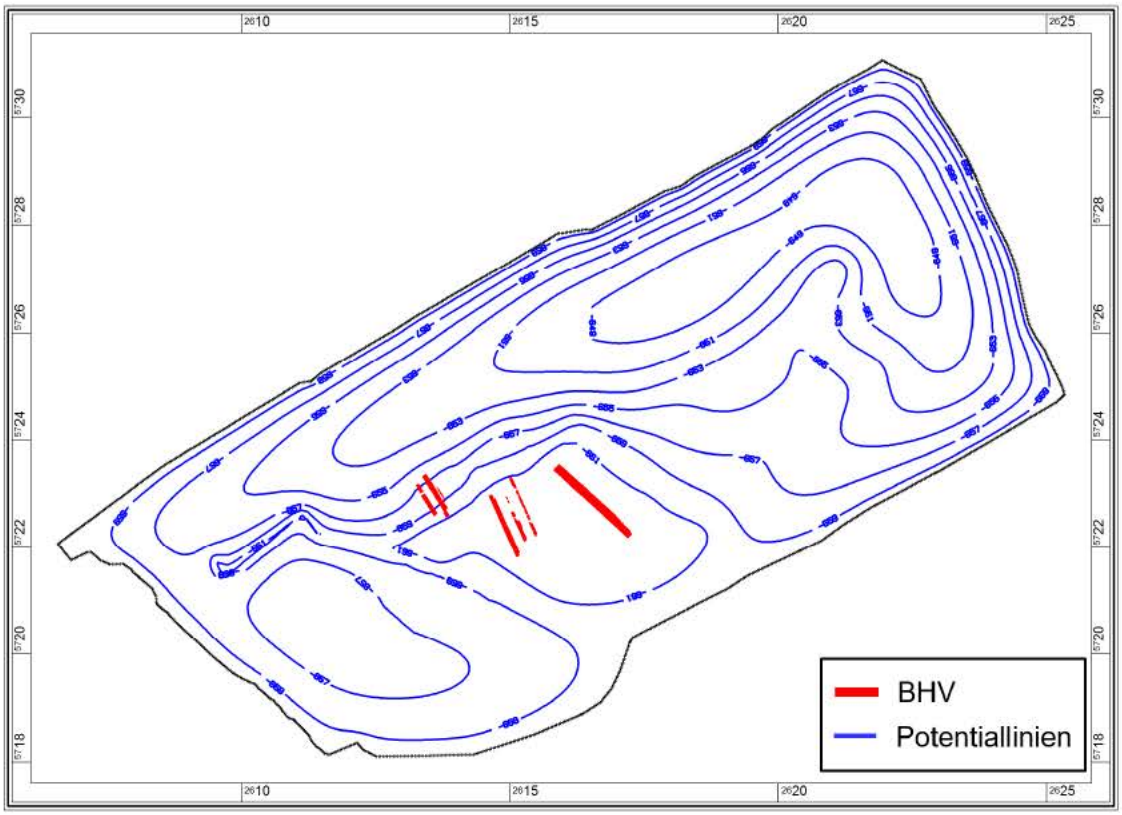


Abb. 35: Quasistationäres Strömungsfeld in der Ebene des BHV als Ausgangszustand für die Ausbreitungsberechnung (delta h)

Das Ergebnis der Kalibrierung unter diesen Modellannahmen zeigt bei einer Grubenwasserhaltung bei -670 mNHN ein großräumiges Strömungssystem, das zum Teil auf das durchflusswirksame Streckensystem mit der Zentralen Wasserhaltung und zum Teil auf die Modellränder hin ausgerichtet ist.

Hervorgerufen wird dies durch die Zusickerung aus dem darüber liegenden Deckgebirge, welche zu einem Grundwasseranstieg im zentralen Modellgebiet und zu einem Abstrom auch in Richtung der Ränder führt.

Einzelne Fließbahnen über durchlässige Störungen und/oder höhere Durchlässigkeiten in einzelnen Schichten erreichen die Ränder schneller als Fließbahnen durch das Gebirge und modifizieren so das Strömungsbild.

Das beschriebene quasistationäre Strömungsfeld (Abb. 35) ist Grundlage für alle instationären Ausbreitungsberechnungen.

5.2.1 Störungen

Im Bereich der BHV liegen als wesentliche Störungen der Königsborner Sprung und der Fliericher Sprung. Die Störungen haben je nach anzunehmender Durchlässigkeit einen wesentlichen Einfluss auf die Ausbreitung aus der BHV ausgetragener Stoffe. Die Durchlässigkeiten für den gesamten Störungsbereich variieren und sind nicht vollständig abschätzbar. Aus diesem Grund wurden die Berechnungen jeweils zweimal durchgeführt: zum einen mit einer Durchlässigkeit der Störungen, die der des umliegenden Gebirges entspricht. Dieses Szenario wird als „ohne Störung“ bezeichnet. Zum anderen wird den Störungen eine hohe Durchlässigkeit von 10^{-5} m/s zugewiesen, höher als realistischer Weise anzunehmen. Dieses Szenario wird als „mit Störung“ bezeichnet und bildet den maximal anzunehmenden Störungseinfluss ab.

In der Realität wird der Einfluss der Störungsbereiche zwischen den Prognoseergebnissen beider Szenarios liegen.

5.2.2 Bedeutung der durchflusswirksamen Strecken im Strömungssystem

Im karbonischen Teil des Modellgebiets treten zwei relevante Vorflutsysteme auf: das durchflusswirksame Streckensystem und die Modellränder. Die durchflussrelevanten Strecken werden im Folgenden auch als Röhren bezeichnet. Die verdämmten Strecken sind für die räumliche Durchströmung kaum relevanter als das durchbaute und verbrochene Gebirge.

Über die Röhren fließt der Großteil der Wassermengen, die in der Zentrale Wasserhaltung (ZWH) gehoben werden, allerdings handelt es sich hierbei vor allem auch um Grubenwässer, die aus anderen Bergwerken außerhalb des Modellgebiets übergeleitet werden. Diese Mengen sind für die Strömungsberechnung nicht relevant, begründen jedoch eine wesentliche Verdünnung der den Strecken zugeleiteten anorganischen Schadstoffe in der ZWH.

Die Röhren haben trotz ihrer großen Querschnitte insgesamt nur einen sehr geringen Volumenanteil innerhalb des geringdurchlässigen Gebirgskörpers. Die Zuströmung auf die Röhren ist daher durch das Gebirge limitiert, und der größte Teil der Grundwasserströmung ist auf die Ränder gerichtet (siehe Tab. 9). Diese werden erst außerhalb der Rechenzeit von 10.000 a von dem Tracer erreicht.

Tab. 9: Volumenströme im Vergleich mit und ohne Störung (delta h)

	Durchflussvolumen [m³/a]	
	Röhrensystem	Ränder
mit Störung	37.040 (11 %)	292.607 (89 %)
ohne Störung	68.990 (21 %)	260.657 (79 %)

Für die Abb. 36 und Abb. 37 wurden für beide Störungsszenarios die Knoten des 3D-Modells ausgelesen, an denen Wasser in das Röhrensystem übertritt. Knoten, an denen kein Wasser übertritt, sind nicht dargestellt. Die farblichen Unterschiede stellen die 3 Höhenlevels des Röhrensystems dar. Schwarz repräsentiert das Level auf ca. -960 mNHN, rot liegt auf ca. -1100 mNHN und die hellblauen Punkte liegen bei ca. -1400 mNHN.

Im Zustand ohne Störung fließt dem Röhrensystem über nahezu die gesamten Länge Wasser zu. Da die Störungen, wenn sie deutlich durchflusswirksam sind, das Gebiet in Richtung der Ränder entwässern, fließt dem Röhrensystem bei Berücksichtigung der Störungen deutlich weniger Wasser zu (Tab. 9). Im südlichen Bereich entfaltet das Röhrensystem teilweise seine Vorflutwirkung dann nicht.

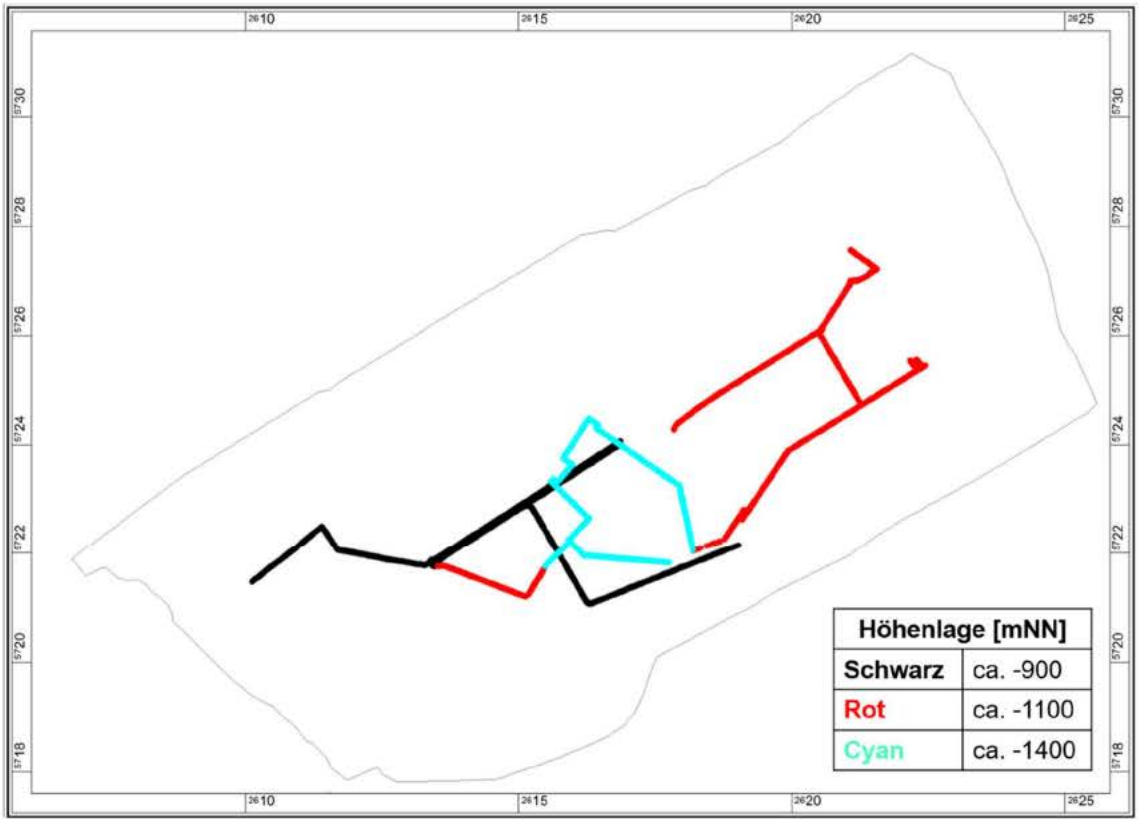


Abb. 36: Drainierende Modellknoten (Vorflutwirkung) im Röhrensystem ohne Störung (delta h)

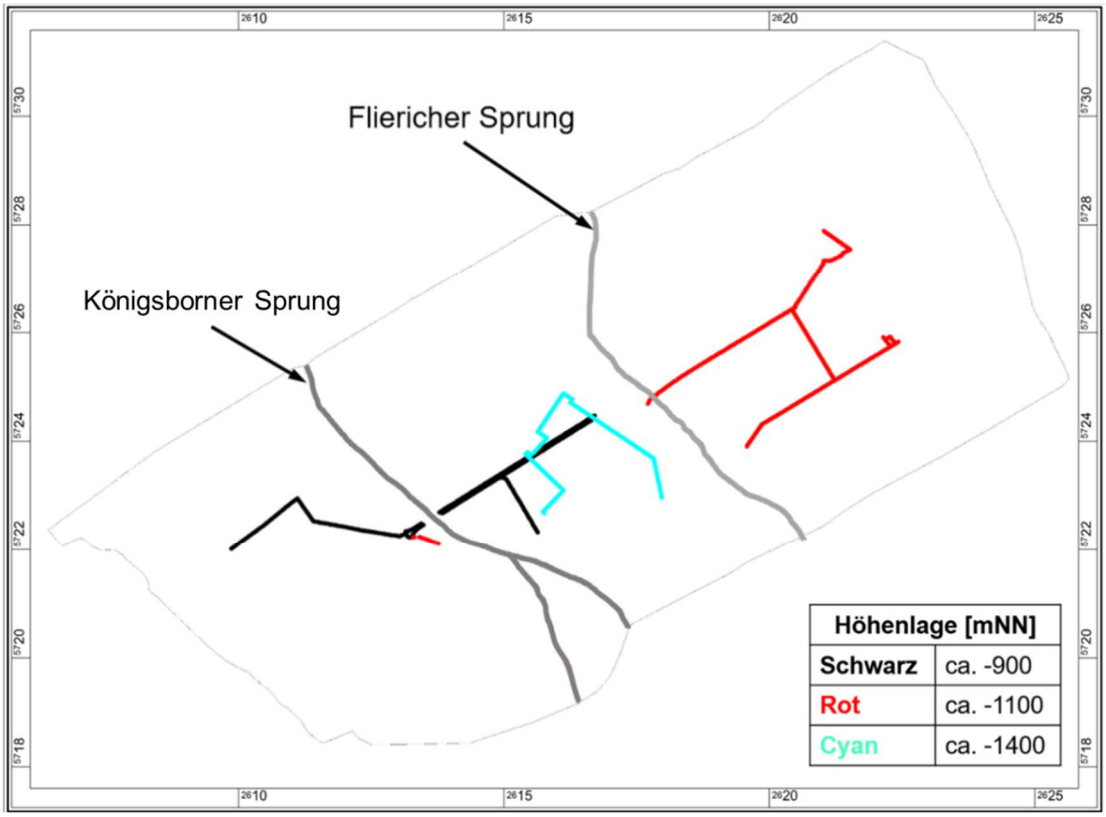


Abb. 37: Drainierende Modellknoten (Vorflutwirkung) im Röhrensystem mit Störung (delta h)

5.3 Ergebnisse der instationären Tracer-Berechnung

Für die Tracer-Berechnung wird im Gegensatz zu den Ausbreitungsberechnungen für Blei und Zink über den gesamten Berechnungszeitraum eine konstante (stationäre) Konzentrationrandbedingung von 100 Prozent auf allen BHV Knoten angesetzt.

Zum einen dient die Tracerberechnung der Bestimmung der Fließlängen und Porenwasseraustausche für die Bestimmung der Quellterme von Blei und Zink aus den funktionalen Zusammenhängen der hydrogeochemischen Untersuchungen von Detailbericht 4, zum anderen stellt die Ausbreitung des Tracers die **maximal mögliche Stoffausbreitung bei vollständiger Auswaschung der verbrachten Stoffe** dar, die real nicht erreicht werden kann. Dabei wurden beide Störungsszenarios berechnet.

Die Abb. 38 zeigt die Lage von 4 Knoten des Röhrensystems in nächster Entfernung zu allen 3 BHV Bereichen. Für diese Knoten ist eine Konzentrationserhöhung aufgrund der Nähe zur BHV als erstes zu erwarten. Abb. 39 und Abb. 40 stellen als Ganglinien den Verlauf der Tracerkonzentration an diesen 4 Knoten mit und ohne Störung, aber noch ohne eine Konzentrationsverminderung durch das Grubenwasser, dar.

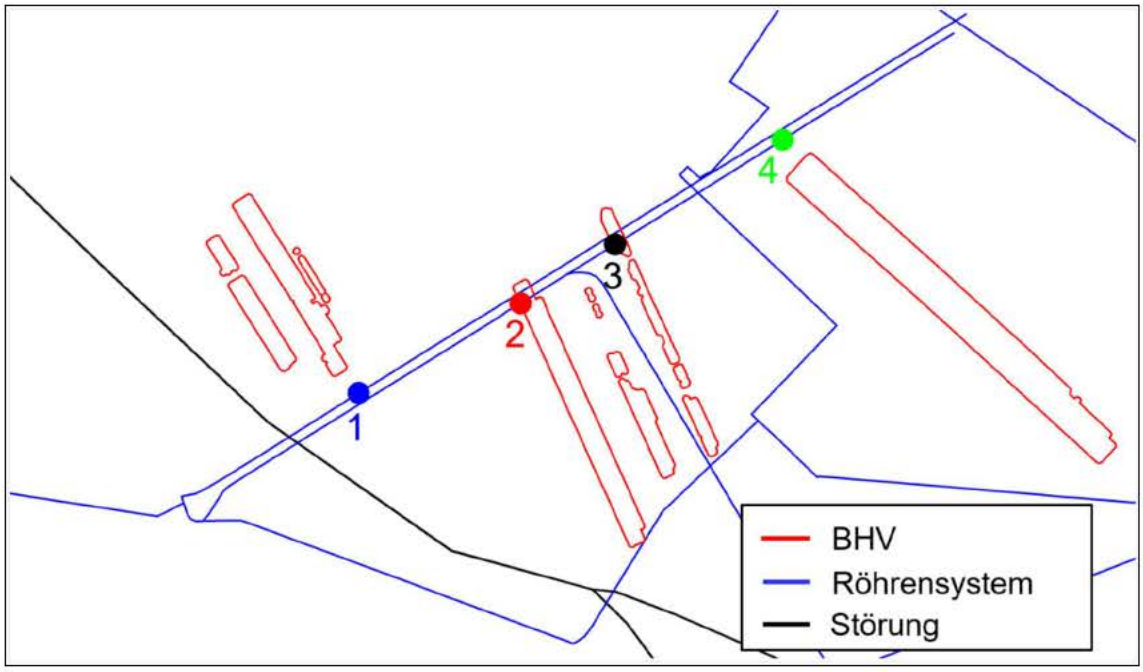


Abb. 38: Lage der Knotenpunkte (delta h)

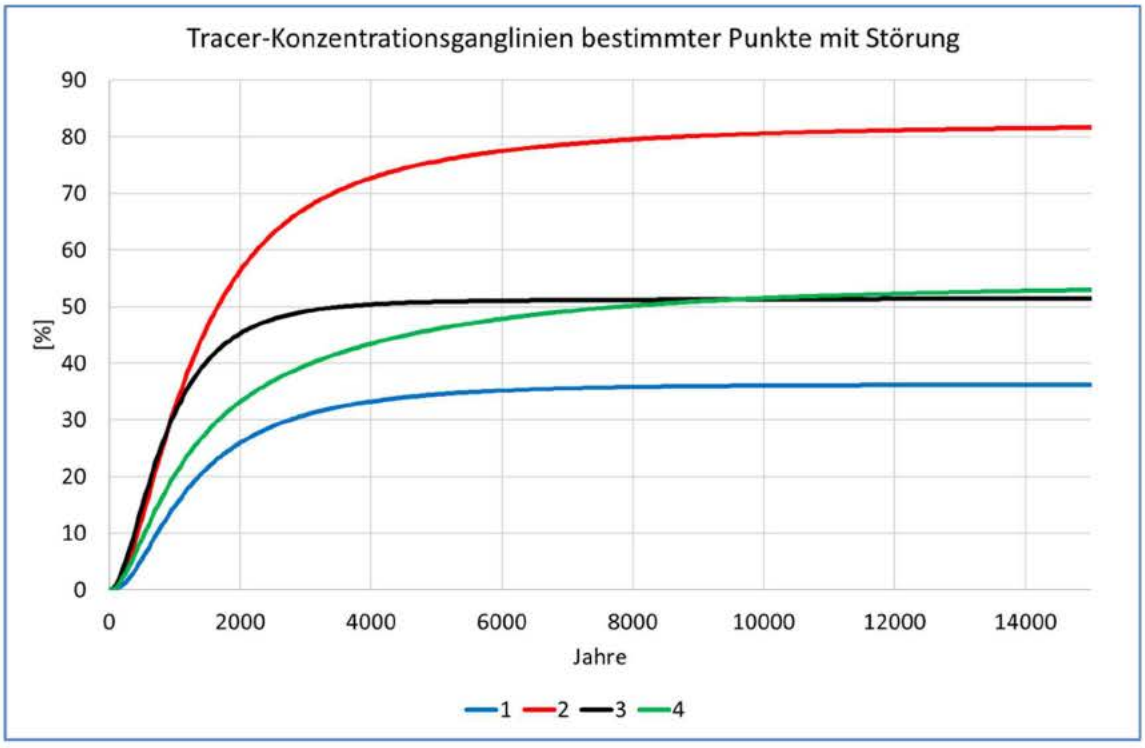


Abb. 39: Tracer-Konzentrationsganglinien an 4 Knoten mit Störung (delta h)

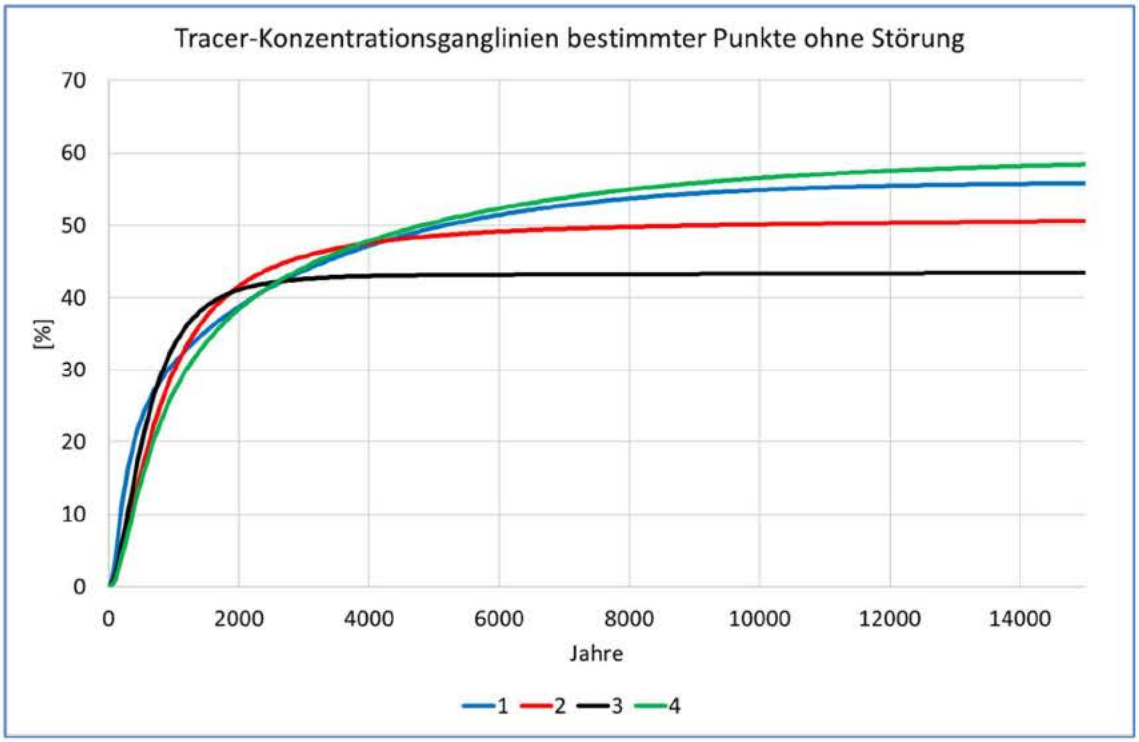


Abb. 40: Tracer-Konzentrationsganglinien an 4 Knoten ohne Störung (delta h)

Nach einer der großen relativen Nähe zwischen Strecken und BHV entsprechenden sehr kurzen Anfangszeit steigen die Konzentrationen in allen vier Knoten steil an. Nach einigen 1000 Jahren nähert sich der Konzentrationsverlauf in den Strecken asymptotisch seinem Endwert an. Dabei geschieht dies in den Knoten in unmittelbarer Nähe der BHV 3 schneller als bei BHV 1 und 2, bei denen der Abstand zwischen Strecke und BHV etwas größer ist (Tab. 4). Die Anfangssteigungen der Konzentrationen sind im Strömungsfeld ohne Störung deutlich steiler. In dem sich einstellenden komplexen Strömungsfeld ist der Einfluss der Störungen auf die Höhe der Konzentration entlang der Strecken unterschiedlich. Die Streckenknoten in unmittelbarer Nähe zu BHV 1 und 2 weisen bei der Prognose mit Störungen geringere Konzentrationen aus, wohingegen die Knoten im Bereich der BHV 3 höhere Konzentrationen haben als in einer Prognose ohne Störungseinfluss.

Die folgenden Abbildungen geben einen detaillierteren Einblick in das komplexe Strömungsfeld mit und ohne Störungseinfluss und in die sich daraus ergebende Tracerausbreitung. Die Abb. 41 stellt das Strömungsfeld auf Höhe der BHV ohne Störungseinfluss dar. Die hellblauen Linien sind die Potentialisolinien, die eine im Bereich des BHV im Wesentlichen nach Süden gerichtete Strömung zeigt. Überprägt ist dieses Strömungsbild durch das Vorflutsystem der offenen Strecken (fette schwarze Linien). Bahnlinien beschreiben den Weg eines Wasserteilchens von einem bestimmten Punkt aus durch das Strömungsfeld. Die Bahnlinien, deren Berechnung in den BHV-Bereichen gestartet wurde, führen entweder zum südlichen Modellrand oder zu den offenen Strecken. Folgerichtig ist eine Konzentrationsausbreitung zu erkennen, die nach Süden hin gerichtet ist. Die Abb. 42 zeigt in der Schlierendarstellung das Strömungsbild noch einmal plastischer, die lokalen Ablenkungen der Strömung auf die Strecken hin sind hier noch einmal deutlicher sichtbar.

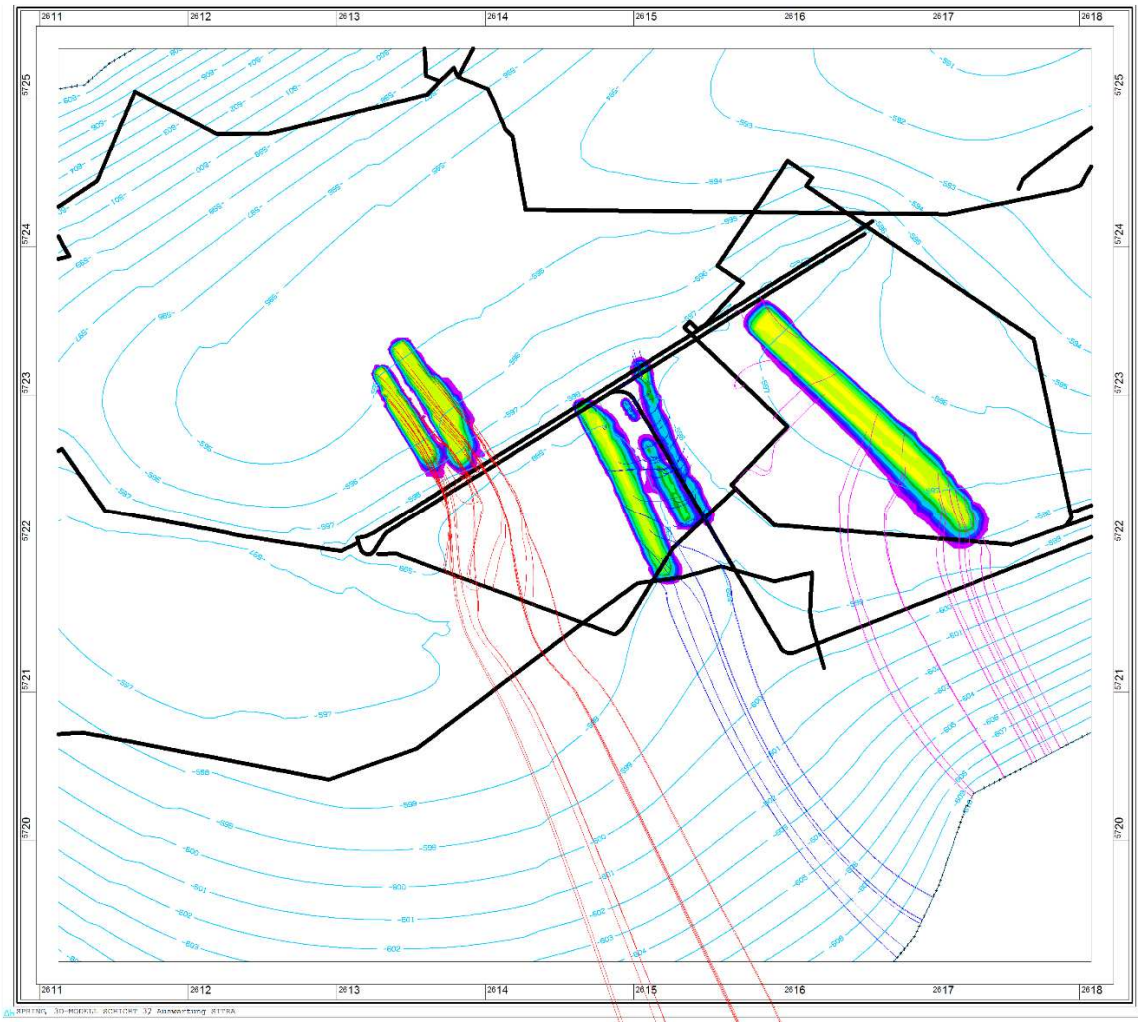


Abb. 41: Bahnlinen mit Startpunkten (rot, blau, violett), Potential-Isolinine (türkis) und Konzentrationsverteilung (farbige Flächen) bei der Tracer-Berechnung ohne Störung. Abstrom nur nach Süden (delta h).

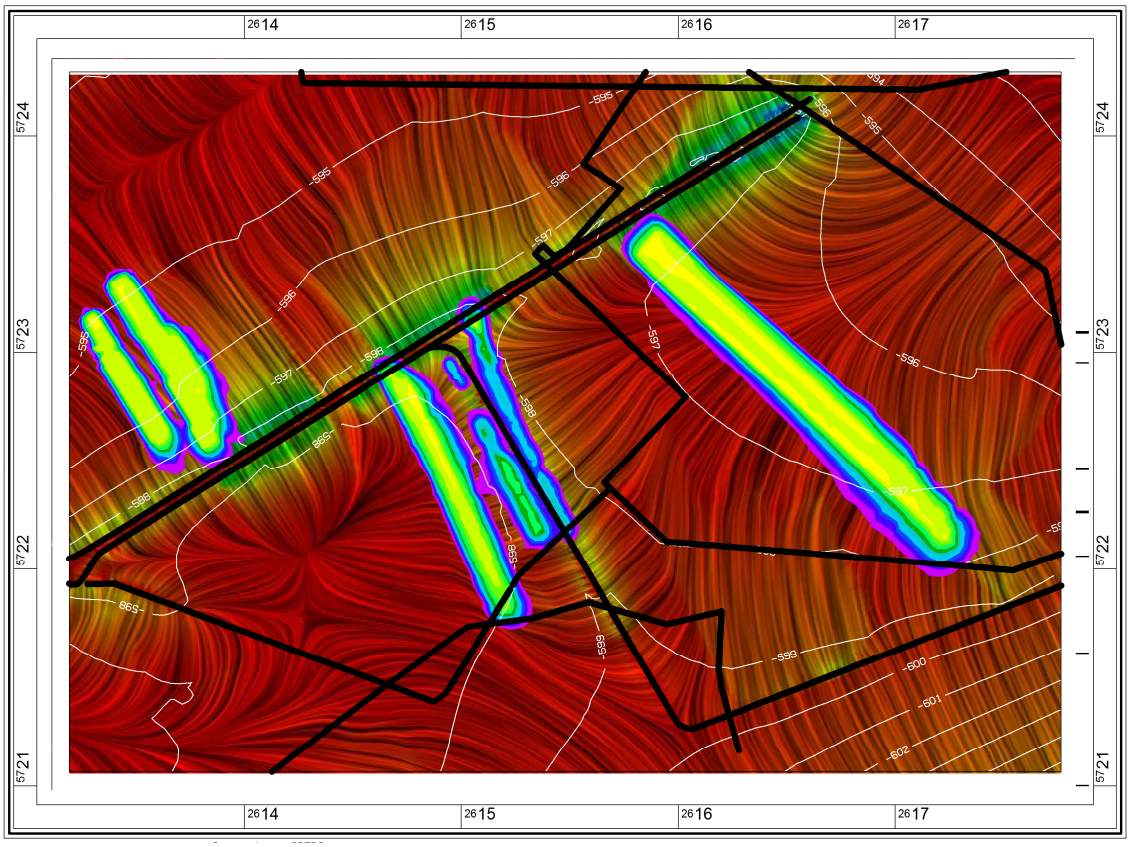


Abb. 42: Strömungsfeld wie Abb. 41 auf der Ebene des BHV und Tracer-Konzentration ohne Störung (delta h)

Im Szenario mit der Berücksichtigung gut durchlässiger Störungen in den Abb. 43 und Abb. 44 modifiziert sich dieses Strömungsbild deutlich. Die Störungen sind durch Magenta farbige Linien dargestellt. Die starke Vorflutwirkung der im Gegensatz zu den linienhaften Strecken flächenhaft wirkenden Störungen überdeckt die Auswirkung der Strecken sehr stark und lenkt die Strömung vorflutartig den Modellrändern zu. Besonders bei den blauen Bahnlinien aus der BHV 3 ist deutlich erkennbar, wie die Partikel der Bahnlinie aus dem BHV 3 zunächst in die Störung Richtung Südwesten fließen, um dann nach einer Strecke innerhalb der Störung diese wieder verlassend dem südlichen Rand zufließen. Die größere Menge des Wassers fließt jedoch nach Erreichen der Störungen direkt über diese dem Rand zu. Folgerichtig ist eine Konzentrationsausbreitung zu erkennen, die deutlich auf die Störungen hingerichtet ist und über diese im Gebirge entlang der Störungen verteilt wird.

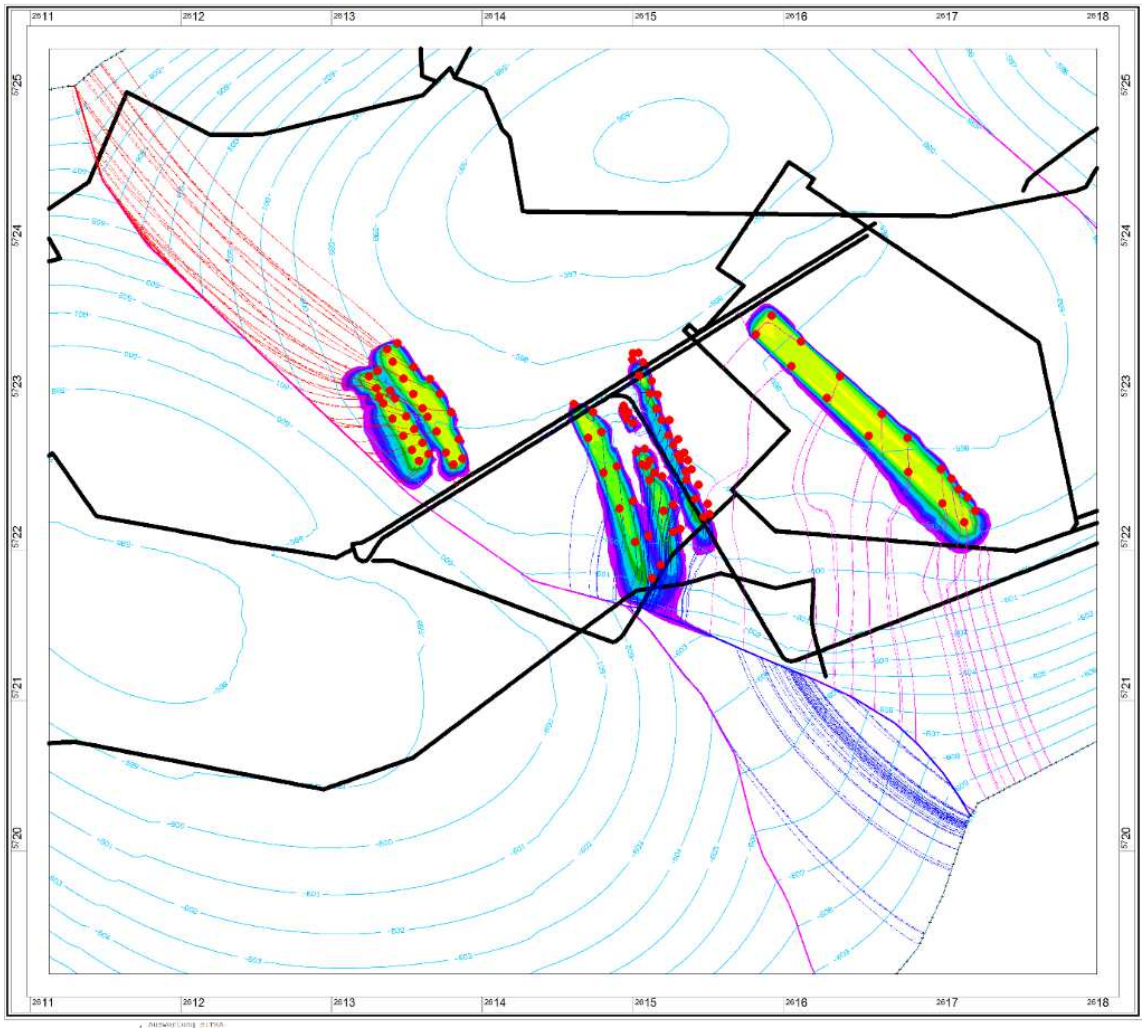


Abb. 43: Bahnlinen mit Startpunkten (rot, blau, violett), Potential-Isolinine (türkis), Potential-Isolininen (blau) und Konzentrationsverteilung (farbige Flächen) bei der Tracer-Berechnung mit Störung. Abstrom nach Süden und Nordwesten (delta h)

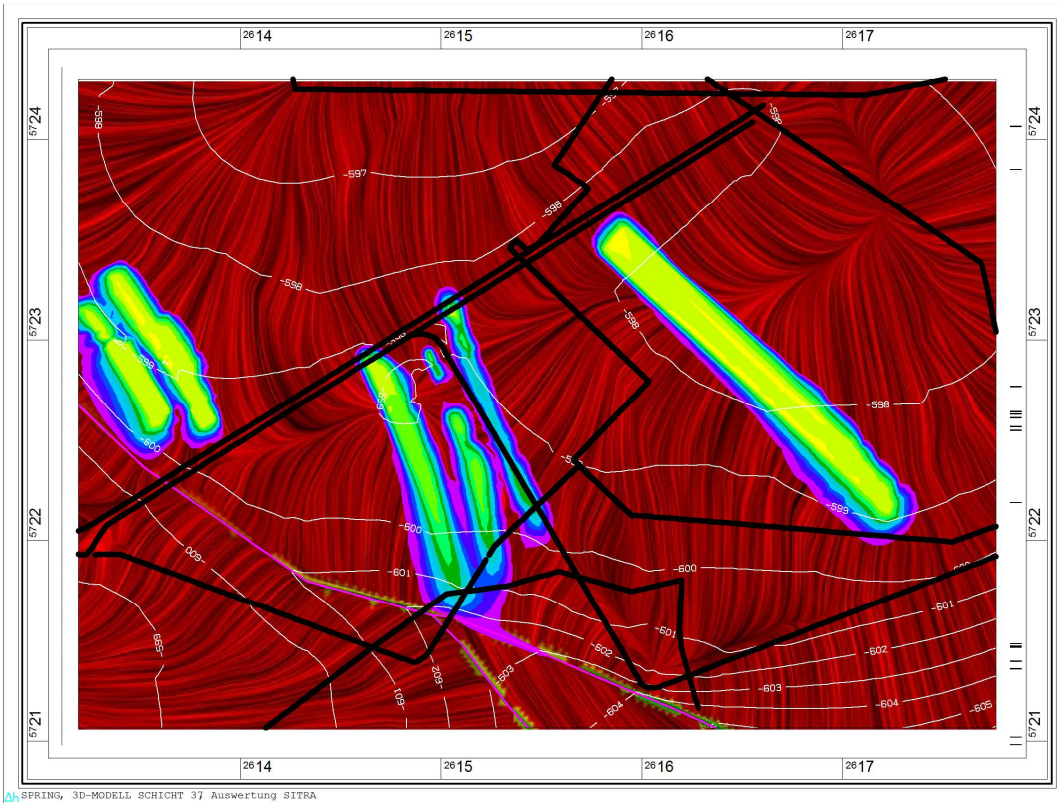


Abb. 44: Strömungsfeld wie Abb. 43 auf der Ebene des BHV und Tracer-Konzentration mit Störung (delta h)

5.3.1 Ausgangszeitpunkt für die Ausbreitungsberechnung

Der Beginn der Ausbreitung wird durch das Freisetzungspotential bestimmt. Bei langen Fließstrecken (mit Störung) und/oder hohen Anteilen an Reststoffen im Lösungskontakt beginnt dies erst in einer fernen Zukunft bzw. konnte innerhalb des Berechnungszeitraums nicht mehr dargestellt werden. So kommt es z.B. bei 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 10 m Fließlänge erst nach 3500 Jahren zu einer Bleifreisetzung in Höhe von 30 mg/l, die noch im Modellierungszeitraum liegt (Abb. 51 und Abb. 53, vgl. Kapitel 5.3.4). Für eine vereinfachte Abschätzung kann von einem minimalen PWA von 10 a Dauer oder einem mittleren PWA mit 34 a Dauer ausgegangen werden (Abb. 47). Ab ca. 500 – 1.000 PWA liegt der Beginn der Freisetzung außerhalb der Rechenzeit von 10.000 a.

Beispielhaft sind im Folgenden für verschiedene Reststoffgehalte und Fließlängen die Porenwasseraustausche angegeben, die notwendig sind für den Beginn der Freisetzung:

- 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 10 m Fließlänge: 200 PWA
- 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 25 m Fließlänge: 400 PWA

- 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 50 m Fließlänge: 800 PWA
- 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 100 m Fließlänge: 1.800 PWA
- 25 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 10 m Fließlänge: > 5.000 PWA
- 50 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 10 m Fließlänge: >> 5.000 PWA
- 100 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei 10 m Fließlänge: >>> 5.000 PWA
- 100 % Reststoffe im Reaktionskontakt bei Fließlängen > 10 m: >>> 5.000 PWA

Vor allem ein höherer Prozentanteil der Reststoffe im Reaktionskontakt führt zu einer deutlich späteren Freisetzung.

Vor allem ein höherer Prozentanteil der Reststoffe im Reaktionskontakt führt zu einer deutlich späteren Freisetzung, die wahrscheinlich mehrere 100.000 Jahre betragen.

Der anorganische Schadstoffaustrag (Quellterm) pro Porenwasseraustausch abhängig ist von der durchströmten Länge. Dabei stehen umso mehr Reststoffe im Reaktionskontakt mit dem Tiefengrundwasser, je länger die Fließstrecke ist. Damit wird die pH-Wert Barriere, die die Freisetzung von Schwermetallen begrenzt, stabiler und andauernder. Zur Ermittlung des Quellterms musste daher zusätzlich zur Dauer eines PWA auch die zugehörige Fließlänge ermittelt werden.

5.3.2 Fließlängenbetrachtung

In dem Detailbericht 4 werden als Ergebnis der hydrogeochemischen Berechnungen Konzentrationen einzelner anorganischen Schadstoffe pro Porenwasseraustausch und abhängig von der Fließlänge (durch die BHV) angegeben. Die Ermittlung des Quellterms für die Ausbreitungsberechnung erfolgt durch eine Umrechnung der Funktionen der Konzentration von Porenwasseraustauschen in Funktionen der Konzentration von der Zeit. Mittels dieser Beziehungen und der Fließlängenbetrachtungen können damit die Quellterme für die Ausbreitungsrechnung angegeben werden.

Die Bestimmung der Fließlänge erfolgt durch die Auswertung unterschiedlicher Bahnlinien. Bahnlinien beschreiben den Weg eines Wasserteilchens von einem bestimmten Punkt aus durch das Strömungsfeld. Einige dieser Bahnlinien sind in Abb. 41 und Abb. 43 als Draufsicht dargestellt. Die Bahnlinien enden, wenn sie in das Röhrensystem übertreten oder das Gebiet über den Rand verlassen.

Zur Ermittlung der Fließlängen wurden an allen BHV Teilbereichen Bahnlinienstartpunkte auf jedem Modellknoten definiert. Da das Strömungsfeld nach unten ausgerichtet ist, liegen die Startpunkte in der obersten Knotenschicht der jeweiligen BHV Bereiche. Die Längen der Bahnlinien, bis diese die untere Knotenschicht der BHV Teilbereiche erreicht haben, wurden für beide Störungsszenarios bestimmt und in Abb. 45 dargestellt. Grundsätzlich nehmen die Fließlängen für südlichere Startpunkte der BHV zu. Die Fließlängen sind deutlich größer, wenn die Durchlässigkeit der Störungen durchflusswirksam ist (Szenario mit Störung).

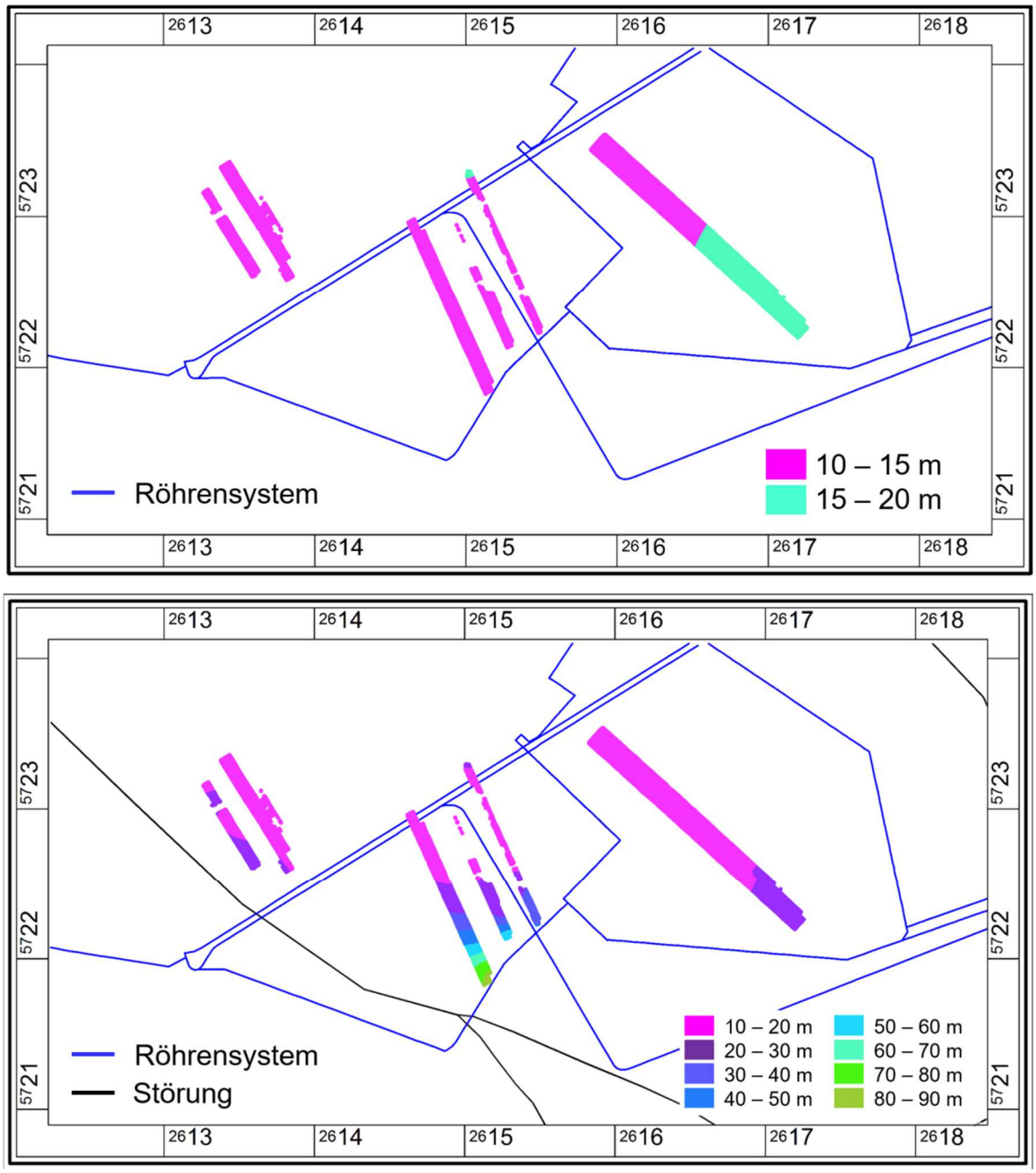


Abb. 45: Durchströmte Fließlänge in Metern ohne (oben) und mit (unten) Störung (delta h)

Exemplarisch sind in der Abb. 46 die Fließlängen der Bahnlinien aller Modellknoten der obersten Knotenschicht des größten Versatzbereiches BHV 1 im Szenario mit durchflusswirksamen Störungen dargestellt.

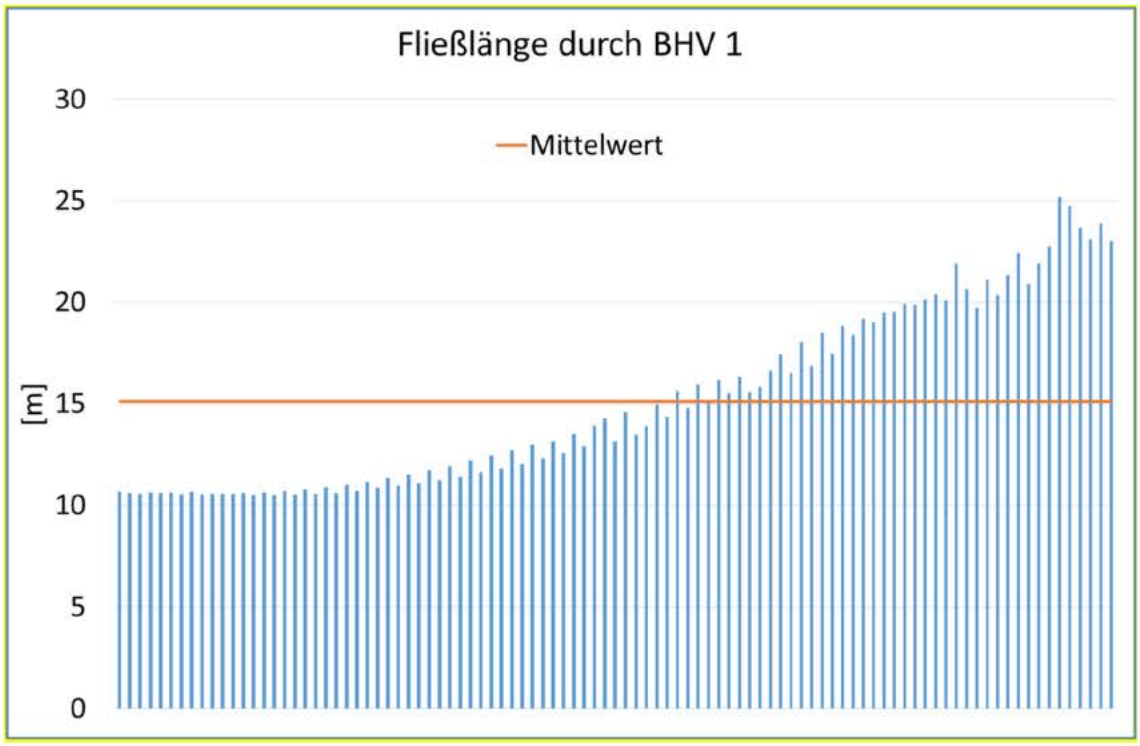


Abb. 46: Fließlängen durch die BHV 1 für alle Modellknoten in der stationären Phase mit Störung (delta h)

Da kürzere Fließlängen auf der sicheren Seite liegen, da diese zu einer höheren Freisetzung der verbrachten Stoffe führen, liegt das Szenario ohne durchflusswirksame Störung eher auf der sicheren Seite. Die Mittelung der Fließlängen für alle BHV Bereiche führt jedoch bei beiden Szenarios zu einer durchschnittlichen Fließlänge von etwa 15 m, da der Bereich mit deutlich größeren Fließlängen im Szenario mit Störung nur relativ klein ist und auch hier die Längen unter 20m dominieren. Der Durchschnittswert ist zur Abschätzung der Fließlängenverteilung ebenfalls in der Abb. 46 dargestellt.

Den Berechnungen sind im Folgenden in beiden Szenarios einheitliche Fließlängen von 15 m zu Grunde gelegt, um den Rechenaufwand zu reduzieren und die Übersichtlichkeit der Ergebnisse zu erhöhen.

5.3.3 Dauer eines Porenwasseraustauschs (PWA)

In dem Detailbericht 4 werden als Ergebnis der hydrogeochemischen Berechnungen Konzentrationen einzelner anorganischen Schadstoffe pro Porenwasseraustausch ermittelt. Diese sind abhängig von der Fließlänge durch die BHV. Zur Ermittlung des Quellterms für die Ausbreitungsberechnung müssen die Konzentrationen in Abhängigkeit von der Zeit ermittelt werden. Mittels dieser Beziehungen und der Fließlängenbetrachtungen können so die Quellterme für die Ausbreitungsrechnung ermittelt werden. Als Grundlage dieser Berechnung dient die Tracer-Berechnung.

Die Dauer eines PWA ist abhängig von der die BHV Bereiche durchströmenden Wassermenge. Es werden für beide Störungsszenarios alle BHV Teilbereiche einzeln betrachtet (siehe Abb. 9). Zur Bestimmung der durchströmenden Wassermenge wurden auf den Hüllen der jeweiligen BHV Teilbereiche die Elemente mit eindringendem Wasser selektiert. Die Multiplikation der Filtergeschwindigkeit mit der Fläche des jeweiligen Elements ergibt den Element-Volumenstrom, der über die Zeit und alle Elemente der Hülle aufsummiert wird. Die Zeit bis der so ermittelte Wert dem Porenvolumen des BHV Teilbereichs entspricht, ist definiert als die Dauer eines PWA.

In den Abb. 47 und Abb. 48 ist die Dauer eines PWA differenziert nach Teil-BHV mit und ohne Berücksichtigung durchflusswirksamer Störungen aufgetragen. Der volumengewichtete Mittelwert über alle BHV Teilbereiche für die Dauer eines Porenwasseraustauschs liegt in der stationären Phase bei 35 Jahren bei Berücksichtigung durchflusswirksamer Störungen und bei 34 Jahren, wenn die Störungen als nicht durchflusswirksam angesehen werden.

Wie zu erwarteten ist aufgrund der kleineren Fließgeschwindigkeiten die Dauer eines Porenwasseraustauschs in der stationären Phase größer als in der instationären Phase, in der die Dauer je nach Durchlässigkeit des BHV und Teilbereich zwischen 10 und 20 Jahren liegt.

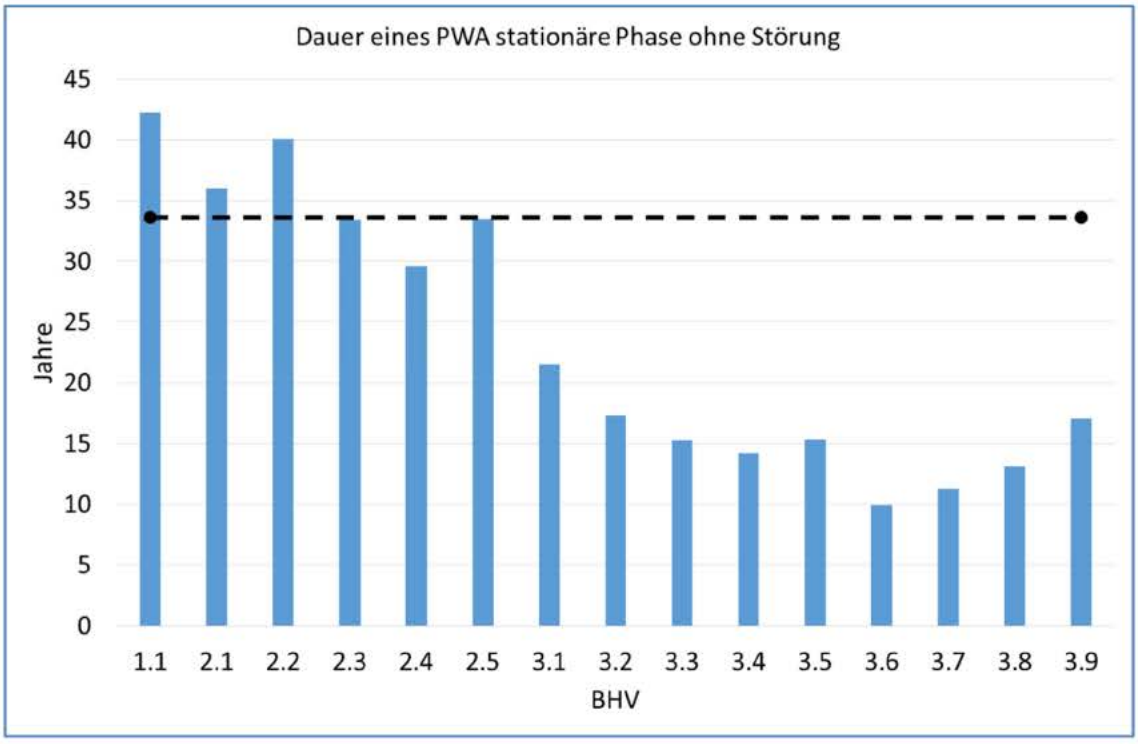


Abb. 47: Mittlere Fließzeit für einen PWA mit volumengewichtetem Mittelwert ohne Störung. Die Lage der Teil-BHV ist in Abb. 9 dargestellt (delta h)

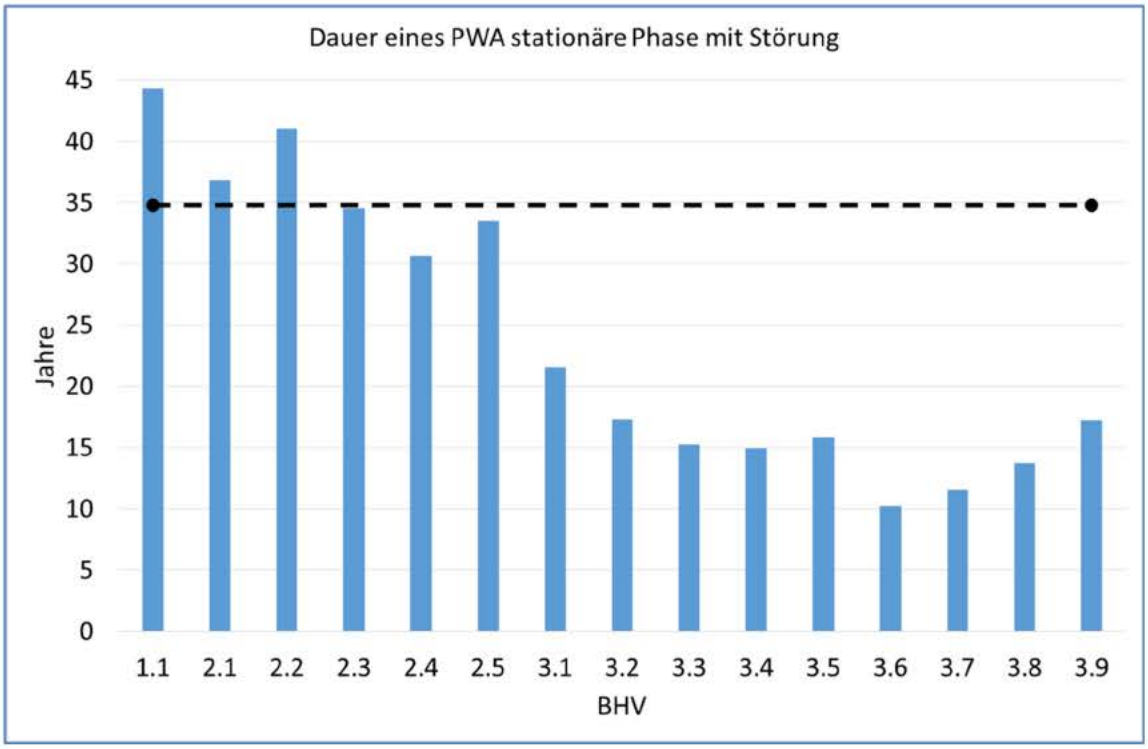


Abb. 48: Mittlere Fließzeit für einen PWA mit volumengewichtetem Mittelwert mit Störung. Die Lage der Teil-BHV ist in Abb. 9 dargestellt (delta h).

5.3.4 Quellterme

Nachdem die mittlere repräsentative Fließlänge mit 15 m und die Dauer der PWA aus der Tracer-Berechnung ermittelt wurden, können die Quellterme für die instationäre Transportberechnung im stationären Strömungsfeld bestimmt werden. Dies erfolgt zunächst für den Fall, dass 10% der Stoffe in Reaktionskontakt geraten. Es wurden beide Szenarios der Störungsdurchlässigkeit unterschieden und je eine Berechnung für Zink und Blei durchgeführt.

Dabei werden Teilbereiche der BHV, die eine ähnliche Dauer für einen PWA aufweisen, für die Berechnung der Quellterme zusammengefasst. Die PWA Dauer wird jeweils innerhalb der zusammengefassten Bereiche volumengemittelt. Auf diese Weise werden die BHV Teilbereiche 1, 2.1, 2.2, 2.3, 2.4 und 2.5 volumengewichtet gemittelt. Die BHV Teilbereiche 3.1 und 3.6 werden für die Quelltermberechnung weiterhin getrennt betrachtet. Die BHV Teilbereiche 3.7 und 3.8, sowie die Teilbereiche BHV 3.3, 3.4 und 3.5 können zusammengefasst werden.

Aus der Funktion der Stofffreisetzung in Abhängigkeit von den PWA für die Fließlänge 15 m und unter der Annahme von 10% Reststoff im Reaktionskontakt (Abb. 49), wie sie im Detailbericht 4 dargestellt ist, kann über die Funktion der PWA über die Zeit, eine Funktion der Freisetzung in Abhängigkeit von der Zeit ermittelt werden. Diese liefert als instationäre Eingabedatei die Konzentrationsrandbedingung an der Umhüllenden der BHV Teilbereiche.

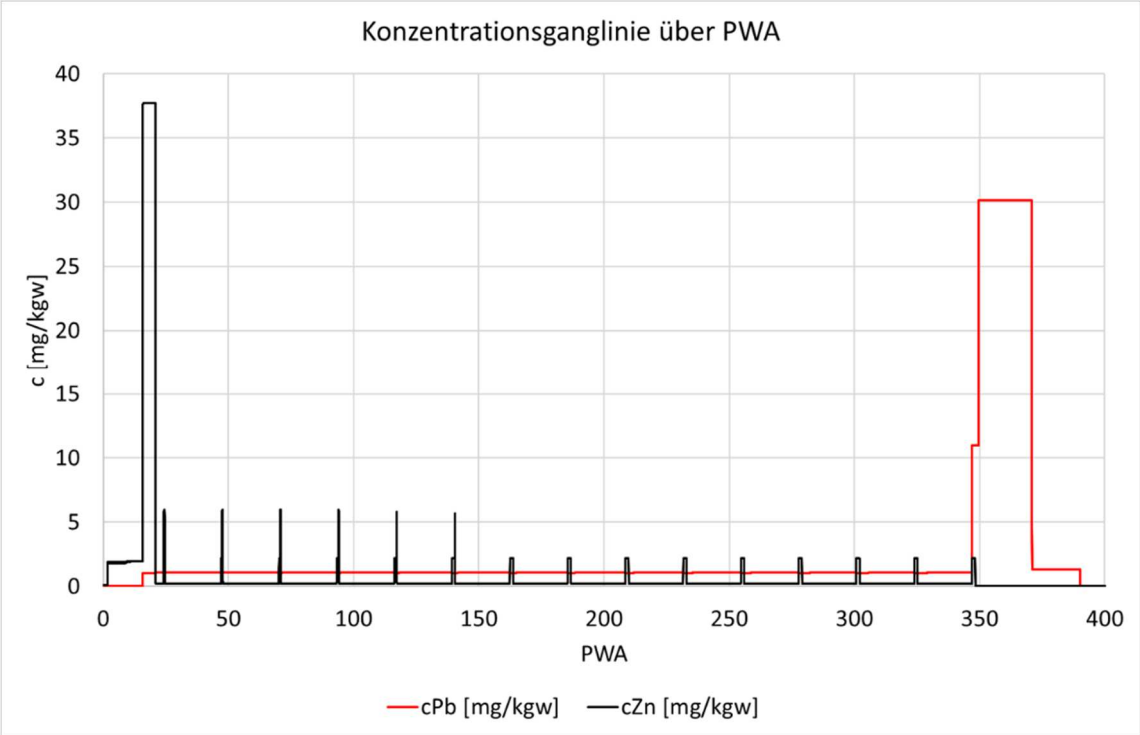


Abb. 49: Funktion der Blei- und Zinkkonzentrationen in Abhängigkeit von PWA (delta h)

Die Abb. 50 und Abb. 51 stellen den Verlauf der Freisetzung von Zink und Blei für die Berechnung ohne Störungseinfluss, die Abb. 52 und Abb. 53 mit Störungseinfluss dar. Die unterschiedlichen Farben geben die Verläufe für die unterschiedlichen Teilbereiche der BHV entsprechend Legende wieder. Ein Einfluss der Störung auf den Quellterm ist kaum sichtbar.

Die Freisetzung von Blei aus den BHV Bereichen 1 und 2 erfolgt erst nach 15.000 a (siehe Abb. 51 und Abb. 53), ein Zeitpunkt, der nicht innerhalb der Berechnungsdauer liegt. Hingegen erfolgt der Hauptpeak der Zinkfreisetzung mit und ohne Störungseinfluss aus allen Teilbereichen bereits nach weniger als 1000 Jahren.

Unter Verwendung dieser instationären Randbedingungen wurde die Ausbreitung von Zink und Blei in den stationären Strömungsfeldern mit und ohne Störungseinfluss berechnet und in den beiden folgenden Kapiteln dargestellt.

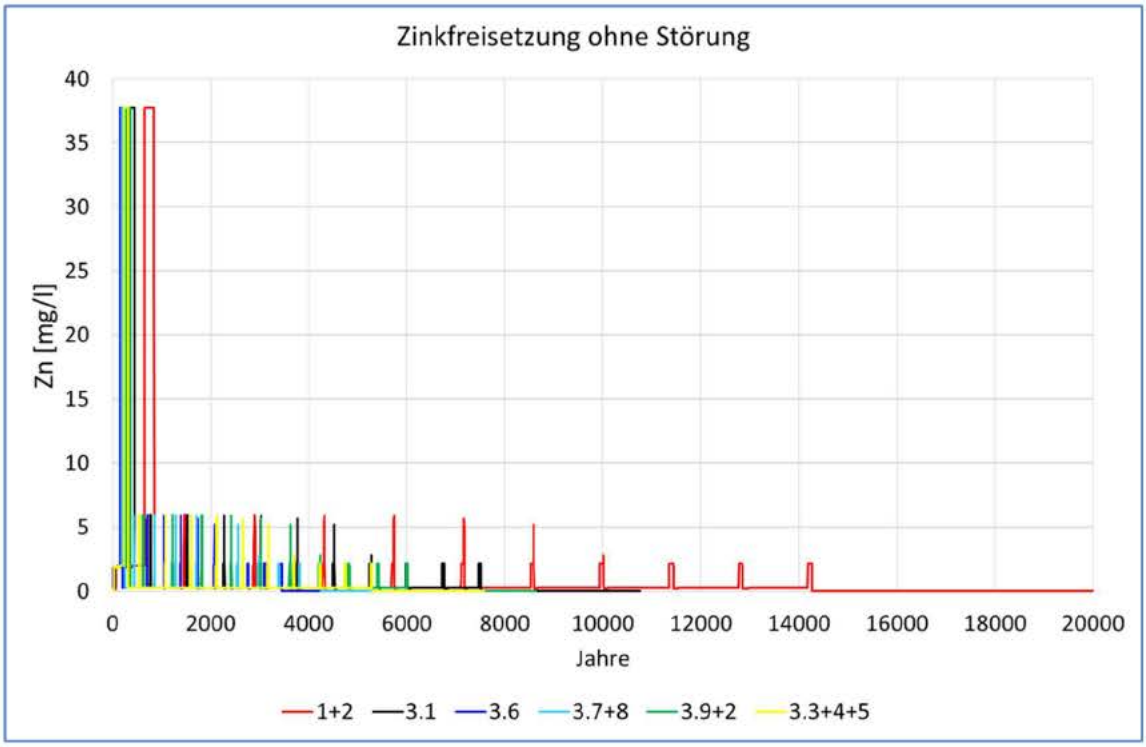


Abb. 50: Freisetzung von Zink aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (ohne Störung) (delta h)

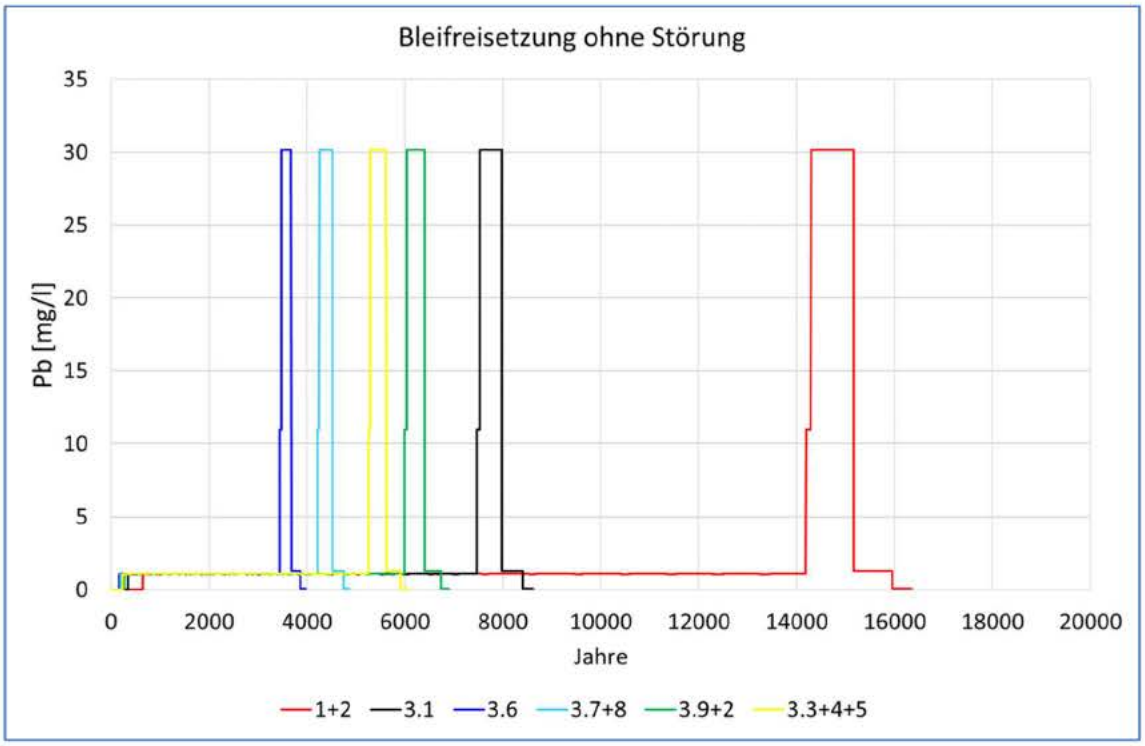


Abb. 51: Freisetzung von Blei aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (ohne Störung) (delta h)

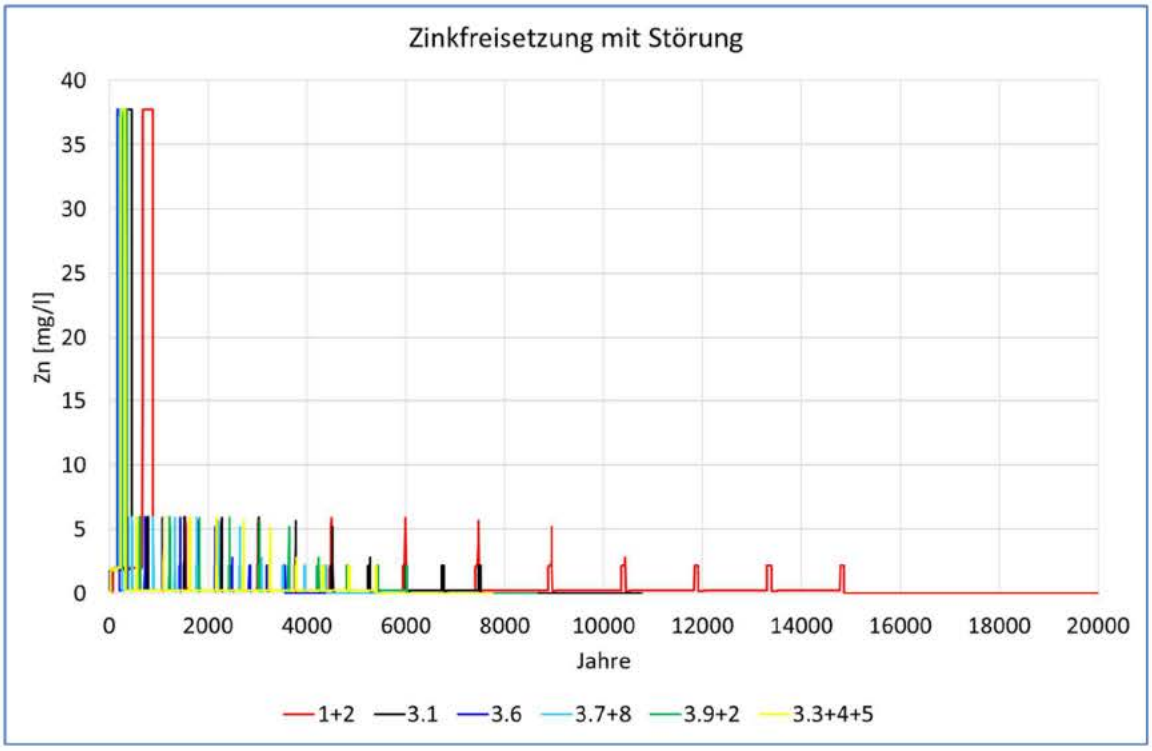


Abb. 52: Freisetzung von Zink aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (mit Störung) (delta h)

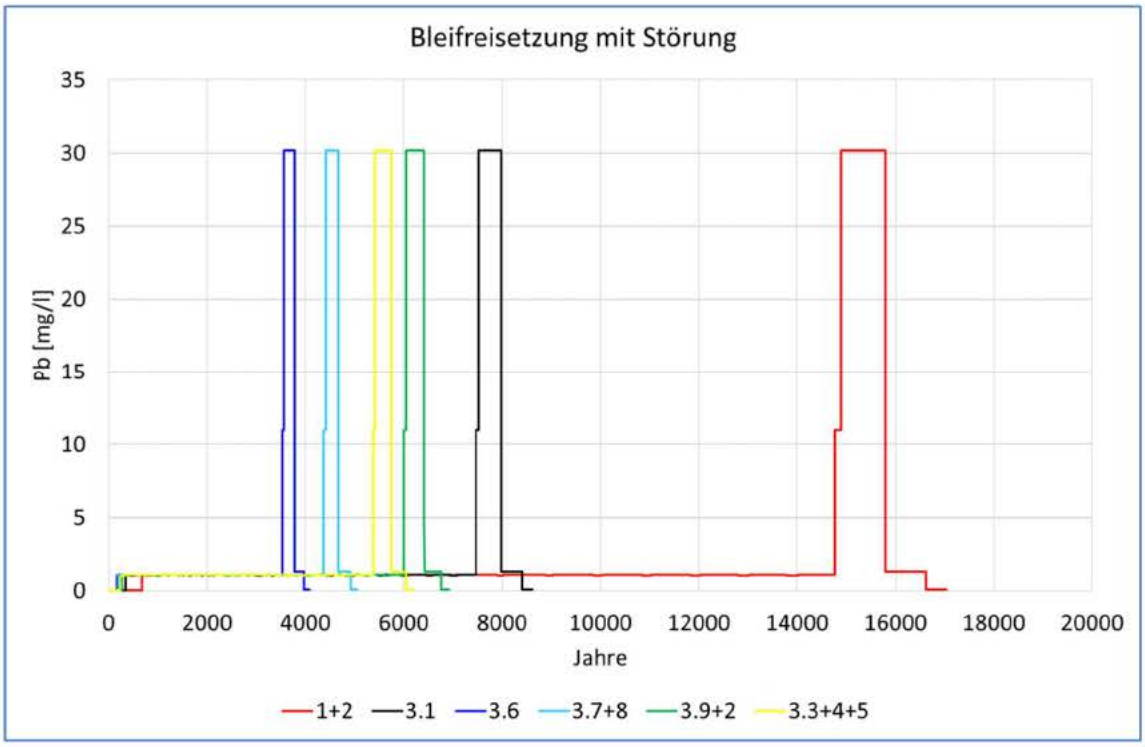


Abb. 53: Freisetzung von Blei aus den BHV-Bereichen bei einer Fließlänge von 15 m und 10 % Reststoffe im Reaktionskontakt (mit Störung) (delta h)

5.3.5 Ergebnisse der Ausbreitungsprognose Zink

Zur Auswertung der Ergebnisse wurden an den Modellknoten der Abb. 38, die am Übergang zu den offenen Strecken liegen, die Ganglinien in Abb. 54 dargestellt. Als Bezeichnung der Ganglinien wurde der nächstgelegene BHV Teilbereich gewählt. Der erste Peak in der Zinkkonzentration wird nach etwa 500 Jahren unterhalb der BHV 3.6 erreicht. Die höchste Zinkkonzentration wurde in der Nähe der volumenmäßig größten BHV 1 berechnet und ist nach 1000 Jahren zu erwarten. Nach den ersten Zinkkonzentrationspeaks sinkt die Konzentration entsprechend des Quellterms deutlich (siehe Abb. 52). Der Höhepunkt des Zinkeintrags ist dann bereits erreicht.

Die Zinkfracht, die über die offenen Strecken aus dem Gebirge exfiltriert und der ZWH zuläuft, wurde aus den Leakagemengen an den Streckenknoten über die Zinkkonzentrationen berechnet. Diese Mengen wurden über die Zeit integriert und in Abb. 55 für das Szenario mit und ohne strömungswirksame Störungen dargestellt. Insgesamt ist der Zinkeintrag im Szenario ohne Störungseinfluss deutlich größer. Da der Zinkeintrag bereits in ein Stadium übergegangen ist, bei dem geringere Konzentrationen exfiltriert werden, sind insbesondere in der Summenkurve mit Störung nur noch geringe Steigungen zu erkennen.

Die Prognose zeigt, dass auch über die Modellränder Zink das Modellgebiet verlassen wird. Im Berechnungszeitraum von 10.000 Jahren hat das freigesetzte Zink die Modellränder noch nicht erreicht.

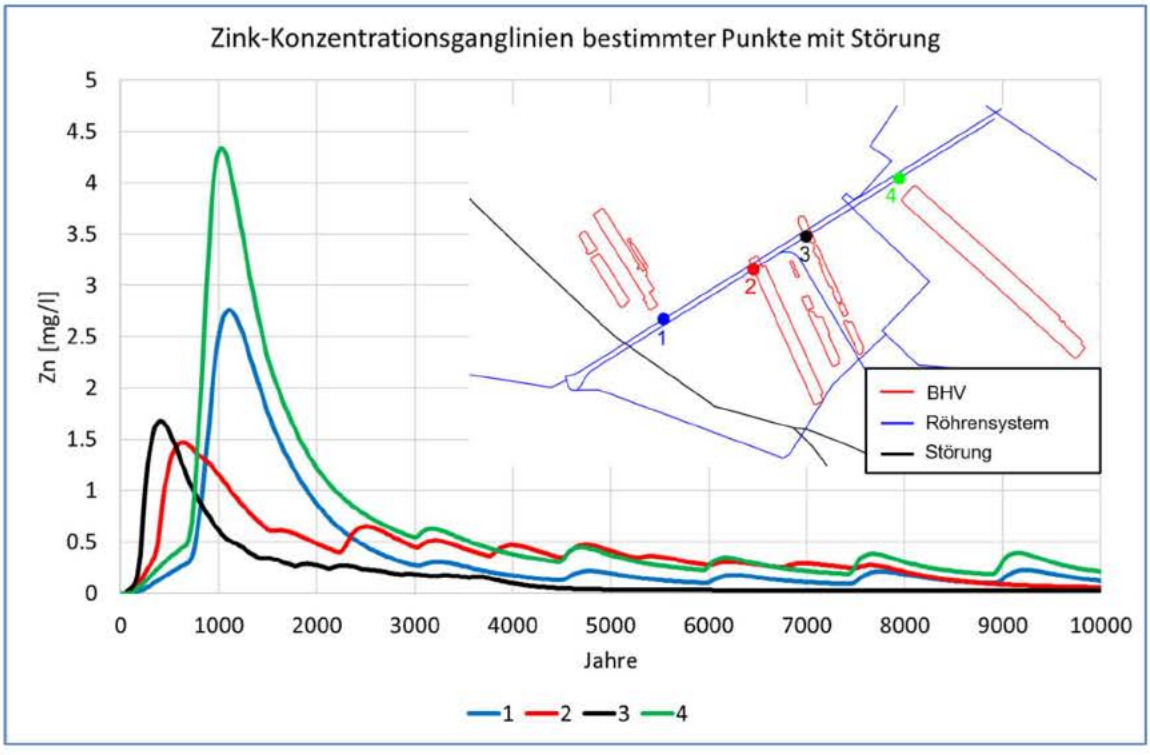


Abb. 54: Zink-Konzentrationsganglinien an den entsprechenden Knoten mit Störung noch ohne Vermischung mit Grubenwasser (delta h)

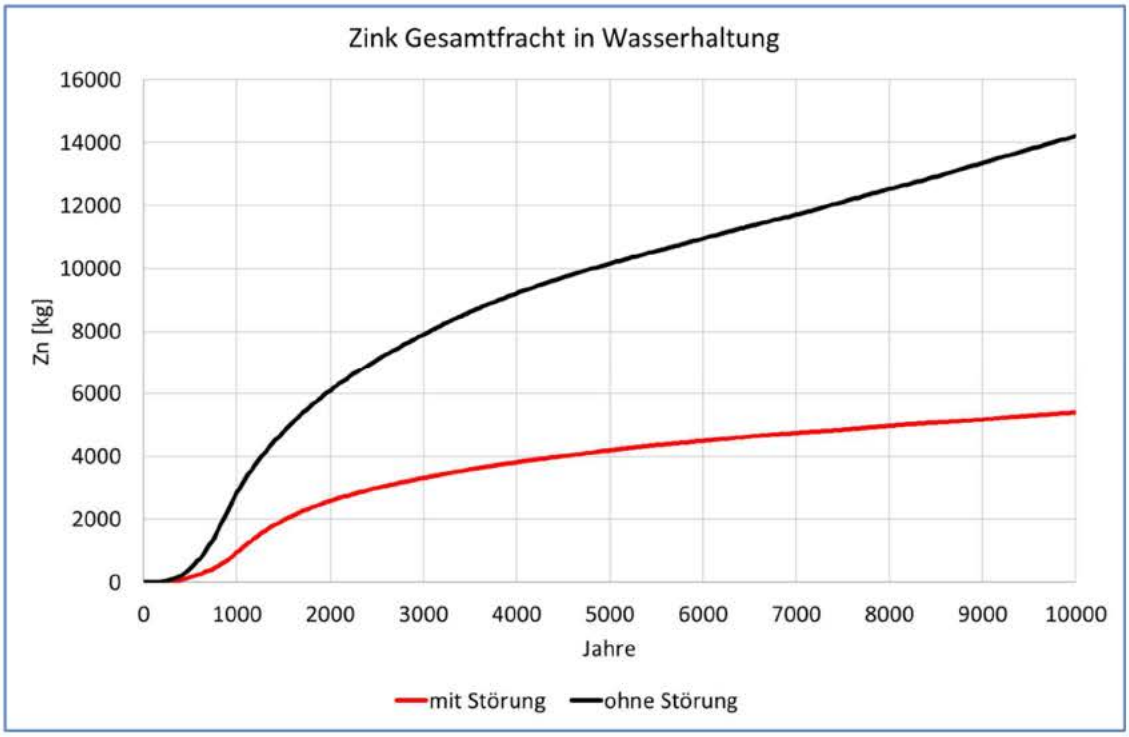


Abb. 55: Kumulative Zinkfracht im drainierenden Röhrensystem mit und ohne Störung (delta h)

5.3.6 Ergebnisse der Ausbreitungsprognose Blei

Zur Auswertung der Ergebnisse wurden an den Modellknoten der Abb. 36, die am Übergang zu den offenen Strecken liegen, die Ganglinien in Abb. 56 dargestellt. Als Bezeichnung der Ganglinien wurde der nächstgelegene BHV Teilbereich gewählt. Nach etwa 500 Jahren sind erste Bleifrachten in der Wasserhaltung zu erwarten. Der erste Peak in der Bleikonzentration wird nach etwa 4000 Jahren unterhalb der BHV 3.6 erreicht. Der Konzentrationspeak aus den BHV Bereichen 1 und 2 wurde zum Ende des Berechnungszeitraums noch nicht freigesetzt.

Die Bleifracht, die über die offenen Strecken aus dem Gebirge exfiltriert und der ZWH zuläuft, wurde aus den Leakagemengen an den Streckenknoten über die Bleikonzentrationen berechnet. Diese Mengen wurden über die Zeit integriert und in Abb. 57 für das Szenario mit und ohne strömungswirksame Störungen dargestellt. Da die Konzentrationspeaks der Teilbereiche BHV 1 und 2 noch nicht freigesetzt wurden und auch BHV 3.1 erst kurz zuvor den Freisetzungspeak hatte, ist erst ein kleinerer Teil des freisetzbaren Stoffes bereits im Streckensystem angekommen. Entsprechend befindet sich die Summenkurve noch im konkaven Bereich. Die Prognosedauer müsste für Aussagen zur gesamten und maximalen Bleibelastung in der Wasserhaltung ausgedehnt werden.

Die Prognose zeigt, dass über die Modellränder Bleifracht das Modellgebiet verlassen wird. Aber auch hier hat das freigesetzte Blei im Berechnungszeitraum die Modellränder noch nicht erreicht.

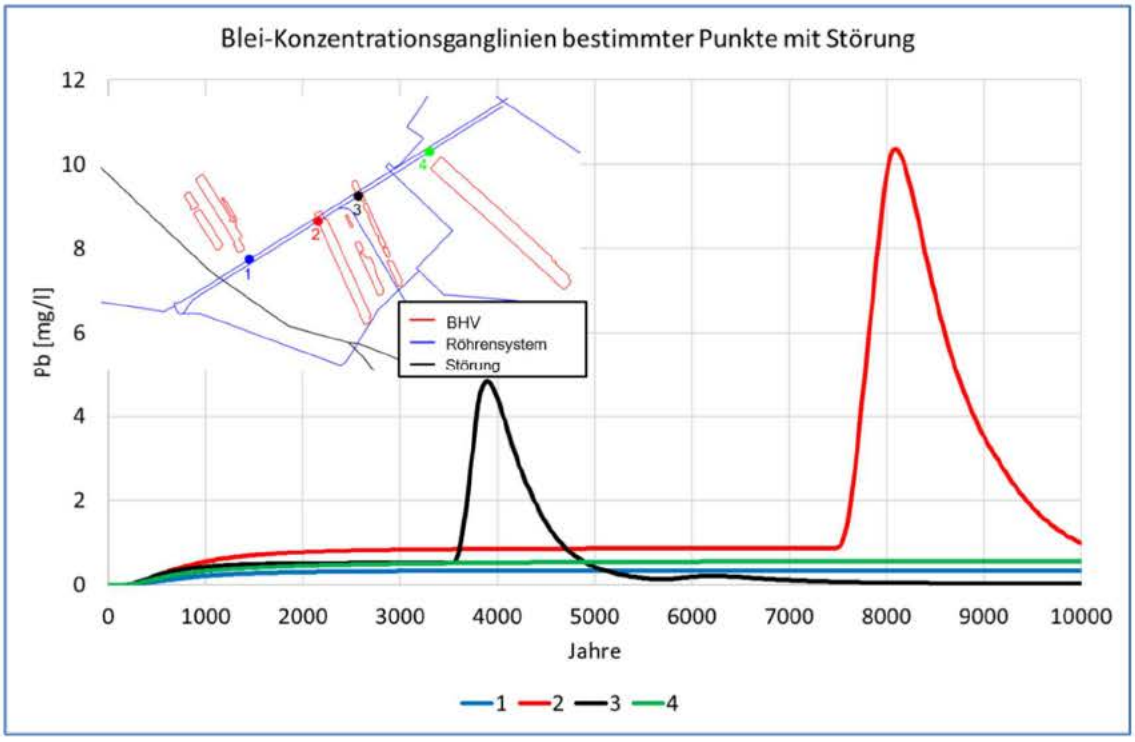


Abb. 56: Blei-Konzentrationsganglinien an den entsprechenden Knoten mit Störung noch ohne Vermischung mit Grubenwasser

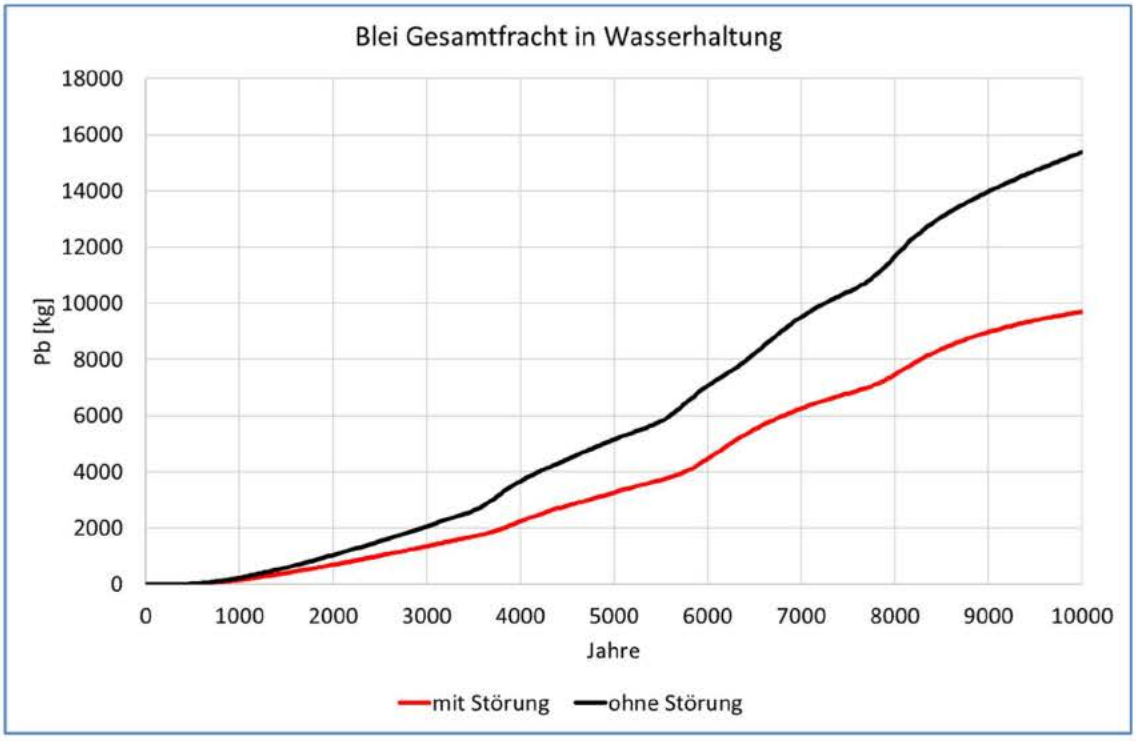


Abb. 57: Kumulative Bleifracht im drainierenden Röhrensystem mit und ohne Störung (delta h)

5.4 Gesamtbilanz der Fernfeldprognosen

Die Ganglinien der Zink- und Bleifrachten pro Jahr die das räumlich verteilte System von BHV verlassen und in das schnell fließende Röhrensystem gelangt ist in Abb. 58 dargestellt.

Die Zink- und Bleifrachten sind insgesamt im System ohne Störungen um den Faktor 2 größer als mit Störung.

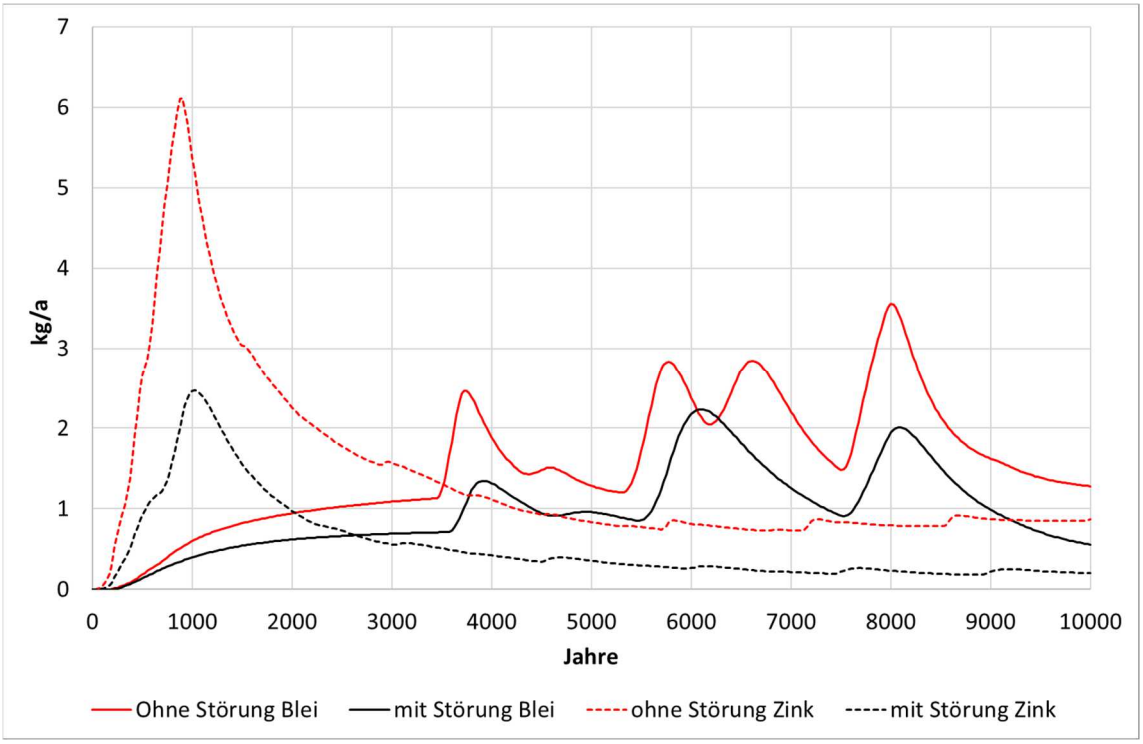


Abb. 58: Zink- und Bleifrachten in der ZWH (delta h)

Das dem Streckensystem zufließende reststoffbelastente Grundwasser wird durch die Wässer, die der Zentralen Wasserhaltung aus anderen Bergwerken über das Streckensystem zufließen, verdünnt (Abb. 59). Da hier der grundwasserbürtige Zustrom zum Röhrensystem gemäß den Modellrechnungen zugrunde gelegt wird, weicht die gesamte Menge mit 27,7 m^3/min von der von der RAG nach einem Grubenwasseranstieg prognostizierten Grubenwassermenge ab, die im Mittel bei 25 m^3/min liegt.

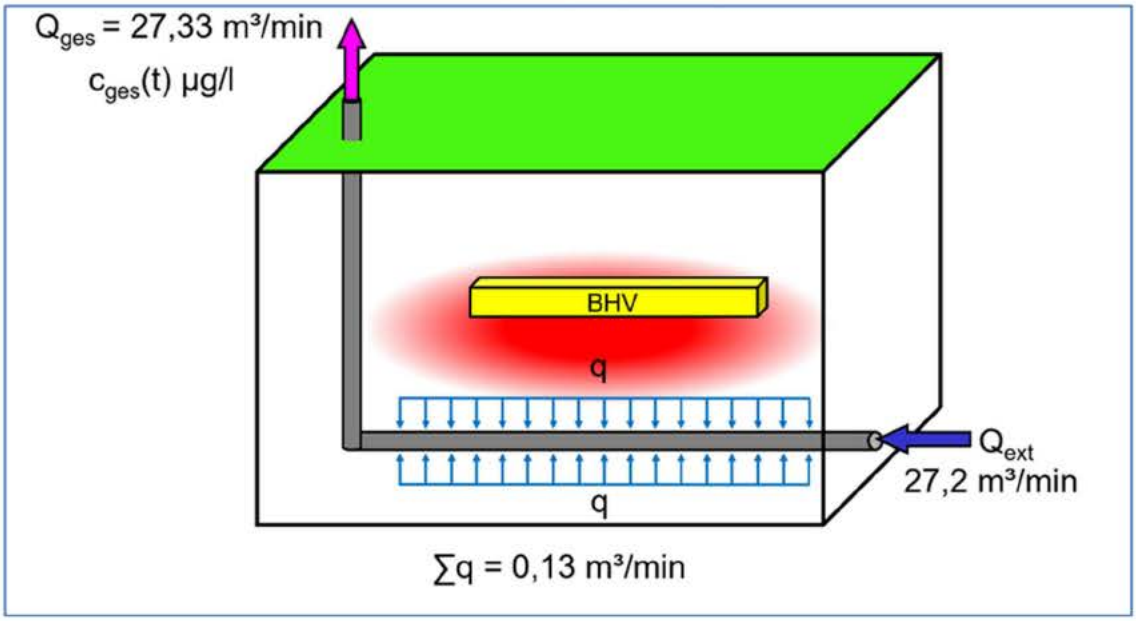


Abb. 59: Gesamtbilanz in der ZWH (delta h)

Dabei setzt sich der externe Volumenstrom im Streckensystem zusammen aus den Wässern der BW Hansa, Radbold, Gneisenau und Ost, die nicht durch BHV belastet sind:

$$Q_{ext} = Q_{Hansa} + Q_{Radbild} + Q_{Gneisenau} + Q_{BW\ Ost}$$

Der externe Volumenstrom addiert sich zum Zustrom aus dem Modellgebiet:

$$Q_{ges} = Q_{ext} + \sum q$$

Die Fracht dieses Zustroms berechnet sich aus dem Volumenstrom multipliziert mit der Konzentration dieses Grundwassers an gelösten Reststoffen (Blei, Zink):

$$E_{BHV} = \sum q \cdot c_{BHV}$$

Die Gesamtkonzentration des in der Zentralen Wasserhaltung geförderten Wassers ergibt sich als Quotient aus der Fracht und dem Gesamtvolumenstrom:

$$c_{ges} = \frac{\sum(q \cdot c_{BHV})}{Q_{ges}}$$

Die Volumenströme, die den Berechnungen zugrunde liegen, sind der Abb. 59 zu entnehmen. Die Abb. 60 gibt die Zink- und Bleikonzentrationen in der zentralen Wasserhaltung unter Annahme eines Gesamtfördervolumens von ca. 25 m³/min und einer Nichtwirksamkeit des Störungssystems an.

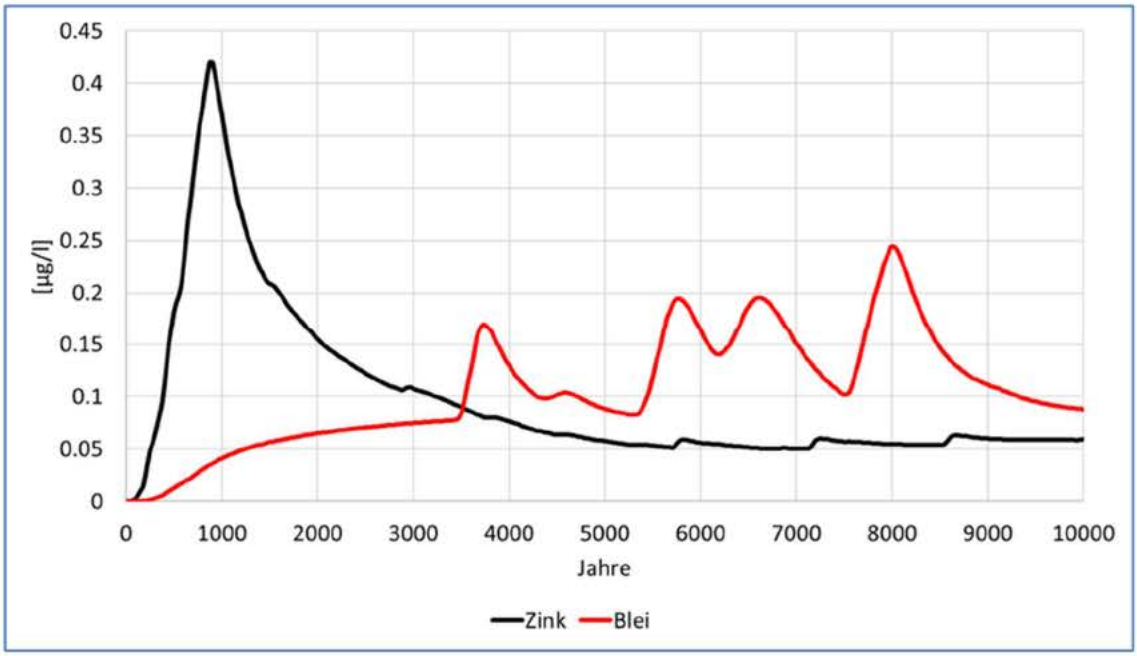


Abb. 60: Erhöhungen der Zink- und Bleikonzentrationen in der Zentralen Wasserhaltung ohne Störung (ungünstige Annahme) (delta h)

5.5 Fazit

Die Auswertung der Modellrechnungen über den Zeitraum von 10.000 Jahren ergab im Wesentlichen folgende Erkenntnisse:

- Die Aufsättigung der BHV-Bereiche mit dem Tiefengrundwasser dauert ca. 26 Jahre.
- Die Modellierung der Aufsättigungsphase (ca. 26 Jahre) ist für die langzeitige Stoffausbreitung nicht maßgebend und kann in zukünftigen Modellierungen vernachlässigt werden.
- Eine Stofffreisetzung aus den Verbringungsbereichen beginnt im ungünstigsten Fall 65 Jahre nach der Aufsättigung, also ca. in 100 Jahren. Diese erste Zinkfreisetzung ist mit 1,8 mg/l sehr gering. Erste höhere Freisetzungen von Zink mit 37,7 mg/l beginnen nach 250 Jahren nach der Aufsättigung.
- Die erste Bleifreisetzung erfolgt mit einer Konzentration von 1,0 mg/l nach 250 Jahren nach der Aufsättigung. Eine höhere Bleifreisetzung wird erst nach 3.600 Jahren mit 30 mg/l erfolgen.
- Zur Beantwortung der Frage, wann alle Reststoffe gelöst sind und wann diese den Modellraum verlassen, entweder durch das Röhrensystem oder über die Ränder, müsste der Berechnungszeitraum erheblich erhöht werden.

- Das Störungssystem ist von geringem Einfluss auf die Dauer der PWA, damit auch wenig Einfluss auf die Quellterme.

- Ein stark strömungswirksames Störungssystem führt dazu, dass sich die anorganische Schadstoffbelastung langfristig stärker im Gebirge Richtung der Modellränder verteilt und weniger der ZWH zuläuft. Innerhalb der Rechenzeit von 10.000 a hat der Abstrom aus der BHV noch nicht die Modellränder erreicht.

6 Weiteres Vorgehen

Wesentliche Aufgabe im Teil 2 ist die Prüfung der Übertragbarkeit der Ausbreitungsmodellierungen auf die beiden anderen zu betrachtenden BW Walsum und BW Consolidation.

Die vorliegenden Modellierungen gehen von einem Grubenwasserstand von ca. -600 mNHN in den Grubengebäuden aus, der wahrscheinlich in 10.000 Jahren so nicht mehr bestehen dürfte. Weiterhin dürfte sich auch die Durchlässigkeit des Röhrensystems nach einigen Jahrhunderten stark verringert haben. Das wird wahrscheinlich dazu führen, dass die Bedeutung des Röhrensystems als (Teil-) Vorfluter für das Tiefengrundwasser dann ebenfalls abnehmen wird und sich die aus der BHV freigesetzten Schwermetalle noch stärker als bisher modelliert im Tiefengrundwasser ausbreiten werden.

Im Teil 2 sollen mithilfe des Grundwassermodells die Auswirkungen hydraulischer Randbedingungen betrachtet werden, wie sie sich wahrscheinlich in der Zukunft einstellen werden (höhere Grubenwasserstände und geringere Durchlässigkeiten im Röhrensystem).

7 Literatur

[1] GELHAR, L. W.; WELTY, D.; REHFELDT, K. R. (1992): A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. Water Resour. Res., 28(7), pp. 1955-1974)

[2] SCHROEDER, M. & WYRWICH, D. (1990): Eine in Nordrhein-Westfalen angewendete Methode zur flächendifferenzierten Ermittlung der Grundwasserneubildung. - Deutsche Gewässerkundliche Mitteilungen, 34; Koblenz.

[3] GD-NRW (2016): Digitale Daten zu Flözflächen, Störungen und geologischen Standardprofilen der Großschollen 136, 137 und 138 aus dem Projekt Kohlevorratsberechnung (KVB); Stand 3/2016.

[4] RAG (2015): Digitale Daten zum Grubengebäude des BW Ost/Monopol im dxf-Format; RAG Servicebereich Standort-/Geodienste BGS; Stand 10/2015.

[5] SRTM (2011): Digitale Höhendaten der „Shuttle Data Topographic Mission“ mit einer Rasterweite 12,5 m.

[6] RAWLS, W. J. & BRAKENSIEK, D. L. (1988): Estimation of soil water retention and hydraulic properties, Unsaturated Flow in Hydrologic Modeling. Theory and Practice, 275-300, Dordrecht: Kluwer Academic Publishers.

[7] VAN GENUCHTEN, M. TH. (1980): A Closed-form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. Soil Science Society of America Journal 44 (5), 892-898.

[8] WANG, J. S. Y. & NARASIMHAN, T. N. (1985): Hydrologic Mechanisms Governing Fluid Flow in a Partially Saturated, Fractured, Porous Medium, Water Resour. Res., 21(12).

[9] MARTINEZ, M. J., DYKHUIZEN, R. C. & EATON, R. R. (1992): *The Apparent Conductivity for Steady Unsaturated Flow in Periodically Fractured Porous Media,* Water Resour. Res., 28(11), 2879-2887.

[10] DELTA H INGENIEURGESELLSCHAFT MBH: SPRING Benutzerhandbuch; Witten, 2015.

[11] WENDLAND, EDSON C. (1996): Numerische Simulation von Strömung und hochadvektivem Stofftransport in geklüftetem, porösem Medium. Mitteilung Nr. 96-6, Herausgeber: Der Geschäftsführende Direktor Institut für Konstruktiven Ingenieurbau Ruhr-Universität Bochum.

GUTACHTEN ZUR PRÜFUNG MÖGLICHER UMWELTAUSWIRKUNGEN DES EINSATZES VON ABFALL- UND RESTSTOFFEN ZUR BRUCH-HOHLRAUMVERFÜLLUNG IN STEINKOHLENBERGWERKEN IN NORDRHEIN-WESTFALEN, TEIL 1

Detailbericht 6:

Risikoanalyse PCB und weitere organische Stoffe

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle, RWTH Aachen University

Prof. Dr. [redacted]

Abgabe April 2017

Dieser Bericht ist Teil des Gutachtens:

Gutachten zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1

Auftraggeber:

Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen

Ministerium für Wirtschaft, Energie, Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen

Auftragnehmer:

ahu AG Wasser · Boden · Geomatik, Aachen (Dr. [redacted])

in Zusammenarbeit mit:

Prof. Dr. [redacted] (TU Clausthal, Abtlg. Hydrogeologie)

delta h Ingenieurgesellschaft mbH, Witten (Prof. Dr. [redacted])

LEK Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

LFH Lehr- und Forschungsgebiet Hydrogeologie, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted]e)

IFM Lehrstuhl und Institut für Markscheidewesen, Bergschadenkunde und Geophysik im Bergbau, RWTH Aachen University (Prof. Dr. [redacted])

Auftragsdatum: 16.07.2015

INHALTSVERZEICHNIS

0 Vorbemerkung 1
0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte 1
0.2 Untersuchungsraum 2

1 Einleitung 4

Teil A Organische Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung

2 Organische Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung: Datenlage und Vorgehen 6

3 Organische Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung: Gefährdungspotential 7
3.1 Gefährdungspotential PCDD/F 7
3.2 Gefährdungspotential PAK 8

4 Freisetzungspotential PCDD/F 11

5 Ausbreitungspotential PCDD/F 12

Teil B PCB- und TCBT-haltige Betriebsstoffe

6 PCB- und TCBT-haltige Betriebsstoffe: Datenlage und Vorgehen 14
6.1 Aktenführung und Aktenlage bei der Bergverwaltung 14
6.2 Aktenlage PCB 15
6.3 Aktenlage bei der RAG 16

7 Gefährdungspotential Polychlorierte Biphenyle 17
7.1 Allgemein 17
7.2 Einsatz von PCB-haltigen Betriebsmitteln 18
7.3 Historie des PCB-Einsatzes in Bergwerken 18
7.4 PCB-Ersatzstoffe 19
7.5 Abschätzung der im Bundesgebiet im Steinkohlenbergbau eingesetzten Mengen PCB-haltiger Betriebsmittel 20
7.5.1 Datengrundlage zum Einsatz PCB-haltiger Betriebsmittel im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen 20
7.5.2 Abschätzung I: Grundlage - Deutscher Bundestag 22
7.5.3 Abschätzung II: Grundlage - Rauhut 22
7.5.4 Untertägige Verluste von PCB 24

7.6 Potentieller Austrag von PCB aus Steinkohlenbergwerken 26
7.6.1 Austrag über das Fördergut 26
7.6.2 Austrag über die Entsorgung 26

8 Potentielle untertägige Verteilung von PCB in der Wasserprovinz Haus Aden 28
8.1 Dokumentationsquellen 28
8.1.1 Bezirksregierung Arnsberg 28
8.1.2 Betriebspläne 36
8.1.3 Bergmännisches Risswerk 36
8.1.4 § 22 a der Bergverordnung 38
8.1.5 Übertägige Entsorgung von Altöl und PCB 38
8.1.6 Sonstige Datenquellen 40
8.2 Potentielle PCB Verteilung in der Wasserprovinz Haus Aden 41
8.3 Abschätzung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage verbliebenen Mengen PCB 44
8.3.1 Abschätzung des PCB-Eintrags 44
8.3.2 Abschätzung des PCB-Austrags aus der Wasserprovinz Haus Aden 46
8.3.3 Gesamtabschätzung Verbleib unter Berücksichtigung eines Austrags 47
8.4 Flächenmäßige Verteilung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage verbliebenen Mengen PCB 48
8.4.1 Einzugsgebiet Victoriadamm 49
8.4.2 Einzugsgebiet Ost 56
8.4.3 Haus Aden 2 und Schacht Grimberg 2 58

9 Untertägige Beprobung 59
9.1 Vorgehen und Datenlage 59
9.2 Ergebnisse der Probenahme 61
9.2.1 PCB Belastungen des partikulären Materials 61
9.2.2 PCB im Schwebstoff 63
9.2.3 PCB gelöst in der Wasserphase 64
9.2.4 TCBT Belastungen des partikulären Materials 65
9.2.5 TCBT im Schwebstoff 65
9.2.6 Korngrößenanalyse 66

10 Freisetzungspotential PCB 67

11 Ausbreitungspotential PCB 70

11.1 Prozesse der Ausbreitung und des Austrags 70

11.1.1 Partikelgröße 73

11.1.2 Strömungsgeschwindigkeit und Erosion, Transport und Sedimentation von Partikeln 73

11.1.3 Fließgeschwindigkeiten in Röhren 74

11.2 Datengrundlage zur Abschätzung des PCB-Austrags 78

11.2.1 Schwebstoffgehalte 79

11.2.2 PCB Konzentrationen 81

11.2.3 Vorgehen zur Kalkulation des Austrags im IST-Zustand 83

11.3 Qualitative Abschätzung des PCB-Austrags im gehobenen Grubenwasser während und nach der Grubenwasseranhebung 85

11.3.1 IST-Zustand 85

11.3.2 Flutungsphase, ohne Pumpbetrieb in der zentralen Wasserhaltung Haus Aden 85

11.3.3 Inbetriebnahme der Pumpen im gefluteten Bergwerk 86

11.3.4 Dauerhafter Pumpenbetrieb 86

11.4 Abschätzung der quantitativen Entwicklung des PCB-Austrags nach der Grubenwasseranhebung 87

12 Mögliche Maßnahmen zur Verringerung des Austrags von PCB 93

12.1 Verringerung der Höhe des Grubenwasseranfalls und der Schwebmenge durch einen höheren Grubenwasserstand 93

12.1.1 Grubenwasseranstieg bis ca. -600 mNHN 94

12.1.2 Grubenwasseranstieg höher als -600 mNHN 95

12.1.3 Offene Fragen im Zusammenhang mit einem weiteren Grubenwasseranstieg 95

12.1.4 Verringerung der Schwebmenge durch Abdeckung in offenen Strecken mit PCB-Belastung 96

12.2 Verringerung der im Grubenwasser gelösten PCB 96

13 Monitoring 98

14 Offene Fragen und weiteres Vorgehen 99

14.1 Gelöster Anteil an PCB 99

14.2 PCB-Belastung im Sediment/partikulärem Material 99

14.3 Anaerober Abbau von PCB 99

14.3.1 Weitere Recherchen 100

15 Referenzen 101

16 ANHANG: Angewendete Methoden PCB-Analytik 107

ABBILDUNGEN:

Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens 1

Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 3

Abb. 3: Konzentrationen von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen in Kohlen. Die Gesamt-PAK der ersten 15 US-Kohlen umfassen die Summe von 43 PAKs. 9

Abb. 4: Allgemeine chemische Struktur von PCB 17

Abb. 5: Allgemeine chemische Struktur von Tetrachlorbenzyltoluolen und Dichlorbenzyltoluolen 20

Abb. 6: Lineare Extrapolation des PCB-Verbrauchs auf die Jahre vor 1973 23

Abb. 7: Übersicht über die Hauptverlustquellen der PCB unter Tage 24

Abb. 8: Akten zum Vorgang 55.15-15 bei der BR Arnsberg 28

Abb. 9: Gesamtübersicht der Abbaue zwischen 1969 und 1985 in der Wasserprovinz Haus Aden 29

Abb. 10: Abbaue zwischen 200 bis 300 Meter Tiefe 30

Abb. 11: Abbaue zwischen 300 bis 400 Meter Tiefe 30

Abb. 12: Abbaue zwischen 400 bis 500 Meter Tiefe 31

Abb. 13: Abbaue zwischen 500 bis 600 Meter Tiefe 31

Abb. 14: Abbaue zwischen 600 bis 700 Meter Tiefe 32

Abb. 15: Abbaue zwischen 700 bis 800 Meter Tiefe 32

Abb. 16: Abbaue zwischen 800 bis 900 Meter Tiefe 33

Abb. 17: Abbaue zwischen 900 bis 1.000 Meter Tiefe 33

Abb. 18: Abbaue zwischen 1.000 bis 1.100 Meter Tiefe 34

Abb. 19: Abbaue zwischen 1.100 bis 1.200 Meter Tiefe 34

Abb. 20: Abbaue zwischen 1.200 bis 1.300 Meter Tiefe 35

Abb. 21: Abbaue zwischen 1.300 und 1.400 Meter Tiefe 35

Abb. 22: Auszug aus einem Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Werkstatt 37

Abb. 23: Auszug aus einem Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Maschinenkammer und eine Sumpfstrecke 37

Abb. 24: Auszug aus einem älteren Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Maschinenkammer 38

Abb. 25: Auszug aus dem Nachweisbuch für Altölbesitzer (Bergwerk Prosper Haniel) ohne Differenzierung in PCB-haltige Öle und sonstige Öle 41

Abb. 26: Wasserprovinz Haus Aden mit Einzugsgebiet Victoriadamm und Einzugsgebiet Ost, Grubenwasserständen und Überleitungshöhen 49

Abb. 27: Potentialdifferenzen Stand 3/2016 zwischen den Teilprovinzen und überschlägige Darstellung der Abbau zur PCB-Zeit und geplanter Grubenwasseranstieg auf -670 mNHN in der Wasserhaltung und -600 mNHN in den Teilprovinzen 52

Abb. 28: Beispiel für ein offenes Gerinne mit Erosionspotential im Schacht Grimberg 54

Abb. 29: Übersicht über die Orte der Probenahme am Schacht Grimberg/Umtriebe 60

Abb. 30: Ergebnisse der 100 L-Grubenwasserprobe und Szenarios für jährliche Austragsmengen bei sich ändernden Schwebstoffgehalten und PCB-Konzentrationen 72

Abb. 31: Hjulström Diagramm 74

Abb. 32: Verteilung der Fließgeschwindigkeiten in einer Röhre und berechnet für das Fallbeispiel 75

Abb. 33: Fließgeschwindigkeiten für den Beispielfall 77

Abb. 34: Boxplot aller aufgeführten Schwebstoffgehalte im gehobenen Grubenwasser des Bergwerks Haus Aden/Monopol von 2008 – 2016 80

Abb. 35: Varianz des jährlichen Austrags von PCB in [g] aus dem Bergwerk Haus Aden/Monopol auf Grundlage von im Jahr 2015 genommenen Proben. Der Anteil an gelöstem PCB wurde berechnet anhand der Kd-Werte, die aus der Analyse der 100 L-Grubenwasserprobe ermittelt wurden. 84

TABELLEN:

Tab. 1:	Massenbilanz der PCDF/PCDD	8
Tab. 2:	Mengen der im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen und Saarland in den Jahren 1977 bis 1983 genutzten PCB-haltigen Betriebsmittel	21
Tab. 3:	Mengen der im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1973 bis 1980 genutzten PCB-haltigen Betriebsmittel	21
Tab. 4:	Mengen der im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1974 bis 1984 genutzten PCB-haltigen Betriebsmittel	21
Tab. 5:	Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsmittel im Bergwerk der Bundesrepublik Deutschland	23
Tab. 6.	Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsmittel in der Wasserprovinz Haus Aden/Monopol über Anteile an der Kohlenförderung	45
Tab. 7:	Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsmittel in der Wasserprovinz Haus Aden über Jahresverbrauch und Anteile an der Kohlenförderung	45
Tab. 8:	Vergleich der PCB-Belastungen bei verschiedenen Flächenansätzen im Einzugsgebiet Victoriadamm	50
Tab. 9:	Größe der Abbauflächen und PCB-Belastung durch Verluste im Einzugsgebiet Victoriadamm bei einer Belastung von 10 t / km^2	50
Tab. 10:	Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Victoria	52
Tab. 11:	Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Hansa	53
Tab. 12:	Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Gneisenau	55
Tab. 13:	Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Kurl	55
Tab. 14:	Größe der Abbauflächen und PCB-Belastungen im Einzugsgebiet Ost	57
Tab. 15:	Übersicht über die Probenahme auf PCB am 18.02.2016	61
Tab. 16:	Ergebnisse von Bodenuntersuchungen auf PCB	62
Tab. 17:	Ergebnisse der Schwebstoffuntersuchungen auf PCB	63
Tab. 18:	Ergebnisse der 100 L-Grubenwasseruntersuchung auf PCB	64
Tab. 19:	Ergebnisse von Bodenuntersuchungen auf TCBT	65
Tab. 20:	Ergebnisse der Schwebstoffuntersuchungen auf TCBT	65

Tab. 21: Ergebnisse der Korngrößenanalysen von unter Tage genommenen Bodenproben 66

Tab. 22: Physikalisch-chemische Eigenschaften ausgewählter PCB-Kongenere 68

Tab. 23: Adsorptionseigenschaften des partikulären Materials 68

Tab. 24: Volumenströme Strömung und Röhrenquerschnitte 76

Tab. 25: Fließgeschwindigkeiten (v) in Röhren 76

Tab. 26: Untertägige Schwebstoffbestimmungen der RAG Ruhranalytik (1993-1998) im aktiven Bergwerk Haus Aden/Monopol. Die Probenahmetechnik ist nicht bekannt. 79

Tab. 27: Bestimmung von Schwebstofffrachten in gehobenen Grubenwässern des stillgelegten Bergwerks Haus Aden/Monopol 80

Tab. 28: Daten zur untertägigen Grubenwasserbeprobung auf PCB 81

Tab. 29: Beprobungen von am Pumpstandort Haus Aden/Monopol gehobenem Grubenwasserschwebstoffen. Alle hier aufgelisteten Beprobungen ergaben für alle Proben PCB-Konzentrationen unterhalb der jeweiligen Bestimmungsgrenzen. 82

Tab. 30: Schwebstoffuntersuchungen an Grubenwasserproben mit Konzentrationen oberhalb der Nachweisgrenze in µg/kg Trockengewicht 82

Tab. 31: PCB-Konzentrationen in der 100 L-Grubenwasserprobe in ng/L 83

Tab. 32: Zusammenfassende Abschätzung der PCB-Belastung in der ZWH 91

0 VORBEMERKUNG

0.1 Aufbau des Gutachtens und der Detailberichte

Die Bearbeitung des „Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruch-Hohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1“ erfolgt durch sechs Projektpartner, deren fachliche Schwerpunkte in der Abb. 1 dargestellt sind. Die Federführung hat die ahu AG.

Die einzelnen Projektpartner haben inhaltliche Schwerpunkte die in der Abb. 1 im Überblick und in der folgenden Tabelle 1 genauer dargestellt sind, da diese z. T. über die in der Abb. 1 beschriebenen Inhalte hinausgehen.

Die Beschreibung und Erläuterung dieser Arbeitsergebnisse erfolgt in den sechs Detailberichten. Die für die integrierte System- und Risikoanalyse relevanten Grundlagen und Ergebnisse aus den Detailberichten werden – teilweise auch in verkürzter Form – in das Gutachten aufgenommen.

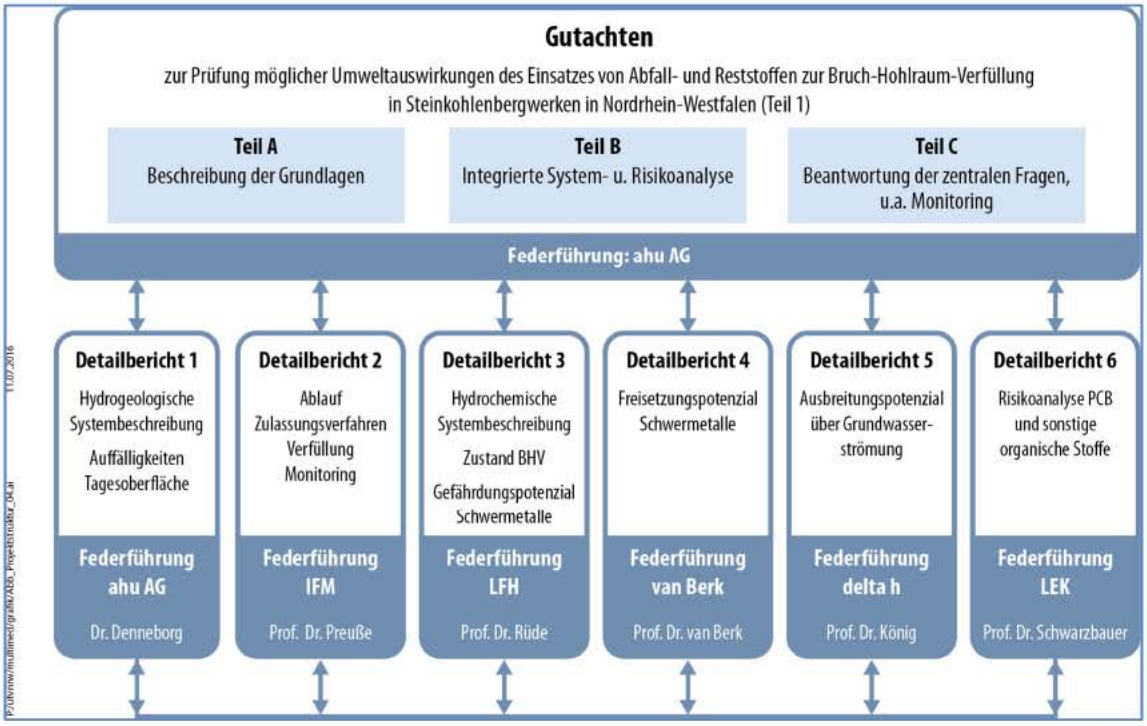


Abb. 1: Aufbau und Inhalt des Gutachtens

Die Detailberichte wurden in enger Abstimmung der Gutachter erstellt, u. a. erfolgten auch Zuarbeiten untereinander.

Inhaltliche Schwerpunkte der Bearbeitung durch das Konsortium in den Detailberichten:

Nr.	Detailbericht	Verantwortlicher Bearbeiter / Projektleiter	Inhalte
1	Hydrogeologische Systembeschreibung und Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche	Dr. [redacted] (ahu AG)	1. Hydrogeologische Systembeschreibung 2. Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche 3. Datenerfassung und Dokumentation
2	Ablauf des Zulassungsverfahrens, der Bruchhohlraumverfüllung und des Monitorings	Prof. [redacted] (IFM)	1. Ablauf des Zulassungsverfahren und des Monitorings 2. Dokumentation der Bruchhohlraumverfüllung 3. Bewertung
3	Hydrogeochemische Systemanalyse	Prof. [redacted] (LFH)	1. Tiefengrundwasser 2. Grubenwasser 3. Inventar des anorganischen Gefährdungspotential 4. Zustand der Bruchhohlraumverfüllung 5. Nebengesteine
4	Freisetzungspotential	Prof. [redacted]	1. Freisetzungspotential 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
5	Ausbreitungspotential	Prof. [redacted] (delta h)	1. Ausbreitungspotential (Fernfeldmodell und Nahfeldmodelle) 2. Bewertung der damaligen Grundannahmen
6	Risikoanalyse organische Stoffe	Prof. [redacted] (LEK)	1. Risikoanalyse PCB und Substituenten 2. Risikoanalyse andere organische Stoffe

Der vorliegende Bericht ist der Detailbericht 6.

0.2 Untersuchungsraum

Für die Bearbeitung des Gutachtens wurden verschiedene Untersuchungsräume betrachtet, die nicht scharf abgegrenzt werden können. Für die Fragestellungen der hydrogeologischen Systembeschreibung, der Bewertung der Auffälligkeiten an der Tagesoberfläche (private landwirtschaftliche Flächen westlich von Bergkamen) und die Bruchhohlraumverfüllung ist dies der in Abb. 2 dargestellte Untersuchungsraum.

In den Baufeldern Monopol E1, E2 und E3 erfolgt in einer Tiefe zwischen -800 mNHN und -920 mNHN die BHV.

Der Schacht Grillo 4, an dem die Mischanlage für die BHV stand und über den die aufbereiteten Versatzstoffe unter Tage gebracht wurden, wurde mittlerweile verfüllt. Die Schächte Grimberg 2 und der Schacht Haus Aden 2, der Standort der Zentralen Wasserhaltung Haus Aden 2 (ZWH), sowie eine untertägige Verbindungstrecke sind noch

zugänglich. Für die Grundwassermodellierungen wurden ein Fernfeldmodell und drei Nahfeldmodelle abgegrenzt (Detailbericht 5).

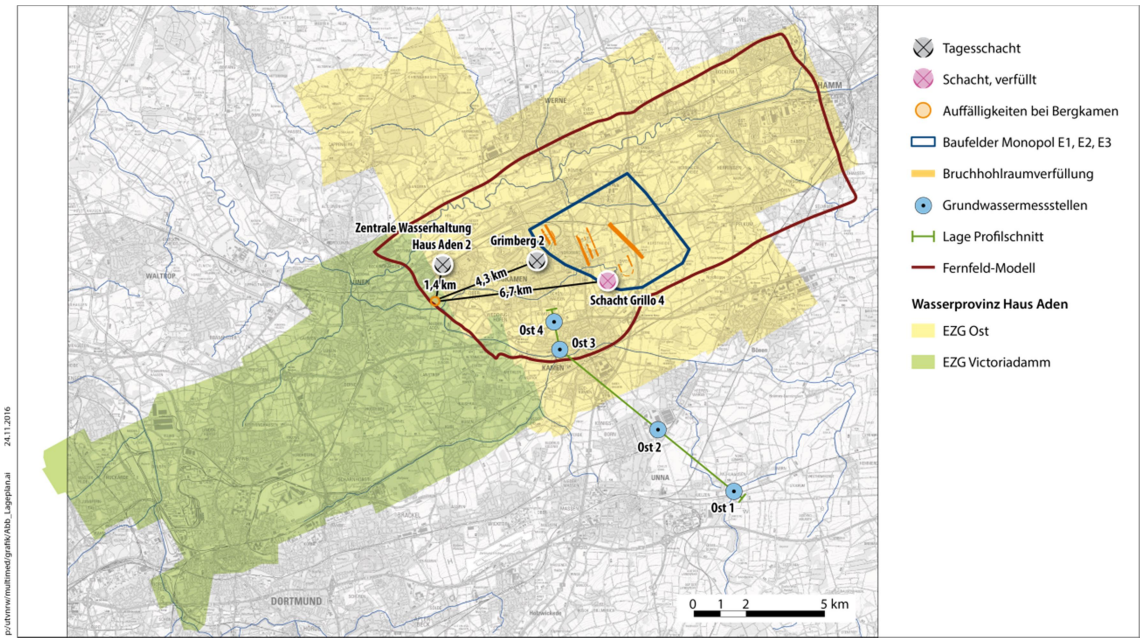


Abb. 2: Überblick über den Untersuchungsraum, die wichtigsten Lokalitäten und Lage des Profils in Detailbericht 1 (ahu AG)

1 EINLEITUNG

Im Rahmen des Gutachtens zur Prüfung möglicher Umweltauswirkungen des Einsatzes von Abfall- und Reststoffen zur Bruchhohlraumverfüllung in Steinkohlenbergwerken in Nordrhein-Westfalen, Teil 1 hat das LEK, Lehrstuhl für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle an der RWTH-Aachen (Prof. Dr. [redacted]) den Auftrag:

- Erfassung und Bewertung des Gefährdungspotentials organischer Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung,
- Bewertung des Freisetzungs- und Ausbreitungspotential organischer Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung,
- Bilanzierung der eingesetzten PCB- und TCBT-haltige Betriebsstoffe in den Bergwerken in NRW und deren Verbleib,
- Bewertung des Freisetzungs- und Ausbreitungspotential der eingesetzten PCB- und TCBT-haltige Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden,
- Abschätzung des Risikos der eingesetzten PCB- und TCBT-haltigen Betriebsstoffe über die Förderung des Grubenwassers,
- Hinweise zum Monitoring.

TEIL A
Organische Schadstoffe in der Bruchhohlraumverfüllung

2 ORGANISCHE SCHADSTOFFE IN DER BRUCHHOHLRAUM-VERFÜLLUNG: DATENLAGE UND VORGEHEN

Zu den organischen Inhaltsstoffen der für die Bruchhohlraumverfüllungen benutzten Materialien liegen nur sehr wenige Informationen vor. In einigen Reststoffanalysen, durchgeführt vor Nutzung und Einbringung der Materialien, wurden vorselektiert polychlorierte Dibenzo-*p*-dioxine (PCDD) und polychlorierte Dibenzofurane (PCDF), kurz „Dioxine“ oder PCDD/F, sowie in deutlich geringerem Maße polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe, kurz PAK oder PAH (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons), quantitativ bestimmt. Diese Stoffauswahl hatte sich am damaligen Kenntnisstand orientiert.

Eine umfangreiche chemische Charakterisierung des gesamten organischen Anteils ist nicht erfolgt. Ebenso sind keine Untersuchungen zu toxikologischen oder ökotoxikologischen Eigenschaften der zur BHV verwendeten Materialien bekannt. Daher kann in diesem Gutachten hinsichtlich organischer Schadstoffe in den Bruchhohlraumverfüllungen nur zu den partiell untersuchten Substanzklassen der Dioxine und PAK Stellung genommen werden. Es muss aber klar formuliert werden, dass damit eine Einschätzung nur eines Anteils der organischen Bestandteile möglich ist, eine umfassende Bewertung kann nicht erfolgen.

Trotz Recherchen seitens der Gutachter in der deutsch- und englischsprachigen Fachliteratur konnten keine weiteren Informationen zu den organischen Inhaltsstoffen von zur Bruchhohlraumverfüllung eingesetzten Materialien (Rauchgasreinigungs-Abwasser-Aufbereitungs (RAA) Schlämme, Filterstäube) erhalten werden. Für die Recherche wurden verschiedene Onlinedatenbanken für wissenschaftliche Fachartikel genutzt (s. Literaturdokumentation).

Analyseergebnisse von RAA-Schlämmen hinsichtlich ihrer organischen Bestandteile liegen weder der Bezirksregierung Arnsberg noch dem LANUV vor. Durchführende Labore waren seinerzeit das Hygiene-Institut des Ruhrgebiets – Institut für Umwelttoxikologie GmbH und die Mineral plus GmbH. Nachfragen seitens der Gutachter ergaben, dass es beiden Unternehmen aus vertragsrechtlichen Gründen nicht gestattet ist, Daten zur Verfügung zu stellen.

3 ORGANISCHE SCHADSTOFFE IN DER BRUCHHOHLRAUMVERFÜLLUNG: GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL

3.1 Gefährdungspotential PCDD/F („Dioxine“)

Die in den Abschlussberichten der RAG (1995, 1996 und 1998) dokumentierten organisch-chemischen Reststoffanalysen wurden von RW TÜV und Ruhr Analytik durchgeführt. Hierbei wurden ausschließlich Proben von Filterstäuben (RSN (Reststoffnummer) 31309, 31312) untersucht, Analysen zur Gruppe der RAA-Schlämme liegen nicht vor.

Für die in den Bauhöhen Gb1, Gb2, Gb16, Gb17 und Gb31 eingebrachten Materialien liegen quantitative Ergebnisse für die Gruppe der PCDD/F (polychlorierte Dibenzo-*p*-dioxine (PCDD)/ polychlorierte Dibenzofurane (PCDF)) vor. Diese Analysen wurden chargenscharf für Filterstäube aus verschiedenen Verbrennungsanlagen durchgeführt. Durch diese detaillierte Beprobung wurden zwischen 86 und 100 % der in Summe eingesetzten Filterstäube hinsichtlich der PCDD/F quantitativ charakterisiert.

Auf Grundlage der von der RAG zur Verfügung gestellten Abschlussberichte lässt sich für das Bergwerk Haus Aden/Monopol eine Massenbilanz für die Stoffgruppe der Dioxine erstellen. Demnach enthalten die Reststoffe eine Gesamtmenge von rund 7,2 kg PCDD/F (Tab. 1). Dies entspricht – unter Berücksichtigung der in den damaligen Abschlussberichten verwendeten kongenerenscharfen Toxizitätsäquivalenzfaktoren (TEF, Bundesgesundheitsamt 1985) – einer toxikologischen Wirkung von ca. 110 g an 2,3,7,8-Tetrachlordibenzodioxin, der toxischsten Einzelverbindung der Gruppe der PCDD/F. Eine Berechnung mit den im Jahr 2005 von der WHO veröffentlichten Toxizitätsäquivalenzfaktoren (Van den Berg et al. 2006) zeigt einen leicht höheren summarischen Toxizitätsäquivalenzwert von 122 g (TEQ).

Die aus den Analysen ableitbaren Kongenerenmuster und Anteile einzelner Chlorierungsgrade variieren für die unterschiedlichen Filterstäube sehr stark. Durch Vermengung der einzelnen Filterstaub-Chargen vor ihrem Einsatz als Bruchhohlraumverfüllung ist kein quellenspezifisches Kongenerenmuster mehr ableitbar. Eine Zuordnung möglicher PCDD/F-Emissionen zu den Emissionsquellen bzw. individuellen Filterstäuben oder auch zu zugehörigen verfüllten Strecken durch Kongenerenmuster-Erkennung wird nicht möglich sein.

Tab. 1: Massenbilanz der PCDF/PCDD

Strecke	Abfall	analysierter Reststoffversatz		Reststoffversatz gesamt	PCDF	PCDD	PCDF/D	TEQ[a] (nach: WHO, 2005)
		%	[t]	[t]	[g]	[g]	[g]	[g]
GB1	Filterstaub	99,89	17.616,24	17.636,01	960,67	1.123,15	2.083,83	33,03
	RAA-Schlamm	-	-	23.437,91	-	-	-	-
GB2	Filterstaub	100,00	5.227,49	5.184,10[b]	414,63	870,00	1.284,63	12,14
	RAA-Schlamm	-	-	23.933,46	-	-	-	-
GB16	Filterstaub	97,54	12.684,32	13.003,70	652,88	560,15	1.213,03	27,73
	RAA-Schlamm	-	-	16.974,42	-	-	-	-
GB17	Filterstaub	97,49	10.827,19	11.105,45	744,71	1.002,32	1.747,03	36,04
	RAA-Schlamm	-	-	13.623,04	-	-	-	-
GB31	Filterstaub	85,67	13.159,17	15.359,87	523,56	368,49	892,05	13,55
	RAA-Schlamm	-	-	27.509,31	-	-	-	-
						Summe	**7.220,57**	**122,49**

[a] Toxizitätsäquivalent (TEQ): Summenwert der Produkte aus kongenerspezifischen Toxizitätsäquivalenzfaktoren und kongenerspezifischen Konzentration zur Darstellung einer der 2,3,7,8-TCDD äquivalenten Belastungen

[b] Die Differenz zwischen gesamtem und analysiertem Reststoffversatz ist in dem Abschlussbaubetrieb GB16 mitverwertet worden.

3.2 Gefährdungspotential PAK (Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe)

In der Bauhöhe GB2 wurde 1992 mit dem Versatz auf dem Bergwerk Haus Aden/ Monopol begonnen. Die auf der Bauhöhe GB2 versetzten Materialien wurden neben PCDD und PCDF singulär auch auf die polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe Fluoranthen, Benz(b)fluoranthen, Benz(k)fluoranthen, Benz(a)pyren, Indeno(1,2,3-cd)pyren und Benz(g,h,i)perylen hin untersucht. Die Ergebnisse für alle Einzelstoffe lagen unterhalb der damaligen Bestimmungsgrenze von < 100 µg/kg TS. Bei dem Versatz auf den nachfolgenden Bauhöhen wurden die PAK nicht mehr untersucht.

In Abb. 3 sind Konzentrationen von PAK in verschiedenen Kohlen dargestellt. Hierbei weisen Steinkohlen aus dem Ruhrgebiet einen sehr hohen geogenen Gehalt an PAK auf. 1 kg Steinkohle enthält ca. 100 mg PAK (16 prioritäre PAK, definiert durch die US EPA). Bei Betrachtung der gesamten analysierten PAK (131 PAK und alkylierte PAK) sind dies sogar ca. 1.000 mg/kg (Wilsch und Radke 1995, Achten und Hoffmann 2010).

Wenn man von einem solchen PAK-Gehalt der Kohlen ausgeht, dann wären die PAK-Gehalte (EPA) der Reststoffe mindestens um den Faktor 1.000 niedriger als der natürliche geogene Gehalt der Kohlen an PAK (EPA).

Im Nebengestein der Kohle sind größere Mengen an feinverteiltem Kohlenstoff vorhanden. Es gibt Schätzungen (GD NRW 2011), dass im Nebengestein noch einmal dieselbe Menge Kohle vorhanden ist wie in den abbauwürdigen Flözen.

Analysen des Glührückstandes (bei 815 °C) der Feinfraktion aus der Kohlewäsche (Partikel < 0,5 mm) zeigen, dass das schluffige Material selbst nach der Kohlewäsche immer noch ca. 10 % organischen Kohlenstoff enthält (Achten und Hoffmann 2010).

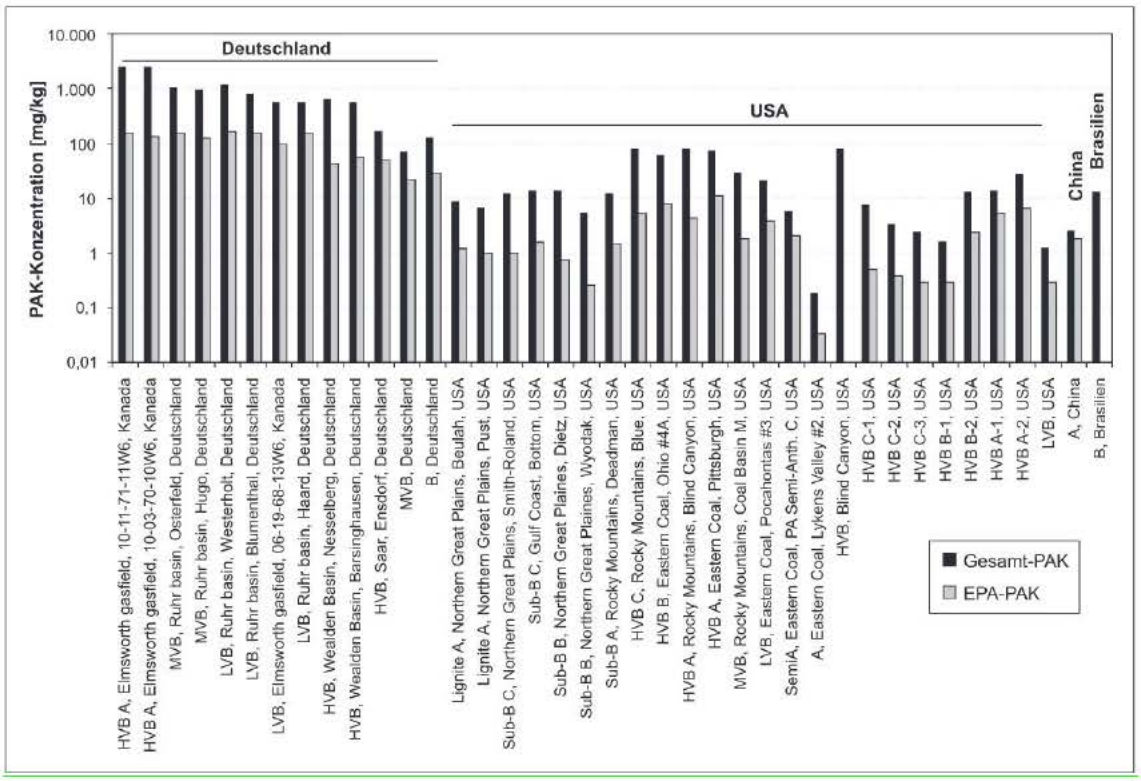


Abb. 3: Konzentrationen von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK, mg/kg) in Kohlen (Daten in dargestellter Reihenfolge aus Willsch und Radke 1995, Radke et al. 1990, Pies et al. 2007, Stout und Emsbo-Mattingly 2008, Stout et al. 2002, Zhao et al. 2000, Chen et al. 2004, Püttmann 1988). Die Gesamt-PAK der ersten 15 US-Kohlen umfassen die Summe von 43 PAKs (Achten und Hoffmann 2010).

„Kohle ist ein ähnlich starker Sorbent wie Black Carbon und aus den bisherigen Kenntnissen über die Sorption von z. B. PAK und PCB ist eine äußerst langsame Desorption und damit verbunden eine sehr schlechte Bioverfügbarkeit zu erwarten“ (Achten und Hoffmann 2010). Dies bedeutet, dass die Kohlen zwar hohe PAK-Gehalte aufweisen, diese aber gleichzeitig stark sorbieren und eine Freisetzung und biologische Verfügbarkeit verhindern.

Aus diesen Gründen schätzen die Gutachter das Gefährdungspotential der PAK als sehr gering ein. Selbst wenn in den Reststoffen der anderen Bauhöhen PAK enthalten sein sollten, dürften auch diese Gehalte deutlich unter den geogenen Gehalten der Kohle liegen. Da im Karbon auch außerhalb der Kohleflöze große Mengen an feinverteilter Kohle vorhanden sind, besteht auch dort ein sehr großes Sorptionspotential.

Das Freisetzungs- und Ausbreitungspotential der PAK wird im Folgenden nicht betrachtet, da das Gefährdungspotential der PAK als sehr gering erachtet wird. Somit besteht auch kein Risiko durch die ggf. zusätzlich mit den Reststoffen eingebrachten PAK.

4 FREISETZUNGSPOTENTIAL PCDD/F („DIOXINE“)

Zu den polaren Schadstoffen, die möglicherweise aus der BHV in die wässrige Phase freigesetzt werden können, können keine Aussagen getroffen werden, da eine entsprechende chemische Charakterisierung der verbrachten Materialien, die auch polare Schadstoffe berücksichtigt, nicht erfolgt ist (s. Kap. 1).

Um die Freisetzung von PCDD/PCDF über die partikuläre und die wässrige Phase abschätzen zu können, müssen zunächst Daten zu deren Adsorptionsaffinität vorliegen (= Neigung an partikuläres Material zu adsorbieren). Bei gleichbleibenden Temperatur- und Druckbedingungen stellt sich zwischen Adsorption und Desorption ein Gleichgewichtszustand ein. Die Adsorptionsaffinität kann vereinfacht mit Verteilungskoeffizienten zwischen organischem Material und wässriger Phase (K_{OC}-Wert) oder zwischen dem gesamten partikulären Material und der wässrigen Phase (K_D-Wert) beschrieben werden.

Für PCDD und PCDF liegen K_{OC}-Werte aus der wissenschaftlichen Fachliteratur vor. Für Schwebstoffe aus der Elbe wurden für PCDD/PCDF mit vier bis acht Chloratomen log K_{OC}-Werte zwischen 7,2 und 8,4 bestimmt (Götz et al. 1994). Aus diesen sehr hohen log K_{OC}-Werten und der somit sehr hohen Adsorptionsaffinität der PCDD/PCDF an organisches Material lässt sich ableiten, dass eine Freisetzung über die wässrige Phase aufgrund der geringen Wasserlöslichkeit (TCDD-OCDD ≤ 0,63 µg L^{-1}, Shiu et al. 1998) und hohen Adsorptionsaffinität der PCDD/PCDF eine untergeordnete Rolle spielt. Eine Freisetzung von PCDD/PCDF aus den kontaminierten Bereichen kann im Wesentlichen nur über die partikuläre Phase durch eine Grundwasserströmung erfolgen.

5 AUSBREITUNGSPOTENTIAL PCDD/F („DIOXINE“)

Wie oben dargestellt, könnte eine Freisetzung von PCDD/PCDF nur in die partikuläre Phase des Grubenwassers erfolgen.

Eine weitere Ausbreitung der Kontamination findet dann statt, wenn ein Transport kontaminierten partikulären Materials mit dem Grubenwasser aus der Bruchholraumverfüllung in das Nahfeld/Fernfeld erfolgt. Eine Ausbreitung würde demnach durch den Prozess des advektiven Transports am Schwebstoff stattfinden. Eine Verbreitung über die partikuläre Phase kann fast vollständig ausgeschlossen werden, solange die Fließgeschwindigkeiten und Wasserwegsamkeiten in dem versetzten Alten Mann kaum vorhanden sind.

Die Ausbreitung aus der Bruchhohlraumverfüllung wird im Detailbericht 5 (Grundwasserströmungsmodellierung) beschrieben. Die Ausbreitung über einen advektiven Transport am Schwebstoff wird hier als nicht relevant erachtet.

TEIL B
PCB- und TCBT-haltige Betriebsstoffe

6 PCB- UND TCBT-HALTIGE BETRIEBSSTOFFE: DATENLAGE UND VORGEHEN

Die Datenlage über den Einsatz, Austrag und vor allem den Verbleib der PCB unter Tage ist sehr begrenzt. Trotz einer sehr umfänglichen Datenrecherche seitens der Gutachter kann heute nicht mehr aufgeklärt werden, wo unter Tage in welcher Höhe PCB-Belastungen vorliegen. Zugänglich sind in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage nur noch vergleichsweise kurze Strecken (9,2 km).

6.1 Aktenführung und Aktenlage bei der Bergverwaltung (Angaben der BR Arnsberg)

Grundlage für das Anlegen und Führen von Akten bei der BR Arnsberg bildet der „Aktenplan des Landesoberbergamtes und der Bergämter des Landes Nordrhein-Westfalen“. Dieser wurde im Jahre 1967 durch das damalige Oberbergamt Dortmund eingeführt und ist – ständig fortgeschrieben – bis heute gültig. Er galt sowohl für die Bergämter als auch für das Landesoberbergamt NRW. Der Aktenplan umfasst einen Teil

- Allgemeine Akten
- Betriebsakten
- Alphabetisches Verzeichnis der Schachtanlagen und Betriebe

Eine digitale Erfassung und Verschlagwortung besteht nicht. Bei einer Recherche müssen die Akten immer händisch durchgesehen werden.

Während „Allgemeine Akten“ übergeordnete Regelungen, die nicht in unmittelbar betrieblichem Zusammenhang stehen, beinhalten (z. B. Zulassungen für den untertägigen Einsatz eines bestimmten Stoffes bzw. Maschinen etc.) spiegeln „Betriebsakten“ betriebsbezogene Belange wider, für die Betriebspläne einzureichen sind.

Bis zur Auflösung der Bergämter mit Ablauf des 31.12.2006 waren – bis auf wenige Ausnahmen – für das Betriebsplanverfahren die Bergämter zuständig, während für übergeordnete Belange das Landesoberbergamt NRW bzw. die Abteilung Bergbau u. Energie der BR Arnsberg Adressat war. Daraus resultiert, dass bis zum v. g. Zeitpunkt die „Betriebsakten“ i. d. R. bei den Bergämtern vorgehalten wurden, während sich die „Allgemeine Akten“ schwerpunktmäßig beim LOBA/Abteilung Bergbau und Energie der Bezirksregierung Arnsberg befanden.

So wurde die Bruchhohlraumverfüllung als ein übergeordneter Vorgang beim LOBA unter den Aktengruppen „2.17; Reststoffverwertung unter Tage“ bzw. „2.16; Abfallbeseitigung unter Tage“ begleitet. Im Zuge der Recherche wurden die entsprechenden Akten aus dem Staatsarchiv zurückgeholt.

Trotz der einheitlichen Struktur des Aktenplans wurden - je nach Aufgabenschwerpunkten – beim LOBA und den Bergämtern gerade bei den „Allgemeinen Akten“ oft nur die Obergruppe von Akten genutzt. Deshalb können Akten, die den gleichen Sachverhalt betreffen, beim LOBA und den Bergämtern unter unterschiedlichen Aktenzeichen geführt werden.

Seit 1988 wurde die Zahl der Bergämter in NRW von 12 auf 5 zum Zeitpunkt der Integration der Bergämter in die Bezirksregierung Arnsberg zum 01.01.2007 reduziert. In diesem Zusammenhang wurden in Anbetracht der begrenzten Kapazitäten Akten vernichtet (Schriftgutaussonderung, s. Dokumentation im Gesamtgutachten). Nach den damals geltenden Registratur- und Geschäftsordnungen wurden im Regelfall nicht dauerhaft aufzubewahrende Akten nach 10 Jahren ausgesondert und in Absprache mit dem Staatsarchiv vernichtet. Dies betraf als unkritisch angesehene Sachgebiete, insbesondere für Akten stillgelegter Schachtanlagen. Hierunter fielen die meisten Vorgänge über technische Betriebsabläufe unter Tage wie z. B. auch die Akten über die immissionsneutrale Verbringung von Abfällen.

6.2 Aktenlage PCB

In dem Aktenplan von 1967 gibt es keine eigenständige Aktengruppe PCB. Die entsprechenden Vorgänge wurden anderen Vorgängen chronologisch nach Eingang zugeordnet. Dadurch können Informationen zum Thema PCB sowohl beim LOBA als auch bei den Bergämtern unter verschiedenen Obergruppen abgelegt sein, wie zum Beispiel:

Obergruppe 01 Rechtsangelegenheiten (Dezernat 65)
Obergruppe 12 Arbeits- und Gesundheitsschutz (Dezernat 62)
Obergruppe 13 Maschinen und maschinelle Anlagen (Dezernat 62)
Obergruppe 42 Wasserwirtschaft (Dezernat 61)
Obergruppe 55 Ordnung der Oberflächennutzung (Dezernat 61)
Obergruppe 91 …..Sitzungen….. (übergreifend)

Unter diesen Obergruppen wurden vor allem zwei Aktengruppen als wesentliche Informationsquelle für die Gutachten für den Einsatz und Verbleib von PCB unter Tage identifiziert:

- **Vorgang 55.15-15-7** „Entsorgung von Altöl und Hydraulikflüssigkeiten“. Hier wurden v. a. zusammenfassende Auswertungen der Bergämter und des LOBA zum Austausch von PCB ab 1984 bis 1986 archiviert. Sog. Primärdaten, also Aufzeichnungen aus den Bergwerken selbst, sind hier so gut wie nicht vorhanden. Diese wurden mit den Betriebsakten vernichtet. Ebenso fehlen Unterlagen aus den Jahren vor 1984. Der Aktenbestand wurde von der ahu AG digitalisiert (s. Dokumentation im Gesamtgutachten).

- **Vorgang 13.31** „Prüfung von Hydraulikflüssigkeiten“ umfasst die Jahre 1968 – 1994. Der Schwerpunkt liegt auf der Prüfung und Zulassung von Hydraulikflüssigkeiten. Es finden sich auch viele doppelt abgelegte Vorgänge aus 55.15-15-7 (s. Dokumentation im Gesamtgutachten).

In den übrigen Obergruppen der Allgemeinen Akten und in den Betriebsakten, die mehrere hundert Akten umfassen verteilt auf die Standorte Staatsarchiv in Münster und Archiv der BR Arnsberg in Dortmund, ist die Recherche nach Hinweisen auf den Einsatz und Verbleib von PCB insoweit abgeschlossen, wie darin entsprechende Hinweise vermutet wurden.

6.3 Aktenlage bei der RAG

Die RAG wurde 1969 gegründet. Von den damals 52 BW im Ruhrgebiet wurden bis auf Prosper Haniel alle BW bis Anfang 2016 stillgelegt. Die übertägigen Gebäude wurden alle geräumt/abgerissen.

Verfahrensvorgaben, wie bei derartigen Stilllegungen und vor allem wie mit dem das Bergwerk betreffenden Aktenwerk umzugehen ist, bestehen in Form einer Unternehmensrichtlinie erst seit April 2000. Zuvor lag die Aktenarchivierung im Entscheidungsbereich der jeweiligen Werksleitung. Die Aufbewahrungsfristen für einzelne Unterlagen seitens des Unternehmens beträgt maximal 10 Jahre (außer Grubenrisse). Üblicher Weise wurden Dokumente, bei denen die in aller Regel 10-jährige Aufbewahrungspflicht abgelaufen war, vernichtet. Eine Einbringung kompletter Bergwerksarchive in das Zentralarchiv hat es nicht gegeben. Die heute noch bestehenden Akten wurden alle verschlagwortet und sind digital erfasst und können so aus dem Zentralarchiv auf dem BW Pluto herausgesucht werden (ca. 80.000 Akten).

Unterlagen aus den 70er und 80er Jahren werden daher allenfalls noch dann vorhanden sein, wenn sie als „*betriebswesentlich*“ eingeschätzt wurden. Listen mit Aufzeichnungen über bergwerks- oder unternehmensbezogenen Verbrauch von PCB existieren nicht, weil PCB erst im Lauf der Zeit in den Fokus der Betrachtung rückte und da in aller Regel die Aufbewahrungsfristen für diesbezügliche Unterlagen bereits seit Jahrzehnten abgelaufen sind. Ähnliches gilt für die Reparaturtagebücher von Walzenschrämladern, die in der Regel mit der Verschrottung der Maschinen mit vernichtet wurden.

Eine Suche nach den Schlagworten PCB, HFD, Hydraulik, Nachweisbuch Altölbesitzer, Altöl, Entsorgung, Transformatoren, Kondensatoren, Betriebstagebücher, Werkstatttagebücher, zentrale Aufbereitung Fürst Hardenberg, Abfallbegleitscheine, § 3 Abs. 1, PCB-Verluste ergibt ca. 400 Akten. Diese Akten wurden bislang noch nicht ausgewertet.

Die Beschreibung des Gefährdungspotential PCB beruht deshalb vielfach auf Annahmen und Abschätzungen unter Worst-Case-Ansätzen und aus Rückschlüssen aus 5 untertägigen Sedimentproben und 5 Wasserproben, die am 18.02.2016 in der ZWH Umtriebe am Schacht Grimberg 2 gewonnen wurden. Die Datenlage hinsichtlich der PCB-Gehalte untertägiger Sedimente (partikuläres Material) soll weiter verbessert werden. Hierzu sind in Teil 2 des Gutachtens weitere Sedimentproben geplant (Kriterien für die Auswahl der Probenahmepunkte s. Abschn. 14.2). Weiterhin werden noch die Anzahl und die Lage große Infrastruktureinrichtungen (Lokschuppen, Werkstätten), bei denen von einem hohen PCB-Einsatz ausgegangen werden kann, in Grubenrissen recherchiert.

Die im Gutachten entwickelten Freisetzung- und Ausbreitungskonzepte der PCB stützen sich vor allem auf die im Einzugsgebiet Victoriadamm vorherrschenden Verhältnisse und auf die daraus gewonnenen Erkenntnisse. Hier wurden bereits seit Anfang der 1990er Jahre mehrere Millionen m^3 Grubengebäude auf ca. 36 km^2 aus der PCB-Einsatzzeit geflutet.

7 GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL POLYCHLORIERTE BIPHENYLE (PCB)

7.1 Allgemein

Der Begriff polychlorierte Biphenyle (PCB) umfasst eine Gruppe von theoretisch 209 chemischen Verbindungen, sogenannten Kongeneren, die sich durch Anzahl und Stellung der Chloratome am Biphenyl unterscheiden. Die allgemeine chemische Formel für PCB lautete $C_{12}H_{10-n}Cl_n$, wobei n die Anzahl der Chloratome (1-10) angibt (Erickson 1997).

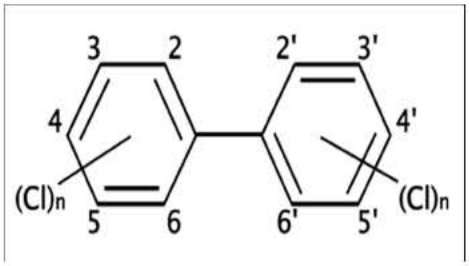


Abb. 4: Allgemeine chemische Struktur von PCB

International durchgesetzt hat sich die Nomenklatur der PCB nach Ballschmitter (Ballschmitter und Zell 1980), nach der alle 209 Kongenere durchnummeriert werden (Lehnik-Habrink et al. 2005).

Von den 209 möglichen PCB-Kongeneren werden diejenigen 12 Kongenere als dioxinähnliche PCB (dl-PCB) bezeichnet, die eine den Dioxinen ähnliche räumliche und elektronische Struktur haben (non-ortho PCB Kongenere 77, 81, 126, 169 und mono-ortho PCB Kongenere 105, 114, 118, 123, 156, 157, 167, 189) (Becker et al. 2010).

Die Bestimmung und Quantifizierung aller 209 Kongenere stellt einen hohen analytischen Aufwand dar. Daher werden bei Untersuchungen häufig sogenannte Indikator PCB (Leitkongenere nach Ballschmitter) bestimmt und quantifiziert (Vergleiche DIN 38 414-S20, DIN 38 407-F2 und DIN 51 527-T1). Hierbei handelt es sich um die PCB Kongenere 28, 52, 101, 138, 153 und 180, die quantitativ die bedeutendsten Bestandteile industrieller PCB-Gemische darstellen und zugleich stellvertretend für unterschiedliche Chlorierungsgrade stehen (LAGA 2012).

Aufgrund der thermodynamisch gesteuerten Synthese der PCB sowie der hohen Persistenz ändert sich die Zusammensetzung der Kongenere in PCB Mischungen auch nach Emission in die Umwelt nicht signifikant. Bei bekannter Zusammensetzung (d.h. bei bekannten Anteilen der Kongenere) der kommerziellen Mischung lassen sich über den Anteil der Leitkongenere und deren Konzentration die Konzentrationen aller Einzelkomponenten und durch Addition die Gesamtkonzentration bestimmen (Schulte und Malisch 1983).

Um näherungsweise die Gesamtkonzentration einer Feststoffprobe zu bestimmen, wird die Summe der sechs Leitkongenere mit 5 multipliziert (häufig als „PCB-Gesamtgehalt nach LAGA“ bekannt). Dieser Faktor wurde empirisch bestimmt und beruht auf einem

Mischungsverhältnis von Clophen A30:A50:A60 von 2:1:1 (Brank und Wentrup 1985). Der Faktor 5 stellt eine hinreichend genaue Näherung dar und wurde 1989 in nationales Recht übernommen (BMU 1989). Bei anderen Mischungsverhältnissen kann es jedoch zu Abweichungen des Faktors kommen (4,9 – 5,9; Lehnik-Habrink et al. 2005). Nach Schulz et al. 1989 ergeben sich für Clophen A30 und Clophen A40 Faktoren von 7,6 bzw. 6,3.

7.2 Einsatz von PCB-haltigen Betriebsstoffen

Die kommerzielle Nutzung von PCBs begann im Jahr 1929 (Detzel et. al 1998). PCBs wurden als komplexe Mischungen für eine Vielzahl von Anwendungen hergestellt und in geschlossenen und offenen Systemen und in technischen Formulierungen mit unterschiedlichen Chloranteilen verwendet (Erickson 1997). Die Hauptanwendungen der geschlossenen Systeme lagen im Bereich der Elektroindustrie und im Bergbau zur Ausrüstung von Transformatoren (Isolier- und Kühlflüssigkeiten), Kondensatoren (Dielektrika) und Hydraulikflüssigkeiten (Flammschutz). In offenen Systemen gingen PCBs unter anderem als Flammschutzmittel und Weichmacher in Anwendungen (Detzel et al. 1998).

Die Chlorgehalte der kommerziellen Gemische liegen zwischen 21 und 68 % (Lorenz und Neumeier 1983). Innerhalb der einzelnen Handelstypen (z. B. mit je 30, 40, 50 und 60 % Chloranteil) sind die Zusammensetzungen in den technischen Produkten unterschiedlicher Hersteller nur sehr gering voneinander abweichend (Erickson 1997, Schulte und Malisch 1983). Daher sind in Umweltproben gefundene PCB häufig nur schwer einer bestimmten Mischung bzw. einem bestimmten Markenprodukt zuzuordnen (Schulte und Malisch 1983). Verunreinigungen von kommerziellen PCB-Mischungen liegen in der Regel unter 0,01 % (NRC 1979), in einigen wenigen Fällen kann der Anteil von Biphenyl bis zu 1 % betragen. Polychlorierte Dibenzofurane (PCDF) wurden als Verunreinigungen vereinzelt im µg/g Bereich dokumentiert. Polychlorierte Dibenzo-*p*-dioxine (PCDD) wurden in kommerziellen PCB Mischungen nicht detektiert (Erickson 1997, Lorenz und Neumeier 1983).

7.3 Historie des PCB-Einsatzes in Bergwerken

Im Jahr 1956 ereignete sich in Marcinelle (Belgien) ein folgenschweres Bergwerksunglück, bei dem 262 Personen zu Tode kamen. Aus einer beschädigten Schachtleitung wurde unter Druck Mineralöl versprüht und von einem elektrischen Funken gezündet. Das Unglück führte innerhalb der europäischen Gemeinschaft (EGKS) zu der Forderung, in allen hydraulischen Anlagen der Steinkohlebergwerke unter Tage nur noch schwerentflammbare Hydraulikflüssigkeiten einzusetzen (Engel und Kihl 1987).

Am 18. Dezember 1964 wurde von den damaligen Oberbergämtern Bonn und Dortmund eine neue Bergverordnung herausgegeben, nach der für die Steinkohlebergwerke in hydraulischen Anlagen, Einrichtungen und Geräten unter Tage sowie in feuer- oder explosionsgefährdeten Räumen und Bereichen über Tage nur zugelassene – in der Regel schwerentflammbare – Flüssigkeiten verwendet werden dürfen. Die Oberbergämter folgten damit einer Empfehlung des „Ständigen Ausschusses für die Betriebssicherheit und den Gesundheitsschutz im Steinkohlenbergbau" in Luxemburg, der am 16. Oktober 1964 den sogenannten "Zweiten Luxemburger Bericht" über die "Anforderungen und Prüfungen schwer entflammbarer Flüssigkeiten zur hydraulischen

Kraftübertragung und Steuerung" herausgebracht hatte. Später geprüfte und eingeführte Flüssigkeiten hatten dem jeweils neu gültigen "dritten" bzw. "vierten" Luxemburger Bericht zu genügen (Engel und Kihl 1987, Gebhardt et al. 1974).

Ab Mitte der sechziger Jahre wurden im deutschen Steinkohlebergbau PCB unter Tage vor allem in Walzenschrämladern, Strömungskupplungen und in Antriebsmaschinen für seilgetriebene Transportbahnen als schwerentflammbare Hydraulikflüssigkeiten des Typs HFD eingesetzt. Nach der Umstellung konnte in Proben aus überwachten Betriebseinsätzen kein Mineralöl in HFD-Flüssigkeiten nachgewiesen werden (Reichel 1973). Ein Mineralölanteil > 4 % hätte die Schwerentflammbarkeit der HFD Flüssigkeiten unzulässig beeinflusst (Gebhardt et al. 1974).

Über den Chlorierungsgrad der nach der Einführung eingesetzten PCB haltigen Hydraulikflüssigkeiten gibt es widersprüchliche Angaben. Laut Engel und Kihl (1987) bestand die erste Generation dieser Flüssigkeiten hauptsächlich aus höherchlorierten Biphenylen, teilweise im Gemisch mit Phosphorsäureestern (Bartz und Möller 2000, BAYER 1971, Reichel 1973). Erst Anfang der siebziger Jahre – nachdem die Persistenz hochchlorierter Biphenyle erkannt wurde – kamen mit der zweiten Generation ausschließlich niedrigchlorierte Biphenyle zum Einsatz. Laut einer Mitteilung des Gesamtverbandes des Deutschen Steinkohlenbergbaues an das Institut für Wasser-, Boden-, und Lufthygiene aus dem Jahr 1982 wurden höherchlorierte Biphenyle bis ca. 1977 im Bergbau unter Tage eingesetzt, ehe sie anschließend durch Produkte auf Basis niedrig chlorierter Biphenyle (95 % tri- und tetrachlorierte Verbindungen) ersetzt wurden. Lorenz und Neumeier (1983) geben an, dass unter Tage meist hochchlorierte PCB eingesetzt wurden. Laut Informationen der Bayer AG (Lorenz und Neumeier 1983) wurden für den Bergbaubereich noch 1981 1000 t hochchlorierte Biphenyle, vorwiegend aus Frankreich, importiert. Bartz und Möller (2000) sowie Reichel (1973) geben dagegen an, dass nur HFD-Flüssigkeiten bestehend aus weniger als vierfach (Bartz und Möller 2000) bzw. sechsfach chlorierten Biphenylen (Reichel 1973) verwendet wurden.

In Deutschland wurde die Anwendung von PCB 1978 in offenen Systemen verboten und auf geschlossene Systeme beschränkt (Transformatoren, Widerstände, Drosselspulen, Kondensatoren und Hydraulikanlagen für untertägige Bergwerksanlagen). Auslöser hierfür war das zunehmende Bekanntwerden der schädlichen Umweltauswirkungen von PCB (vgl. z. B. Jensen et al. 1969, Hutzinger et al. 1974, NRC 1979). In Folge kam es zur Entwicklung PCB-freier Hydraulikflüssigkeiten. In den Jahren 1983 und 1984 kam es zur Zulassung von zwei schwerentflammbaren Hydraulikflüssigkeiten des Typs HFD auf Basis chlorierter Diphenylmethanderivate (Handelsname Ugilec 121 und 141). Im Zeitraum von 1984 bis 1986 wurden die PCB-haltigen Hydraulikflüssigkeiten durch PCB-freie Betriebsstoffe ersetzt (RAG 2015). 1989 trat schließlich die PCB-Verbotsverordnung in Kraft (Verordnung zum Verbot von polychlorierten Biphenylen, polychlorierten Terphenylen und zur Beschränkung von Vinylchlorid (PCB-, PCT-, VC- Verbotsverordnung) vom 18.Juli 1989). Seither ist es in Deutschland verboten, PCB-haltige Stoffe herzustellen, in Verkehr zu bringen oder zu verwenden.

7.4 PCB-Ersatzstoffe

Die Kenntnis des Gefährdungspotentials von PCB führte zur Entwicklung PCB freier Hydraulikflüssigkeiten auf Basis polychlorierter Diphenylmethanderivate (PCDM) und Dibrombenzyltoluole (DBBT). Letztere wurden ab Mitte 1984 in mindestens drei Berg-

werken im Steinkohlenbergbau eingesetzt (Engel und Kihl 1987). Hydraulikflüssigkeiten auf Basis polychlorierter Diphenylmethanderivate beinhalten die Gruppe der Hydraulikflüssigkeiten auf Basis von Tetrachlorbenzyltoluolen (TCBT) - Handelsname Ugilec 141 - und Dichlorbenzyltoluolen (DCBT) – Handelsname Ugilec 121. Letztgenannte wurden seit 1981 bzw. 1984 als PCB-Ersatzstoffe vermarktet (Lehnik-Habrink et al. 2005). Bei Ugilec 141 und 121 handelt es sich um Mischungen aus (theoretisch 69) Tetrachlorbenzyltoluolisomeren bzw. Dichlorbenzyltoluolisomeren (Abb. 5). Daneben existierte die kommerzielle Mischung Ugilec T, die zu 60 % aus Ugilec 141 und zu 40 % aus Trichlorbenzenen besteht (Produzent: Prodelec, Frankreich) (Ehmann und Ballschmiter 1989). TCBT wurde überwiegend als Hydraulikflüssigkeit im untertägigen Bergbau eingesetzt. Laut Poppe et al. (1988) wurden seit Anfang der 1980er jährlich rund 1.500 Tonnen Ugilec 141 zu diesem Zweck in die Bundesrepublik Deutschland importiert. 1993 erfolgte das Verbot für Ugilec mit Inkrafttreten der Chemikalienverbots-Verordnung (Lehnik-Habrink et al. 2005).

Von der RAG wurden zwischen 1984 und 1991 insgesamt 3.173 t TCBT-haltige Betriebsstoffe eingesetzt (Angabe RAG). In Folge der Diskussion um PCB wurden 1985 alleine 1.014 t eingesetzt. In den Jahren danach nahm die Einsatzmenge kontinuierlich ab. Zur Nutzung und Entsorgung TCBT-haltiger Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden liegen den Gutachtern keine Angaben zu Mengen oder betroffene Abbaue vor.

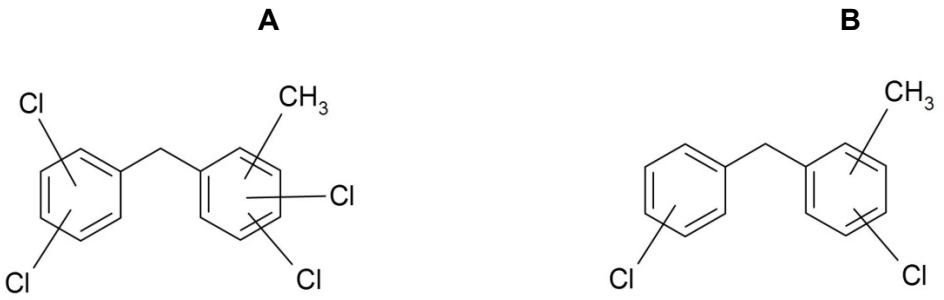


Abb. 5: Allgemeine chemische Struktur von (A) Tetrachlorbenzyltoluolen (TCBT) und (B) Dichlorbenzyltoluolen (DCBT)

7.5 Abschätzung der im Bundesgebiet im Steinkohlenbergbau eingesetzten Mengen PCB-haltiger Betriebsstoffe

7.5.1 Datengrundlage zum Einsatz PCB-haltiger Betriebsstoffe im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen

Vonseiten des Bergbautreibenden liegen keine Angaben vor, welche Mengen und Formulierungen PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Nutzungszeitraum von 1964 bis 1986 in Steinkohlenvergwerken im Bundesgebiet eingesetzt wurden und unter Tage verblieben sind. Vonseiten der zuständige Genehmigungs- und Überwachungsbehör-

den liegen abgesehen von den Hauptverlustquellen in Nordrhein-Westfalen keine Informationen über eingesetzte Mengen PCB-haltiger Betriebsstoffe und deren Verbleib in Bergwerken in Nordrhein-Westfalen vor. Vonseiten der damaligen Landesministerien liegen lediglich in einer Antwort des Deutschen Bundestages (1984) Angaben vor, welche Mengen PCB-haltiger Betriebsstoffe von 1977 bzw. 1979 bis 1983[1] in Nordrhein-Westfalen und dem Saarland genutzt wurden (Tab. 2).

Tab. 2: Mengen der im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen und Saarland in den Jahren 1977 bis 1983 genutzten PCB-haltigen Betriebsstoffe (in Tonnen) (Deutscher Bundestag 1984)

Jahr	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	Summe
NRW	1.200	1.250	1.335	1.400	1.460	1.400	1.250	9.295
Saarland			226	321	311	358	356	1.572

Weitere Informationen über den Verbrauch PCB-haltiger Betriebsstoffe im Steinkohlenbergbau kann den folgenden Dokumenten entnommen werden:

a) de Voogt und Brinkman (1989) beziffern den Einsatz PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1973 bis 1980 mit denen in Tab. 3 dargestellten Werten. Für die Jahre 1975 und 1979 liegen keine Angaben vor.

Tab. 3: Mengen der im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1973 bis 1980 genutzten PCB-haltigen Betriebsstoffe (de Voogt und Brinkman (1989)

Jahr	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	Summe
Menge [t]	658	759	k.A.	976	967	1158	k.A.	1154	5.672

b) Die den PCB-Bilanzen von Rauhut (1978, 1982, 1986) entnommenen Angaben zum Einsatz PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland sind in Tab. 4 zusammengefasst.

Tab. 4: Mengen der im Steinkohlenbergbau der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1974 bis 1984 genutzten PCB-haltigen Betriebsstoffe (Rauhut 1978, 1982, 1986)

Jahr	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	Summe
Menge [t]	871	818	930	967	1.158	1.361	1.587	1.350	1.482	1.241	607	12.372

[1] Der Zeitpunkt 1983 war gewählt worden, weil ab diesem Zeitpunkt kein PCB aktiv eingesetzt wurde (z. B. bei einem Ölwechsel). In vielen Maschinen unter Tage war aber bis 1986 noch PCB im Einsatz.

c) Hillejan, U. und Schaaffhausen, V. (1990) beziffern den Gesamteinsatz PCB-haltiger Betriebsstoffe im Bergbau und vorgelagerter Industrie der Bundesrepublik Deutschland bis zum Jahr 1984 pauschal mit 12.500 t.

Die jahresspezifischen Einsatzmengen PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Steinkohlenbergbau, angegeben in Deutscher Bundestag (1984), de Voogt und Brinkman (1989) und Rauhut (1978, 1982, 1986), bewegen sich jeweils in der gleiche Größenordnung. Für den Zeitraum vor 1973 liegen keine Einsatzzahlen vor. Lediglich in der Antwort des Deutschen Bundestages finden sich für Nordrhein-Westfalen und das Saarland Angaben zum Nutzungszeitraum vor 1973:

> *„Für weiter zurückliegende Jahre fehlen Angaben. Der Verbrauch im Jahr 1977 bzw. im Jahr 1979 kann als Anhalt für vorhergehende dienen. Jeweils im Einsatz war in Nordrhein-Westfalen eine Menge von etwa 450 bis 500 t und im Saarland eine Menge von rd. 60 bis 70t.“*

Es liegen lediglich unvollständigen Daten für Nordrhein-Westfalen und das Gesamtgebiet der Bundesrepublik Deutschland vor. Eine genaue Bilanzierung der im Bundesgebiet, in Nordrhein-Westfalen und im Saarland eingesetzten PCB-haltigen Betriebsstoffe ist somit nicht möglich. Für eine Abschätzung der ungefähren Größenordnung der in Nordrhein-Westfalen bzw. im Bundesgebiet eingesetzten Mengen werden im Folgenden unterschiedliche Ansätze basierend auf der Datengrundlage Deutscher Bundestag (1984), Rauhut (1978, 1982, 1986) verfolgt.

7.5.2 Abschätzung I: Grundlage – Deutscher Bundestag (1984)

Die in Deutscher Bundestag 1984 für Nordrhein-Westfalen erfassten Mengen PCB-haltiger Betriebsstoffe im Steinkohlenbergbau (Tab. 2) umfassen die Bergbaugebiete Ruhrgebiet (rechts- und linksrheinisch), Aachen-Erkelenz und Ibbenbüren. Für die Bergbaugebiete liegen keine getrennten Zahlen vor. Gemäß oben zitierter Textpassage wird vor 1977 ein jährlicher Verbrauch von 500 t PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen angenommen. Für die Jahre 1984 bis 1986 liegen keine Angaben vor. Damit ergibt sich für Nordrhein-Westfalen die folgende Gesamtmenge für im Steinkohlenbergbau eingesetzte PCB-haltige Hydraulikflüssigkeiten:

1977 – 83:	9.295 t
1964 – 1976 (13 Jahre à 500 t):	6.500 t
Summe	**15.795 t**

Bei diesem Wert handelt es sich nur um eine Abschätzung der Größenordnung, eine Quantifizierung und Wiedergabe exakter Mengen ist nicht möglich.

7.5.3 Abschätzung II: Grundlage - Rauhut (1978, 1982, 1986)

Die in Tab. 4 dargestellten chronologischen Werte des PCB-Einsatzes im Bergbau der Bundesrepublik Deutschland weisen abgesehen vom Jahr 1984 eine steigende Tendenz auf. Laut Fiedler 2001 ist dies auf technische Entwicklungen innerhalb des Bergbaues zurückzuführen, die einen höheren Bedarf an schwerentflammbaren PCB-

haltigen Hydraulikflüssigkeiten mit sich brachten. Mittels linearer Extrapolation (Abb. 6) dieser Korrelation lassen sich die Einsatzmengen PCB-haltiger Betriebsstoffe im Bergbau der Bundesrepublik Deutschland auch für die Jahre 1964 – 1973 grob abschätzen (Tab. 5), für die keine Daten vorliegen. Das Jahr 1984 bleibt hierbei unberücksichtigt, da bereits die Umstellung auf PCB-freie Flüssigkeiten begonnen hatte.

Tab. 5: Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsstoffe im Bergwerk der Bundesrepublik Deutschland

			1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972	1973
Einsatz PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Bergbau auf Bundesgebiet [t]			110	184	257	331	404	478	552	625	699	772
197	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	Summe	
871	818	930	967	1158	1361	1587	1350	1482	1241	607	16.784	

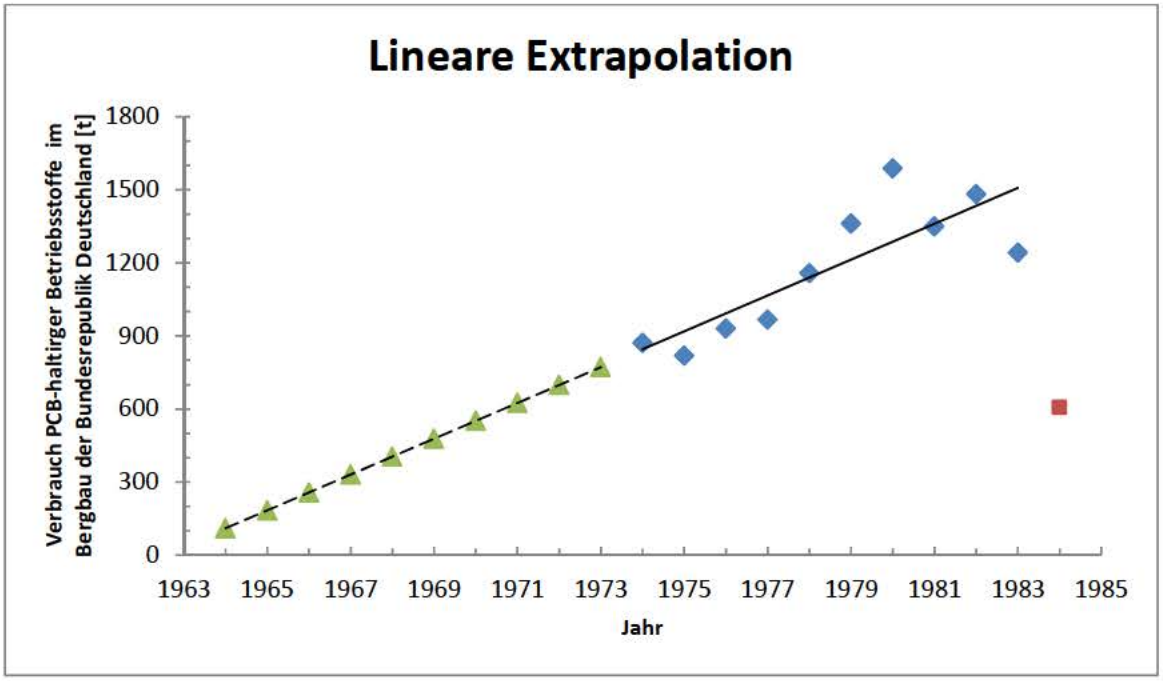


Abb. 6: Lineare Extrapolation des PCB-Verbrauchs auf die Jahre vor 1973

Durch Addition der extrapolierten (vor 1973, grün markiert, Abb. 6) und bekannten (nach 1973, blau markiert, Abb. 6) Einsatzmengen PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Bergbau ergibt sich für die Bundesrepublik Deutschland eine Gesamtmenge von 16.784 t. Bei diesem Wert handelt es sich nur um eine Abschätzung der Größenordnung, eine Quantifizierung und Wiedergabe exakter Mengen ist nicht möglich.

7.5.4 Untertägige Verluste von PCB

Die Ergebnisse in diesem Abschnitt stammen vor allem aus der Auswertung des Vorgangs 55.15-15 und den Unterlagen zum Strafverfahren gegen die RAG wegen illegaler Abfallbeseitigung (Staatsanwaltschaft Bochum AZ 41 Js 144/88, s. Dokumentation im Gesamtgutachten).

Ein großer Teil der unter Tage eingesetzten PCB vor Mitte der 1980er Jahre blieb auch unter Tage infolge großer, regelmäßiger Verluste an PCB bei den eingesetzten Maschinen zur Kohlenförderung.

PCB wurde unter Tage dort eingesetzt, wo große Betriebsdrücke in Maschinen auftraten und das Risiko von Überhitzung und Entzündung gegeben war. In Abhängigkeit von den eingesetzten Maschinen kam es dabei zu mehr oder weniger hohen Verlusten der eingesetzten PCB-Öle (wie Leckagen, Undichtigkeiten und Versagen bei Schlauchverbindungen, planmäßiges Abspritzen der Strömungskupplungen bei Überlast). Reparaturen wurden in der Regel durch Fremdfirmen über Tage ausgeführt. Einen Überblick über Einsatz, Verluste und Entsorgung gibt das Schreiben vom BA Gelsenkirchen an das LOBA vom 13.08.1984. In der Dokumentation 8 des Gesamtgutachtens sind weitere Auszüge anderer Bergämter aufgeführt, die die Angaben des BA Gelsenkirchen bestätigen und ergänzen.

Eine Übersicht über die Maschinen mit höchsten Verlusten gibt die Abb. 7.

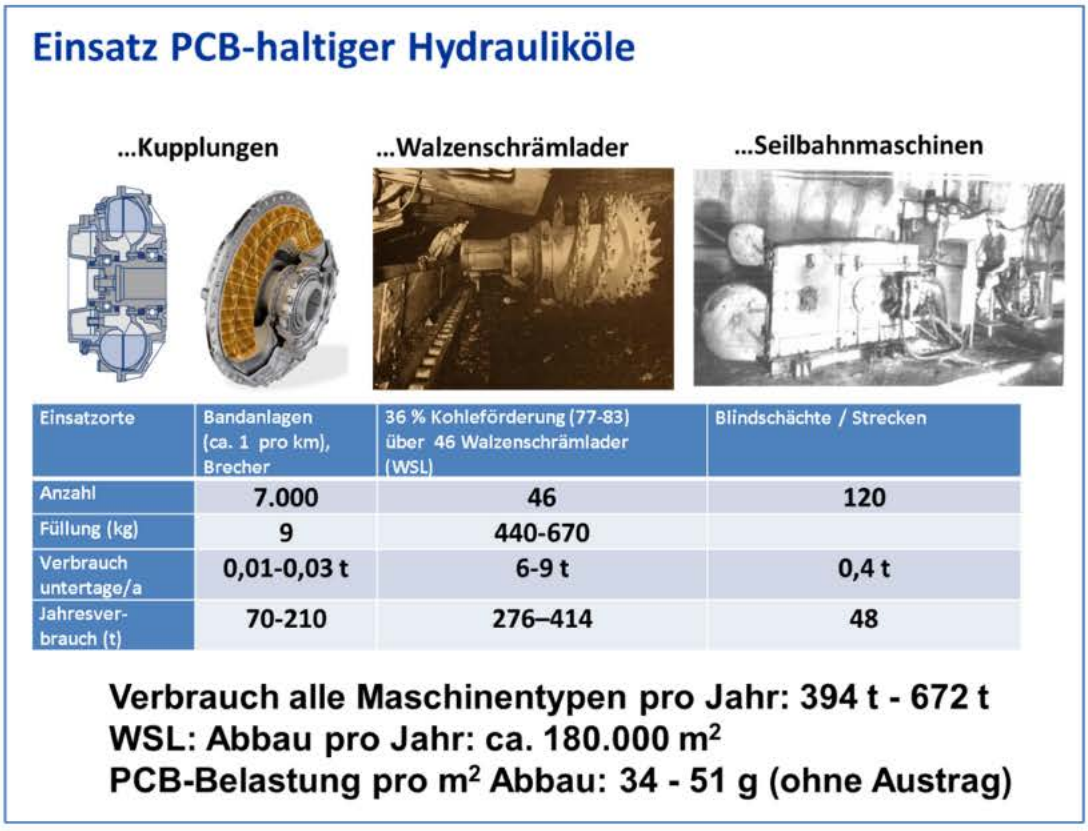


Abb. 7: Übersicht über die Hauptverlustquellen der PCB unter Tage (Daten aus Vorgang 55.15-15 und nach Angaben der RAG)

In den Jahren zwischen 1977 und 1983 wurden minimal 967 t PCB (1977) und maximal 1.587 t PCB (1980) eingesetzt (Tab. 4). Danach gab es alleine durch diese drei Maschinentypen in ihrer Einsatzzeit (1977-1983) bezogen auf das Jahr 1977 PCB-Verluste zwischen 41 % und 70 % und bezogen auf das Jahr 1980 zwischen 25 % und 42 % der insgesamt unter Tage eingesetzten PCB.

Weitere hier nicht näher quantifizierbare Verluste an PCB traten auch bei anderen zwischen 1984 und 1986 untertägig eingesetzten Maschinen auf wie Vollschnittmaschinen, Schlagkopfmaschinen (ca. 40), Seitenkipplader (ca. 500) und Senklader (ca. 500), bei denen ebenfalls PCB eingesetzt wurden.

Unter dem AZ 41 Js 144/88 untersuchte die Staatsanwaltschaft Bochum 1988, ob es sich bei den Verlusten um vermeidbare Verluste oder eine verdeckte, strafbare Form der PCB/Altöl Entsorgung gemäß § 324 StGB (Gewässerverunreinigung) und § 326 StGB (Unerlaubter Umgang mit Abfällen). Die Zeugenaussagen einiger im Bergbau Beschäftigter unterstützten die Auffassung der illegalen Abfallentsorgung. In der Folge wurde die Frage sehr intensiv von der Staatsanwaltschaft Bochum untersucht. Hierzu gehörten u. a. Hausdurchsuchungen bei der RAG, in 15 Bergwerken und Fremdfirmen, Aktenbeschlagnahme und die Verhöre von ca. 75 Personen.

Das Ergebnis nach vier Jahren Ermittlung war *(*Schreiben der Staatsanwaltschaft Bochum vom 19.08.1992):

- *„Die Verluste sind bei den Verhältnissen unter Tage unvermeidbar“*
- *„Die relevanten Rapportbücher, in denen die Reparaturen verzeichnet worden waren, wurden Ende 1988 vernichtet“*
- *„Die Aufklärungsmöglichkeiten sind erschöpft“*
- *„Die Glaubwürdigkeit der Zeugen ist zurückhaltend zu beurteilen“*
- *„Mangels zureichender tatsächlicher Anhaltspunkte für weitere Ermittlungen ist nach allem das Verfahren gemäß Abs. 2 § 170 Strafprozessordnung einzustellen“*

Wenn in einem Worst-Case-Ansatz davon ausgegangen wird, dass **kein** PCB-Austrag über die Kohlenförderung beim Abbau erfolgte, kann nach diesem Ansatz folgende Abschätzung für die untertägige Verteilung der PCB im Alten Mann bei einem alleinigen Abbau durch Walzenschrämlader getroffen werden:

- Bei einer gleichförmigen Verteilung der PCB Verluste von 6 bis 9 t auf die ca. 180.000 m² (jährliche Abbauleistung der Walzenschrämlader, Angabe der RAG) ergibt sich eine geschätzte durchschnittliche PCB Belastung im Alten Mann im Bereich von 34 bis 51 g/m² bzw. 34 bis 51 t/km^2.
- Dies entspricht bei angenommenen 100 kg Feinmaterial pro m² (entspricht ca. 5 cm Schichtmächtigkeit) einer Konzentrationsspanne von 340 bis 510 mg/kg oder bei angenommenen 200 kg Feinmaterial pro m² (entspricht ca. 10 cm Schichtmächtigkeit) einer Konzentrationsspanne von 170 bis 255 mg/kg PCB.

7.6 Potentieller Austrag von PCB aus Steinkohlenbergwerken

7.6.1 Austrag über das Fördergut

In der Bundesrepublik Deutschland wurden PCB-haltige Hydraulikflüssigkeiten unter Tage überwiegend in Walzenschrämladern, aber auch in hydrostatischen Seilbahnantrieben und Getrieben von Gleislosfahrzeugen und besonders in hydrodynamischen Kupplungen in geschlossenen Systemen verwendet (Mierheim 1983). Streng genommen erfolgte die Anwendung jedoch nicht in einem geschlossenen System, da die eingesetzten Hydraulikflüssigkeiten unter Tage verbraucht und somit freigesetzt wurden. Nach einer Mitteilung des Gesamtverbandes Deutscher Steinkohlenbergbau an das Institut für Wasser-, Boden-, und Lufthygiene (1982) verblieb der weitaus größte Teil der HFD-Flüssigkeiten – als Verluste – unter Tage. Die Verluste traten laut Mitteilung bei nicht vorhersehbaren Schlauchbrüchen bzw. thermischen Überlastungen auf. Gemäß einem Aktenvermerk des Landesoberbergamts aus 1984 (s. Dokumentation im Gesamtgutachten) wurde unter Verlusten verstanden: „*Leckagen, Undichtigkeiten, Abspritzen der Strömungskupplungen bei Überlast und untertage Reparaturen“*. Die häufigste Ursache von Verlusten waren Schlauchrisse von Abbaugeräten. Bei einem Schlauchriss in einem Walzenschrämlader musste mit einem Verlust von ca. 400 L PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeit gerechnet werden (Mierheim 1983). Eine Übersicht über die Maschinentypen mit höchsten Verlusten ist in Abbildung 7 dargestellt. Die Angaben für die Anzahl der Kupplungen und Seilbahnmaschinen gilt wahrscheinlich nur für den Erhebungszeitraum 1984.

Es ist davon auszugehen, dass der Hydraulikölverlust sowohl in Gestein als auch Kohlen gelangte und die anhaftenden PCB-haltigen Ölrückstände deshalb auch über Fördergut (Kohlen, Berge), Grubenwässer (partikuläres Material) und Bewetterungsanlagen (Stäube) teilweise ausgetragen wurde. Für den Austrag von PCB aus Bergwerken über Kohlen und Berge gibt es mehrere Hinweise:

- 1986 wurden beim Bergwerk Walsum Auffälligkeiten in der Kohlewäsche festgestellt und Proben auf PCB untersucht. Hierbei wurden in den Kohlen keine PCB nachgewiesen (NWG < 40 µg/kg). In den Flotationsschlämmen fanden sich 1 bis 3 mg/kg und im Flotationswasser, 0,5 bis 13 µg/L (Auswertung Akten BR Arnsberg, Bd. 3, Seite 60, 05.03.1986, Labor Claytex).

- Mitteilung des Gesamtverbandes des Deutschen Steinkohlenbergbaus an das Institut für Wasser-, Boden-, und Lufthygiene aus dem Jahr 1982.

Eine genaue Quantifizierung dieser Austräge ist nicht möglich. Eine Abschätzung des Austrages PCB-haltiger Betriebsstoffe über das Fördergut aus der Wasserprovinz Haus Aden wird in Abschnitt 8.3.2.1 vorgenommen.

7.6.2 Austrag über die Entsorgung

Für 1983 ist vom Landesoberbergamt erstmalig eine PCB-Bilanz für Nordrhein-Westfalen dokumentiert: Demnach wurden 1983 ca. 1.250 t PCB-haltige Hydraulikflüssigkeiten im Steinkohlenbergbau eingesetzt. Davon wurde ca. 85 % unter Tage „verbraucht“, rund 10 % in Filteranlagen gereinigt und wiederverwendet und etwa 5 % planmäßig entsorgt. Bei der entsorgten Menge handelt es sich um Filterrückstände, um

wasserfreie synthetische Hydraulikflüssigkeiten, die bei übertägigen Reparaturen anfallen und nicht mehr regeneriert werden konnten, sowie um wasserfreie synthetische Hydraulikflüssigkeiten, die in Maschinen und Geräten im Rahmen von Reparaturaufträgen an Fremdfirmen mitabgegeben wurden (Deutscher Bundestag 1984). Mierheim (1983) gibt für 1983 eine Reinigungs- und Wiederverwendungsrate von rund 3 % an. Für die Wasserprovinz Haus Aden sind keine getrennten Zahlen verfügbar. Für den Zeitraum vor 1983 gibt es keine Informationen über entsorgte bzw. wiederverwendete Mengen PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten. Es wird jedoch davon ausgegangen, dass die Anteile unter den für 1983 angegeben Daten liegen.

8 POTENTIELLE UNTERTÄGIGE VERTEILUNG VON PCB IN DER WASSERPROVINZ HAUS ADEN

8.1 Dokumentationsquellen

Zu Konkretisierung der räumlichen Verteilung von PCB unter Tage wurden die im Folgenden dargestellten, vom Bergbautreibenden und der zuständigen Genehmigungs- und Überwachungsbehörde zur Verfügung gestellten Dokumente ausgewertet. Bis auf die Risswerke sind viele dieser Akten aus mehreren Gründen aus den oben beschriebenen Gründen nicht mehr vollständig:

8.1.1 Bezirksregierung Arnsberg

Bei der Bezirksregierung Arnsberg wurden die vorliegenden Akten zum Einsatz, Verbleib und Entsorgung von PCB ausgewertet (02.05.2016). Dabei handelt es sich um folgende Aktenvorgänge:

- Behandlung und Einsatz von Hydraulikölen im Bergbau → **13.31** (14 Bände)
- Verbleib und Nachweis der PCB-haltigen Altöle→ **55.15-15** (6 Bände)



Abb. 8: Akten zum Vorgang 55.15-15 bei der BR Arnsberg (digital erfasst)

Abbaue in der Zeit des Einsatzes von PCB in der Wasserprovinz Haus Aden

Von der RAG wurden den Gutachtern am 02.12.2015 Auswertungen übergeben, die für die Wasserprovinz Haus Aden/Monopol die Abbaue zeigen, die zwischen 1969 und 1985 abgebaut wurden abgebaut wurden. 1969 wurde die RAG gegründet. Aus der Zeit davor liegen keine digital auswertbaren Unterlagen vor. Das Grubenwasser aus der Wasserprovinz Haus Aden wird heute und zukünftig in der Zentrale Wasserhaltung Haus Aden gefasst. Bisher stammen die gehobenen Grubenwässer nur aus dem westlichen Teil, dem Einzugsgebiet Victoriadamm.

Die Abbaubereiche der Bergwerke sind nicht mit einer PCB-Belastung gleichzusetzen; sie werden im Folgenden mit „potenziellen PCB-Bereichen“ oder Abbaue aus der PCB-Zeit bezeichnet. Dargestellt ist der Zeitraum zwischen 1969 und 1985. Zwischen 1964 und 1969 wurden nach Angaben der RAG PCB in der Wasserprovinz Haus Aden nur vereinzelt eingesetzt. Die Abb. 9 zeigt eine Gesamtübersicht.

Die Auswertungen wurden von der RAG für alle 100-m-Scheiben durchgeführt. In den Teufen zwischen 200 und 400 m liegen nur einige wenige ältere Abbaue im Westen von Dortmund (Abb. 10 und Abb. 11). Die meisten Abbaue liegen zwischen 700 und 1.000 m (Abb. 15 bis Abb. 17). Der zeitliche Schwerpunkt dieser Abbaue lag in der ersten Hälfte der 1980er Jahre. Ab einer Tiefe von 1.000 m gibt es deutlich weniger Abbaue. Ab 1.100 m wurden nur noch einige Bauhöhen zwischen Bergkamen und Kamen abgebaut (Abb. 19 bis Abb. 21).

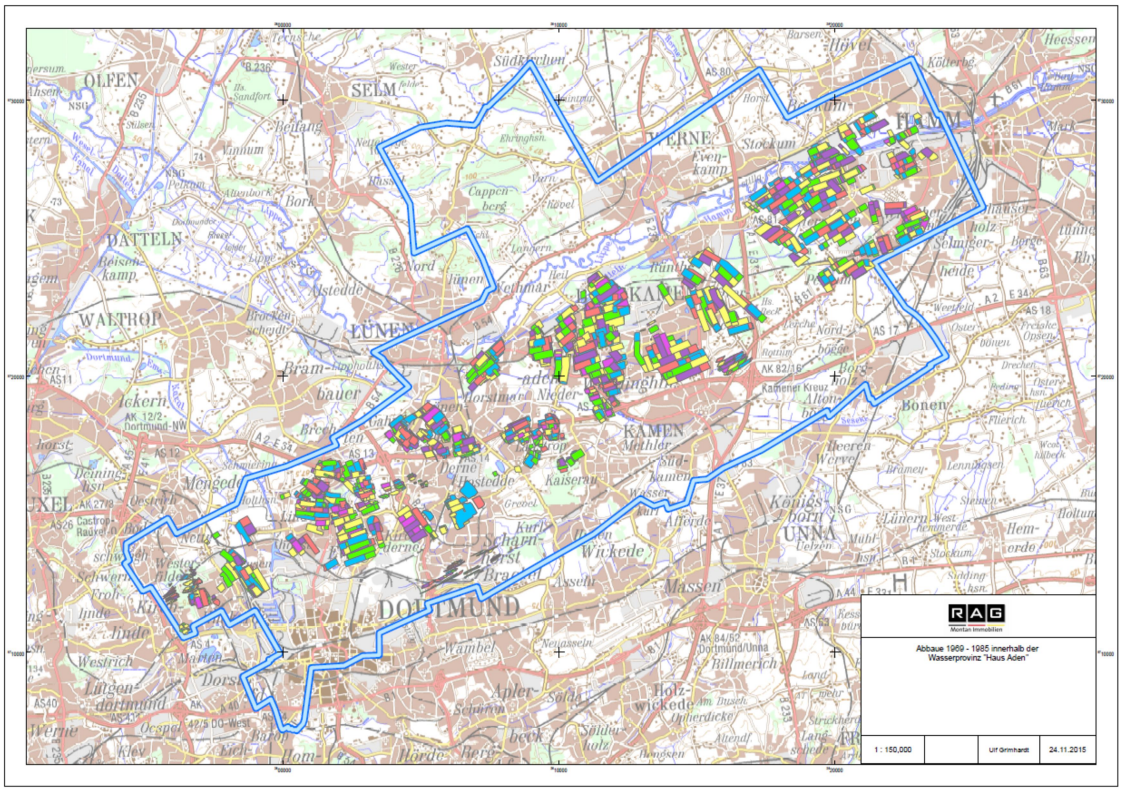


Abb. 9: Gesamtübersicht der Abbaue zwischen 1969 und 1985 in der Wasserprovinz Haus Aden (RAG 02.12.2015)

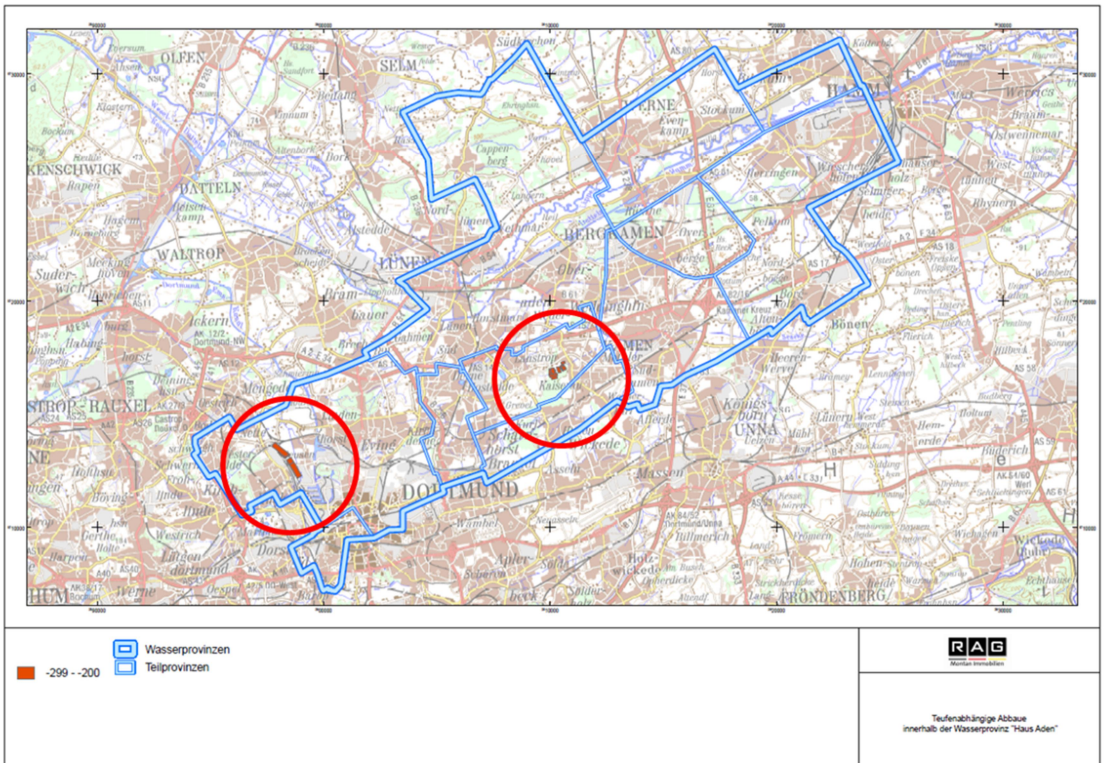


Abb. 10: Abbaue zwischen 200 bis 300 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

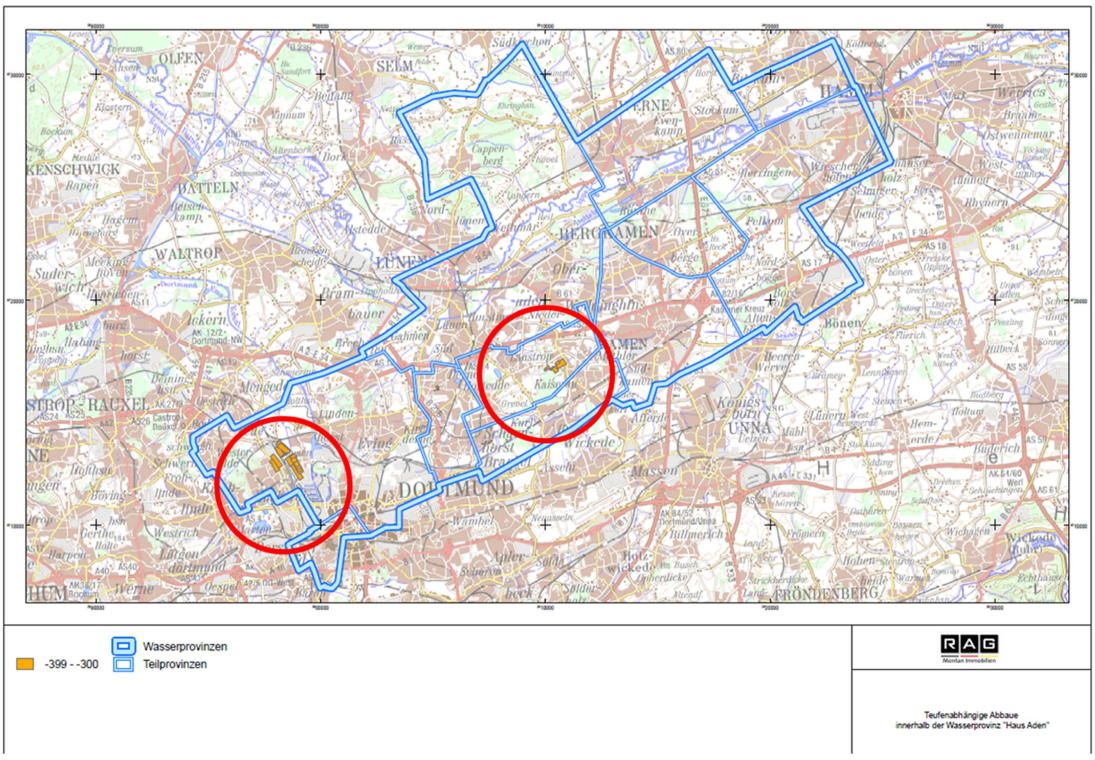


Abb. 11: Abbaue zwischen 300 bis 400 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

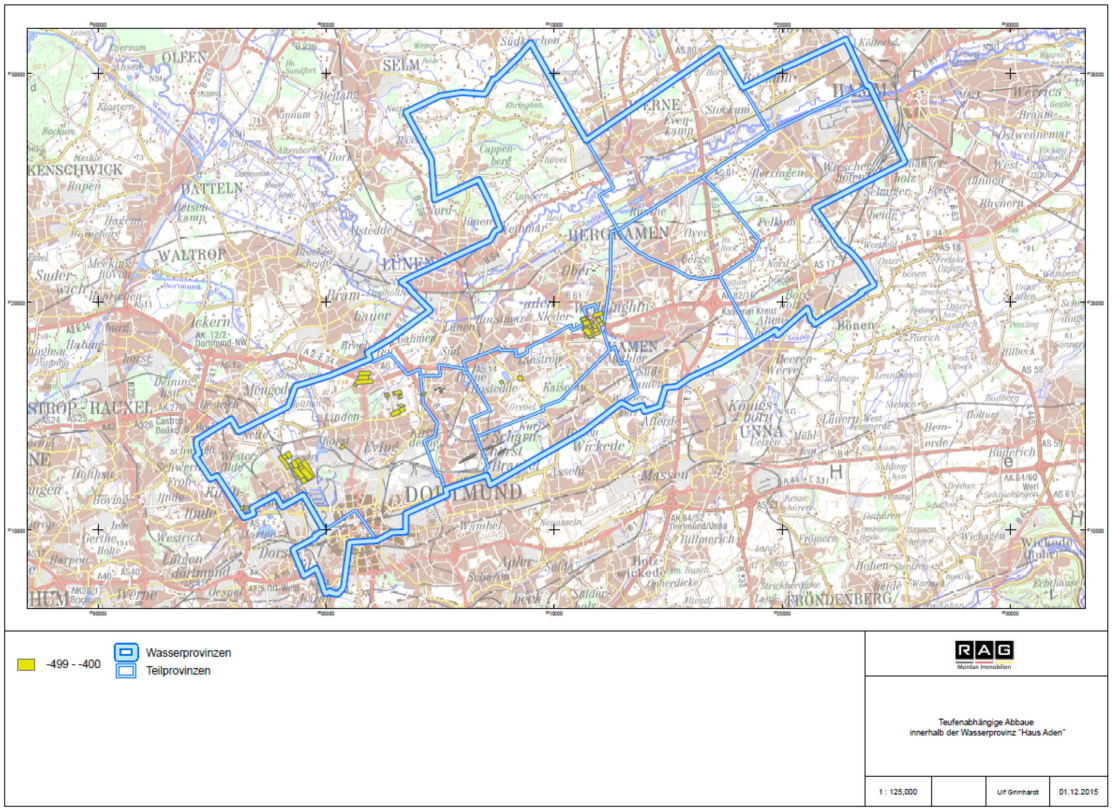


Abb. 12: Abbaue zwischen 400 bis 500 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

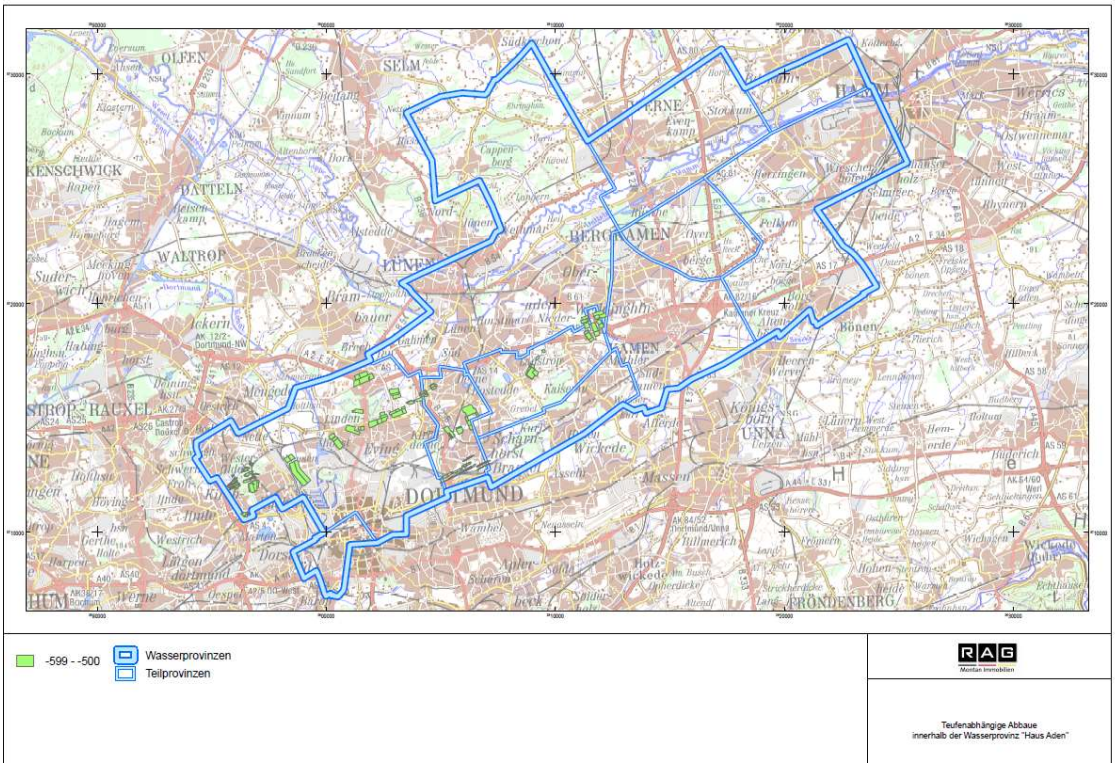


Abb. 13: Abbaue zwischen 500 bis 600 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

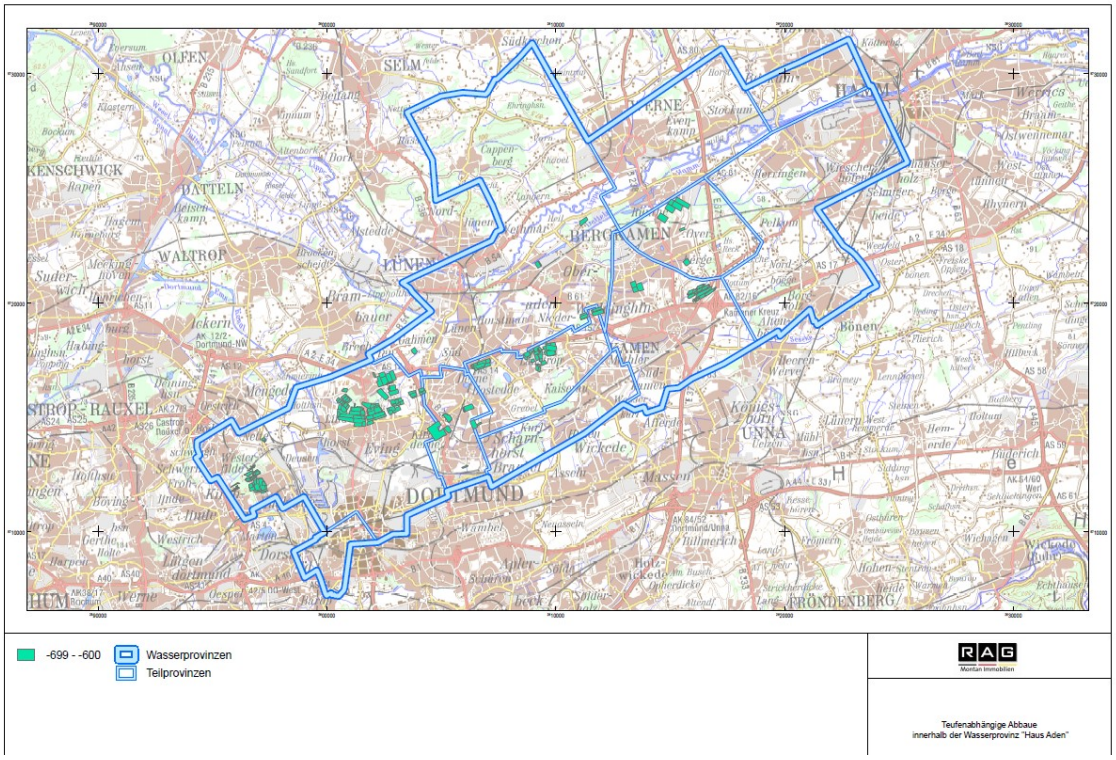


Abb. 14: Abbaue zwischen 600 bis 700 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

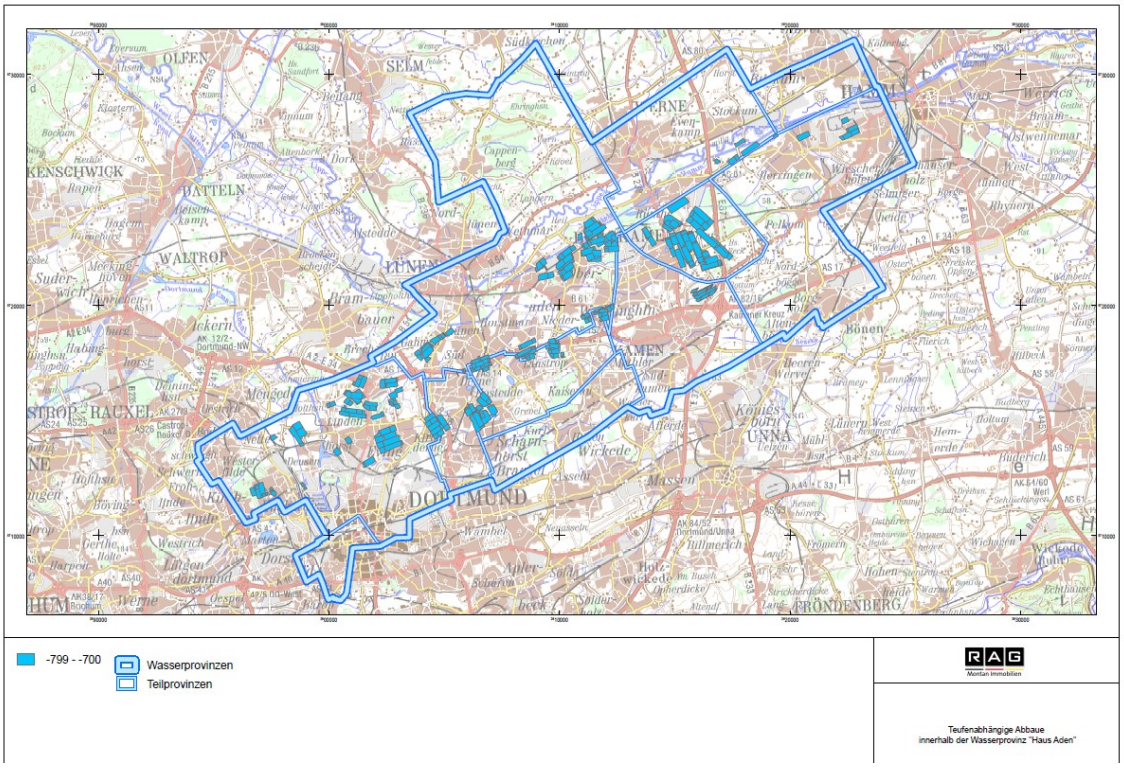


Abb. 15: Abbaue zwischen 700 bis 800 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

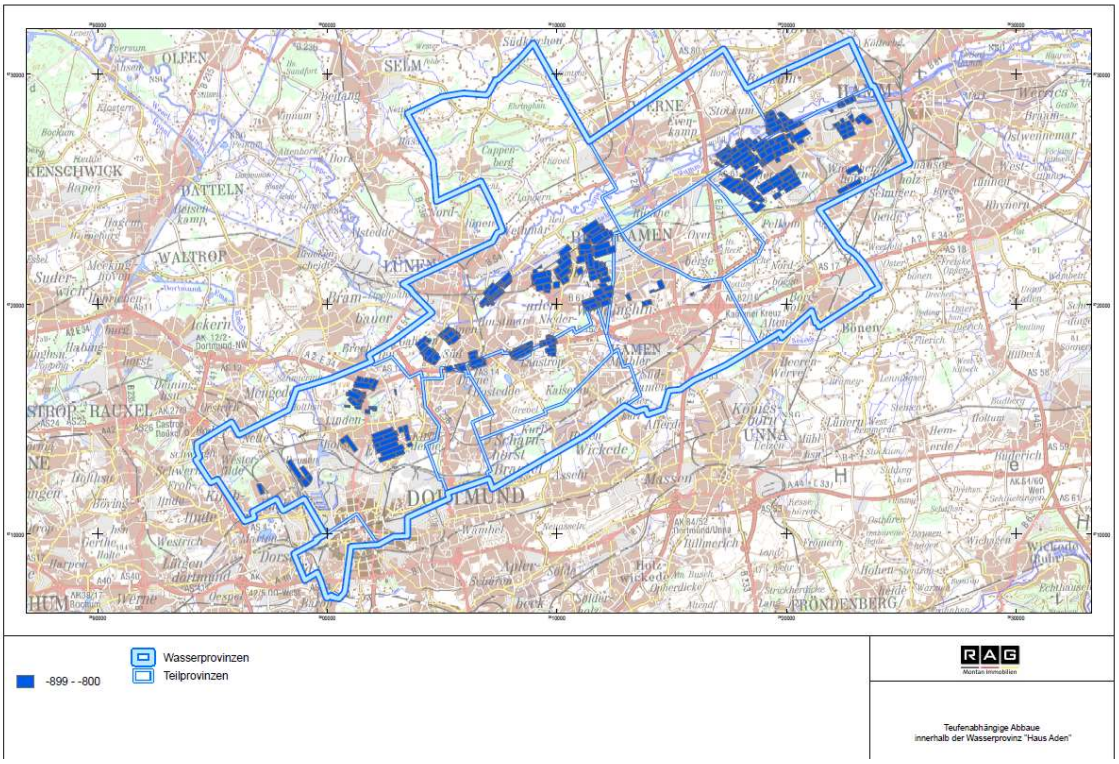


Abb. 16: Abbaue zwischen 800 bis 900 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

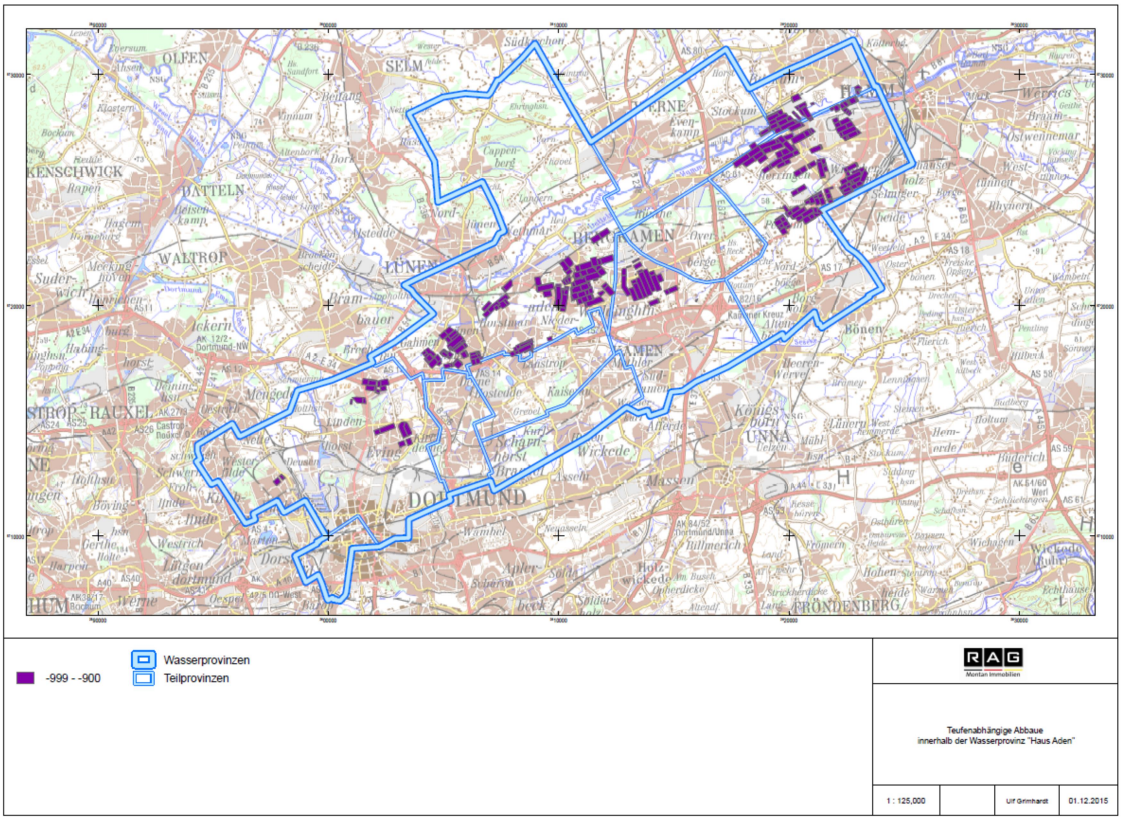


Abb. 17: Abbaue zwischen 900 bis 1.000 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

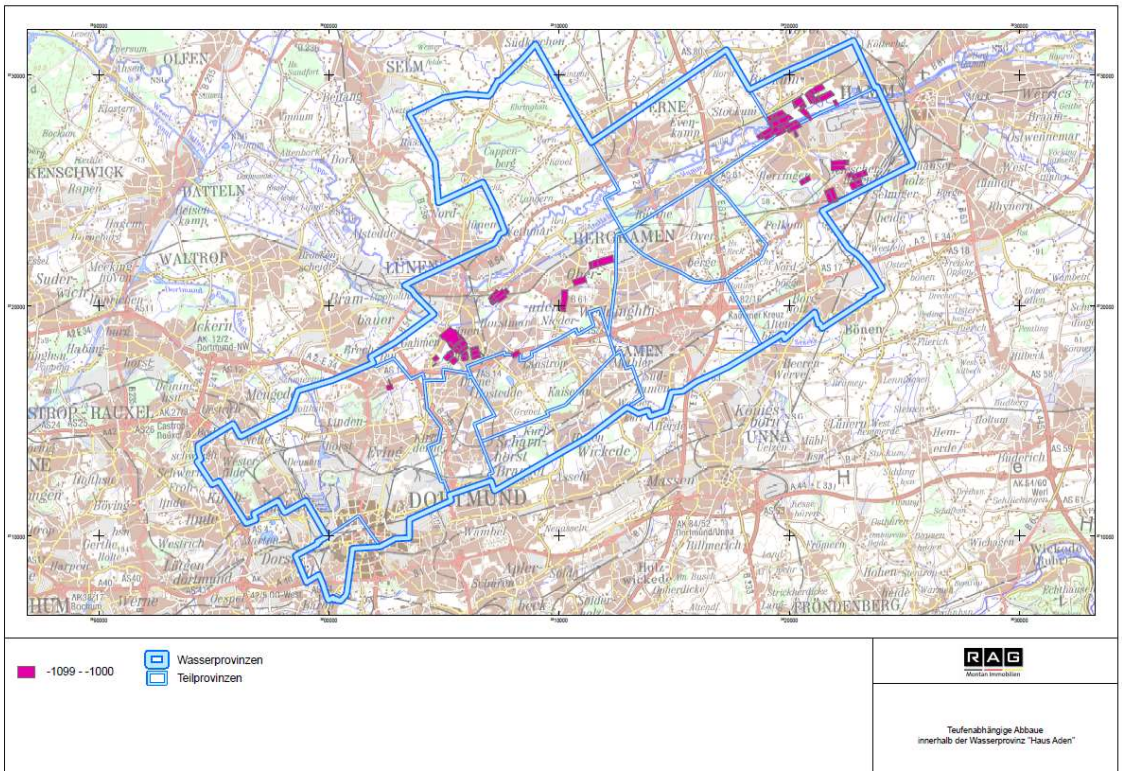


Abb. 18: Abbaue zwischen 1.000 bis 1.100 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

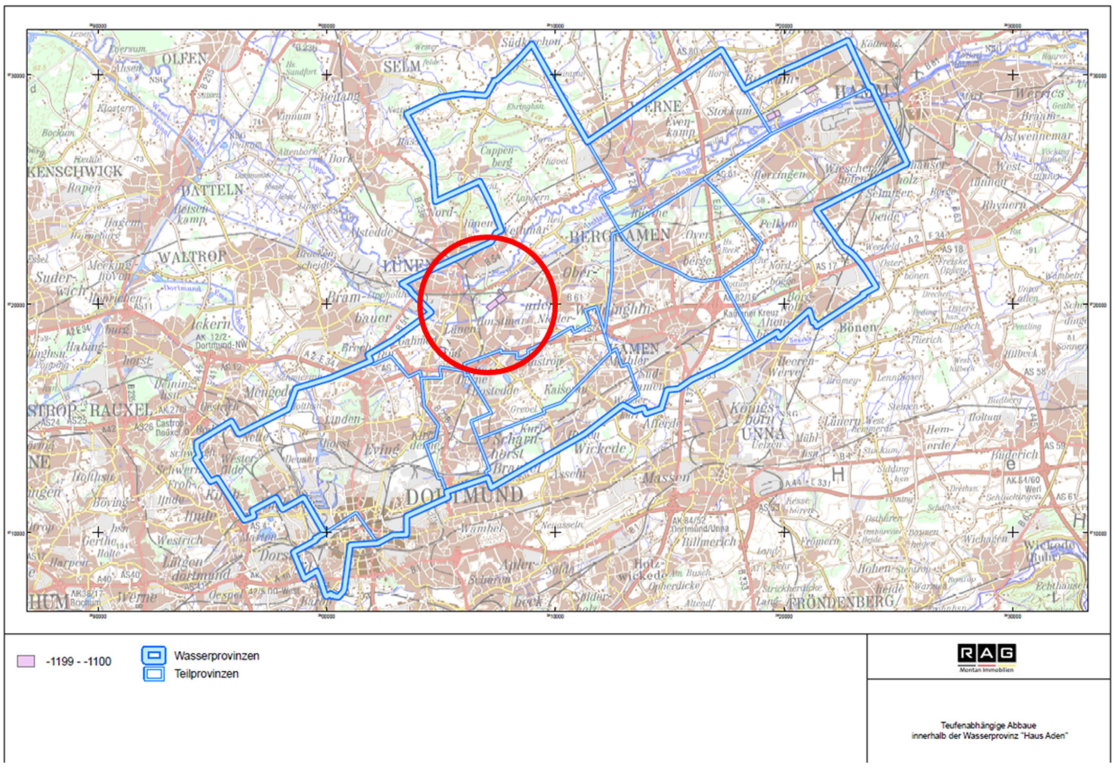


Abb. 19: Abbaue zwischen 1.100 bis 1.200 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

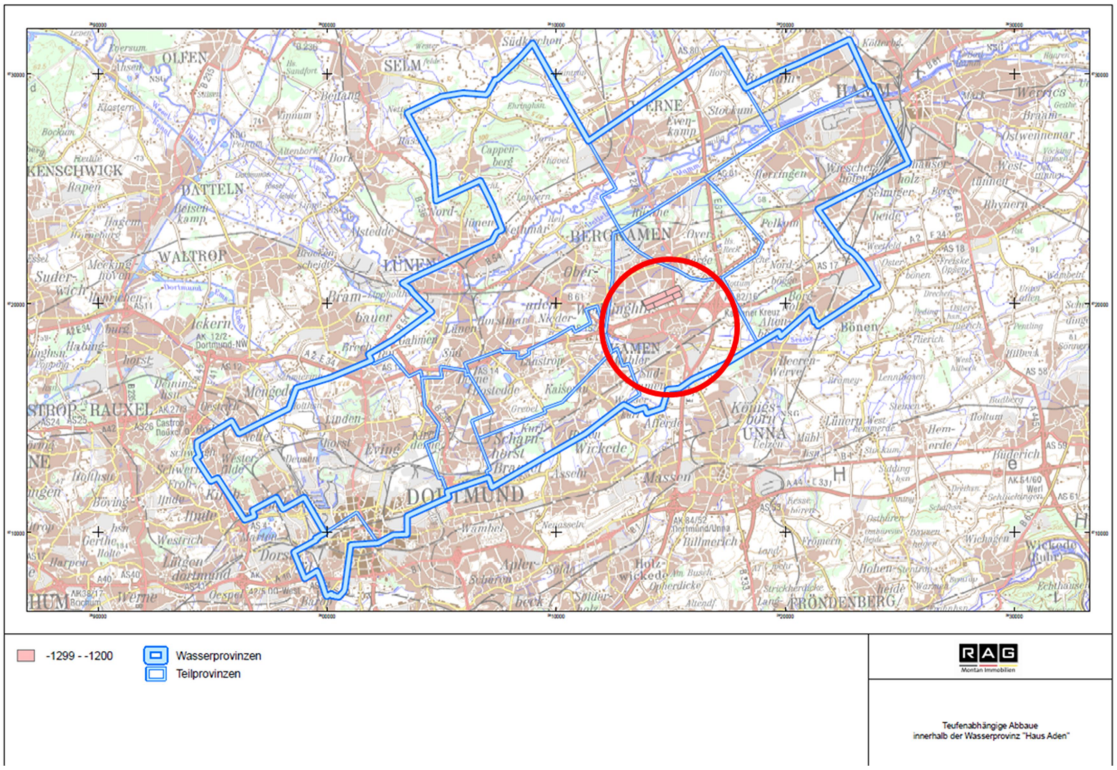


Abb. 20: Abbaue zwischen 1.200 bis 1.300 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

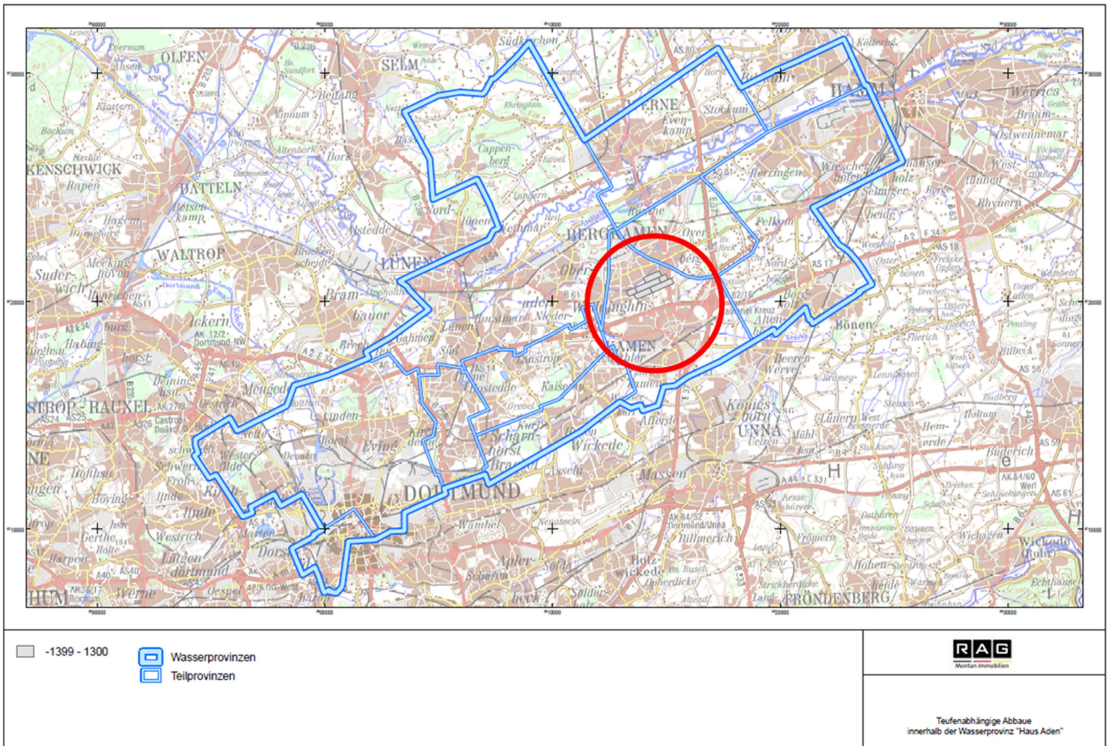


Abb. 21: Abbaue zwischen 1.300 und 1.400 Meter Tiefe (RAG 02.12.2015)

8.1.2 Betriebspläne

Betriebspläne sind die Genehmigungsgrundlagen für den unter- und übertägigen Bergbaubetrieb. Für die vorliegende Fragestellung – Hinweise auf PCB-Emittenten – sind drei Betriebspläne zu nennen. Die Aufbewahrungsfrist beträgt 10 Jahre.

- Untertägige Hauptbetriebspläne:
  - Generelle Planung des Maschineneinsatz und der Abbaue
  - viele detaillierte und Bergwerk-bezogene Nebenbestimmungen
- Sonderbetriebspläne:
  - Es wurden ca. 400 – 500 Sonderbetriebspläne pro Jahr und Bergwerk erstellt, in denen fast alle Vorgänge unter Tage geregelt wurden u. a. auch die Lage und Funktion von untertägigen und übertägigen Einrichtungen wie z. B. für Werkstätten, Umpumpen schlammgefüllter Sumpfstrecken etc. Diese Sonderbetriebspläne wurden bei den einzelnen Bergwerken geführt und sind heute in der Regel nicht mehr vorhanden, da sie oft mit der Aufgabe der Bergwerke vernichtet wurden.
- Abschlussbetriebspläne (ABB) Bergwerk Ost
  - Angaben zu Lage und Funktion von Einrichtungen mit Umgang wassergefährdender Stoffe (u. a. Hydrauliköle) und Auflagen zu deren Umgang bei der Räumung des Bergwerks.
    Der ABB enthält keine Hinweise auf PCB.
  - Es erfolgt ein untertägiges Monitoring von Teilströmen des Grubenwassers (10-L-Methode[2]), bei Auffälligkeiten werden weitere Untersuchungen unter Tage zur Identifizierung von punktuellen Belastungen eingeleitet.
    Dies ist bislang jedoch nicht eingetreten.

8.1.3 Bergmännisches Risswerk

Die Risswerke werden dauerhaft bei der BR Arnsberg aufbewahrt.

Das Risswerk nach § 63 BBergG (vorliegend bei der Bezirksregierung Arnsberg) enthält im Wesentlichen die Lage der Grubenbaue ohne die Art der Nutzung.

Die RAG wurde 1969 gegründet. Aus vorherigen Zeiten liegen keine digital auswertbaren Daten vor. Die betriebliche Risse (teilweise noch vorliegend bei der RAG) enthalten teilweise auch die Funktion der Grubengebäude[3]. Beispiele für die Dokumentation in den betrieblichen Rissen zeigen die Abb. 22 bis Abb. 24. Für die Wasserprovinz Haus Aden sind dies ca. 1.000 bis 1.200 großformatige Risse (ca. 1 x 1 m). Das Risswerk

[2] Unter Tage können keine Zentrifugen (Explosionsschutz) eingesetzt werden. Deswegen werden jeweils 10 L Wasserproben untertägig für die Analysen genommen

[3] Gemäß der Markscheiderverordnung vom 19.12.1986, Anlage 3, Teil 2, Punkt 3.1.6 ist nur die Verortung von „Grubenbauen für die Wasserhaltung“ verpflichtend. Alle anderen Eintragungen zur Nutzung der Grubenbaue lagen in der Entscheidung des Markscheiders, der das Risswerk führte.

wurde nicht hinsichtlich der Lage aller Infrastruktureinrichtungen wie Werkstätten ausgewertet.



Abb. 22: Auszug aus einem Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Werkstatt

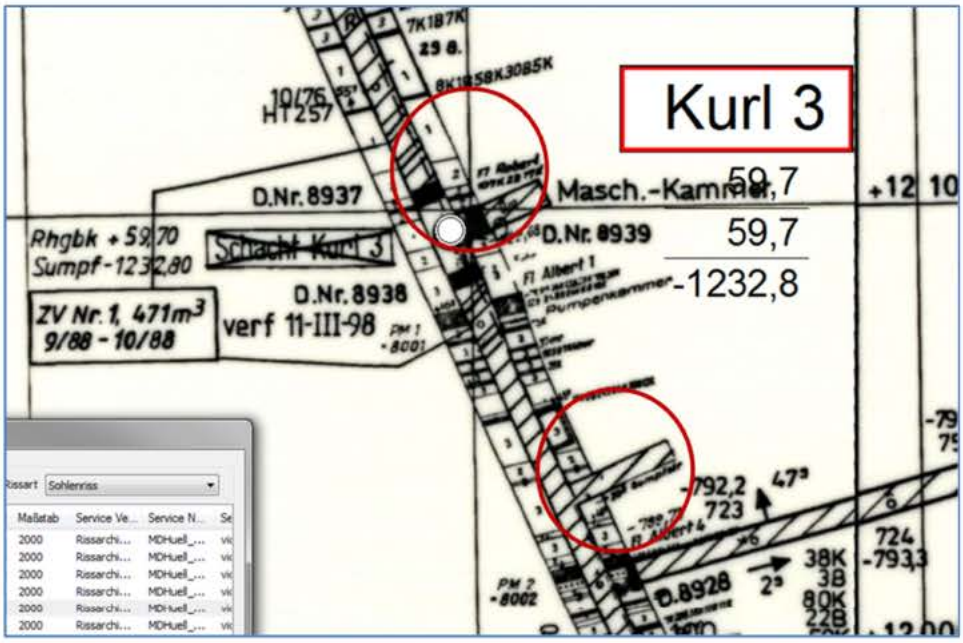


Abb. 23: Auszug aus einem Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Maschinenkammer und eine Sumpfstrecke

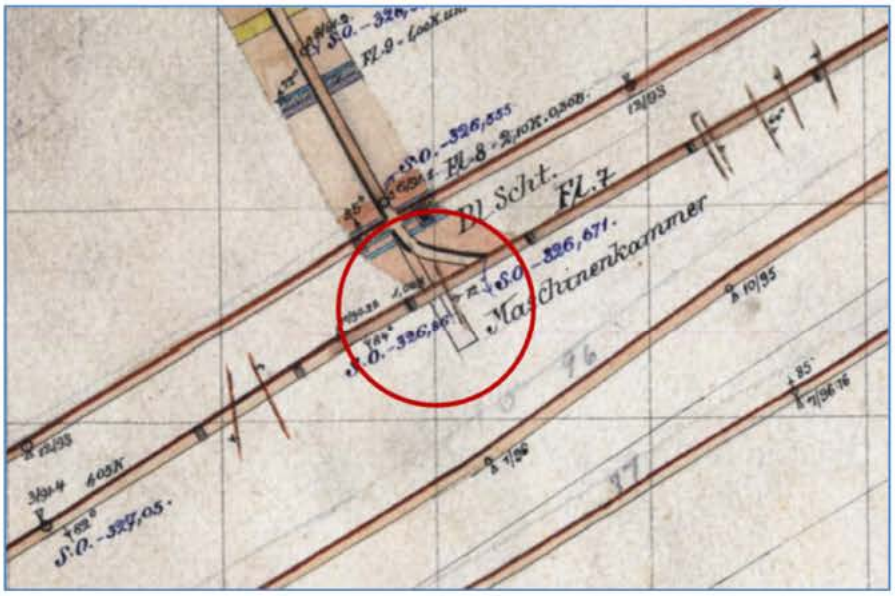


Abb. 24: Auszug aus einem älteren Betriebsriss mit Verweis auf eine (kleine) Maschinenkammer

8.1.4 § 22 a der Bergverordnung (ABBergV)

Mit der 3. Verordnung zur Änderung bergrechtlicher Vorschriften vom 24.1.2008 BGBL I S. 85 wurde § 22 a in die ABBergV eingefügt. Damit wurde die EU-Richtlinie 2006/21/EG „Bewirtschaftung von Abfällen aus der mineralgewinnenden Industrie“ umgesetzt. Dies erlaubt jedoch keine Analogien zum behördlichen Handeln vor 1986 und es gibt keine Hinweise für potentielle PCB-Emittenten. Im Wesentlichen muss jetzt nach § 22 a ABBergV bei der Aufgabe eines Bergwerk alles (Ausbaue, Förderbänder, Kabel, Rohre etc.) aus dem Bergwerk entfernt werden, was nicht sicherheitsrelevant ist. Vor Gültigkeit des § 22 a ABBergV verblieb alles in den Bergwerken was „mit dem Berg verbunden war“ (wie Ausbaue, Förderbänder etc.).

Die Arbeiten im Zuge der Umsetzung des § 22 a ABBergV ergibt keine Informationen hinsichtlich potentieller PCB-Emittenten.

8.1.5 Übertägige Entsorgung von Altöl und PCB

Bis ungefähr Mitte der 1980er Jahre wurden PCB nicht gesondert erfasst und geregelt entsorgt (Schreiben der Staatsanwaltschaft Bochum vom 19.08.92). Die PCB wurden zusammen mit den anderen im Bergbau verwendeten Ölen (die einen viel größeren Anteil als die PCB ausmachten) in den Altölmarkt gemäß AltölG eingeschleust (Abb. 24). Diese Altöle wurden vielfach verbrannt (Abb. 25). Ein Verwendungszweck für Altöl war auch die Zugabe bei der Erzeugung von Kokskohle, damit diese bei der Verkokung nicht zusammenbacken (Hinweis aus der Aktenauswertung 55.15-15).

Dies erfolgte vor 1986 durch jedes Bergwerk dezentral. Die entsorgte Altölmenge betrug 1984 1.143 t, was auch ungefähr der üblichen, jährlichen Abgabe der RAG von Altöl an Wiederaufbereitungsfirmen entspricht (Dok. 6 Gesamtgutachten).

Wenn PCB-haltige Hydraulikflüssigkeit vor Mitte der 1980er Jahre separat erfasst wurde, geschah dies häufig weil diese synthetischen Hydraulikflüssigkeiten sehr teuer waren und aufbereitet werden konnten. Die synthetischen PCB-haltigen Öle wurden teilweise über Tage aufbereitet (Bergmannsglück/Westerholt, Gelsenkirchen). Die PCB-Schlämme aus der Reinigung (ca. 1 t/a) wurden teilweise als Altöl abgegeben und auch deponiert (Besprechung LOBA, 13.09.1985, s. Dokumentation im Gesamtgutachten).

Am 18.07.1984 erfolgte eine Rundverfügung des LOBA mit dem Hinweis eine „*ordnungsgemäße Entsorgung*“ zu veranlassen und zu überwachen.

Im Jahr 1984 wurden so 11,09 t PCB-haltige Öle über die Bergwerke direkt und 19,64 t PCB-haltige Öle über die Reparaturbetriebe entsorgt, also in der Summe ca. 30 t.

In einer Bilanz für das Jahr 1983 im Verantwortungsbereich des LOBA wurden 1.174,5 t PCB eingesetzt; davon wurden 95 % „nicht geregelt entsorgt“ (Verfügung LOBA vom 28.09.1984, Dok. 8 Gesamtgutachten).

Im November 1984 wurde von der Umweltministerkonferenz eine PCB-Grenze in Altölen von 50 ppm (50 mg/L) vorgeschlagen. Bei höheren Gehalten handelte es sich fortan um Sonderabfall. Dies bedeutet auch, dass in den PCB-Bilanzen alle Öle mit einem höheren Gehalt als 50 ppm als „PCB-haltige Öle“ deklariert worden waren. Da aber die eingesetzten Hydrauliköle überwiegend ausschließlich aus PCB bestanden, kann somit die Bilanz der entsorgten PCB-haltigen Öle nicht direkt mit der Bilanz der eingesetzten PCB verglichen werden.

Am 28.01.1985 erfolgte ein Erlass des Ministeriums für Mittelstand und Wirtschaft (MWMW) mit Hinweisen auf eine zwischenzeitlich eingerichtete LWA Arbeitsgruppe, die Empfehlungen zur Verminderung der PCB-Verunreinigungen von Altöl erarbeitet hatte. Am 06.03.1985 erfolgte eine Rundverfügung des LOBA „*die Maßnahmen (Verminderung der PCB-Verunreinigungen von Altöl) unverzüglich verbindlich zu machen*“. Am 06.05.1985 erfolgte nochmals eine Rundverfügung des LOBA, um den Grenzwert von 50 ppm für Altöl verbindlich zu machen. Dies führte zu einem Entsorgungsengpass, da mit PCB vermischtes Altöl nun Sonderabfall war. Mit der Rundverfügung vom 18.07.1985 hat das LOBA alle Bergämter gebeten „*ab sofort…verstärkt Sorge für die ordnungsgemäße Entsorgung der im Bergbau eingesetzten Hydraulikflüssigkeiten der Gruppe D zu tragen*“. Eine weitere Rundverfügung des LOBA zur Entsorgung der Hydrauliköle wurde am 03.10.1985 erlassen.

Untertage wurde bei Maschinen PCB zunächst durch Ersatzstoffe wie UGILEC ersetzt. Der Austausch der PCB unter Tage war 1986 überwiegend abgeschlossen (Dok. 6 Gesamtgutachten).

Über Tage führte die Einordnung der PCB-haltigen Öle (> 50 ppm, bzw. 50 mg/L) als Sondermüll schnell zu einem Entsorgungsengpasses, da die Verbrennungskapazitäten begrenzt waren. So wurden 1984 oberirdische Lagerbestände von ca. 350 t PCB und PCB-haltigen Öle gemeldet, die nach und nach abgebaut wurden.

Anfang 1986 wurden im Zuge der Diskussion um die Entsorgung der PCB-haltigen Öle die beiden Altölsammelstellen ZW Prosper (auf dem Betriebsgelände der Zentralwerkstatt Prosper) und ZW Fürst Hardenberg (ehemaliges Bergwerk Fürst Hardenberg) zugelassen und eingerichtet. Der grundsätzliche Entsorgungsweg war ab da die Sammlung der Altöle nach Betriebsplan für jedes Bergwerk und die Weiterleitung an

die Zentralen Sammelstellen und von da die Entsorgung über die Hochtemperaturverbrennung in Brunsbüttel. Für die Errichtung der ZW Fürst Hardenberg wurde der Hauptbetriebsplan für das BW Fürst Hardenberg durch einen Sonderbetriebsplan ergänzt. Ein Sonderbetriebsplan für die ZW Fürst Hardenberg liegt bei der RAG nicht mehr vor. Die erteilte Genehmigung nach § 4 BImSchG von 09/1994 durch das LOBA NRW Dortmund ist noch vorhanden, wurde aber noch nicht ausgewertet.

Das Ziel war die zentrale Annahme fester und flüssiger Abfälle der Bergwerke und Betriebe der RAG. Nach dem Muster-Betriebsplan „Entsorgung“ waren alle Bergwerke/ Betriebe verpflichtet die Sammlung über die Zentralen Sammelstellen und den weiteren Entsorgungsvorgang einzuhalten. Ein weiteres Ziel war die Abkopplung vom Altölmarkt. Der „Jahresumsatz“ betrug ca. 18.000 t.

1993 erfolgte die Übernahme der Betriebsführung der Industrieabfallbehandlungsanlage (IAB) Fürst Hardenberg durch die Ruhrkohle Öl und Gas.

PCB-haltige Altöle wurden grundsätzlich bis 1993 / 1994 über die IAB Fürst Hardenberg entsorgt. Nach 1994 wurde die Entsorgung anhand der PCB- Konzentration in den Altölen differenziert und PCB-freie Altöle in den Altölmarkt z. B. über die Firma Schöning entsorgt. 1995 wurde die ZW Prosper und in 12/1997 auch die IAB Fürst Hardenberg stillgelegt.

Mit der Stilllegung der IAB Fürst Hardenberg im Jahre 1997, aufgrund der stark rückläufigen Altölmengen mit PCB, wurde die Entsorgung von der Zentralen Altölaufbereitung des BW Auguste Victoria übernommen. Diese war als zertifizierter Entsorgungsfachbetrieb zugelassen und wurde 12/2015 stillgelegt.

Akten zum Thema „**oberirdische Altölentsorgung**“ wurden bislang noch nicht ausgewertet. Eine erste Suche im Zentralarchiv der RAG nach den Schlagworten *PCB, HFD, Hydraulik, Nachweisbuch Altölbesitzer, Altöl, Entsorgung, Transformatoren, Kondensatoren, Betriebstagebücher, Werkstatttagebücher, zentrale Aufbereitung Fürst Hardenberg, Abfallbegleitscheine, § 3 Abs. 1, PCB-Verluste* ergibt ca. 400 Akten.

8.1.6 Sonstige Datenquellen

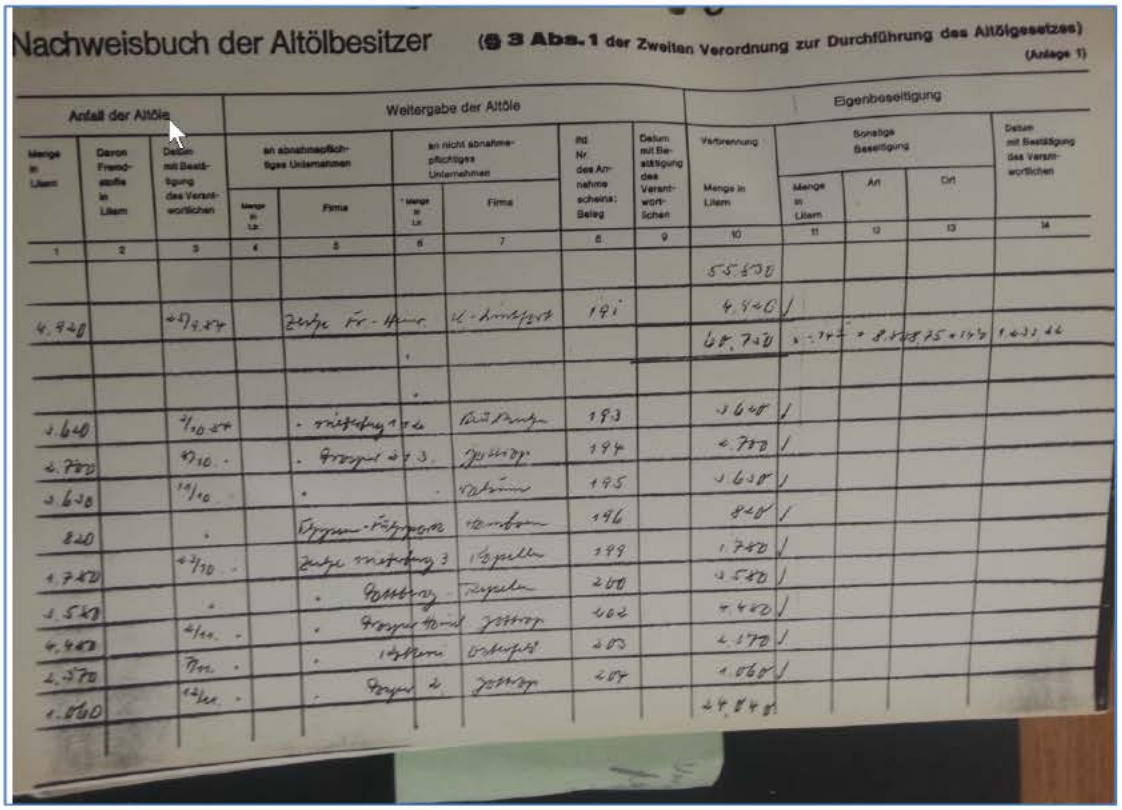
Es wurden noch weitere Datenquellen ausgewertet, die möglicherweise Hinweise auf den untertägigen Verbleib oder die Entsorgung von PCB geben können.

- Zulassungen (i.d.R. Sonderbetriebspläne) aller eingesetzten Betriebsstoffe und Betriebsstoffe (u. a. PCB haltige Öle) gemäß Aktenvorgängen AZ: 13.31. Die Zulassungen ergeben keine Informationen hinsichtlich potentieller untertägiger PCB-Emittenten.

- Entsorgungsnachweise (Kreislaufwirtschaftsgesetz) für Altöle (Beispiel Abb. 25). PCB-haltige Öle wurden jedoch erst ab 1984 separat erfasst. Die Entsorgungsnachweise ergeben keine Informationen hinsichtlich potentieller PCB-Emittenten.

- Internes Umweltmanagementhandbuch (RAG): Verfahrensanweisungen zum Umgang mit Betriebsstoffe; jedoch keine Hinweise auf potentiellen PCB-Emittenten.

- Betriebsbücher wurden nur in den Bergwerken an der Saar geführt.


Nachweisbuch der Altölbesitzer (§ 3 Abs. 1 der Zweiten Verordnung zur Durchführung des Altölgesetzes) (Anlage 1)

Anfall der Altöle | Weitergabe der Altöle | Eigenbeseitigung

Menge in Litern	Davon Frischöle in Litern	Datum mit Bestätigung des Verantwortlichen	an abnahmepflichtiges Unternehmen: Menge in Litern	an abnahmepflichtiges Unternehmen: Firma	an nicht abnahmepflichtiges Unternehmen: Menge in Litern	an nicht abnahmepflichtiges Unternehmen: Firma	lfd. Nr. des Annahmescheins; Beleg	Datum mit Bestätigung des Verantwortlichen	Verbrennung: Menge in Litern	Sonstige Beseitigung: Menge in Litern	Sonstige Beseitigung: An	Sonstige Beseitigung: Ort	Datum mit Bestätigung des Verantwortlichen
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
									55.530				
4.920		27/9.84		Zentr. Fr.-Hamm		K.-Anlieferst.	191		4.920				
									60.750				
1.640		4/10.84		Fr.-Anlieferung 1+2		Rütt. Betrieb	193		1.640				
2.730		4/10.		Prosper 2+3		Zentr.	194		2.730				
1.638		11/10.		"		Rotation	195		1.638				
820		"		Eppmann-Fahrzeuge		Hamborn	196		820				
1.750		17/10.		Zentr. Anlieferung 3		Bergeller	199		1.750				
1.540		"		" Bohrung		Bergeller	200		1.540				
4.480		4/11.		" Prosper Hand		Zentr.	202		4.480				
2.570		7/11.		" Hoffmann		Bohrgerät	203		2.570				
1.060		12/11.		" Prosper 2		Zentr.	204		1.060				
									24.848				

Abb. 25: Auszug aus dem Nachweisbuch für Altölbesitzer (Bergwerk Prosper Haniel) ohne Differenzierung in PCB-haltige Öle und sonstige Öle

8.2 Potentielle PCB Verteilung in der Wasserprovinz Haus Aden

Im Rahmen der Risikoabschätzung gehen die Gutachter davon aus, dass sich ein Großteil der PCB-haltigen Betriebsstoffe noch unter Tage befindet. In Folge wird betrachtet, wo sich diese PCB befinden können und welche Art der Dokumentation vorliegt.

Für die Risikoanalyse wird zwischen drei Arten von potentiellen PCB Verteilungen unterschieden:

1. Disperse Verteilung

a. <u>Sediment (partikuläres Material) im Alten Mann</u>

Wie in 0 dargestellt wurde ein Großteil der eingesetzten Hydraulikflüssigkeiten unter Tage verbraucht und somit freigesetzt. Auf Grundlage der oben beschriebenen Sachverhalte (s. Dokumentation im Gesamtgutachten) kann die PCB Belastung im Alten Mann in den Abbaubereichen der Walzenschrämlader sehr grob mit 34 – 51 vgl/m² bzw. 170 – 510 mg/kg abgeschätzt werden (vgl. Abb. 7). Bei den anderen Abbauarten (z. B. Kohlehobel) und beim Einsatz in Kupplungen und von Seilmaschinen traten ebenfalls erhebliche Verluste von PCB-haltigen Betriebsstoffe auf, die sich aber räumlich nicht so genau wie beim Einsatz von Walzenschrämladern zuordnen lassen.

b. Sediment (partikuläres Material) im Bereich offener Strecken (Wasserwege)

Die offenen Strecken sind das heutige (in den bereits gefluteten Grubenbereichen) und zukünftige Grubenwasserfließsystem (Röhrensystem). In offenen Strecken im Schacht Grimberg wurden im Rahmen der Beprobung am 18.02.2016 fünf Sedimentproben genommen, deren Analyse eine Belastung zwischen ca. 4 und 30 mg/kg mit einer mittleren PCB-Belastung von ca. 13 mg/kg ergab (s. Tab. 16). Die ermittelten Werte sind nicht repräsentativ, geben aber einen groben Hinweis auf das ungefähre Belastungsniveau im Bereich offener Strecken. Im Vergleich zu den abgeschätzten Belastungen im Alten Mann sind sie deutlich niedriger.

2. Punktuelle PCB-Belastungen

Standorte von:

a. Infrastruktureinrichtungen (wie Lokschuppen, Werkstätten mit Tanklagern, Fasslagern, Ölsammelstellen)

In der Regel waren diese Infrastruktureinrichtungen pro Sohle jeweils einmal vorhanden. Im Bereich des Einzugsgebiet Victoriadamm wurden ca. 60 Bauhöhen abgebaut, so dass auch von einer ungefähr gleichen Anzahl der jeweiligen Infrastruktureinrichtungen ausgegangen werden kann. Für diese Bereiche sind aufgrund eines intensiven Umgangs mit PCB-haltigen Betriebsstoffe höhere PCB-Gehalte als in den offenen Strecken zu vermuten (>> 13 mg/kg, bzw. 1,3 t/km^2). Da diese Standorte aus der „PCB-Zeit“ in der Wasserprovinz Haus Aden heute nicht mehr zugänglich sind, kann diese Vermutung nicht durch Analysen bestätigt werden. Die Standorte können aus den Grubenbildern abgeleitet werden. Bei einem ordnungsgemäßen Rückzug aus den Bergwerken wurden nach Aussage der RAG alle Tank- und Fasslager und Ölsammelstellen zurückgebaut und entsorgt. Bei der Auswertung der Akten (siehe Dokumentation im Gesamtgutachten) ergaben sich keine Hinweise auf ein gegenteiliges Verhalten.

Eine Recherche im Zentralarchiv der RAG, ob solche Akten aus der PCB-Zeit noch vorhanden sind, ist noch nicht abgeschlossen.

Das Risswerk wurde nicht hinsichtlich der Lage aller Infrastruktureinrichtungen wie Werkstätten ausgewertet.

b. Pumpensümpfe / Sumpfstrecken

Hierbei handelt es sich um Teile der Grubenbaue an den tiefsten Stellen der Bergwerke, an denen sich die Grubenwässer sammelten, ehe sie an die Tagesoberfläche gepumpt wurden. In den Sumpfstrecken sedimentierten die in den Grubenwässern enthaltenen Schwebstoffe. Auch hier ist zu vermuten, dass höhere PCB-Gehalte in den Schlämmen auftreten. Viele Pumpensümpfe/ Sumpfstrecken aus der „PCB-Zeit“ sind heute nicht mehr zugänglich. Es gibt aber noch einige Pumpensümpfe/ Sumpfstrecken auf Haus Aden, die in abgeworfenen Bereichen hinter Dämmen liegen. Der Zustand hinter den Dämmen ist nicht bekannt. Eine Öffnung der Dämme und Begehung ist mit Unsicherheiten (Stabilität der Strecken), Risiken (schädliche Gase) und hohem Aufwand (Bewetterung, Stabilisierung der Strecken) verbunden. Eine Öffnung der Dämme und Beprobung ist aufgrund der hohen Risiken zzt. nicht geplant.

Das Risswerk wurde nicht hinsichtlich der Lage aller Pumpensümpfe und Sumpfstrecken ausgewertet.

c. Umgelagerte Schlämme aus Pumpensümpfen/ Sumpfstrecken

Wenn das Fassungsvermögen einer Sumpfstrecke erschöpft war, wurden die Schlämme in andere, nicht mehr benötigte Grubenbaue umgelagert. Für die Zugänglichkeit gilt dasselbe wie für die Pumpensümpfe /Sumpfstrecken.

Das Risswerk wurde nicht hinsichtlich der Lage aller Pumpensümpfe und Sumpfstrecken ausgewertet.

d. Unfälle

Nur im Bergwerk West ist ein Unfall dokumentiert bei dem größere Mengen PCB ausgetreten sind. Der Bereich wurde mit Beton abgedeckt. Angaben über die damalige Sedimentbelastung mit PCB liegen nicht vor, sondern nur Analysen der Grubenwässer.

3. Umschlossene Quellen

a. Zurückgelassene Maschinen

Zurückgelassene Maschinen (wie Tunnelbohrmaschinen) sind gemäß den Sonderbetriebsplänen zu entleeren und zu reinigen.

In den ausgewerteten Unterlagen der BR Arnsberg gibt es keine Hinweise auf ein abweichendes Verhalten. Eine Recherche im Zentralarchiv der RAG, ob solche Akten aus der PCB-Zeit noch vorhanden sind, ist noch nicht abgeschlossen.

b. Transformatoren/Kondensatoren

Das LOBA hat im Juni 1984 ein Kataster für diese Geräte angelegt. Für den Zeitraum 1983/1984 wurden 7.042 Trafos und 30.736 Kondensatoren sowie weitere 729 Geräte mit einer PCB-Füllung von insgesamt 143.629 Liter erfasst. Gemäß der Aktenlage wurden diese Geräte durch die Firmen BBC, ASEA und Siemens geordnet entsorgt und die Entsorgung wurde nachgewiesen (s. Dokumentation im Gesamtgutachten).

In der Risikoanalyse wird auch der Fall berücksichtigt, dass es unter Tage noch „PCB-gefüllte umschlossene Quellen“ zu denen auch Trafos gehören, gibt.

c. Gefüllte Fässer, Tanks

In den ausgewerteten Unterlagen (BR Arnsberg, RAG) gibt es keine Hinweise auf den Verbleib von „PCB-gefüllten umschlossenen Quellen“ unter Tage.

Ausgelöst durch eine anonyme Anzeige beim WDR am 4.4.1986, dass mehrere 1000 L PCB in ca. 50 Fässern im BW Consolidation hinter dem Damm 9327, 9. Sohle in 950 m Tiefe, illegal entsorgt wurden, erfolgte durch die Staatsanwaltschaft Essen eine Untersuchung des Vorgangs. Eine Zusammenfassung des Ermittlungsstandes vom 10.04.1986 ist in der Dokumentation im Gesamtgutachten enthalten. Das Ergebnis war:

- „*Nach den bisherigen Ermittlungen – und 5 Zeugenaussagen – muss davon ausgegangen werden, dass ausschließlich leere Fässer und Kanister eingestapelt wurden*“
- „*nach übereinstimmenden Aussagen von 5 Zeugen waren die Fässer und Kanister leer“*
- *„Möglicherweise ist eine unbestimmte Anzahl von Fässern und Kanistern vormals mit PCB-haltigen Flüssigkeiten gefüllt gewesen“*

Zur Frage, ob die Fässer hinter dem Damm verbleiben können, wurde ein Gutachter eingeschaltet. Der Gutachter, die Westfälische Berggewerkschaftskasse (WBK), Prof. Dr. [redacted], kam 24.06.1986 zu dem Schluss:

- *„Die leeren Fässer und Kanister können somit …verbleiben, ohne daß eine schädliche Verunreinigung des Wassers und des Grubenwassers oder eine sonstige nachteilige Veränderung seiner Eigenschaften zu besorgen ist (s. Dokumentation im Gesamtgutachten)“*

In der Risikoanalyse wird auch der Fall berücksichtigt, dass es unter Tage noch „PCB-gefüllte umschlossene Quellen“, zu denen auch Fässer und Tanks gehören, gibt.

8.3 Abschätzung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage verbliebenen Mengen PCB

8.3.1 Abschätzung des PCB-Eintrags

Eine genaue Bilanzierung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage eingesetzten PCB-haltigen Betriebsstoffe ist auf Grundlage der verfügbaren Informationsquellen (vgl. Abschn. 7.5.1 und 8.1) nicht möglich. Zur Verteilung der eingesetzten PCB-Mengen auf die einzelnen Bergbaugebiete und Bergwerke gibt es keine Informationen. Für eine Abschätzung der ungefähren Größenordnung der in der Wasserprovinz Haus Aden eingesetzten Mengen PCB-haltiger Betriebsstoffe unter Tage werden die in Abschnitt 7.5.2 für Nordrhein-Westfalen und Abschnitt 7.5.3 für das Bundesgebiet abgeschätzten Einsatzmengen als Grundlage verwendet.

Die Abschätzung kann über eine postulierte Korrelation von PCB-Einsatz und Kohleförderungsrate erfolgen. Somit kann zur Abschätzung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage eingesetzten PCB-Mengen angenommen werden, dass sich diese gemäß der Anteile der Kohlenförderung innerhalb der Wasserprovinz Haus Aden an der Gesamtfördermenge Nordrhein-Westfalens bzw. am Bundesgebiet über die Jahre verteilen. Die Anteile an der Gesamtfördermenge sind der Statistik der Kohlenwirtschaft e.V. zu entnehmen.

Abschätzung I: Grundlage – Deutscher Bundestag (1984) (Abschn. 7.5.2)

Für die Jahre 1964 bis 1976 betrug der Anteil der Kohlenförderung innerhalb der Wasserprovinz Haus Aden an der Gesamtfördermenge Nordrhein-Westfalens durchschnittlich 14 % (gelb markiert), die Werte für die Jahre 1977 bis 1983 sind in Tab. 6 dargestellt. Diesem Ansatz folgend ergeben sich für die in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage eingesetzten PCB-haltigen Betriebsstoffe die in Tab. 6 dargestellten extrapolierten Werte (blau markiert), die aufsummiert eine Gesamtmenge von rund **2.400 t** ergeben (alle PCB-Verbrauchsquellen). Bei diesem Wert handelt es sich nur um eine Abschätzung der Größenordnung. Eine Quantifizierung und Wiedergabe exakter Mengen ist nicht möglich.

Tab. 6: Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsstoffe im Wasserprovinz Haus Aden/Monopol über Anteile an der Kohlenförderung (Daten Deutscher Bundestag 1984)

	1964 - 1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	Summe
Menge der im Steinkohlenbergbau in Nordrhein-Westfalen genutzten PCB-haltigen Betriebsstoffe [t]	6.500	1.200	1.250	1.335	1.400	1.460	1.400	1.250	15.795
Anteil der Kohlenförderung in der Wasserprovinz Haus Aden an NRW [%]	14	16	16	16	17	17	17	16	
eingesetzte Menge PCB-haltiger Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage [t]	912	187	195	218	236	245	231	199	2.423

Abschätzung II: Grundlage: Rauhut (Abschn. 7.5.3)

Für die Jahre 1964 bis 1973 betrug der Anteil der Kohlenförderung innerhalb der Wasserprovinz Haus Aden an der Gesamtfördermenge des gesamten Bundesgebietes durchschnittlich 12 % (gelb markiert), die Werte für die Jahre 1977 bis 1983 sind in Tab. 7 dargestellt. Diesem Ansatz folgend ergeben sich für die in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage eingesetzten PCB-haltigen Betriebsstoffe die in Tab. 7 dargestellten extrapolierten Werte (blau markiert), die aufsummiert eine Gesamtmenge von rund **2.300 t** ergeben (alle PCB-Verbrauchsquellen). Bei diesem Wert handelt es sich nur um eine Abschätzung der Größenordnung. Eine Quantifizierung und Wiedergabe exakter Mengen ist nicht möglich.

Tab. 7: Extrapolation eingesetzter PCB-haltiger Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden über Jahresverbrauch und Anteile an der Kohlenförderung

	1964 - 1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980
Menge eingesetzter PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Bergbau auf Bundesgebiet [t]	4.412	871	818	930	967	1.158	1.361	1.587
Anteil der Kohlenförderung in der Wasserprovinz Haus Aden an der BRD [%]	12	5	5	5	5	5	6	6
eingesetzte Menge PCB-haltiger Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage [t]	553	134	122	136	134	161	197	236

	1981	1982	1983	1984	Summe
Menge eingesetzter PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten im Bergbau auf Bundesgebiet [t]	1.350	1.482	1.241	607	**16.784**
Anteil der Kohlenförderung in der Wasserprovinz Haus Aden an der BRD [%]	6	6	6	6	
eingesetzte Menge PCB-haltiger Betriebsstoffe in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage [t]	199	214	173	87	**2.347**

Es ergeben sich geringfügige Unterschiede beim Bezug der Kohleförderung nur auf NRW oder die gesamte BRD (2.347 bis 2.423 t PCB). Im Folgenden wird von einem Einsatz von **2.400 t PCB** in der Wasserprovinz Haus Aden ausgegangen.

Gemäß der oben dargelegten Vorgehensweise zur Abschätzung der eingesetzten PCB-Mengen über die Kohlenförderung ergibt sich für das Einzugsgebiet Victoriadamm eine eingesetzte PCB-Menge von **ca. 780 t** PCB.

Die restlichen Mengen, ca. 1.620 t PCB, wurden demnach im Einzugsgebiet Ost eingesetzt. Der Hauptanteil der Kohlenförderung im Einzugsgebiet Ost erfolgte im Bergwerk Heinrich Robert.

8.3.2 Abschätzung des PCB-Austrags aus der Wasserprovinz Haus Aden

8.3.2.1 Abschätzung des Austrages über das Fördergut

Für die Abschätzung des Austrages PCB-haltiger Flüssigkeiten aus der Wasserprovinz Haus Aden über das Fördergut werden nur Verluste beim Abbau mit Walzenschrämladern betrachtet. Verluste über Kohlehobel, Kupplungen und Seilbandmaschinen und deren Austrag über das Fördergut lassen sich nicht abschätzen und werden daher nicht berücksichtigt. Es werden folgende Annahmen getroffen:

- Der Verlust an PCB betrug jährlich 6 bis 9 T pro Walzenschrämlader.
- Der Anteil des jährlichen Austrages über Kohle und Berge an diesen Verlusten kann nicht exakt bestimmt werden und wird mit 25 bis 75 % abgeschätzt. Diese Spanne berücksichtigt die hohe Affinität der lipophilen PCB an partikuläres Material, insbesondere an kohlehaltige Materialien zu adsorbieren (s. Kap. 10 – Freisetzung).
- Vordringen vollmechanischer schneidender Gewinnung mit Walzenschrämlader gab es erst ab 1970 (Reuther 1982). Dies bedeutet eine Einsatzzeit der Walzenschrämlader mit PCB-haltigen Betriebsstoffen mit zunehmenden Anteilen von ca. 15 Jahren.
- Die Anzahl der in der Wasserprovinz Haus Aden im Zeitraum von 1970 bis 1984 eingesetzten Walzenschrämlader wird durch den durchschnittlichen Anteil der Wasserprovinz an der Gesamtkohlenförderung von NRW (14 % bis 17 %) abgeschätzt. Damit ergibt es eine vermutete Anzahl von sieben Walzenschrämladern. Dies stimmt mit den Angaben der RAG überein (RAG 2016).

Nach diesem Ansatz kann für die heutige Wasserprovinz Haus Aden für den Einsatzzeitraum von 1970 bis 1984 ein Austrag PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten aus den Bergwerken durch Fördergut wie folgt abgeschätzt werden:

Sieben Walzenschrämlader mit einem jährlichen Verlust von 6 bis 9 Tonnen PCB- und einem davon 25 %-, 50 %-, bzw. 75 %igen Austrag über das Fördergut im Zeitrahmen von 15 Jahren:

25 %: rund **160 – 240 t**
50 %: rund **320 – 470 t**
75 %: rund **470 – 710 t**

8.3.2.2 Abschätzung des Austrags über die Entsorgung

Für den Austrag PCB-haltiger Flüssigkeiten aus der Wasserprovinz Haus Aden über die Entsorgung wird von einer maximalen Entsorgungsrate von 5 % ausgegangen (vgl. Abschn. 7.6.2).

8.3.3 Gesamtabschätzung Verbleib unter Berücksichtigung eines Austrags

Basierend auf den unterschiedlichen Ansätzen zum Einsatz PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten in der Wasserprovinz Haus Aden (Abschn. 8.3.1) ergeben sich unter Berücksichtigung der Abschätzung des Austrages über das Fördergut (Abschn. 8.3.2.1) und die Entsorgung (Abschn. 8.3.2.2) für die in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage verbliebenen Mengen PCB-haltiger Hydraulikflüssigkeiten folgenden Gesamtmengen:

Abschätzung I:

geschätzte Gesamtmenge PCB	**geschätzter Anteil PCB Adsorption an Material gefördert nur durch Walzenschrämlader**		**geschätzter Anteil geregelter PCB-Entsorgung**		**verbliebene PCB-Gesamtmenge**
[t]	***[%]***	**[t]**	***[%]***	**[t]**	**[t] gerundet**
2.400	*25*	160 – 240	*5*	120	**2.000 – 2.100**
2.400	*50*	320 – 470	*5*	120	**1.800 – 2.000**
2.400	*75*	470 – 710	*5*	120	**1.600 – 1.800**
			Abschätzungsbereich		**1.600 – 2.100**

Abschätzung II:

geschätzte Gesamtmenge PCB	**geschätzter Anteil PCB Adsorption an Material gefördert nur durch Walzenschrämlader**		**geschätzter Anteil geregelter PCB-Entsorgung**		**verbliebene PCB-Gesamtmenge**
[t]	***[%]***	**[t]**	***[%]***	**[t]**	**[t] gerundet**
2.300	*25*	160 – 240	*5*	115	**1.900 – 2.000**
2.300	*50*	320 – 470	*5*	115	**1.700 – 1.900**
2.300	*75*	470 – 710	*5*	115	**1.500 – 1.700**
			Abschätzungsbereich		**1.500 – 2.000**

Bei diesem Werten handelt es sich nur um eine Abschätzung der Größenordnung, eine Quantifizierung und Angabe exakter Mengen ist nicht möglich.

Zur Beantwortung der Frage, welche durchschnittliche Flächenbelastung in allen BW (außerhalb der Abbaubereiche durch die Walzenschrämlader) angenommen werden kann, dient folgende Abschätzung.

Eine Flächenbelastung von 16 t / km^2 kann angenommen werden, wenn davon ausgegangen wird, dass die eingesetzten ca. 15.795 t PCB gleichmäßig auf die in der PCB-Zeit abgebauten 735 km^2 verteilt sind und ein 25 %-Austrag stattgefunden hat.

Eine Flächenbelastung von 10 t / km^2 kann angenommen werden, wenn davon ausgegangen wird, dass die eingesetzten ca. 15.795 t PCB gleichmäßig auf die in der PCB-Zeit abgebauten Kohlen (ca. 735 km^2) gleichmäßig verteilt sind und ein 50 % Austrag stattgefunden hat.

8.4 Flächenmäßige Verteilung der in der Wasserprovinz Haus Aden unter Tage verbliebenen Mengen PCB

Nach Detailauswertungen an den drei Baufeldern Prosper Nord, Auguste Victoria Baufeld 50 und Ost Baufeld Monopol geht die RAG (RAG 2016) davon aus, dass der Flächenanteil der Strecken zusätzlich ca. 5 % der Abbauflächen (Alter Mann) beträgt.

Für den Alten Mann werden langfristig Durchlässigkeiten von 1 x 10^{-8} m/s (GRS 1998) angenommen. In den Grundwasserströmungsmodellierungen (Detailbericht 5) wurde als ungünstige Annahme eine fünfmal höhere Durchlässigkeit von 5 x 10^{-8} m/s angenommen. Ein nicht quantifizierbarer Anteil der zunächst offenen Strecken verbricht nach und nach. Von diesen ca. 5 % Strecken wird deshalb längerfristig nur ein kleinerer, nicht quantifizierbarer Anteil, durchströmt.

Die Wasserprovinz Haus Aden gliedert sich in drei Bereiche (Abb. 26)

1) Einzugsgebiet Victoriadamm

2) Einzugsgebiet Ost

3) Zugängliche Bereiche zwischen Haus Aden 2 und Schacht Grimberg 2

Für diese einzelnen bereits gefluteten und die nicht gefluteten Bereiche wurde jeweils abgeschätzt:

- Flächen Alter Mann und offene Strecken (heutige und spätere Wasserwege)

- PCB-Massen in den einzelnen Bereichen

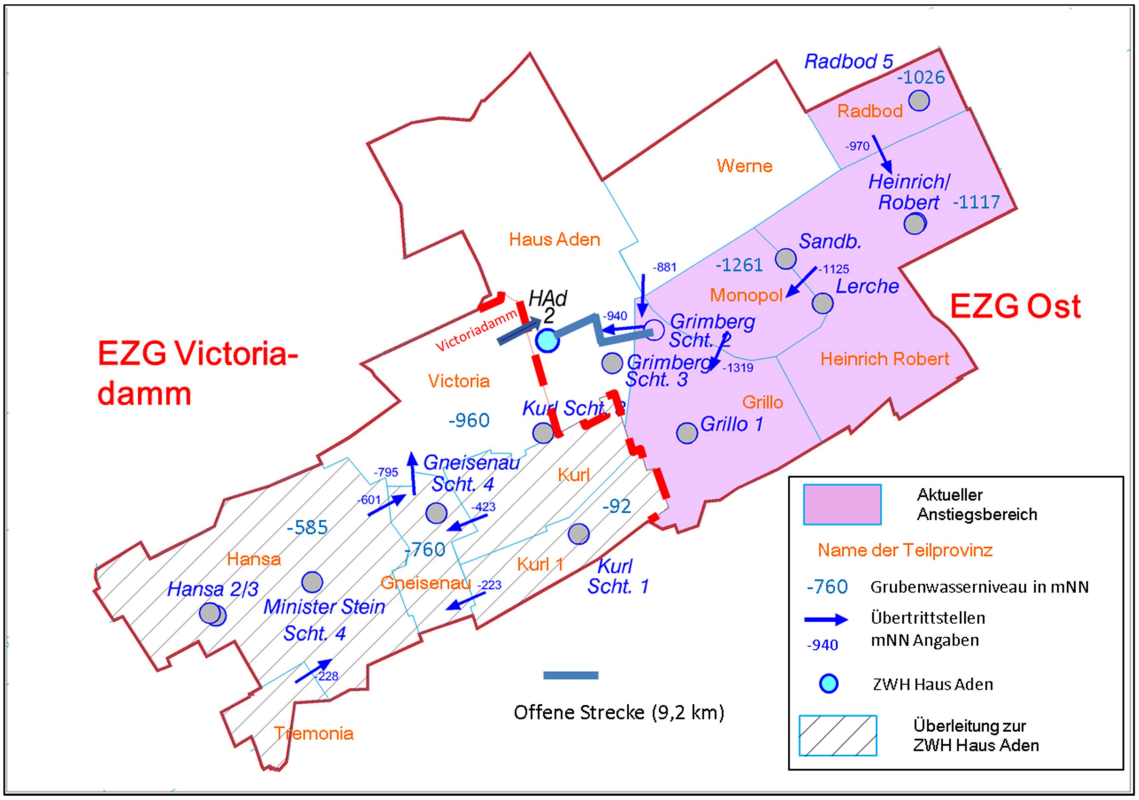


Abb. 26: Wasserprovinz Haus Aden mit Einzugsgebiet Victoriadamm und Einzugsgebiet Ost, Grubenwasserständen und Überleitungshöhen (Stand 3/2016, Abbildung RAG 2016)

8.4.1 Einzugsgebiet Victoriadamm

Die Abb. 26 zeigt die Wasserprovinz Haus Aden unterteilt in die einzelnen Teilprovinzen, die den ehemaligen BW entsprechen, mit dem Einzugsgebiet Victoriadamm und Einzugsgebiet Ost, die Grubenwasserstände (Stand 3/2016) und Überleitungshöhen zwischen den einzelnen Teilprovinzen.

Insgesamt wird der PCB-Einsatz in der Wasserprovinz Haus Aden zwischen 2.347 t und 2.423 anhand der gesamten Kohleförderung geschätzt. Eine entsprechende Abschätzung nur für das Einzugsgebiet Victoriadamm ergibt einen PCB-Einsatz von ca. **780 t.**

Die PCB-Belastung in den offenen Strecken beträgt etwa 1,3 t/km^2 gemäß der bislang genommenen Bodenproben. Die Tab. 8 zeigt zusammenfassend das Ergebnis für verschiedene spezifische Flächenansätze für die Belastung.

Unabhängig von den hier angenommenen Belastungsverteilungen zwischen 10 und 51 t PCB/km^2 ist aus Tab. 8 abzuleiten, dass die PCB-Massen mit 99 % im Alten Mannes liegen.

Ursache dafür ist der hohe Flächenanteil des Alten Mann an den Grubengebäuden und die höhere spezifische Flächenbelastung an PCB durch den Kohlenabbau gegenüber den offenen Strecken.

Tab. 8: Vergleich der PCB-Belastungen bei verschiedenen Flächenansätzen im Einzugsgebiet Victoriadamm

Bereich	Fläche km2		10 t PCB/km2		16 t PCB/km2		34 t PCB/km2		51 t PCB/km2	
	Abbau (Alter Mann, AM)	Strecke	AM	Strecke*	AM	Strecke*	AM	Strecke*	AM	Strecke*
geflutet	35,1	1,8	351	2,34	562	2,34	1.193	2,34	1.790	2,34
Anstieg bis -600 mNHN in den Teilprovinzen	7,6	0,4	76	0,52	122	0,52	258	0,52	388	0,52
Vollanstieg	21,5	1,1	215	1,43	344	1,43	731	1,2	1097	1,2
Summe	64,2	3,3	642	4,3	1.027	4,3	2.182	4,1	3.275	4,3
Verhältnis PCB im AM Strecke			**99,3 : 0,7**		**99,6 : 0,4**		**99,8 : 0,2**		**99,9 : 0,1**	

Eine Flächenbelastung von 10 t / km^2 wird als ein oberer, realistischer Wert angesehen, da sich bei höheren Werten (16-51 t/km^2) deutlich zu große PCB-Gesamtmengen für das Einzugsgebiet Victoriadamm ergeben (Abschätzung Einsatz 780 t).

Die Tab. 9 zeigt die Flächengrößen der einzelnen Abbaubereiche, aufgeteilt nach Strecke und Alter Mann, geflutet und nicht geflutet, sowie die Abbauzeit in oder außerhalb der PCB-Anwendungszeiten sowie die hier angenommenen PCB-Mengen.

Tab. 9: Größe der Abbauflächen und PCB-Belastung durch Verluste im Einzugsgebiet Victoriadamm bei einer Belastung von 10 t / km^2

	Fläche [km^2]	Belastung [t/km^2]	Masse PCB [t]
Abbau (Alter Mann) gesamt	337,1		
Abbau (Alter Mann) außerhalb PCB-Zeit	270,5		
Abbau PCB-Zeit gesamt	64,2		
Abbau PCB-Zeit geflutet	35,1	10	350
Strecken (5 %) geflutet	1,8	1,3	2,34
PCB-Zeit nicht geflutet	29,1	10	291
Strecken (5 %) nicht geflutet	1,5	1,3	2,1
Summe			**645,4**
bereits geflutet außerhalb PCB-Zeit	47,3		
noch nicht geflutet außerhalb der PCB-Zeit	223,2		

Diese Summe der PCB-Verluste liegt um ca. 135 t niedriger als die für das Einzugsgebiet Victoriadamm abgeschätzte Einsatzmenge von 780 t anhand des Ansatzes über

die Kohlenförderung. Dies zeigt, dass es heute – auch über verschiedene Ansätze – nicht mehr möglich ist eine genaue Verteilung der untertägigen PCB zu ermitteln. **Dennoch gilt, dass die größten PCB-Massen im Alten Mann liegen.**

Weiterhin zeigt die Tab. 9, dass der überwiegende Teil der Abbaue außerhalb der PCB-Zeit stattfand (80 %). Von den Abbauen aus der PCB-Zeit sind bereits ca. 53 %, 35 km^2, geflutet. Dies betrifft auch Bereiche aus alten BW, die höher als -600 mNHN liegen. Damit kann das Einzugsgebiet Victoriadamm als ein typischer Bereich angesehen werden, an dem die PCB-Belastung im Grubenwasser in einem seit längerem stillgelegten Bereich abgeleitet werden und wo bereits größere Abbaubereiche aus der PCB-Zeit geflutet sind.

Von den noch nicht gefluteten PCB-Bereichen im Einzugsgebiet Victoriadamm liegen die meisten Flächen in der Teilprovinz Hansa (17 km^2). Diese würden aber erst bei einem Grubenwasseranstieg höher als -600 mNHN geflutet. Bei einem Grubenwasseranstieg bis -600 mNHN in den Teilprovinzen (wie von der RAG beantragt) würden in den einzelnen Teilprovinzen weitere 7,7 km^2 geflutet.

Bei einer Flutung – unabhängig von der Höhe – nimmt im Einzugsgebiet Victoriadamm der Anteil der Flächen außerhalb der PCB-Zeit gegenüber den Flächen aus der PCB-Zeit zu, da nur ca. 20 % der Flächen aus der PCB-Zeit stammen, aber ca. 80 % außerhalb der PCB-Zeit.

Zurzeit beträgt gemäß Tabelle 9 das Verhältnis geflutete Flächen aus der PCB-Zeit/geflutete Flächen außerhalb der PCB-Zeit **1 : 1,4** (35 km^2 : 47 km^2). Bei einer vollständigen Flutung aller Abbauflächen wäre das Verhältnis geflutete Flächen aus der PCB-Zeit/geflutete außerhalb der PCB-Zeit **1 : 4,2** (64,2 km^2 : 270,5 km^2).

8.4.1.1 Teilprovinz Victoria

Der Victoriadamm liegt im nordöstlichen Bereich der Teilprovinz Victoria (Abb. 26). Die Bereiche Victoria 1/2/3/4 werden zusammenfassend betrachtet. Am Victoriadamm werden auf einer Höhe von -960 mNHN zur Zeit Grubenwässer in Höhe von ca. 22 bis 24 m^3/min angenommen und über eine geschlossene Leitung nach übertage gepumpt und dann in die Lippe eingeleitet[4]. Hinter dem Victoriadamm steht im Baufeld Victoria geflutetes Resthohlraumvolumen von ca. 4 Mio. m³ an, das seit Ende der 1990er Jahre in eingestaut ist. Die Abbautiefen reichten hier bis ca. -1.460 mNHN. Die wassererfüllte Mächtigkeit im Bergwerk Victoria beträgt damit ca. 500 Meter. Diese mehrere 10er Kilometer langen wassergefüllten Strecken haben ein Gesamtvolumen von ca. 3 Mio. m^3 und dienen aufgrund der geringen Fließgeschwindigkeit auch als Sedimentationstrecke. Weitere 22 Mio. m^3 Wasser sind in den übrigen Teilprovinzen eingestaut, die im Folgenden beschrieben werden.

Die Größe der gesamten Abbauflächen liegt bei ca. 52 km^2. Die Abbaue während der PCB-Zeit[5] liegen hier zwischen -700 mNHN und -1.100 mNHN, mit einem Schwerpunkt zwischen -800 mNHN und -1.000 mNHN mit einer Größe von insgesamt 14 km^2. Bei

[4] Die aktuelle Grubenwasseranalyse ist im Detailbericht 3 dargestellt. An dieser Grubenwassereinleitung wurde auch die Untersuchungskampagne des LANUV in 2015 durchgeführt.

[5] Unter der „PCB-Zeit“ wird hier die Zeit zwischen 1964 bis 1986 verstanden. Zwischen 1983 und 1992 wurde unter Tage (z. B. bei Neubefüllung von Maschinen) statt PCB Ugilec eingesetzt. PCB war aber weiterhin bis 1986 im Einsatz.

einem derzeitigen Wasserstand von -960 mNHN sind hiervon ca. 9 km^2 bereits geflutet (Tab. 10).

Tab. 10: Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Victoria

	Fläche km^2
Abbau (Alter Mann) gesamt	52
davon PCB-Zeit	14
PCB-Zeit geflutet	9
Strecken	0,45
PCB-Zeit nicht geflutet	5
Strecken	0,25

Wie die Abb. 27 zeigt besteht zwischen den Teilprovinzen Hansa, Gneisenau und Haus Aden/Victoria ein großes Gefälle. Zudem werden die Abbaue oberhalb der derzeitigen Grubenwasseroberflächen zwischen 585 mNHN und -960 mNHN im Einzugsgebiet Victoriadamm und 1.261 mNHN und 1.026 mNHN im Einzugsgebiet Ost ebenfalls mit hohem Gefälle von Wasser aus dem Deckgebirge durchströmt.

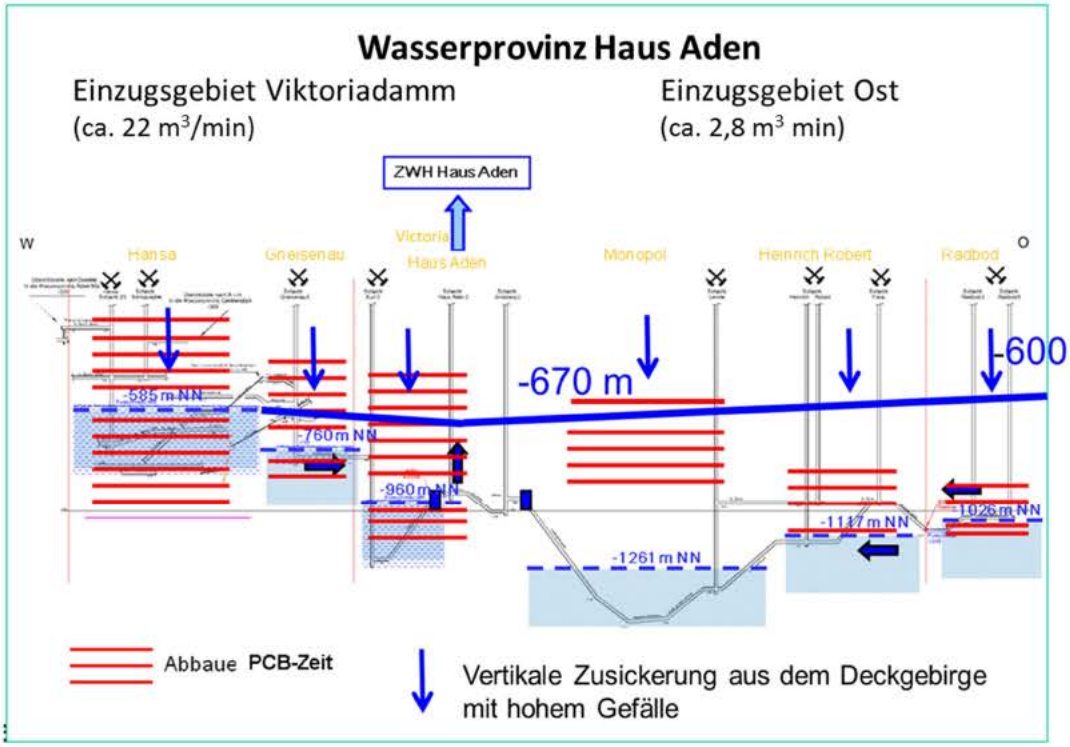


Abb. 27: Potentialdifferenzen Stand 3/2016 zwischen den Teilprovinzen und überschlägige Darstellung der Abbau zur PCB-Zeit und geplanter Grubenwasseranstieg auf -670 mNHN in der Wasserhaltung und -600 mNHN in den Teilprovinzen (Quelle RAG, Ergänzungen ahu AG)

8.4.1.2 Teilprovinz Hansa

Der Abbau reichte von -167 mNHN bis -974 mNHN. Das Grubenwasser steht derzeit bei -585 mNHN. Derzeit sind 18 km^2 der Abbaue aus der PCB-Zeit bereits geflutet.

Tab. 11: Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Hansa

	Fläche [km^2]
Abbaue (alter Mann) PCB-Zeit	35
PCB-Zeit geflutet	18
Strecken	0,9
PCB-Zeit nicht geflutet*	17
Strecken	0,85

* Die noch nicht gefluteten Abbaubereiche aus der PCB-Zeit liegen **oberhalb** des Niveaus von -600 m. Das heißt, bei einem Grubenwasseranstieg bis auf ca. -600 mNHN würden diese Bereiche nicht geflutet, so dass von hier weiterhin Wässer mit teilweise hohen Fließgeschwindigkeiten und hohem Erosionspotential zufließen werden.

Die Übertrittstelle in die Teilprovinz Gneisenau liegt bei -601 mNHN. Das Grubenwasser überwindet dann kaskadenartig eine Höhendifferenz von ca. 175 m bis auf das Niveau von -760 mNHN in Gneisenau. Dies erfolgt über wassergefüllte Strecken, aber auch in offenen Gerinnen mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten. Ein Beispiel für ein solches Gerinne zeigt die Abb. 28. Die Grubenwassermenge, die in die Teilprovinz Gneisenau überströmt, beträgt ca. 1,7 m^3/min. Eine Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Hansa ist in Tab. 11 dargestellt.

In der Teilprovinz Hansa liegt bezogen auf das Einzugsgebiet Victoriadamm der größte Anteil der noch nicht gefluteten PCB-Bereiche.



Abb. 28: Beispiel für ein offenes Gerinne mit Erosionspotential im Schacht Grimberg

8.4.1.3 Teilprovinz Gneisenau

In der Teilprovinz Gneisenau reichte der Abbau von -290 mNHN bis ca. -787 mNHN (Abb. 27). Bereits beim Auffahren des Bergwerks im Jahr 1875 soff die Grube aufgrund starker Wasserzutritte aus dem Deckgebirge zunächst ab. Bis heute strömen große Wassermengen in Höhe von ca. 11 m^3/min aus dem Deckgebirge in das Bergwerk Gneisenau. Deshalb stammt auch heute noch ein Großteil der am Victoriadamm angenommenen Grubenwässern aus der Teilprovinz Gneisenau. Das Grubenwasser überwindet eine Schwelle bei -509 mNHN im Bergwerk Scharnhorst und fließt dann – wahrscheinlich auch über offene Gerinne – in den nördlichen Bereich der Teilprovinz Gneisenau bis auf das Niveau von -760 mNHN (Abb. 27).

Die Abbaue während der PCB-Zeit haben eine Fläche von 3 km^2 (Tab. 12) und liegen v. a. zwischen -500 mNHN und -800 mNHN, das heißt, die Abbaue aus dieser Zeit sind noch nicht geflutet und werden von den gerade hier sehr großen Wassermengen mit hohem Gefälle kaskadenartig durchströmt.

Tab. 12: Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Gneisenau

	Fläche [km²]
Abbaue (Alter Mann) PCB-Zeit	3
PCB-Zeit geflutet	0
PCB-Zeit nicht geflutet*	3
Strecken	0,15

* Die noch nicht gefluteten Abbaubereiche aus der PCB-Zeit liegen zu einem Drittel (1 km²) **oberhalb** des Niveaus von -600 mNHN. Das heißt, bei einem Grubenwasseranstieg bis auf ca. -600 mNHN würden diese Bereiche nicht geflutet, so dass von hier weiterhin Wässer mit teilweise hohen Fließgeschwindigkeiten und hohem Erosionspotential zufließen werden.

8.4.1.4 Teilprovinz Kurl

Auch in der Teilprovinz Kurl kommt es zu großen Wasserzutritten aus dem Deckgebirge in Höhe von ca. 6,5 m³/min. Der Wasserstand in Kurl liegt bei ca. -423 mNHN also in der Höhe der Übertrittstelle zur Teilprovinz Gneisenau bei -423 mNHN (Abb. 26). Die Abbaue während der PCB-Zeit mit einer Größe von 9 km² liegen zwischen -300 mNHN und -800 mNHN, so dass bereits große Bereiche (8 km²) eingestaut worden sind (Tab. 13).

Das Wasser überwindet dann kaskadenartig – und wahrscheinlich auch über offene Gerinne – einen sehr großen Höhenunterschied von 390 m auf dem Weg zum Victoriadamm. Die Fließmengen liegen ungefähr bei 7 m³/min.

Tab. 13: Untergliederung der Abbaufläche in der Teilprovinz Kurl

	Fläche [km²]
Abbaue (Alter Mann) PCB-Zeit	9
PCB-Zeit geflutet	8
Strecken	0,4
PCB-Zeit nicht geflutet*	1
Strecken	0,05

* Die vergleichbar kleinen noch nicht gefluteten Abbaubereiche aus der PCB-Zeit liegen **oberhalb** des Niveaus von -600 m. Das heißt, bei einem Grubenwasseranstieg bis auf ca. -600 mNHN würden diese Bereiche nicht geflutet, so dass von hier weiterhin Wässer mit teilweise hohen Fließgeschwindigkeiten und hohem Erosionspotential zufließen werden.

8.4.1.5 Teilprovinz Kurl 1

Auch in der Teilprovinz Kurl 1 kommt es zu großen Wasserzutritten aus dem Deckgebirge. Der Wasserstand in Kurl 1 liegt bereits bei -92 mNHN, das heißt das gesamte Bergwerk ist bereits bis ins Deckgebirge hinein eingestaut. Das Deckgebirge liegt hier bei -108 mNHN.

Das Bergwerk wurde bereits 1930 stillgelegt, so dass während der Abbauzeit kein PCB eingesetzt wurde.

Das Wasser fließt dann kaskadenartig – und wahrscheinlich auch über offene Gerinne – von -92 mNHN über den Übertritt bei -223 mNHN zum Bergwerk Gneisenau (-509 mNHN) und weiter zum Victoriadamm (-960 mNHN). Die Fließmengen liegen ungefähr bei 2 m^3/min.

Die hohen Potentialdifferenzen im Einzugsgebiet Victoriadamm in und zwischen den älteren Teilprovinzen treten auch deshalb auf, weil beim Rückzug die Wasserwege noch nicht für einen dauerhaften Grubenwasserdurchfluss gesichert worden waren wie es seit Mitte der 1990er Jahre der Fall ist (Beruhigungsstrecken Teilprovinz Victoria, Einzugsgebiet Ost). So ist z. B. im Bergwerk Kurl 1 ein Überstau von ca. 130 m erforderlich, damit das Grubenwasser zum Bergwerk Kurl übertritt.

8.4.2 Einzugsgebiet Ost

Das Einzugsgebiet Ost besteht aus den Teilprovinzen Haus Aden, Grillo, Heinrich Robert, Monopol Nord, Werne und Radbod. Das gesamte Einzugsgebiet Ost ist abgeworfen und nicht mehr zugänglich. Das Grubenwasser befindet sich in den Teilprovinzen Grillo, Heinrich Robert, Monopol Nord und Radbod im Anstieg und die Grubenwasserstände liegen derzeit bei ca. -1.125 mNHN und -1.026 mNHN (Abb. 26). Es gibt keine technischen Einrichtungen mehr, um den Wasserstand in diesem Bereich zu beeinflussen. Das Grubenwasser kann nicht beprobt werden. Eine Überleitung in die ZWH findet noch nicht statt.

Aus der Teilprovinz Werne fließt das Grubenwasser nach Haus Aden über. Der Grubenwasserstand in der Teilprovinz Haus Aden wird zurzeit auf dem Niveau von -940 mNHN gehalten. Die Wasserwege zwischen den Teilprovinzen sind – im Gegensatz zu den alten Verbindungen im Einzugsgebiet Victoriadamm – gezielt auf eine hohe und langfristige Durchlässigkeit ausgebaut (Detailbericht 1). Deswegen werden geringere Potentialdifferenzen zwischen den Teilprovinzen erwartet. Bis zu dem zugelassen Anstieg von -960 mNHN wird nur ein kleiner Flächenanteil aus der PCB-Zeit geflutet werden (Tab. 14). Der weitaus überwiegende Teil wird dann weiterhin von Grubenwässern mit hohem Potentialgefälle, teilweise hohen Geschwindigkeiten und hohem Erosionspotential durchflossen.

Tab. 14: Größe der Abbauflächen und PCB-Belastungen im Einzugsgebiet Ost

Einzugsgebiet Ost	**Fläche [in km²]**	**PCB [in t]**
Abbau (Alter Mann) gesamt	244	
Abbau (Alter Mann) außerhalb PCB-Zeit	178,3	
Abbaue PCB-Zeit gesamt	65,7	
Abbau PCB-Zeit geflutet	7,5	75
Strecken (5 %) geflutet	0,4	0,5
PCB-Zeit nicht geflutet	58,2	582
Strecken (5 %) nicht geflutet	2,9	3,8
Summe PCB		661,3
bereits geflutet außerhalb PCB-Zeit	15,5	
noch nicht geflutet außerhalb der PCB-Zeit	162,8	

Bei dem geplanten Anstieg bis auf -670 mNHN in der ZWH und ca. -600 mNHN in den Abbaubereichen wären die PCB-Abbaubereiche nahezu vollständig geflutet. Es würde dann nach wie vor zur Durchströmung alter, aber wahrscheinlich weitgehend PCB-freier Abbaubereiche und einem Eintrag von Schweb kommen.

Bei einer Flutung – unabhängig von der Höhe – nimmt auch im Einzugsgebiet Ost der Anteil der Flächen außerhalb der PCB-Zeit gegenüber den Flächen aus der PCB-Zeit zu, da nur ca. 27 % der Flächen aus der PCB-Zeit stammen, aber ca. 73 % außerhalb der PCB-Zeit.

Zur Zeit beträgt das Verhältnis geflutete Flächen aus der PCB-Zeit/geflutete Flächen außerhalb der PCB-Zeit **1 : 2,1** (7,5 km^2 : 15,5 km^2). Bei einer vollständigen Flutung aller Abbauflächen wäre das Verhältnis aus der PCB-Zeit/geflutete Flächen außerhalb der PCB-Zeit **1** : **2,7** (65,7 km^2 : 178,3 km^2).

8.4.3 Haus Aden 2 und Schacht Grimberg 2

Hierbei handelt es sich im Wesentlichen um die Strecken zwischen Haus Aden 2 und Schacht Grimberg 2 sowie die sogenannten Umtriebe am Schacht Grimberg 2 (Abb. 26). Die Länge der noch offenen Strecken beträgt 9,2 km, die durchschnittliche Breite 7 m. Diese Umtriebe und Strecken sind die einzigen noch zugängliche Bereiche in der Wasserprovinz Haus Aden. In diesem Bereich fand auch die Probenahme am 18.02.2016 statt. Anfallendes Grubenwasser wird an der tiefsten Stelle, der Nebenwasserhaltung Bunkersohle, gefasst und dann zur ZWH gepumpt.

Die PCB-Belastung wird gemäß der angenommenen durchschnittlichen Streckenbelastung von 1,3 t/ km^2 zu auf ca. 65,7 kg geschätzt.

9 UNTERTÄGIGE BEPROBUNG

9.1 Vorgehen und Datenlage

Für die Bewertung des Gefährdungs-, Freisetzungs-, und Ausbreitungspotenzials der PCB erfolgten am 18.02.2016 untertägige Beprobungen. Die Probenahmepunkte sind in der Abb. 29 dargestellt und in Tab. 15 beschrieben.

Es war nicht Ziel der Untersuchungen, gegebenenfalls punktuelle PCB-Belastungen und/oder eine diffuse, repräsentative PCB-Belastung zu ermitteln. Dafür ist der noch zugängliche Bereich im Bergwerk Haus Aden/Monopol gemessen an der ursprünglichen Ausdehnung zu klein.

Von den Gutachtern wurden folgende Untersuchungsziele und Anforderungen an die Probenahmeorte definiert und dann gemäß den Anforderungen und Möglichkeiten Probenahmeorte ausgewählt:

1. Gelöstes PCB im Grubenwasser
   - Eine großvolumige Probe (ca. 100 L)
   - langjährig, großflächig überflutete Bereiche mit PCB-Einsatz, damit die PCB und das Grubenwasser in einen Gleichgewichtszustand gelangen können.

   Es wurde eine 100-L-Probe des Grubenwassers aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm beprobt.

2. Durchschnittlichen Belastungen des partikulären Materials
   - PCB-Gehalte im partikulären Material

   Es wurden fünf Sedimentproben an verschiedenen Stellen genommen.

3. Rückhalteeigenschaften Boden und Schlämme für PCB
   - typisches Material mit dem das Grubenwasser in Berührung kommt
   - noch zugängliche Pumpensümpfe, Kohlenverladung, Strecken

   Es wurden fünf Sedimentproben an verschiedenen Stellen genommen.

4. Teilstrombeprobung Grubenwasser (10-L-Methode)
   - ausreichend Grubenwasser mit ausreichender Schwebstofffracht
   - noch zugängliche Grubengebäude

Es wurden 4 Wasserproben genommen. Bei einem kleinen Pumpensumpf war zu wenig Wasser für eine Probenahme vorhanden.

5. Zusickerndes Tiefengrundwasser aus dem Karbon
   - Wasserzutritte, unvermischt mit Grubenwasser
   - noch zugängliche Grubengebäude

Es wurde eine Wasserprobe aus einem Gerinne entnommen.

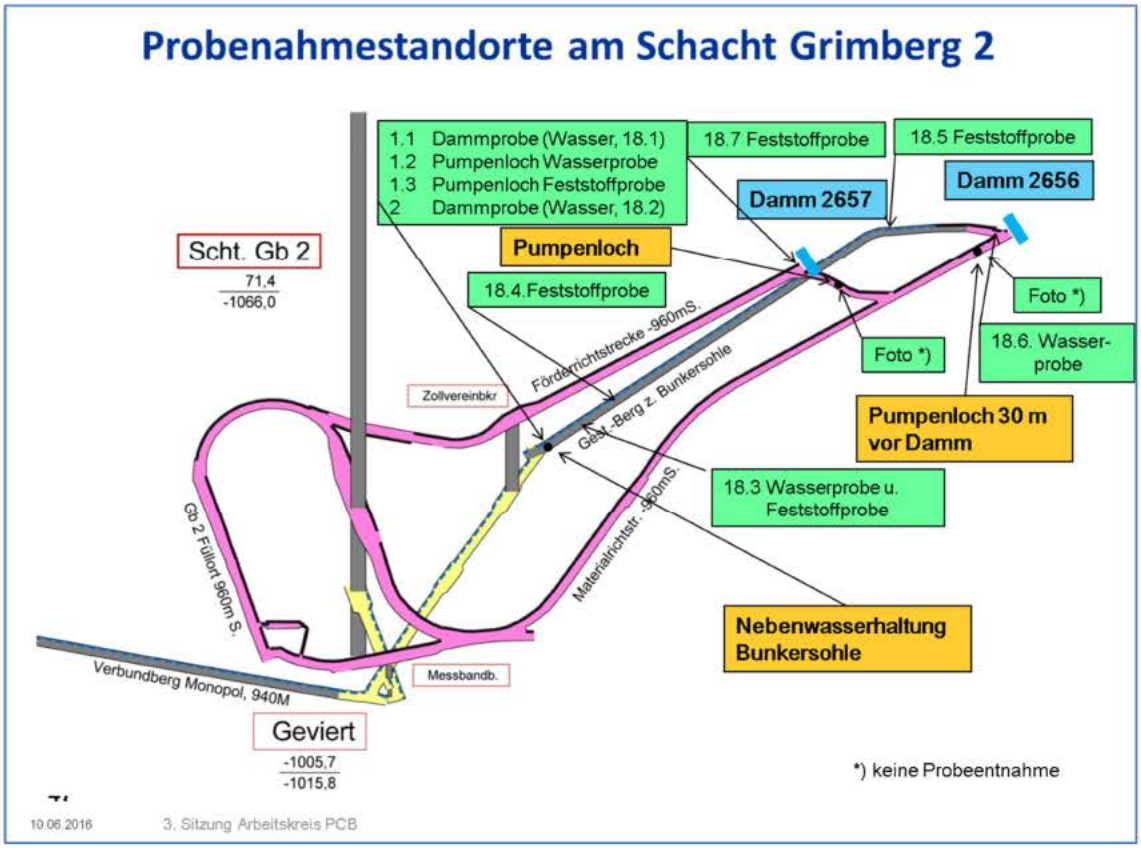


Abb. 29: Übersicht über die Orte der Probenahme am Schacht Grimberg/Umtriebe (Darstellung RAG)

Tab. 15: Übersicht über die Probenahme auf PCB am 18.02.2016

Probenahme-lokalität	18.1		18.2	18.3		18.4
Probe	Pumpensumpf Nebenwasser-haltung	Nebenwas-serhaltung Bunkersohle	Wiederholung von Beprobung 18.1	Bunkersohle Absturz Gerinne	Gerinne Berg zur Bunkersohle	Bunkersohle Boden 1
Analytik	Sediment	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Sediment	Schwebstoff 10L	Sediment
Labor	LANUV	UCL	UCL	LANUV	UCL	LANUV

Probenahme-lokalität	18.5	18.6	18.7	18.8	
Probe	Bunkersohle Boden 2	Becken an Damm 2656	Förderrichtstre-cke, Boden	100 Liter Probe Victoriadamm	
Analytik	Sediment	Schwebstoff 10L	Sediment	Schwebstoff 100L	Wasserpha-se
Labor	LANUV	UCL	LANUV	UCL	LEK

9.2 Ergebnisse der Probenahme

9.2.1 PCB Belastungen des partikulären Materials

Trotz intensiver Recherche konnten ruhrgebietsweit keine weiteren untertägigen Bodenproben, die auf PCB untersucht wurden, ermittelt werden. Auch beim Unfall auf dem Bergwerk West wurden nur Wasserproben genommen.

Im Bergwerk Haus Aden wurden erstmalig am 18.02.2016 fünf Bodenproben genommen und im Anschluss analysiert. Bis auf die Probe 18.1 (Sedimente aus einem kleinen Pumpensumpf) waren dies keine Probenahmeorte an denen punktuelle PCB Belastungen vermutet worden waren. In Tab. 16 sind die Ergebnisse der untertägigen Untersuchungskampagne vom 18.02.2016 enthalten.

Die Gehalte liegen zwischen 3.800 und 31.000 µg/kg. Aus den 5 Proben ergibt sich ein rechnerischer Mittelwert von 13 mg/kg. Es muss betont werden, dass diese Datenbasis nicht repräsentativ für die Bergwerke im Ruhrgebiet, ja noch nicht einmal für das Bergwerk Haus Aden/Monopol ist. Die Analyse erfolgte mit Accelerated Solvent Extraction (ASE) und Toluol nach DIN EN 1948 und nach der VDI-Richtlinie 3498 (in Kombination mit verschiedenen Clean-up Säulen).

Tab. 16: Ergebnisse von Bodenuntersuchungen auf PCB (Probenahme 18.02.2016)

Probenahme-lokalität	**18.1**	**18.3**	**18.4**	**18.5**	**18.7**
Probe	Pumpensumpf Nebenwasser-haltung	Bunkersohle Absturz Gerinne	Bunkersohle Boden 1	Bunkersohle Boden 2	Förderricht-strecke, Boden
Material	Sediment	Sediment	Sediment	Sediment	Sediment
Labor	LANUV	LANUV	LANUV	LANUV	LANUV
	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*
PCB-28	2200	4400	1700	480	370
PCB-52	690	1500	570	180	360
PCB-101	150	270	110	67	100
PCB-138	34	47	21	21	15
PCB-153	23	32	15	14	10
PCB-180	8,9	11	5,4	5,6	4
Summe 6 DIN-Kongenere * 5	**16.000**	**31.000**	**12.000**	**3.800**	**4.300**
PCB-77	160	420	100	47	13
PCB-81	6,2	14	4,5	2,1	0,7
PCB-105	130	220	81	57	50
PCB-114	7,8	16	5,4	3,4	3,1
PCB-118	160	280	100	73	67
PCB-123	4,2	9,8	3,6	2,3	2,6
PCB-126	0,91	1,9	0,61	0,39	0,39
PCB-156	3,6	6,3	2,2	2,2	<1,1
PCB-157	0,79	1,5	0,46	0,46	<0,22
PCB-167	1,4	2	0,73	0,73	2,5
PCB-169	0,0056	0,0073	0,0043	0,0047	0,061
PCB-189	<0,12	<0,21	<0,078	<0,085	0,089

* Fraktion < 63 µm. Die Summe der 6 DIN Kongenere wird gemäß LAGA mit 5 multipliziert

9.2.2 PCB im Schwebstoff

PCB in Schwebstoffen wurden nach DIN 38414 S20 und nach DIN CEN/TS16190 analysiert.

Tab. 17: Ergebnisse der Schwebstoffuntersuchungen auf PCB (Probenahme 18.02.2016)

Probenahme-lokalität	**18.1**	**18.2**	**18.3**	**18.6**	**18.8**
Probe	Nebenwasser-haltung Bunker-sohle	Wiederholung von Beprobung 18.1	Gerinne Berg zur Bunkersohle	Becken an Damm 2656	100 Liter Probe Victoriadamm
Material	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 100L
abfiltrierbare Stoffe [mg/L]	74	76	77	32	11
Labor	UCL	UCL	UCL	UCL	UCL
	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS
PCB-28	<5,1	<4,8	140	200	110
PCB-52	<5,1	<4,8	48	180	61
PCB-101	<5,1	<4,8	14	50	25
PCB-138	<5,1	<4,8	<4,7	<14	<17
PCB-153	<5,1	<4,8	<4,7	<14	<17
PCB-180	<5,1	<4,8	<4,7	<14	<17
Summe 6 DIN-Kongenere * 5	**>NWG**	**>NWG**	**1010**	**2150**	**980**
PCB-77	0,587	0,248	28,6	16,2	1,03
PCB-81	0,107	0,0777	1,5	1,45	16,8
PCB-105	1,41	1,07	35,1	42,3	32,9
PCB-114	0,0605	0,0323	1,88	2,94	2,01
PCB-118	4,98	3,85	37,1	62,2	44,4
PCB-123	0,0366	0,0208	1,34	2,06	1,39
PCB-126	<0,04	<0,04	0,361	0,155	0,153
PCB-156	1,72	1,34	0,853	3,57	2,71
PCB-157	0,171	0,132	0,206	0,529	0,439
PCB-167	0,587	0,55	278	1,23	0,779
PCB-169	<0,04	<0,04	<0,04	<0,04	<0,04
PCB-189	0,172	0,169	<0,02	0,339	0,191

UCL – Umwelt Control Labor GmbH, Lünen *Die Summe der 6 DIN Kongenere wird gemäß LAGA mit 5 multipliziert

9.2.3 PCB gelöst in der Wasserphase

Im Allgemeinen gelten stark unpolare, also lipophile Stoffe als schlecht oder sogar wasserunlöslich. Wissenschaftlich gesehen gibt es jedoch den Begriff „wasserunlöslich“ nicht, sowenig wie es in der Hydrogeologie den Begriff „undurchlässig“ gibt. Bei einem großen Konzentrationsunterschiede zwischen Partikel und Wasserphase, großen Wassermengen und ausreichend Zeit führen thermodynamisch gesteuerte Verteilungsprozesse zum Erreichen eines dynamischen Gleichgewichtszustandes.

Die Tab. 18 zeigt, dass PCB auch im Grubenwasser in sehr geringem Maße gelöst vorliegt. **Unter dem Begriff „gelöst“ wird per Definition auch der Feinschweb < 0,45 µm verstanden.**

Die Ergebnisse passen sehr gut mit den ebenfalls ermittelten Verteilungskoeffizienten überein. Diese werden v. a. durch den Gehalt an fein verteiltem organischem Material (z. B. Kohle) bestimmt.

Im Vergleich zum PCB-Gehalt im Schweb, ca. 1 mg/kg TS, ist die Konzentration an gelöstem PCB im Wasser ca. um den Faktor 600.000 geringer.

Tab. 18: Ergebnisse der 100 L-Grubenwasseruntersuchung auf PCB (Probenahme 18.02.2016)

Probenahmelokalität	**18.8**
Probe	100 Liter Probe Victoriadamm
Material	Wasser
Labor	LEK
	ng/L
PCB-28	0,167
PCB-52	0,137
PCB-101	0,005
PCB-138	0,004
PCB-153	0,006
PCB-180	<0,004*
Summe 6 DIN-Kongenere * 5	1,6

* Bestimmungsgrenze: 0,004 ng/L

Die angewendete Methode zur Analyse der sechs PCB-Leitkongenere in der 100 L-Grubenwasserprobe ist im Anhang detailliert beschrieben. Die Bestimmung der PCB-Gesamtkonzentration aus den sechs analysierten PCB-Leitkongeneren (Faktor 5) ist im Abschnitt 2.1 dargelegt.

9.2.4 TCBT-Belastungen des partikulären Materials

Die Analyse von TCBT in den Bodenproben erfolgte nach DIN 38414 S20.

Tab. 19: Ergebnisse von Bodenuntersuchungen auf TCBT (Probenahme 18.02.2016)

Probenahme-lokalität	18.1	18.3	18.4	18.5	18.7
Probe	Pumpensumpf Nebenwasser-haltung	Bunkersohle Absturz Gerinne	Bunkersohle Boden 1	Bunkersohle Boden 2	Förderricht-strecke, Boden
Material	Sediment	Sediment	Sediment	Sediment	Sediment
Labor	LANUV	LANUV	LANUV	LANUV	LANUV
	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*	µg/kg TS*
TCBT 21	210	51	290	170	370
TCBT 27	66	19	74	43	98
TCBT 28	59	47	96	49	120
TCBT 52	32	9,3	60	26	68
TCBT 74	190	44	320	150	330
TCBT 80	270	66	420	210	460

* Fraktion < 63 µm

9.2.5 TCBT im Schwebstoff

Die Konzentrationen der technischen TCBT-Mischung „Ugilec“ in den Schwebstoffproben wurden nach DIN EN ISO 12766-3 bestimmt.

Tab. 20: Ergebnisse der Schwebstoffuntersuchungen auf TCBT (Probenahme 18.02.2016)

Probenahme-lokalität	18.1	18.2	18.3	18.6	18.8
Probe	Nebenwasser-haltung Bunker-sohle	Wiederholung von Beprobung 18.1	Gerinne Berg zur Bunkersohle	Becken an Damm 2656	100 Liter Probe Victoriadamm
Material	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 10L	Schwebstoff 100L
abfiltrierbare Stoffe [mg/L]	74	76	77	32	11
Labor	UCL	UCL	UCL	UCL	UCL
	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS	µg/kg TS
TCBT/"Ugilec"	< 51	< 48	< 330	< 1400	< 340

UCL – Umwelt Control Labor GmbH, Lünen

9.2.6 Korngrößenanalyse

Tab. 21: Ergebnisse der Korngrößenanalysen von unter Tage genommenen Bodenproben (18.02.2016)

Probenahme-lokalität		**18.1/18.2**			**18.3**		**18.4**			**18.5**		**18.7**	
Fraktion		RWTH		LANUV	RWTH	LANUV	RWTH		LANUV	RWTH		RWTH	
< 0,2	%	1	**94**	**90**	nicht gemessen Anteil > 2.000 nahezu 100 %	**44**	0	**54**	**28**	1	**67**	0	**87**
< 0,63	%	3					1			2		4	
< 2	%	4					2			2		6	
< 6,3	%	10					4			4		11	
< 20	%	21					5			7		13	
< 36	%	10					3			3		7	
< 63	%	7					4			2		7	
< 200	%	17					10			7		18	
< 630	%	14					14			17		17	
< 2.000	%	6					10			21		3	
> 2.000	%	6	**6**	**10**		**56**	46	**46**	**72**	33	**33**	13	**13**

Masse < 2.000	[g]	13,76	723,4		420,5	21,32	197	18,62	35,31
Masse > 2.000	[g]	0,87	79		535,9	18,26	503	9,17	5,30
gesamt	[g]	14,63	802,4		956,4	39,58	700	27,79	40,61

RWTH: Vorsiebung (> 2 mm) und Abtrennung der Grobfraktion. Korngrößenanalyse der Feinfraktion (< 2 mm) mittels Laserbeugung; Mittelwerte aus 3 – 6 Messungen.

LANUV: Vorsiebung (Proben 18/1, 18/3, 18/4) und Abtrennung der Grobfraktion (> 2 mm). Zerkleinerung der Feinfraktion (< 2 mm) in einer Mörsermühle und Siebung (< 63 µm).

10 FREISETZUNGSPOTENTIAL PCB

Die Freisetzung organischer Schadstoffe aus kontaminierten wassergesättigten Sedimentschichten kann grundsätzlich über die partikuläre und/oder die wässrige Phase erfolgen. PCBs sind ausgeprägt lipophile organische Verbindungen, wie es durch hohe $K_{O/W}$-Werte indiziert ist (Tab. 22), PCBs haben daher eine starke Tendenz an partikuläres Material zu adsorbieren und sind nur in geringem Maße wasserlöslich (Tab. 22). Die Freisetzung von PCBs aus den mit PCB-haltigen Betriebsstoffen kontaminierten Bereichen des Bergwerks Haus Aden/Monopol während und nach der Flutung dieser Bereiche erfolgt parallel über beide Pfade in die wässrige und die partikuläre Phase.

Für die Abschätzung der Freisetzung von PCBs aus kontaminierten Bergwerksbereichen in die partikuläre und die wässrige Phase, ist eine Betrachtung über dynamische Prozesse nicht möglich. Eine quantitative Abschätzung ist aber über die Gleichgewichtssituation möglich (s. a. Schwarzenbach et al. 1993). Dies ist insbesondere für die Situation nach der Flutung ein sinnvoller Ansatz, da von einem langzeitlichen Kontakt zwischen kontaminiertem Wasser- und Partikelphase ausgegangen werden kann, eine Gleichgewichtseinstellung also ein realistisches Szenario ist.

Dazu müssen Daten zur Adsorptionsaffinität der PCBs vorliegen (= Neigung an partikuläres Material zu adsorbieren). Bei gleichbleibenden Temperatur- und Druckbedingungen stellt sich zwischen Adsorption und Desorption ein dynamischer Gleichgewichtszustand ein. Die Adsorptionsaffinität kann vereinfacht mit Verteilungskoeffizienten zwischen organischem Material und wässriger Phase (K_{OC}-Wert), zwischen 1-Oktanol (als universeller Stellvertreter für partikuläres Material) und wässriger Phase (K_{OW}-Wert) oder zwischen dem gesamten partikulären Material und der wässrigen Phase (K_d-Wert) beschrieben werden.

Nach Einstellung eines Phasenverteilungsgleichgewichts kann aus der gemessenen Konzentration des Stoffes in der partikulären Phase (C_S) und der Konzentration des Stoffes in der wässrigen Phase (C_W) der K_d-Wert bestimmt werden:

$K_d = C_S\ [ng\ g^{-1}] / C_W\ [ng\ ml^{-1}]$ (z. B. Schwarzenbach et al. 1993)

Neben den physikalisch-chemischen Eigenschaften des adsorbierten Stoffes wirken sich die Eigenschaften der partikulären Phase (u. a. Gehalt an organischem Material, Korngröße) maßgeblich auf die Verteilung des Stoffes zwischen partikulärer und wässriger Phase aus.

Für den speziellen Fall von PCB in Grubenwässern existieren keine spezifischen Daten zu Gleichgewichtskonstanten K_d. Daher wurden im Rahmen des Gutachtens an der RWTH-Aachen K_d-Werte für PCB an Stichproben partikulären Materials aus dem Bergwerk Haus Aden/Monopol ermittelt. Es wurden K_d-Werte für die PCB-Kongenere 28, 52, 101, 118, 138, 153 und 180 für zwei Proben partikulären Materials mit stark unterschiedlichen Eigenschaftsprofilen (TOC-Werte, Korngrößenverteilungen) ermittelt (Informationen zur experimentellen Durchführung s. Anhang). In Tab. 23 sind die erhaltenen Ergebnisse anhand der zwei vorliegenden Proben zusammengestellt. Hier sind den gemessenen Werten auch verwandte, publizierte Daten (Verteilung zwischen Flusswasser und fluviatile Schwebstoffen, Duinker 1986) gegenübergestellt.

Weiterhin wurde durch die Analyse einer ersten 100 L-Wasserprobe aus der Wasserhaltung Victoriadamm überprüft, ob der Gleichgewichtsansatz gültig ist. Hierzu wurden

die Konzentrationen der PCB-Kongenere in der Wasserphase getrennt von der Belastung der Schwebstoff bestimmt und ebenfalls ins Verhältnis gesetzt (Tab. 23).

Weitere Untersuchungen zur Überprüfung dieser ersten Ergebnisse sind geplant.

Tab. 22: Physikalisch-chemische Eigenschaften ausgewählter PCB-Kongenere.

Kongener	PCB-28	PCB-52	PCB-101	PCB-138	PCB-153	PCB-180
Wasserlöslichkeit [mg/L] bei 20 °C Shiu und Mackay 1986	0,13	0,055	0,012	0,0036	0,0034	0,0012
Log K_{OW} Shiu und Mackay 1986	5,6	5,9	6,4	6,8	6,8	7,2
Log K_d (für Schwebstoffe des Rheins) Duinker 1986	4,3	4,9	5,0	-	-	6,5
Log K_{OC} Becker et al. 2010	4,7 - 5,6	5,0 - 5,9	5,5 - 6,4	5,9 – 6,9	5,9 – 6,9	6,4 – 7,5

Tab. 23: Adsorptionseigenschaften des partikulären Materials

Kongener	K_d-Wert Literatur Duinker, 1986	Verteilungskoeffizient (K_d, experimentell)		Verteilung (gemessen)
		Probe 18.7 - Förderrichtstrecke kohlehaltig Mittelwert (n = 2)	Probe 18.1 – Pumpensumpf Mittelwert (n = 2)	100 L-Grubenwasserprobe Victoriadamm
PCB-28		$2{,}5 \times 10^6$	$2{,}4 \times 10^4$	$6{,}6 \times 10^5$
PCB-52	$5{,}2 \times 10^4$	$1{,}2 \times 10^6$	$1{,}8 \times 10^4$	$4{,}5 \times 10^5$
PCB-101	$8{,}8 \times 10^4$	$3{,}1 \times 10^6$	$5{,}8 \times 10^4$	$4{,}9 \times 10^6$
PCB-118		$5{,}3 \times 10^6$	$1{,}2 \times 10^5$	$2{,}3 \times 10^6$
PCB-138		$7{,}6 \times 10^6$	$2{,}3 \times 10^5$	$<4{,}3 \times 10^6$ *
PCB-153		$6{,}3 \times 10^6$	$2{,}2 \times 10^5$	$<2{,}9 \times 10^6$ *
PCB-180	$8{,}6 \times 10^5$	$1{,}2 \times 10^7$	$7{,}9 \times 10^5$	$<4{,}3 \times 10^6$ **

* Konzentration Filterrückstand < 17 µg/kg TS. Zur Kalkulation wurde die Bestimmungsgrenze genutzt.

** Konzentration Filterrückstand < 17 µg/kg TS; Konzentration gelöst <0,004 ng/L. Zur Kalkulation wurden die Bestimmungsgrenzen genutzt.

Die ermittelten K_d-Werte geben einen guten Richtwert für die Verteilung der verschiedenen PCB-Kongenere zwischen partikulärer und wässriger Phase nach Einstellung eines Phasenverteilungsgleichgewichts im Grubenwasser. Die ermittelten Werte liegen für das kohlehaltige Material aus der Förderrichtstrecke über und für das Material aus

dem Pumpensumpf unter den ermittelten Werten für die 100 L-Grubenwasserprobe (Tab. 23). Die höheren K_d-Werte für das kohlehaltige Material im Vergleich mit dem Material aus dem Pumpensumpf zeigen, dass die untersuchten PCBs stark an kohlehaltiges Material adsorbiert werden. Aufgrund steigender Lipophilie nimmt mit zunehmender Anzahl der Chloratome im Molekül die Adsorptionsaffinität der PCBs zu. Die für das PCB-Kongener 180 (sieben Chloratome) ermittelten K_d-Werte lagen daher für alle untersuchten Proben um eine Größenordnung höher als die K_d-Werte für das PCB-Kongener 28 (drei Chloratome) (Tab. 23). Diese Ergebnisse sollen durch weitere untertägige Probenahmen in Teil 2 des Gutachtens überprüft werden.

Wichtig ist festzuhalten, dass mit großer Wahrscheinlichkeit eine annähernde Gleichgewichtseinstellung bereits im geförderten Grubenwasser zwischen Schwebstoff und Wasserphase anzunehmen ist. Für die langzeitliche Abschätzung zu Freisetzung und nachfolgender Ausbreitung ist die Verwendung von Gleichgewichtskonstanten also sinnvoll. Dies bedeutet auch, dass die Belastung im Grubenwasser als Folge von PCB Freisetzung in einem stabilen System durch relativ stabile Konzentrationen in den beiden Phasen gekennzeichnet ist

Damit wird die Konzentration in der wässrigen Phase nach jetzigen Erkenntnissen durch die mittlere Konzentration der PCB im partikulären Material determiniert. Das Verteilungsgleichgewicht der PCBs zwischen den Schwebstoffen des Grubenwassers (= partikuläre Phase) und der wässrigen Phase wird wohl nicht durch einen veränderten Schwebstoffgehalt beeinflusst.

11 AUSBREITUNGSPOTENTIAL PCB

11.1 Prozesse der Ausbreitung und des Austrags

Wie in Kapitel 10 (Freisetzungspotential) dargestellt, erfolgt die Freisetzung von PCB parallel in die wässrige und die partikuläre Phase des Grubenwassers. Die weitere Ausbreitung der PCB Kontamination erfolgt dann über das Grubenwasser. Innerhalb des Bergwerks ist von einem ständigen Kontakt zwischen der wässrigen Phase und der partikulären Phase in Schweb aber auch zwischen wässriger Phase und dem partikulären, sedimentierten Material (z. B. Staub) auszugehen. Der letztere Kontakt ist in gefluteten Bereichen permanent, im Falle nicht gefluteter Bereiche nur partiell anzunehmen. Eine Ausbreitung findet durch drei Prozesse statt: Advektiver und diffusiver Transport gelöst in der Wasserphase, sowie advektiver Transport am Schwebstoff.

Ein Austrag der PCB-Belastung aus dem Bergwerk heraus erfolgt – solange das Grubenwasser auf einem Niveau von -670 mNHN in der ZWH gehalten wird – ausschließlich über das gehobene Grubenwasser. Für eine erste quantitative Abschätzung dieses Austrags wären folgende Parameter relevant:

- Volumen gehobenes Grubenwasser
- Schwebstoffgehalt
- Konzentrationen der PCB in wässriger Phase
- Konzentrationen der PCB partikelgebunden
- Partikelgröße
- Strömungsgeschwindigkeiten in offenen Strecken (Röhrensystem)

Die Konzentrationen, sowohl gelöst im Wasser als auch partikelgebunden, hängen primär von der PCB-Gesamtbelastung ab, mit der das System in Kontakt steht. Solange die PCB-Gesamtbelastung gleich bleibt, stellt sich auf Grundlage des spezifischen Verteilungskoeffizienten (Kd) ein Gleichgewicht zwischen den PCB-Belastungen der wässrigen und der partikulären Phase ein. Diese Gleichgewichtsverteilung betrachtet stets das Verhältnis der Konzentrationen von 1 Liter wässriger Phase zu 1 Kilogramm partikulärem Material.

Schwankungen im Austrag von PCB über gehobenes Grubenwasser werden bei konstantem Grubenwasserspiegel maßgeblich über den Schwebstoffgehalt beeinflusst. Dies zeigt exemplarisch Abbildung 30. Den in Abbildung 30 dargestellten Szenarien zum jährlichen Austrag von PCB über das gehobene Grubenwasser liegt die gleiche Förderrate zugrunde. Außerdem liegen dem ersten Szenario (grün hinterlegt) tatsächlich ermittelte PCB-Konzentrationen (100 L-Probe) zugrunde. Den orange bzw. grau hinterlegten Szenarien liegen verdoppelte bzw. vervierfachte Konzentrationen der 100 L-Probe zugrunde. Anhand der Fördermenge des gehobenen Grubenwassers und der PCB-Konzentration für die wässrige Phase lässt sich nun der jährliche PCB-Austrag über die wässrige Phase (100 L-Probe: 19 g/a) ermitteln. Um außerdem den PCB-Austrag über die partikuläre Phase zu bestimmen, wurde der Schwebstoffgehalt (100 L-Probe:11 mg/L) bestimmt. Anhand der Fördermenge, der PCB-Konzentrationen am

Schweb und dem Schwebstoffgehalt ergibt sich ein jährlicher Austrag von 125 g/a für die 100 L-Probe. Drei weitere jährliche Austräge wurden unter Verwendung derselben Konzentrationen, aber mit variierenden Schwebstoffgehalten (2,5 mg/L, 5 mg/L und 20 mg/L) ermittelt. Wie der Abbildung zu entnehmen ist, hat ein variierender Schwebstoffgehalt keinen Einfluss auf die ausgetragene Menge gelöst vorliegender PCB. Der Schwebstoffgehalt muss bei der Abschätzung der Menge der über das Grubenwasser freigesetzten ungelöst vorliegenden PCB berücksichtigt werden.

Da diese Abbildung nur auf einem realen Messwert beruht, sollten zur Absicherung der Ergebnisse weitere Proben aus dem Grubenwasser genommen werden.

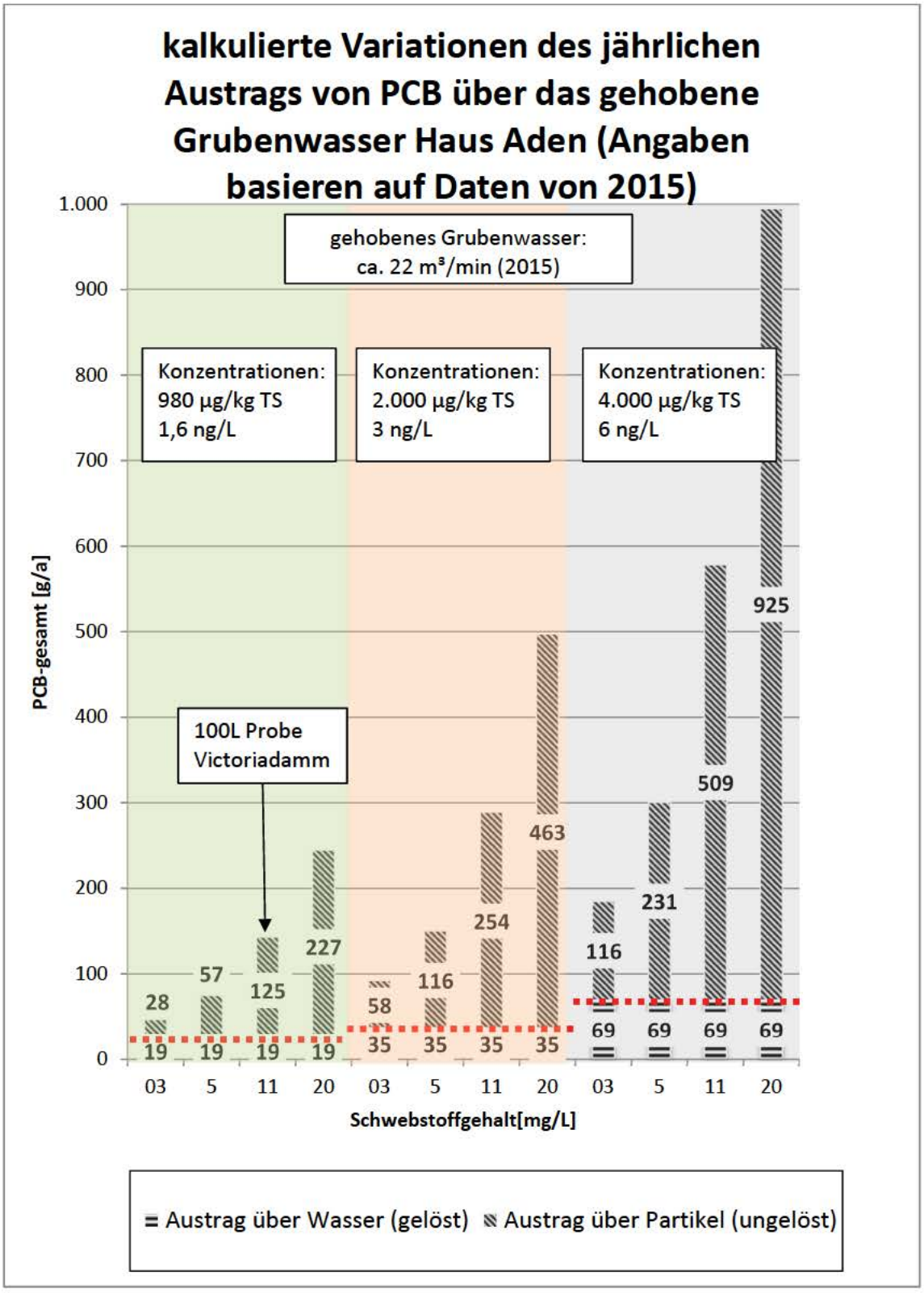


Abb. 30: Ergebnisse der 100 L-Grubenwasserprobe und Szenarios für jährliche Austragsmengen bei sich ändernden Schwebstoffgehalten und PCB-Konzentrationen (wässrige Phase und partikulär-gebunden)

11.1.1 Partikelgröße

Exakte Daten zur Partikelgrößenzusammensetzung des partikulären Materials unter Tage sind nicht vorhanden. Die Zusammensetzung der Partikel kann grob über die Proben aus der Beprobung vom 18.02.2016 unter Tage Haus Aden/Schacht Grimberg abgeschätzt werden (s. Abschn. 4.2.1). Die Daten zeigen eine relativ große Varianz und somit Inhomogenität des partikulären Materials (z. B. schwanken die Anteile < 63 µm von 19 % bis 57 %). Für alle Proben wurden jedoch immer nennenswerte Anteile feinkörnigen Materials bestimmt. Diese feinkörnige Fraktion ist in Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit mobilisierbar. Dieser Zusammenhang ist im Hjulström-Diagramm gekennzeichnet (s. Abschn. 6.1.2). Darüber hinaus ist darauf hinzuweisen, dass es eine bevorzugte Assoziation von organischen, insbesondere lipophilen Schadstoffen an die feinkörnige Fraktion (< 63 µm) gibt (für PCB siehe dazu z. B. Busch et al. 2007).

11.1.2 Strömungsgeschwindigkeit und Erosion, Transport und Sedimentation von Partikeln

Die Abb. 31 zeigt in dem sog. Hjulström Diagramm den nicht linearen Zusammenhang zwischen Fließgeschwindigkeiten und Partikelgröße hinsichtlich Erosion, Transport und Sedimentation von Partikeln. Sehr kleine Partikel sind schwerer zu erodieren, weil bei einmal sedimentierten Partikeln wie Tonplättchen Adhäsionskräfte wirken und nicht nur – wie bei kleinen Sandkörnern – die Schwerkraft überwunden werden muss.

Das Erosionsoptimum liegt bei einer Korngröße zwischen 0,1 und 0,5 mm. Bei größeren Korndurchmessern kommt zum Tragen, dass das Gewicht in der 3. Potenz des Durchmessers zunimmt und Körner dadurch sehr schnell schwerer werden. Die für die Ausbreitung der PCB kritischen Partikel haben eine Größe < 63 µm (rechter Bereich des roten Rahmens).

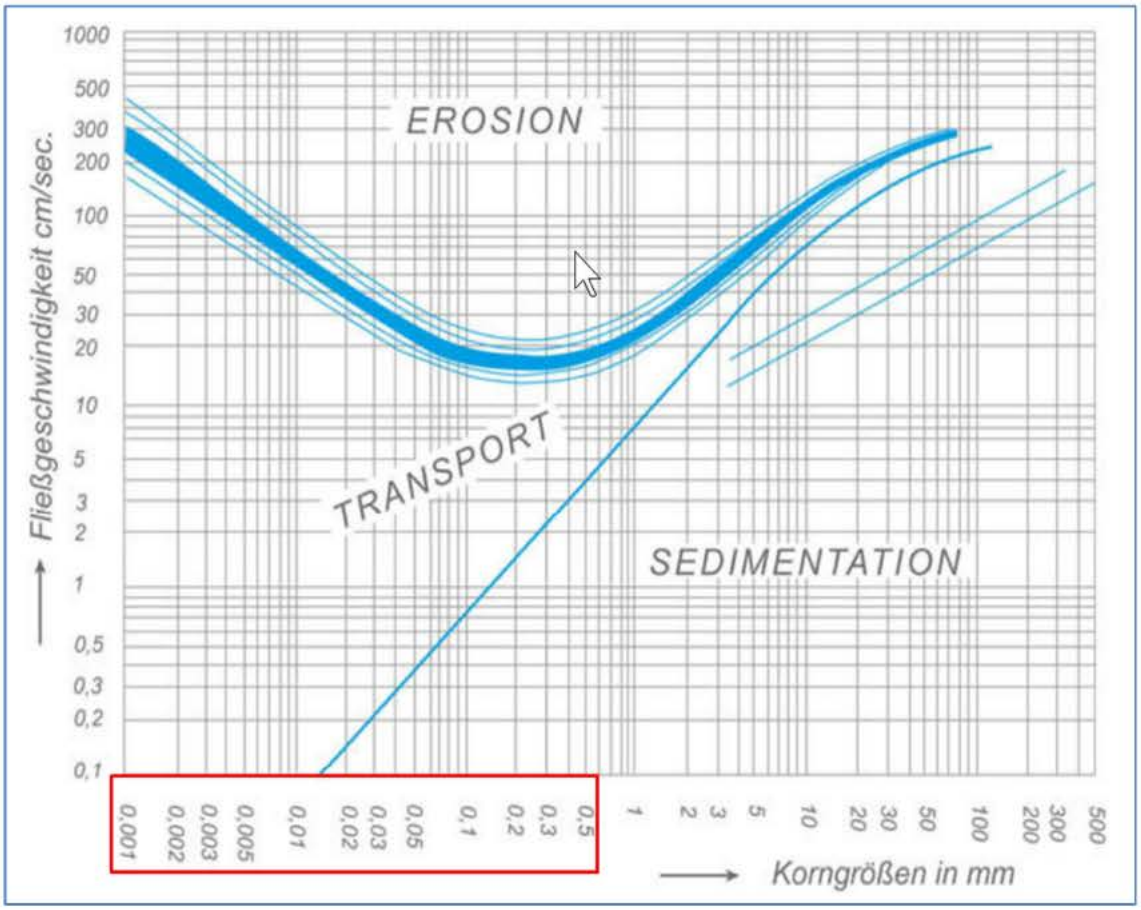


Abb. 31: Hjulström Diagramm (nach Louis und Fischer 1979)

11.1.3 Fließgeschwindigkeiten in Röhren

Grundlagen

Die Fließgeschwindigkeit in den vollständig wassergefüllten Röhren nach einer Flutung sind zunächst von der Durchflussmenge und dem Querschnitt abhängig und wird mit der Formel [1] – zunächst ohne die Rauhigkeit zu berücksichtigen – berechnet:

Formel [1]: $$v = \frac{Q}{\pi * \left(\frac{D}{2}\right)^2} = \frac{2{,}8\ m^3/min}{\pi * (\frac{3m}{2})^2} = 0{,}4 \frac{m}{min} = 0{,}67 \frac{cm}{s}$$

Beispiel mit: 2,8 m³/min, Durchmesser 3 m. Dies entspricht in etwa dem Hauptwasserweg aus dem Einzugsgebiet Ost.

Bei diesen geringen Fließgeschwindigkeiten ist von einem laminaren Strömen auszugehen. Die Strömungseigenschaften einen Fluids können mithilfe der dimensionslosen Reynolds-Zahl beschrieben werden. Dabei findet der Übergang von einer laminaren Strömung zu turbulenten bei einem Reynoldszahl von ~ 2.300 statt. Aus der Formel [2]

ergibt sich für die bestimmten Bedingungen ein Reynoldszahl von 10, was auf eine sehr stabile laminare Strömung deutet. Eine turbulente Strömung ist bei diesem Durchmesser ab ungefähr 550 m³/min (9 m³/s) zu erwarten, was fast das 200-fache der angenommenen Fließmenge wäre.

Formel [2]: $$Re = \frac{v*d*\rho}{\eta}$$

Das Ergebnis der Formel [1] ist die mittlere Fließgeschwindigkeit. Diese gilt unter der Annahme, dass die Fließgeschwindigkeit über den Querschnitt des Rohres gleich verteilt ist. Die tatsächliche Verteilung bei der laminaren Strömung hat die maximale Fließgeschwindigkeit in der Rohrmitte und geht gegen Null an der Rohrwand (Abb. 32).

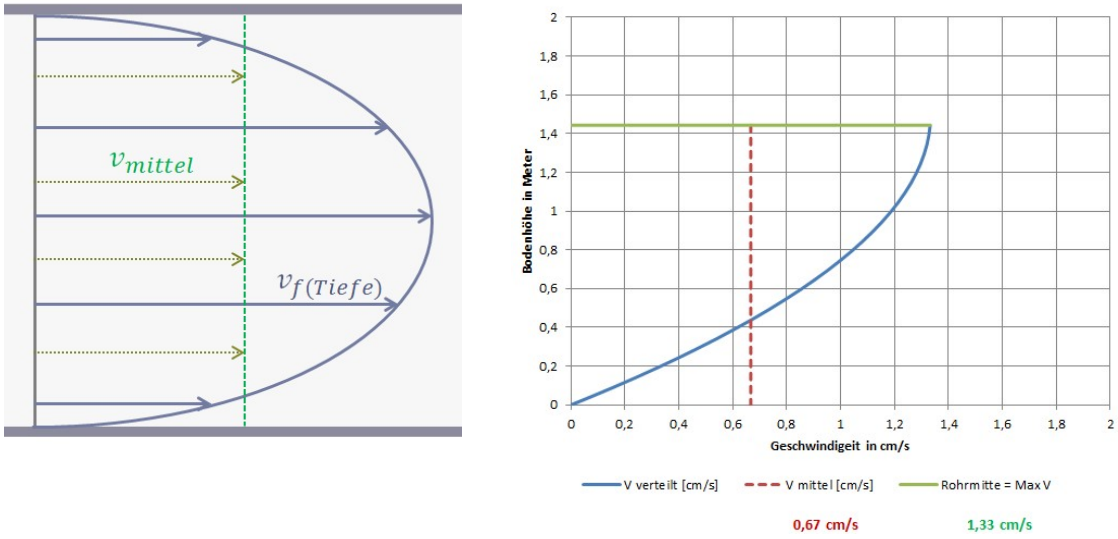


Abb. 32: Verteilung der Fließgeschwindigkeiten in einer Röhre und berechnet für das Fallbeispiel (ahu AG)

Bei diesem Beispiel ist in ca. 10 cm Entfernung von der Rohrwandung die Fließgeschwindigkeiten ca. 4-mal geringer als der mit der Formel [1] berechnete Mittelwert und beträgt bei dem oben gewählten Beispiel 0,16 cm/s. In einer 5 cm mächtigen Grenzschicht ist die Strömungsgeschwindigkeit ca. 9-mal geringer als der mit der Formel [1] berechnete Mittelwert und beträgt bei dem gewählten Beispiel 0,075 cm/s.

In der Realität (Zanke 2013) und vor allem in Bergwerken existieren keine glatten Röhren. Dies bedeutet, dass der Unterschied zwischen dem berechneten Mittelwert und der Strömung in der Nähe der Sohle noch größer ist und dass mobilisierte Partikel nicht sehr weit transportiert werden können, wenn sie im Grenzbereich zum Transport liegen. Diese beiden Aspekte werden im Sinne einer Worst-Case-Betrachtung nicht berücksichtigt.

Die Tab. 24 zeigt typische Volumenströme für drei Querschnitte im Röhrensystem (A = großer Querschnitt, B = mittlere Querschnitt, C = kleiner Querschnitt) und verschiedene Volumenströme ($_g$ = großer Volumenstrom, $_m$ = mittlerer Volumenstrom, $_k$ = kleiner Volumenstrom). Der ungünstigste Fall sind große Fließmengen und kleine Querschnitte (C_g in rot dargestellt).

Tab. 24: Volumenströme Strömung und Röhrenquerschnitte

Maximale Volumenströme	Volumenstrom m^3/min	Fall	Querschnittsfläche m^2
EZG Victoriadamm	22	A_g	20
		B_g	15
		C_g	10
Mittelwert	ca. 10	A_m	20
		B_m	15
		C_m	10
EZG Ost	2,8	A_k	20
		B_k	15
		C_k	10

Für diese Fälle gemäß Tab. 24 wurden in Tab. 25 die mittleren Fließgeschwindigkeiten für Röhren sowie die Geschwindigkeiten in den Grenzbereichen berechnet. Die Grenzbereiche wurden mit 5 cm und mit 10 cm gewählt, weil das auch ungefähr der Höhe des Bodenreliefs einer Strecke entspricht. Der ungünstigste Fall sind große Fließmengen und kleine Querschnitte (C_g in rot dargestellt).

Tab. 25: Fließgeschwindigkeiten (v) in Röhren

Fall	Mittlere v cm/s	v In Bodenähe (10 cm)	V in Bodenähe (5 cm)
A_g	1,83	0,28	0,14
A_m	0,83	0,129	0,065
A_k	0,23	0,036	0,018
B_g	2,44	0,437	0,221
B_m	1,11	0,199	0,101
B_k	0,47	0,1	0,05
C_g	3,67	0,799	0,405
C_m	1,67	0,363	0,184
C_k	0,47	0,102	0,052

Die Abb. 33 zeigt, für einen kritischen Fall (kleiner Querschnitt und großen Durchflüsse) die mittlere Fließgeschwindigkeiten (in der Mitte einer Röhre, relevant für den Transport) und die Fließgeschwindigkeiten in Bodennähe, die für die Erosion relevant sind.

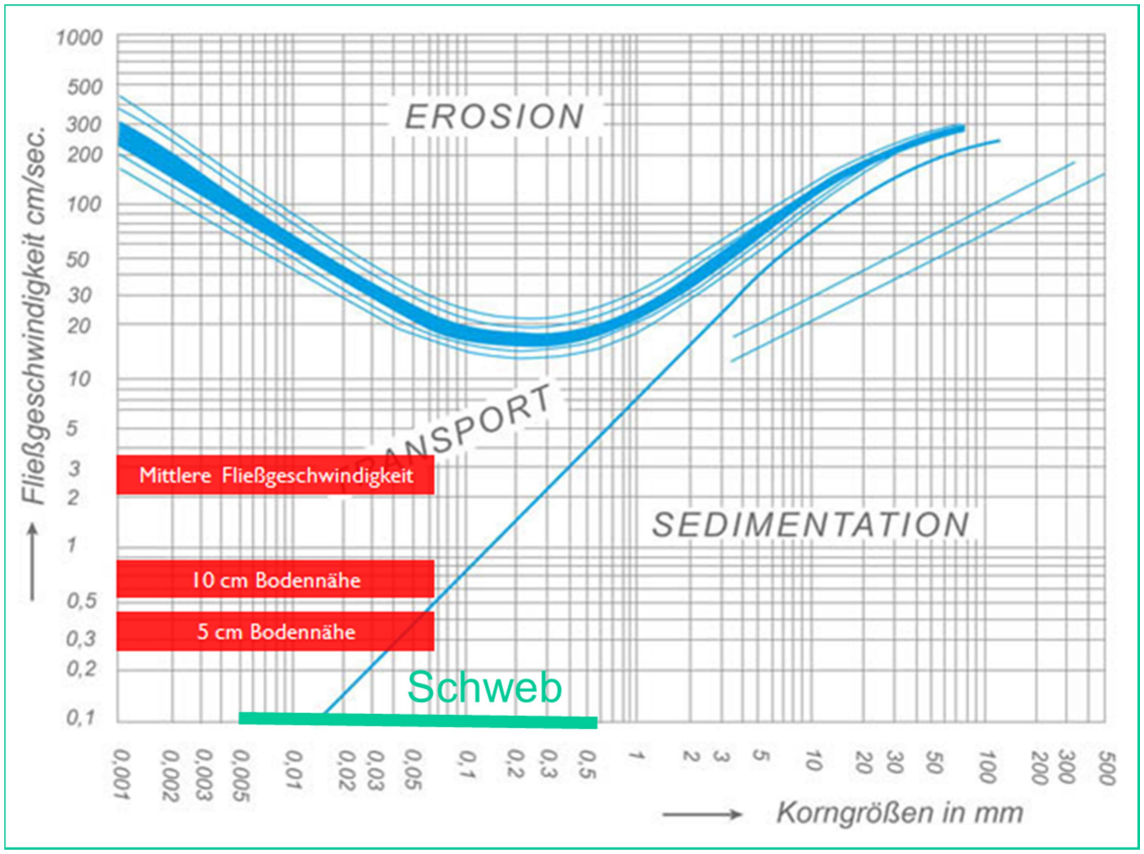


Abb. 33: Fließgeschwindigkeiten für den Beispielfall (Worst Case)

Der rote Bereich stellt die Verbreitung der Korngrößen < 63 µm bis 1 µm dar. Die bodennahen Geschwindigkeiten sind nochmal um den Faktor 5 – 10 geringer. Sie zeigt, dass alle Fließgeschwindigkeiten außerhalb des Erosionsfensters liegen. Damit ist eine Erosion von Bodenpartikel < 63 µm in der Regel ausgeschlossen.

Für den Transport sind nicht die Fließgeschwindigkeiten in Bodennähe, sondern in der Mitte der Röhre maßgeblich. Hier liegen die Geschwindigkeiten deutlich im Bereich des Transportes. Eine Sedimentation würde erst bei Partikeln > 5 – 6 µm bedeutsam werden.

Dies bedeutet zusammenfassend:

- Es ist von einer stabilen laminaren Strömung in den Röhren auszugehen.
- In Bodennähe einer rauhen Röhre (wie in BW anzunehmen) ist die Fließgeschwindigkeit deutlich kleiner als gemäß der Formel für Fließgeschwindigkeiten berechnet wird (über die Formel wird eine mittlere Fließgeschwindigkeit berechnet). Damit wird von einem zu hohen Erosionspotential in Bodennähe ausgegangen (ungünstige Annahme).
- In der Mitte einer Röhre ist die Fließgeschwindigkeit deutlich höher als gemäß der Formeln berechnet wird. Damit wird von einem zu geringen Sedimentationspotential ausgegangen (ungünstige Annahme).

- In Abb. 33 wird für einen kritischen Fall (große Fließmengen (22 m^3/min) und kleiner Querschnitte (10 m^2)) das Erosions- und das Sedimentationspotential betrachtet. Der grüne Balken zeigt die Hauptkorngrößen für den Schweb (0,54 bis 63 µm). Die Geschwindigkeiten in Bodennähe liegen ca. um den Faktor 100 unterhalb des Erosionsfensters, das ab ca. 15 cm/s beginnt. Bei der Fließgeschwindigkeit in der Mitte der Röhre beginnt gerade das Sedimentationsfenster. Partikel kleiner als 0,4 mm (40 µm) werden nicht mehr sedimentiert.

- Kleine Partikel im Schwebezustand werden in der Regel im wassergefüllten Röhrensystem nicht mehr sedimentiert. Auch nach den langen Beruhigungsstrecken hinter dem Victoriadamm enthält das Grubenwasser noch ca. 11 mg/L Schweb (Messung Victoriadamm, bzw. 4 – 7 mg/L (LANUV Sondermessprogramm 2015)).

- Die angenommenen Strömungsgeschwindigkeiten in wassergefüllten Röhren reichen in der Regel nicht aus, um neue Partikel zu erodieren und diese in einen Schwebezustand zu transportieren.

Somit verbleiben als Schwebstoffquellen:

- Überleitungen aus anderen Bergwerken mit einer hohen Reliefenergie wie derzeit noch im Einzugsgebiet Victoriadamm.

- Zuläufe z. T. über Gerinne aus höherliegenden, noch nicht gefluteten Abbaubereichen aus der PCB-Zeit.

- Singuläre Ereignisse wie sich lösende Steine aus der Firste und/ oder treibende Holzstücke, Erschütterungen, etc. in wassergefüllten Strecken.

Eine Berechnung der zukünftigen Entwicklung der PCB-Konzentrationen bzw. -frachten aufgrund der Schwebstoffgehalte im gehobenen Grubenwasser nach einem Grubenwasseranstieg ist nicht möglich, da viele grundlegende Daten zur Kalkulation der Ausbreitung und zum Austrag nicht vorhanden sind.

11.2 Datengrundlage zur Abschätzung des PCB-Austrags

Eine Berechnung der Entwicklung der PCB-Konzentrationen bzw. -frachten und des Schwebstoffgehalts im gehobenen Grubenwasser nach einem Grubenwasseranstieg ist nicht möglich, da viele grundlegende Daten zur Kalkulation der Ausbreitung und zum Austrag nicht vorhanden sind.

Verfügbar sind quantitative Daten zur PCB-Belastung im Schwebstoff des gehobenen Grubenwassers, die Menge des Grubenwassers und die darin enthaltene Schwebstoffmenge. Dies wird im Folgenden beschrieben.

Im Abschnitt 7.5 ist dargelegt, dass keine belastbaren, repräsentativen Daten zur Belastungsverteilung der im Bergwerksgebäude dispers verteilten PCB zur Belastungshöhe im partikulären Material der Abbaubereiche (Alter Mann) und offenen Strecken für das Bergwerk Haus Aden/Monopol vorliegen.

11.2.1 Schwebstoffgehalte

Nachfolgend sind alle den Gutachtern zur Verfügung gestellten und im Rahmen des Gutachtens verwendeten Daten zur Schwebstofffracht für das Bergwerk Haus Aden / Monopol zusammengefasst. In Tab. 26 sind alle Daten untertägiger Schwebstoffmessungen im **aktiven** Bergwerk Haus Aden/ Monopol zusammenfassend aufgelistet. Die Gehalte sind breit gestreut und liegen teils unterhalb der Nachweisgrenze von < 5 mg/L und erreichen bis zu 9.400 mg/L. Die ebenfalls angegebenen Medianwerte (13 – 103 mg/L) liegen deutlich unterhalb der maximal gemessenen Schwebstoffkonzentrationen und zeigen, dass besonders hohe Werte nur in vereinzelten Messungen auftreten.

Tab. 26: Untertägige Schwebstoffbestimmungen der RAG Ruhranalytik (1993-1998) im aktiven Bergwerk Haus Aden / Monopol. Die Probenahmetechnik ist nicht bekannt.

Jahr	Strecke	Anzahl der Proben	Schwebstoffgehalt [mg/L]	Median Schwebstoffgehalt [mg/L]
1996	Grimberg 1[1]	2	13-102	-
1993-1994	Grimberg 2[2]	9	<5 - 3.336	13
1995	Grimberg 16[3]	25	<5 - 9.400	50
1995	Grimberg 17[4]	20	<5-1.380	88
1996-1998	Grimberg 31[5]	42	<5-1.796	103

[1] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 1 (1995)
[2] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 2 (1994)
[3] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 16 (1995)
[4] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 17 (1995)
[5] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 31 (1998)

Gemäß Gutachten „Mobilisations- und Transportverhalten von PCB aus dem Schotterbett alter Streckenauffahrungen“) der DMT aus dem Jahr 2010 sind die hohen Schwebstoffgehalte auf den laufenden Bergwerksbetrieb zurückzuführen. Nach Außerbetriebnahme ist mit einem Rückgang der im gehobenen Grubenwasser enthaltenen Schwebstoffkonzentration zu rechnen.

In Tab. 27 und Abb. 34 sind alle Messergebnisse des vom LANUV 2008 initiierten Grubenwassermonitorings, des vom LANUV initiierten Sonderuntersuchungsprogramms sowie aller im Rahmen dieses Gutachtens veranlassten Sonderbeprobungen dargestellt. Diese Werte wurden in den letzten acht Jahren (inaktives Bergwerk mit stationärem Pumpenbetrieb) gemessen. Daher repräsentieren diese Messungen den Schwebstoffaustrag im jetzigen Betriebszustand aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm und wurden deshalb als Datengrundlage für die Kalkulation der partikelassoziierten PCB-Austräge in den folgenden Kapiteln genutzt.

Tab. 27: Bestimmung von Schwebstofffrachten in gehobenen Grubenwässern des stillgelegten Bergwerks Haus Aden/Monopol (2008-2016).

Jahr	Labor	Probenah-mevolumen	Anzahl der Proben	Schwebstoff-konzentration [mg/L]	Messprogramm
2008-2014	RAG Ruhranalytik[1]	10 L	44	< 1–21 Mittelwert=7	Grubenwassermonitoring LANUV*
2013	BR A[2]	10 L	k.A.	5	Sonderuntersuchungs-programm Bezirksregie-rung Arnsberg 2013
2015	RAG Ruhranalytik[1]	10 L	29	2,9 – 7,9 Mittelwert=4	LANUV Sondermess-programm 2015
2015	RAG Ruhranalytik[1]	70 L	1	3,6	LANUV Sondermess-programm 2015
2015	LANUV	Durchlauf-zentrifuge	8	1 – 7	LANUV Sondermess-programm 2015
2015	BR A[2]	10 L	9	3,4	LANUV Sondermess-programm 2015
2015	BR A[2]	50 L	1	4	LANUV Sondermess-programm 2015
2016	LEK[3] / UCL[4]	100 L	1	11	Einzugsgebiet Victoriadamm

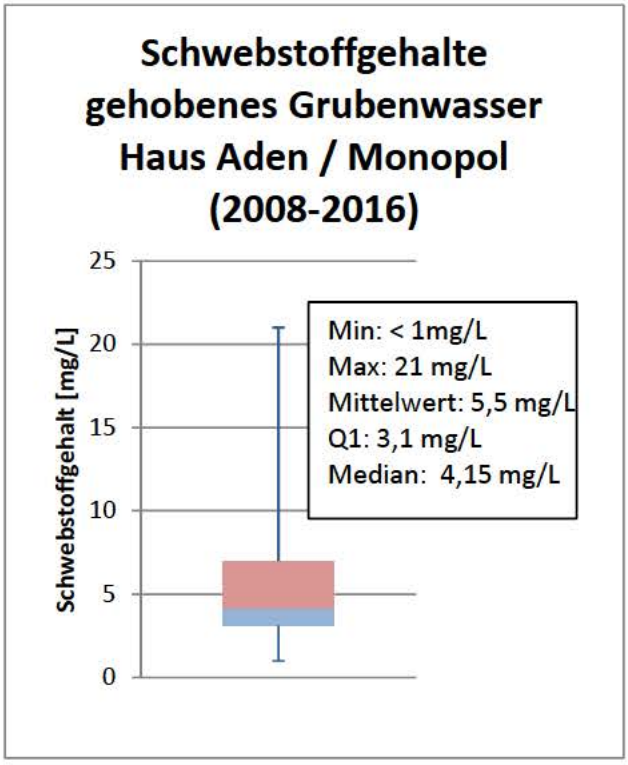


Abb. 34: Boxplot aller aufgeführten Schwebstoffgehalte im gehobenen Grubenwasser des Bergwerks Haus Aden/Monopol von 2008 – 2016

11.2.2 PCB Konzentrationen

Nachfolgend sind alle im Rahmen des Gutachtens ausgewerteten PCB-Analysen an Grubenwasserschwebstoff bzw. im Grubenwasser des Pumpstandortes Haus Aden/ Monopol zusammengefasst.

In Tab. 28 sind die Daten zur PCB-Belastung des Wassers aus untertägigen Grubenwasserbeprobungen aufgelistet. Für die in den 1990er Jahren durchgeführten Untersuchungen ist unklar, ob nur die Wasserphase (gelöste Menge PCB) oder ob die Wasserphase einschließlich des Schwebstoffs (also ohne Filtration) untersucht wurde.

Tab. 28: Daten zur untertägigen Grubenwasserbeprobung auf PCB

Jahr	Strecke	BW aktiv/ inaktiv	Anzahl der Proben	Beprobung	PCB gesamt nach LAGA
1996	Grimberg 1[1]	aktiv	2	Grubenwasser*	<0,05 [µg/L]
1993-1994	Grimberg 2[2]	aktiv	9	Grubenwasser*	≤0,05 [µg/L]
1995	Grimberg 16[3]	aktiv	25	Grubenwasser*	<0,05 – 0,1 [µg/L]
1995	Grimberg 17[4]	aktiv	20	Grubenwasser*	<0,05 – 0,15 [µg/L]
1996-1998	Grimberg 31[5]	aktiv	42	Grubenwasser*	<0,05 – 0,85 [µg/L]
2016	Grimberg 2[6]	inaktiv	4	Schwebstoff im Grubenwasser	4,8 – 2.150 [µg/kg TS]

[1] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 1 (1995)
[2] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 2 (1994)
[3] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 16 (1995)
[4] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 17 (1995)
[5] Quelle: RAG Abschlussbericht Grimberg 31 (1998)
[6] Quelle: siehe Tab. 17
* unklar ob gefilterte oder ungefilterte Probe

Seit 2010 wurde der Schwebstoff des gehobenen Grubenwassers von Pumpstandort Haus Aden/Monopol im Zuge zweier Sondermessprogramme (Bezirksregierung Arnsberg, LANUV) 71 Mal beprobt. Knapp 85 % der Beprobungen ergaben Konzentrationen unterhalb der jeweiligen Nachweisgrenze. Die Nachweisgrenzen reichten bemerkenswerterweise von < 1 µg/kg bis < 100 µg/kg. Aufgrund zum Teil sehr hoher Bestimmungsgrenzen sind die vorliegenden Daten nur eingeschränkt oder gar nicht aussagekräftig.

In den übrigen Untersuchungen wurden PCB-Konzentrationen (PCB gesamt nach LAGA) von 165 – 1.102 µg/kg TS nachgewiesen (Tab. 30). Die zeitlich eng durchgeführte Beprobung in 2015 (März – August, 9 Messungen) ergab eine relativ geringe Varianz der PCB-Gehalte von ca. 325 bis 1.100 µg/kg.

In Tab. 31 sind die Ergebnisse der Grubenwasserprobe (gefilterte Wasserphase) von der Beprobung vom 18.02.2016) im Rahmen dieses Gutachtens dargestellt. **Diese**

Daten sind gemäß Kenntnisstand der Gutachter die einzigen gesicherten Informationen zu PCB-Konzentrationen gelöst[6] in der Wasserphase. Sie zeigen die aktuelle PCB-Belastung der Wasserphase im gehobenen Grubenwasser des Bergwerks Haus Aden/Monopol. Dabei liegen die Konzentrationen einzelner PCB Leitkongenere (Bestimmungsgrenze < 4 pg/L) im Bereich von <0,004 bis 0,167 ng/L.

Tab. 29: Beprobungen von am Pumpstandort Haus Aden/Monopol gehobenem Grubenwasserschwebstoffen. Alle hier aufgelisteten Beprobungen ergaben für alle Proben PCB-Konzentrationen unterhalb der jeweiligen Bestimmungsgrenzen.

Jahr	Labor / Behörde	Probenahme-volumen	Anzahl der Proben	PCB NWG
2010-2014	BR A		18	< 1 µg/kg
2011	BR A		1	< 10 µg/kg
2013	BR A	10 L	1	< 0,01 µg/L*
2015	BR A	10 L	1	< 10 µg/kg
2015	BR A	10 L	9	< 100 µg/kg
2015	RAG Ruhranalytik	10 L	29	< 6 – < 16 µg/kg
2015	RAG Ruhranalytik	70 L	1	< 2 µg/kg

* unklar ob gefilterte oder ungefilterte Probe

Tab. 30: Schwebstoffuntersuchungen an Grubenwasserproben mit Konzentrationen oberhalb der Nachweisgrenze in µg/kg Trockengewicht

Datum	Labor	Probenahme-technik	PCB-28	PCB-52	PCB-101	PCB-138	PCB-153	PCB-180	∑ Indikator PCBs	PCB Gesamt nach LAGA
08.09.2010	BR A	k.A	< 1	< 1	11	11	9	2	33	165
18.02.2016	UCL	100 L	110	61	25	< 17	< 17	< 17	196	980
16.03.2015	RAG	10 L	18	20	10	6	6	5	65	325
13.05.2015	LANUV	Zentrifuge	44	51	13	< 5	< 7,5	< 2	108	540
24.08.2015	LANUV	Zentrifuge	28	32	5,2	< 2,5	< 2,3	< 2,3	65,2	326
25.08.2015	LANUV	Zentrifuge	36	47	8,2	< 2,8	< 2,8	< 2,8	91,2	456
25./26.08.2015	LANUV	Zentrifuge	42	51	9,6	2,1	2	< 1	106,7	533,5
26.08.2015	LANUV	Zentrifuge	58	86	22	4,8	< 4	< 4	170,8	854
26./27.08.2015	LANUV	Zentrifuge	57	88	23	4,4	3,6	1,2	177,2	886
27./28.08.2015	LANUV	Zentrifuge	64	84	26	5,3	4,7	1,4	185,4	927
28.08.2015	LANUV	Zentrifuge	72	110	29	5,3	4,1	< 4	220,4	1102

k.A. – keine Angaben

[6] Unter dem Begriff „gelöst" wird per Definition auch der Feinschweb < 0,45 µm verstanden.

Tab. 31: PCB-Konzentrationen (gelöster Anteil) in der 100 L-Grubenwasserprobe in ng/L

Datum	18.02.2016
Labor	LEK
Probenahmetechnik	100 L
	[ng/L]
PCB-28	0,167
PCB-52	0,137
PCB-101	0,005
PCB-138	0,004
PCB-153	0,006
PCB-180	<0,004
∑ Indikator PCBs	0,319
PCB Gesamt nach LAGA	1,6

* Bestimmungsgrenze: 0,004 ng/L

11.2.3 Vorgehen zur Kalkulation des Austrags im IST-Zustand

Auf Grundlage der gemessenen PCB-Konzentrationen im Schwebstoff und in der Wasserphase wie in der 100-L-Grubenwasserprobe (vom 18.02.2016) kann zukünftig die Gesamtmenge an PCB bezogen auf das Grubenwasservolumen (Summe gelöster und partikulär-gebundener Anteile) und in Abhängigkeit von der Schwebstoffkonzentration abgeschätzt werden. Nach einer vorläufigen Abschätzung bezogen auf die z. T. nur einmalig erhobenen Werte macht der schwebstoffgebundene PCB-Anteil ca. 90% und der PCB-Anteil in der Wasserphase ca. 10% aus.

Schwankungen im Austrag von PCB über gehobenes Grubenwasser werden maßgeblich über den Schwebstoffgehalt in selbigem Grubenwasser beeinflusst. Die Schwankungen in den bisherigen Messungen im Schwebstoffgehalt zeigt die Abb. 34 und die Auswirkung auf die Frachtberechnung exemplarisch die Abb. 35. Die Jahresfracht ergibt sich aus den Schwebstoffgehalten (mg/L, Tab. 27) und den Schwebstoffbelastungen (µg/kg TS, Tab. 30) sowie dem Volumen des gehobenen Grubenwassers (22 m³/min) und den PCB Konzentrationen in der wässrigen Phase (Kd-Wert 100 L-Probe). Anhand der für die 100 L-Grubenwasserprobe bestimmten Konzentrationen der PCBs in der Wasserphase und in der Schwebstoffphase (grün hinterlegt) sowie zwei weiterer, angenommener Szenarios mit erhöhten PCB-Konzentrationen wurden Austragsvariabilitäten in Kapitel 11.1 und Abbildung 30 dargestellt. **Wichtig ist hierbei, dass ein variierender Schwebstoffgehalt keinen Einfluss auf die ausgetragene Menge gelöst vorliegender PCB hat.** Der Schwebstoffgehalt muss aber bei der Abschätzung der Menge der über das Grubenwasser freigesetzten ungelöst vorliegenden PCB berücksichtigt werden. Je höher der Schwebstoffgehalt, desto höher die Menge kontaminierter Partikel, die freigesetzt werden können.

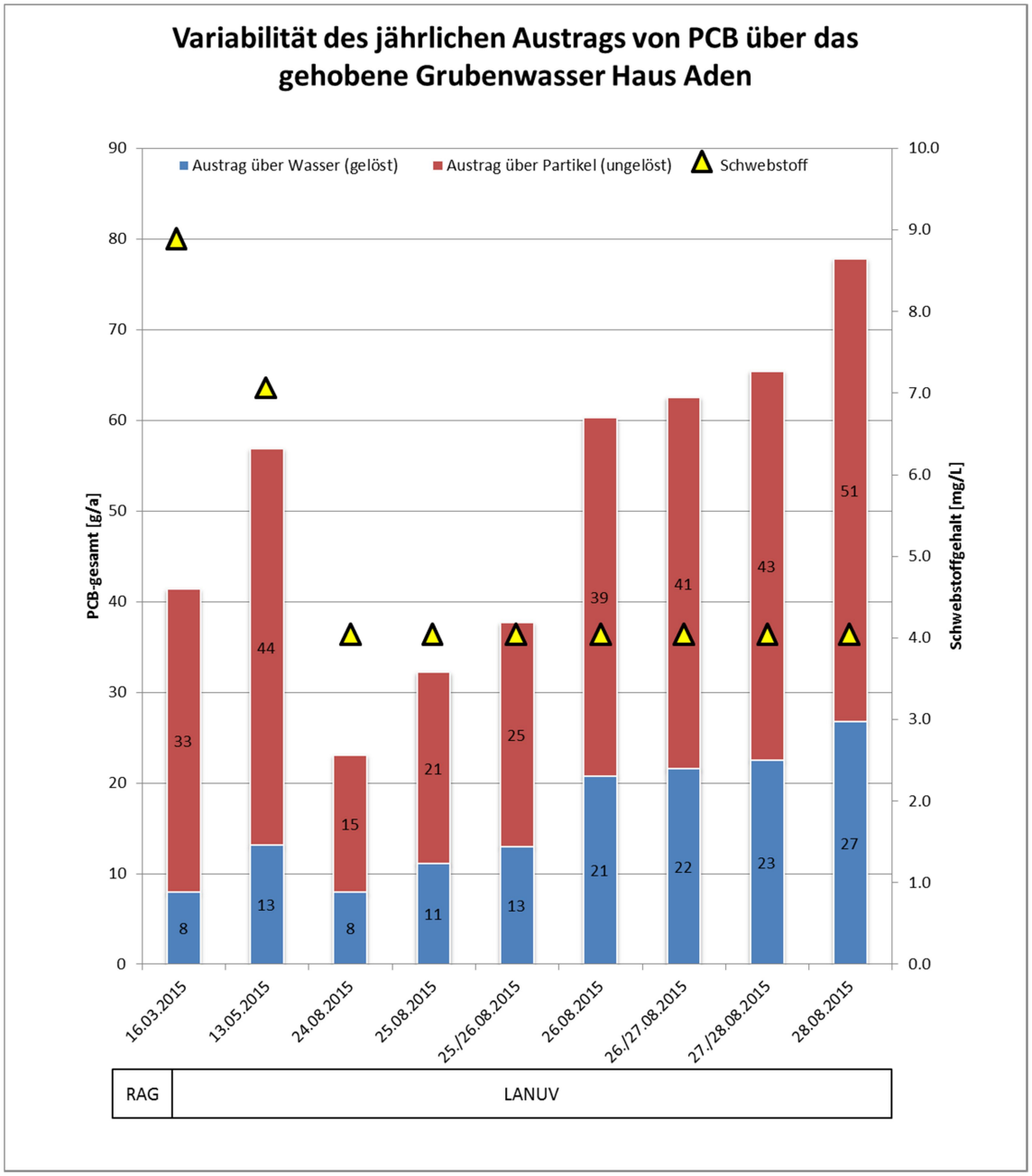


Abb. 35: Varianz des jährlichen Austrags von PCB in [g] aus dem Bergwerk Haus Aden/Monopol auf Grundlage von im Jahr 2015 genommenen Proben. Der Anteil an gelöstem PCB wurde berechnet anhand der Kd-Werte, die aus der Analyse der 100 L-Grubenwasserprobe ermittelt wurden.

11.3 Qualitative Abschätzung des PCB-Austrags im gehobenen Grubenwasser während und nach der Grubenwasseranhebung

Aus Sicht der Gutachter sind folgende Stadien für eine Abschätzung des PCB-Austrags über das Grubenwasser während und nach der Grubenwasseranhebung relevant:

- IST Zustand
- Flutungsphase ohne Pumpen
- Inbetriebnahme der Pumpen im geflutetem BW
- Dauerhafter Pumpenbetrieb

11.3.1 IST-Zustand

In dieser Phase finden bereits Freisetzung und Ausbreitung (wie in 10 und Abschnitt 11.1 beschrieben) statt. An der Ausbreitung nehmen die einzelnen Bereiche in unterschiedlichem Maße teil. Weiterhin offene Strecken in gefluteten Bereichen können höhere Fließgeschwindigkeiten haben und eine PCB-Ausbreitung liegt dominant durch advektiven Transport in gelöster und partikel-gebundener Form vor (Abschn. 11.1). Im Alten Mann findet kein relevanter advektiver Transport statt. Eine Ausbreitung der PCB-Belastung findet hier also dominant über die Diffusion in der Wasserphase und nicht partikel-assoziiert oder gelöst in Form von Advektion statt. In den weiterhin “trocken“ liegenden Bereichen des Grubengebäudes hat abgesehen vom Sickerwasser noch keine Freisetzung stattgefunden. In Bereichen von lokalen Gerinnen – wie in den Übertrittsstellen zwischen den einzelnen Bergwerken – ist von einer Freisetzung und Ausbreitung über die Erosion von PCB-kontaminierten Bodenpartikeln auszugehen. Der mengenmäßige Anteil der remobilisierten Partikel ist aber vernachlässigbar im Vergleich zum gesamten partikulären Material in den ehemaligen Abbaubereichen – seien sie geflutet oder noch trocken. Es ist also von einer dominant heterogenen/ dispersen Verteilung der eingesetzten PCBs im partikulären, immobilen Material auszugehen, wovon der überwiegende Teil (ca. < 90 %) im Alten Mann vermutet wird.

11.3.2 Flutungsphase, ohne Pumpbetrieb in der zentralen Wasserhaltung Haus Aden

Die Flutung des Grubengebäudes in der Wasserprovinz Haus Aden wird mit 100 m – 150 m Anstieg pro Jahr erfolgen (max. 0,0004 cm/s). Durch die vertikalen Geschwindigkeiten ist keine Erosion von Feinmaterial in den offenen Strecken wahrscheinlich (s. Abschn. 11.1.3).

Allerdings kann es während dieser Phase temporär auch zu höheren Fließgeschwindigkeiten (und Erosion) in geneigten Strecken und nach dem Erreichen von Übertrittsstellen zwischen einzelnen Bergwerken kommen, die nicht im Einzelnen vorhersehbar sind. Die Dauer dieser Phase beträgt 2 bis 3 Jahre während der kein Grubenwasser gepumpt wird. Im Zuge dieses Anstiegs ändern sich folgende Randbedingungen:

Im Zuge des Grubenwasseranstiegs nimmt die Gesamtmenge an PCB, welche mit dem Grubenwasser in Kontakt kommt, zu. Allerdings nimmt der Anteile an Flächen, die außerhalb der PCB-Zeit abgebaut wurden sind, ebenfalls und in einem höheren Masse zu. Neben Abbaubereichen in denen PCBs eingesetzt wurden, werden mit ansteigendem Grubenwasserstand und sinkendem hydraulischen Gradienten auch Abbaubereiche und Strecken geflutet, welche bislang noch nicht mit PCBs in Kontakt gekommen sind. Im Mittel wird aber die Partikelkonzentration gesenkt. Dies ist ein wichtiger Parameter, da die PCB-Konzentrationen in der gelösten Phase sich in Abhängigkeit von der mittleren Partikelbelastung, die im Kontakt mit dem Grubenwasser steht, ändert.

Eine Quantifizierung, wie sich diese mittlere PCB-Belastung im partikulären Material und damit der gelöste Anteil ändert, ist nicht abschätzbar. Zur Orientierung gibt es bislang erst eine Analyse aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm.

In Abhängig vom Strömungsregime kann sich – bei Erosion von partikulärem Material – auch die Schwebstofffracht ändern, dies ist aber ebenso nicht abschätzbar. Während des Grubenwasseranstiegs gibt es keinen Austrag von Grubenwasser in die Lippe.

11.3.3 Inbetriebnahme der Pumpen im gefluteten Bergwerk

Eine Abschätzung der maximal auftretenden Fließgeschwindigkeiten gemäß den in Abschn. 11.1.3 beschriebenen Grundlagen ergibt, dass die Fließgeschwindigkeiten – unabhängig von der Korngröße – in der Regel deutlich unterhalb des Erosionsfensters liegen (Abb. 33).

Somit verbleiben als Schwebstoffquellen vor allem Überleitungen aus anderen Bergwerken mit einer hohen Reliefenergie, Zuläufe über Gerinne aus höherliegenden, noch nicht gefluteten Abbaubereichen aus der PCB-Zeit oder singuläre Ereignisse wie sich lösende Steine aus der Firste und/ oder treibende Holzstücke, Erschütterungen, etc. in wassergefüllten Strecken.

Der gelöste Anteil an PCB wird weitgehend unverändert bleiben.

11.3.4 Dauerhafter Pumpenbetrieb

In diesem Stadium kann von konstanten Fördermengen, konstantem hydraulischen Gradient und konstanten Fließgeschwindigkeiten ausgegangen werden.

Ein unveränderter hydraulischer Gradient bewirkt konstante Schwebstoffmengen, da die kinetische Energie unverändert bleibt. Letzteres setzt voraus, dass es im Grubengebäude keinerlei singuläre Ereignisse wie oben beschrieben gibt, wodurch Partikel in Schweb gelangen.

Der gelöste Anteil an PCB wird weitgehend unverändert bleiben.

Weiterhin wird ein dauerhafter Übergang von PCB aus belastetem partikulärem Material in das Grubenwasser, aber auch umgekehrt, über einen langen Zeitraum erfolgen. Wenn mit gelöstem, PCB-belastetes Grubenwasser bislang unbelastete Bereiche erreichen, werden gelöste PCB aus dem Grubenwasser sich im partikulären Material (Sediment) durch Adsorption bis zu einem Gleichgewichtszustand anreichern. Über

das Grubenwasser erfolgt somit langfristig auch eine Angleichung der PCB-Belastung im gesamten, gefluteten partikulären Material. Die durchschnittliche Konzentration an partikel-gebundenen PCB jedoch wird, wie bereits ausgeführt, durch diesen Prozess entsprechend sinken.

Theoretisch nimmt die Gesamtmenge PCB, welche sich unter Tage befindet, mit fortschreitender Grubenwasserhebung ab. Der Austrag (in der Größenordnung von ca. 100 – 200 g/a, s. Tabelle 11, ist jedoch verglichen mit der PCB Menge, welche noch unter Tage ist, so gering, dass die verbleibende Menge als konstant angenommen wird.

Ebenfalls als gering werden die Mengen von PCB angenommen, welche unter Tage in geschlossenen Systemen vorliegen und nicht am Austausch teilnehmen. Theoretisch könnten diese bei einer Leckage (z. B. durch Gebindeleckage in Folge von Korrosion) zu einem Anstieg der PCB-Konzentrationen führen. Die Konzentrationen von PCB in/ an beiden Kompartimenten sind ausgehenden von einem Erreichen der Gleichgewichtseinstellung abhängig von der Menge an PCB in dem betrachteten System. Die Gleichgewichtseinstellung ist jedoch aufgrund der unterschiedlichen Adsorptionsaffinitäten der beteiligten Materialien (Kohle, Gestein, etc.) von Abschnitt zu Abschnitt verschieden. Betrachtet man die mengenmäßige Verteilung von PCB führt dies zu einer Konzentrierung von PCB an Materialien mit hoher Adsorptionsaffinität und ergibt eine heterogene Verteilung. Da keine Daten vorliegen, um eine entsprechend detaillierte Betrachtung vorzunehmen, wird im Folgenden von einem durchschnittlichen Verteilungskoeffizienten für das gesamte Grubengebäude ausgegangen.

11.4 Abschätzung der quantitativen Entwicklung des PCB-Austrags nach der Grubenwasseranhebung

Aufgrund der Datengrundlage ist es nicht möglich, konkrete Prognosen bezüglich zukünftiger Grubenwasserkonzentrationen zu erstellen. In diesem Kapitel wird ein Ansatz vorgestellt, welcher der auf den oben vorgestellten Grundlagen beruht. Diese Abschätzung kann lediglich sehr grob erfolgen. Folgende Annahmen werden für die Abschätzung der PCB-Entwicklung in Tab. 32 aus den Ergebnissen der Analyse und Messungen im Einzugsgebiet Victoriadamm getroffen:

- Das Einzugsgebiet Victoriadamm in der Wasserprovinz Haus Aden wird als repräsentativ für die weiteren Abschnitte der Wasserprovinz angesehen. Dies ergibt sich aus dem Vergleich der Einzugsgebietsbeschreibungen in Abschnitt 8.4.1 (Einzugsgebiet Victoriadamm) und Abschnitt 8.4.2 (Einzugsgebiet Ost). So ergeben sich für die Anteile an verbrochenen und offenen Bereichen, für die Merkmale punktuell belasteter Bereiche etc. hohe Ähnlichkeiten.

- Das Verhältnis belastete Flächen aus der PCB-Einsatzzeit zu (weitgehend) unbelasteten Flächen (Abbaue außerhalb der PCB-Zeit) beträgt in der Wasserprovinz Haus Aden derzeit ca. 1 : 1,5. Mit Umsetzung des Grubenwasserkonzepts wird der Flächenanteil der Abbaue außerhalb der PCB-Zeit auf 1 : 2 und bei einer vollständigen Flutung der Grubenbaue auf sogar 1 : 3,4 steigen.

- Die PCB-Belastungen im Grubenwasser Wasserprovinz Haus Aden stellen einen integrierten Querschnitt der Unter-Tage-Belastungen aus einem großen, langjährig gefluteten Bereich mit vielen punktuellen Kontaminationen (ca. 120 Infrastrukturein-

richtungen wie Werkstätten und Lokschuppen), vermutlich sehr hoch belasteten Bereichen im Alten Mann (PCB-Gehalte in der Größenordnung von und 10 - 50 t/km^2) und mehreren Kilometern offenen Strecken (mit einem PCB-Gehalt im Sediment in der Größenordnung von ca. 1,3 t/km^2). Dies gilt im IST Zustand für die derzeitig bereits gefluteten Bereiche, wird aber genauso für die nach Grubenwasseranstieg gefluteten Bereiche gelten.

- Wasserphase und partikuläres Material im Einzugsgebiet Victoriadamm befinden sich in einem quasi-Gleichgewichtszustand. Dies ergibt sich aus der Analyse der 100-L-Probe.

- Die Messergebnisse der (bisher einzigen) 100-L-Probe (PCB-Belastungen partikulär und gelöster Phase, s. Tab. 18) und entsprechende Verteilungskoeffizienten werden als repräsentativ für das Einzugsgebiet des Victoriadamms angenommen. Dies soll in Teil 2 des Gutachtens überprüft werden.

- Der Wasserbeitrag aus der Wasserprovinz Ost liegt nach Grubenwasseranstieg nur bei 10 % des gesamten gehobenen Grubenwassers. Daher ist ein Beitrag zur PCB Belastung aus diesen zu flutenden Bereichen von untergeordneter Bedeutung.

- Die zukünftige geförderte Wassermenge aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm wird sich wahrscheinlich so lange nicht ändern, wie die hohen Potentialdifferenzen und Zuflüsse aus dem Deckgebirge gleichbleiben. Durch einen Einstau bis ins Deckgebirge würden sich die Zuströme sehr wahrscheinlich verringern, da dann die hohen Potentialdifferenzen nicht mehr bestehen würden. Diese Option wurde jedoch nicht weiter untersucht.

- Es erfolgt ein Übergang von PCB aus belastetem partikulärem Material in das Grubenwasser, aber auch umgekehrt. Wenn mit gelöstem, PCB-belastetem Grubenwasser bislang unbelastete Bereiche geflutet werden, werden gelöste PCB aus dem Grubenwasser sich im partikulären Material (Sediment) bis zu einem Gleichgewichtszustand anreichern. Über das Grubenwasser erfolgt somit langfristig eine Angleichung der PCB-Belastung im gesamten, gefluteten partikulären Material und dadurch letztlich wieder die langfristig (Rück)-Kontamination an gelöstem PCB im Grubenwasser.

- Da weder quantitative Daten über die im betrachteten Bergwerken der Wasserprovinz Haus Aden eingesetzte Menge von PCB vorliegen, noch mit Bestimmtheit gesagt werden kann in welchen Strecken PCB eingesetzt wurde, wird die Wasserprovinz in zwei Sektionen unterteilt.

    1. belastete Flächen mit Abbau zur PCB-Einsatzzeit

    2. unbelastet Flächen mit Abbau außerhalb der PCB-Zeit.

Für die Abschätzung der zukünftigen Grubenwasserbelastung wird angenommen, dass

1) sich die mittlere PCB-Belastung im partikulären Material wie das Verhältnis belasteter zu unbelasteter Abbauflächen verhält bzw. verändern wird; dies hat durch die postulierte quasi-Gleichgewichtseinstellung direkten Einfluss auf die Veränderung der PCB-Belastung der gelösten Phase,

2) sich die mittlere PCB-Belastung im Schwebstoff des Grubenwassers wie das Verhältnis belasteter zu unbelasteter Abbauflächen verhält bzw. verändern wird.

Die Tab. 32 zeigt zusammenfassend die Ergebnisse der Abschätzung der PCB-Entwicklung im Einzugsgebiet Victoriadamm, da das Einzugsgebiet Victoriadamm der maßgebliche Bereich für die PCB-Belastung in der ZWH ist:

- Herkunft von ca. 80 % – 90 % des zukünftig gehobenen Grubenwassers,
- auch bei einem Grubenwasseranstieg bis ca. -600 mNHN in den Grubengebäuden bleiben noch große Flächenanteile aus der PCB-Zeit (ca. 24 km^2) mit hohem Erosionspotential nicht geflutet.

Der Wasserbeitrag aus der Wasserprovinz Ost liegt nach dem Grubenwasseranstieg nur bei 10 % des gesamten gehobenen Grubenwassers. Daher ist ein Beitrag zur PCB-Belastung aus diesen zu flutenden Bereichen bei vergleichbarer Belastung an gelöstem PCB und Schweb von untergeordneter Bedeutung. Zudem werden bei einer Flutung der Grubengebäude bis ca. -600 mNHN die Grubenbaue aus der PCB-Zeit im Einzugsgebiet Ost weitestgehend geflutet sein, so dass selbst bei einem geringen Erosionspotential der nicht gefluteten Grubenbereiche der Beitrag zur Gesamtbelastung der PCB in der ZWH gering ist.

Erläuterungen zur Tab. 32.

Tabellentext	Erläuterung
PCB-geflutet/ nicht geflutet	Flächengröße der Abbaubereiche aus der PCB-Zeit, die bereits geflutet sind bzw. noch nicht geflutet sind
Ist Fracht	PCB-Fracht, die derzeit (2016) über das Grubenwasser aus dem Einzugsgebiet Victoriadamm gelöst im Grubenwasser (ca. 1/10 der Fracht) und über den Schweb (ca. 9/10 der Fracht) ausgetragen wird.
Ist Konzentration	PCB-Konzentration im Grubenwasser in der ZWH (gelöst in ng/L) und in der Trockensubstanz (TS) des Schweb (in mg/kg)
→ ↑ ↓	Veränderung der PCB-Belastung in der ZWH bleibt gleich, erhöht sich, erniedrigt sich
(→)	eingeschränkte Gültigkeit, da in der Anstiegsphase (ca. 3 Jahre) keine Grubenwasserhebung in der ZWH erfolgt
ggf. Mobilisierung und tw. wieder Sedimentation	Bei dem ersten Fluten eines Grubengebäudes kann durch schneller fließendes Grubenwasser Schweb im Grubenwasser aufgenommen werden. Da das Grubenwasser in gefluteten Grubenteilen aber nicht gepumpt wird und dadurch in Strömung versetzt wird, können die gröberen Partikel auch wieder sedimentiert werden. Die kleineren Partikel bleiben aber als Schweb im Grubenwasser.

Tabellentext	Erläuterung
Gleichgewichtseinstellung. Verhältnis PCB-Flächen/ Nicht-PCB-Flächen Reduktion der mittl. Partikelbelastung und Reduktion der Wasserbelastung	Zwischen den PCB-Gehalten im Sediment (partikuläres Material) und der im Grubenwasser gelösten PCB-Gehalte stellt sich ein Gleichgewicht ein (derzeit ca. 1,6 ng/L). Wenn bei der Flutung wie in der Wasserprovinz Haus Aden der Anteil der Flächen aus der „Nicht-PCB-Zeit“ gegenüber dem Flächenanteil aus der „PCB-Zeit“ zunimmt, kommt es langfristig wieder zu einer Festlegung der im Wasser gelösten PCB im Sediment, bis wieder ein Gleichgewichtszustand herrscht. Durch die verstärkte Flutung der Flächen aus der „Nicht-PCB-Zeit“ reduziert sich langfristig der PCB-Gehalt im Grubenwasser. Dies gilt auch für den an den Schweb gebundenen PCB-Gehalt, der sich ebenfalls verringert, wenn Flächen aus der „Nicht-PCB-Zeit“ mit so belasteten Grubenwässern geflutet werden.
ggf. „Anfangsschweb“	Bei Aufnahme des Pumpenbetriebs ist es möglich, dass zunächst ein etwas höherer Schwebgehalt in der ZWH gefördert wird, bis sich ein neues Gleichgewicht einstellt (ungünstige Annahme). Die reale Entwicklung der Schwebgehalte kann aus dem anlaufenden Monitoring der Grubenwasserhaltung in Walsum abgeleitet werden.
Dichteschichtung	Eine Dichteschichtung wird sich umso stärker ausbilden, desto geringer die Störungen durch eine Grubenwasserhaltung ausfallen. Die Störungen entstehen durch das strömende Grubenwasser zu einer ZWH. Das sich derzeit in Bearbeitung befindliche Gutachten soll Aussagen zum zukünftigen Salzgehalt der Grubenwässer machen. Hieraus können auch Aussagen zur Dichteschichtung abgeleitet werden. Bei einer ausgeprägten Dichteschichtung ist davon auszugehen, dass der Schwebgehalt in einem dann noch geförderten Grubenwasser weiter abnimmt, da das Grubenwasser dann aus einem höheren Niveau gefördert wird.

Tab. 32: Zusammenfassende Abschätzung der PCB-Belastung in der ZWH

	EZG Victoriadamm	
PCB-geflutet	35,1 km²	
PCB-nicht geflutet	29,1 km²	
Grubenwasserhydraulik (2016)	- z. T hohe Potentialdifferenzen zwischen Teilprovinzen - großvolumige Beruhigungsstrecken - Zustrom/Gerinne aus nicht gefluteten Bereichen auch aus der PCB-Zeit	
	gelöst	Schweb
Ist Fracht (Schätzung)	1/10 Fracht gelöst	9/10 Fracht über Schweb
Anstieg bis -670 mNHN ZWH (keine Förderung nächsten ca. 3 Jahre)	(→)	(↑) ggf. Mobilisierung und tw. wieder Sedimentation
Beginn Förderung (Inbetriebnahme der Pumpen)	↓ Neue Gleichgewichtseinstellung: **Verhältnis PCB-Flächen/ Nicht-PCB-Flächen** wird immer kleiner. Dadurch Reduktion der mittl. Partikelbelastung und der Wasserbelastung. 1 : 1,4 1 : 1,5 1 : 4,2	↑ ggf. „Anfangsschweb“
Anstieg bis ca. -600 mNHN im Grubengebäude		→ wie Ist-Zustand, da fast unveränderter Zustrom von „oben“ durch die PCB-Bereiche
vollständige Flutung Grubengebäude (z. B. -400 mNHN)		↓ - keine Durchströmung der PCB-Bereiche Reduktion der mittl. Partikelbelastung - ggf. auch Rückgang Grubenwassermengen - ggf. Auswirkungen Dichteschichtung

Zusammenfassend sehen die Gutachter nach dem im Detailbericht 6 beschriebenen Wirkungsmodell bei einer zunehmenden Flutung – auch über das derzeitige Flutungsziel von -670 mNHN in der ZWH hinaus – langfristig folgende Entwicklungstendenzen:

1. Es kommen in der Summe einmalig größere Volumina an Grubenwasser mit PCB in Kontakt. Das Gesamtvolumen unter Tage an mit PCB belastetem Grubenwasser nimmt zu.

2. Die geförderte Grubenwassermenge nimmt **tendenziell** aus hydraulischen Gründen ab (Verringerung der Potentialdifferenzen und dadurch Verringerung des Zustroms). Dies macht sich bei einem Anstieg nur bis -670 mNHN in der ZWH wahrscheinlich noch nicht relevant bemerkbar, weil dann weiterhin große Wassermengen aus dem Deckgebirge in das Einzugsgebiet Victoriadamm strömen (ca. 90 % des Grubenwassers in der ZWH).

3. Die Schwebbelastung des Grubenwassers in mg/L nimmt tendenziell ab (Verringerung der Potentialdifferenzen, weniger offen durchströmte Bereiche, verringertes Erosionspotential).

4. Die Höhe der PCB-Belastung im Schwebstoff (mg/kg/TS) nimmt tendenziell ab (anteilig weniger offen durchströmte PCB-Abbaubereiche, geringere mittlere Partikelbelastung). Dies liegt daran, dass die Flächen mit einer PCB-Belastung zwar absolut zunehmen, relativ jedoch sinken, weil vermehrt Flächen außerhalb der PCB-Zeit geflutet werden. Dies führt insgesamt zu einer Reduktion der mittleren PCB-Belastung am Schwebstoff.

5. Die Konzentration an gelöstem PCB im Grubenwasser nimmt tendenziell ab (zunehmende Flutung von Abbaubereichen außerhalb der PCB-Zeit und PCB-Austrag aus dem Grubenwasser in die Sedimente in diesen Bereichen).

6. Es wird eine Angleichung der PCB-Belastung über das Grubenwasser auch in bislang nicht oder geringer belastete Bodenbereiche geben, die mittleren Partikelbelastungen sinken aber (s. o.).

12 MÖGLICHE MAßNAHMEN ZUR VERRINGERUNG DES AUSTRAGS VON PCB

Die zukünftigen Austräge aus der BHV (Schwermetalle, PAK und Dioxine) werden nicht messbar bzw. nicht der BHW zuzuordnen sein und werden in den nächsten Jahrhunderten keine Maßnahmen erfordern (s. Hauptgutachten, Kap. 10). Hingegen ist die PCB-Belastung messbar und reduzierbar – auch wenn sie bei Flutung sich nicht weiter erhöhen, sondern sogar abnehmen würde. Dies kann durch übertägige wie untertägige Maßnahmen erfolgen. Die übertägigen Maßnahmen zur Reduzierung der Belastung der Schwebstoffphase wie der wässrigen Phase werden jedoch in einem anderen Gutachten betrachtet (IWW 2016: Gutachterliche Untersuchung/Recherche zu den technischen Möglichkeiten einer PCB-Elimination von Grubenwässern).

12.1 Verringerung der Höhe des Grubenwasseranfalls und der Schwebmenge durch einen höheren Grubenwasserstand

Bei der Flutung wird sich das gesamte untertägige Grubenwasservolumen, das PCB in gelöster und partikulärer Form enthält, erhöhen. Die zutage geförderte Menge an Grubenwasser wird sich dadurch jedoch nicht ändern, da nach dem Anstieg i. W. nur die Grundwasserneubildung gefördert wird, um den Grubenwasserstand auf dem vereinbarten Niveau zu halten.

Da eine strömungsbedingte Erosion in offenen Strecken (heutige und zukünftige Wasserwege) maßgeblich die Schwebstofffracht im Grubenwasser bestimmt und dadurch einen wichtigen Parameter für den partikelgebundenen PCB-Austrag darstellt, ist nach Ansicht der Gutachter ein **höherer Grubenwasserstand grundsätzlich geeignet, den partikelgebundenen und auch den gelösten PCB-Austrag zu reduzieren**. Hierbei kommen v. a. drei Wirkungszusammenhänge in den unterschiedlichen Kombinationen zum Tragen:

1. **Verringerung der Erosion und der Entstehung von Schweb (partikuläre Fracht)**. Durch einen Grubenwasseranstieg werden Flächen aus der PCB-Zeit der direkten Erosion durch schnell fließendes Grubenwasser entzogen. Dadurch vermindert sich die **Menge** an belastetem Schweb im Grubenwasser.

2. **Flächen außerhalb der PCB-Zeit wirken als Flächenfilter (gelöste Fracht)**. Bei einem Grubenwasseranstieg steigt überproportional der Anteil an Flächen außerhalb der PCB-Zeit (Abb. 66 im Gutachten). Diese Zahlen sind, neben den PCB-Belastungsmessungen im Grubenwasser, belastbare und mit einer großen Sicherheit ermittelte Werte. In diesen Flächen mit einem hohen Anteil an fein verteilten Kohlen erfolgt eine (Rück-)Festlegung der gelösten PCB aus dem Grubenwasser im kohlenhaltigen Sediment, da zwischen den beiden Medien ein Konzentrationsgefälle besteht, das sich ausgleichen wird. Damit wirken diese Flächen ähnlich wie ein „Flächenfilter“. Der Gehalt an gelöstem PCB wird durch diesen Effekt tendenziell sinken.

3. **Verringerung der Grubenwassermenge (partikuläre und gelöste Fracht)**. Der Grubenwasseranstieg reduziert die großen Gefälleunterschiede der Grubenwasserstände im Einzugsgebiet Victoriadamm. Hier erfolgte in den 1930er und 1940er Jahren der Kohlenabbau relativ nahe unterhalb des Deckgebirges, so dass bis heu-

te große Mengen an Grundwasser aus dem Deckgebirge über noch nicht geflutete BW der ZWH zulaufen. Nach dem Grubenwasseranstieg werden ca. 90 % des zu fördernden Grubenwassers aus dem EZG Victoriadamm stammen. Der erwartete positive Effekt: Je geringer der Gefälleunterschied ist, **desto niedriger ist tendenziell die zuströmende Grubenwassermenge aus dem Deckgebirge**.

Weitere Maßnahmen zur Reduzierung des gelösten Anteils an PCB im Grubenwasser sind unter Tage nicht möglich.

12.1.1 Grubenwasseranstieg bis ca. -600 mNHN

- Bei einem Grubenwasseranstieg bis ca. -600 mNHN in den Grubenbauen sehen die Gutachter in der Summe die folgenden Effekte, die zu **einer langfristigen Verringerung vor allem der partikelgebundenen PCB-Belastung** im Grubenwasser in der ZWH gegenüber dem Ist-Zustand führen werden:

1. **Verringerung der Erosion und der Entstehung von Schweb**
    - Dies gilt vor allem für das Einzugsgebiet Ost, wo bislang nur ca. 11,4 % der Flächen aus der PCB-Zeit geflutet sind (7,5 km^2). Bei einem Anstieg des Grubenwassers bis ca. -600 m NHN in den Grubenbauen ca. 94 % der Flächen aus der PCB-Zeit geflutet (61,7 km^2) und der Erosion entzogen werden (Abb. 66).
    - Im Einzugsgebiet Viktoriadamm reduziert der geplante Grubenwasseranstieg den Schwebanfall nicht so wirkungsvoll, da weiterhin ca. 24 km^2 (das entspricht 37 % der Flächen aus der PCB-Zeit) in erhöhtem Maße der Erosion ausgesetzt sind, weil hier der Bergbau früh begann und viele Abbaue aus der PCB-Zeit oberflächennäher sind als im Einzugsgebiet Ost. Nach wie vor sind dann große Flächen aus der PCB-Zeit im BW Hansa noch nicht geflutet (Tab. 23). Da im Einzugsgebiet Viktoriadamm zudem fast 90 % des später zu hebenden Grubenwassers anfallen werden, bleibt ein großes Freisetzungspotential für PCB – über den erodierten PCB-belasteten Schweb – bestehen.
2. **Flächen außerhalb der PCB-Zeit wirken als Flächenfilter**
    - Derzeit beträgt das Verhältnis der Flächen aus der PCB-Zeit zu den Flächen gemäß Abb. 66 außerhalb der PCB-Zeit in der Wasserprovinz Haus Aden 1 : 1,5 (42,5 km^2 : 62,8 km^2). Nach einem Anstieg bis auf auf ca. -600 m NHN in den Grubenbauen steigt das Verhältnis auf 1 : 2 (104,4 km^2 : 211,5 km^2).
    - Im Einzugsgebiet Ost nehmen beide Flächenanteile vergleichbar zu, so dass sich das Verhältnis nur geringfügig zu Gunsten der Flächen außerhalb der PCB-Zeit verschiebt (von 1 : 2,1 zu 1 : 2,4).
    - Im Einzugsgebiet Viktoriadamm mit großen Anteilen an Abbauflächen oberhalb von – 600mNHN wäre der Effekt kaum wahrnehmbar, da sich das Verhälznis nur von 1 : 1,4 auf 1 : 1,5 verändern würde.
3. **Verringerung der Grubenwassermenge**
    - Die Verringerung dürfte vernachlässigbar sein, da der Grubenwasserzustrom aus dem Deckgebirge davon weitgehend unberührt bleibt.

12.1.2 Grubenwasseranstieg höher als -600 mNHN (optimierter Grubenwasserstand)

Bei einem Grubenwasseranstieg höher als -600 mNHN und Flutung aller/der meisten PCB-Flächen sehen die Gutachter in der Summe die folgenden Effekte, die zu einer **langfristigen Verringerung der partikelgebundenen und der gelösten PCB-Belastung im Grubenwasser** in der ZWH gegenüber dem Ist-Zustand führen werden:

1. **Verringerung der Erosion und der Entstehung von Schweb**
   - Vor allem im Einzugsgebiet Victoriadamm mit großen Anteilen an PCB-Flächen oberhalb von -600 mNHN wäre der Effekt am stärksten, da hier die letzten 37 % der PCB-Flächen geflutet würden (Abb. 66).
2. **Flächen außerhalb der PCB-Zeit wirken als Flächenfilter**
   - Bei einer Flutung aller Grubengebäude in der Wasserprovinz Haus Aden würde das Verhältnis den Wert 1 : 3,4 (132,3 km^2 : 448,80 km^2) erreichen (Abb. 66).
   - Vor allem im Einzugsgebiet Victoriadamm mit großen Anteilen an PCB-Flächen oberhalb von -600 mNHN wäre der Effekt am stärksten, da hier die letzten 37 % der PCB-Flächen geflutet würden (Abb. 66).
3. **Verringerung der Grubenwassermenge**
   - Es ist zu vermuten, dass dieser Effekt vor allem dann zum Tragen kommt, wenn das Grubenwasser bis in das Deckgebirge ansteigt. Gegebenenfalls sind hier auch noch andere hydraulische Maßnahmen möglich (z. B. Entnahmen im Deckgebirge, Abdichtungen), die im Rahmen des Gutachtens nicht weiter untersucht wurden.

12.1.3 Offene Fragen im Zusammenhang mit einem weiteren Grubenwasseranstieg

Die Untersuchungen des Risikos eines Grubenwasseranstiegs über ca. -600 mNHN hinaus ist bislang nicht Aufgabenbestandteil in Teil 1 und 2 des vorliegenden Gutachtens.

Die Gutachter empfehlen in diesem Zusammenhang einen „**optimierten Grubenwasserstand**“ zu ermitteln, der gemäß den oben beschriebenen Wirkungszusammenhängen die Belastung mit partikelgebundenem und gelöstem PCB verringern wird. Hierbei sind nach unserem derzeitigen Kenntnisstand zu beachten:

1. Risiko der Grubenwasserübertritte in die Abbaubereiche Carolinenglück (Einzugsgebiet Emscher) und Robert Müser (Einzugsgebiet Ruhr) bei ca. -320 mNHN

2. Sicherheit älterer Schachtverfüllung beim Grubenwasseranstieg

3. Schutz vor (ungleichmäßigen) Hebungen beim Einstau des Deckgebirges

4. Trinkwasserschutz (v. a. bei Grundwasserleitern wie Haltern Sande)

5. (erwartete) positive Auswirkung einer Dichteschichtung im Grubenwasser

Die Auswirkung einer Dichteschichtung im Grubenwasser auf eine weitere Reduzierung des Schwebstoffgehalts im geförderten Grubenwasser bei unterschiedlichen

Pumpniveaus kann derzeit nicht abgeschätzt werden. Zurzeit wird in einem weiteren Gutachten die Verteilung der Salzgehalte in der Wasserprovinz Haus Aden untersucht. Auf dieser Grundlage könnten wahrscheinlich auch Aussagen zur Dichteschichtung des Tiefengrundwassers getroffen werden.

12.1.4 Verringerung der Schwebmenge durch Abdeckung in offenen Strecken mit PCB-Belastung

Im Folgenden werden nur untertägige Maßnahmen betrachtet. Die ebenfalls möglichen übertägigen Maßnahmen werden in einem separaten Gutachten beschrieben und bewertet (IWW 2016: Gutachterlichen Untersuchung/Recherche zu den technischen Möglichkeiten einer PCB-Elimination von Grubenwässern).

Neben der Verringerung des Austrags an PCB über eine Reduzierung der geförderten Grubenwassermenge und/oder der Schwebbelastung durch einen möglichst hohen Grubenwasserstand sind auch Maßnahmen zur Verringerung der Exposition der mit PCB belasteten Sedimente in den offenen Strecken zu prüfen. Hier kann möglicherweise durch die Abdeckung mit Beton oder Schotter (oder anderen Materialien) die Aufnahme von Schweb durch schnell strömendes Wasser minimiert werden. Dies tritt vor allem dann auf, wenn im Grubengebäude ansteigendes Wasser mit großem Gefälle und freier Oberfläche in bislang nicht geflutete Bereiche fließt. Kritisch sind solche Bereiche v.a. dann, **wenn sie nahe einer Wasserhaltung bzw. eines kurzen Fließweges zu einer Wasserhaltung liegen**. Kilometerweit von einer Wasserhaltung entfernt liegende Strecken haben ein deutlich geringeres Freisetzungspotential. Bei einem langsamen Anstieg des Grubenwassers „von unten“ kommt es nicht zur Erosion.

In der Wasserprovinz Haus Aden sind dies nur ca. 9,2 km offene Strecken, von denen ein Teil bereits geschottert ist.

Vor einer Entscheidung über Art und Umfang der Abdeckung sollte v.a. geprüft werden:

- Relevanz (wasserhaltungsnahe Strecken mit hohem Erosionspotential)
- Belastung in den offenen Strecken mit PCB
- Grenzwerte für Maßnahmen
- Mögliche Maßnahmen
- Technische Machbarkeit
- Wirksamkeit
- Kosten/Nutzen
- Langzeitauswirkung auf das Fließsystem bei Einbringung von Schotter (wasserdurchlässig) oder Beton (weniger wasserdurchlässig) oder anderer Materialien)

12.2 Verringerung der im Grubenwasser gelösten PCB

Eine Verringerung der Belastung des Grubenwassers an gelöstem PCB kann nur über eine technische Nachbehandlung des Grubenwassers erfolgen.

Die Konzeptionierung von nachgelagerten technischen Maßnahmen zur Eliminierung der PCB-Fracht im Grubenwasser, insbesondere durch eine Grubenwasserbehandlung, ist Gegenstand eines separaten Gutachtens.

13 MONITORING

Ein kontinuierliches Monitoring der in die Lippe eingeleiteten Grubenwässer hinsichtlich des PCB-Austrags wird empfohlen. Im Sinne einer kontinuierlichen Erfassung der PCB-Fracht ist eine integrative Probenahme von Schwebstoff z. B. durch Schwebstoffsammelkästen möglicherweise zu empfehlen (s. PCB AK Protokoll 3, Anlage 4 Info LANUV Monitoring). Die weiteren Einzelheiten wie Art der Untersuchungen, Ort(e) der Probenahme, Häufigkeit von ergänzenden Zentrifugenuntersuchungen, Vergleichsuntersuchungen an anderen Standorten, Analysemethoden etc. werden zzt. auch in dem begleitenden Arbeitskreis zur PCB-Problematik zwischen allen Beteiligten, unter anderem auch der Gutachter, diskutiert und dort festgelegt.

Darüber hinaus werden folgende Empfehlungen gegeben:

1) Zeitlich enge Überwachung der Phase des Einschaltens der Pumpen nach der Anstiegsphase.

2) Es soll der PCB-Gehalt in den Schwebstoffen und der Schwebstoffgehalt selbst erfasst werden.

3) Für die Monitoring-Messungen ist es ausreichend, wie bislang die 6 PCB-Leitkongenere (PCB 28, PCB 52, PCB 101, PCB 138, PCB 153 sowie PCB 180) zu bestimmen. Die Erfassung weiterer Kongenere (z. B. dl-Kongenere) ist aufgrund der stabilen Kongenerenzusammensetzung nicht notwendig. Entsprechende Daten sind aus den Messdaten der Leitkongenere mit hinreichender Genauigkeit ableitbar.

4) Alle Analysen sollten auf Basis von GC-/MS-Messungen durchgeführt werden. Hierbei sollten die Ionenspurchromatogramme der Messungen für die jeweiligen Chlorierungsgrade erfasst und gespeichert werden. Dadurch wird auch eine nachträgliche Berechnung anderer relevanter Parameter, z. B. die dl-PCB, auf Basis der Zusammensetzung technischer Gemische möglich.

5) Für die Schwebstoffaufbereitung sollte die Probenbehandlung analog zu den Analysen des LANUV im Rahmen der Probenahmekampagne vom 18.02.2016 erfolgen.

14 OFFENE FRAGEN UND WEITERES VORGEHEN

14.1 Gelöster Anteil an PCB

Zur Abklärung der Repräsentativität der 100 L-Probe bzw. zur Bestimmung des gelösten Anteils sollten weitere Analysen in Teil 2 des Gutachtens vorgenommen werden.

14.2 PCB-Belastung im Sediment/partikulärem Material

Wie auf dem Ad-hoc-AK PCB 4 am 11.08.2016 vereinbart wurde, ist geplant, weitere Bodenproben aus zugänglichen Bergwerken zu untersuchen, um die Datenbasis zu verbessern. Die Anforderungen an die Probenahmeorte und die mit den Untersuchungen verbundenen Ziele sind:

- Bessere Datenbasis für die Belastungen des **partikulären Materials** außerhalb von potentiellen punktuellen PCB-Belastungen, aber aus der Einsatzzeit der PCB.
    - Probenahme in Grubenteilen, die vor 1986 aufgefahren wurden.
- Gibt es auch außerhalb der PCB-Einsatzbereiche PCB-Belastungen?
    - Probenahme in Grubenteilen, die nach 1992 aufgefahren wurden, aber transport-/wassertechnisch mit Grubenbauen aus Nr. 1 in Verbindung stehen (Verschleppungsbereich PCB).
    - Grubenbaue, die nach 1992 aufgefahren wurden, aber nicht transport-/ wassertechnisch mit Grubenbauen aus (1) in Verbindung stehen (Nullbereich bzw. Bereich von Belastungen durch ubiquitäre PCB-Verschleppung [z. B. wegen Grundbelastung in den angesaugten Wettern, zulässige Restkonzentrationen in als PCB-frei geltenden Betriebsstoffen – vgl. AltölV]).
- Wie hoch ist die Belastung in **punktuell betroffenen Bereichen** (Werkstätten, Pumpensümpfe) aus der PCB-Zeit oder kurz danach?
    - Probenahme in potentiell punktuell belasteten Bereichen.

14.3 Anaerober Abbau von PCB

Die bislang ausgewerteten Unterlagen deuten darauf hin, dass der anaerobe Abbau nach einer Flutung von Grubengebäuden bedeutender als der aerobe Abbau ist und somit langfristig zu einer Verringerung des PCB-Vorrates beiträgt. In der Phase 2 sollen in einer vertieften Literaturauswertung die Randbedingungen und Abbauraten bei einem anaeroben Abbau erfasst werden. Gegebenenfalls können auf dieser Grundlage auch weiterführende Labor-/Felduntersuchungen zu einem möglichen anaeroben Abbau von PCB konzipiert werden. Parallel sollen auch Konzepte zur Messung möglicher Abbauprozesse z. B. durch Isotopenanalysen (C, Cl) oder Erfassung von langzeitlichen Änderungen in den Kongenerenmustern entwickelt werden.

14.3.1 Weitere Recherchen

Es sollen weitere Recherchen, v. a. in den Archiven der Bezirksregierung Arnsberg und der RAG durchgeführt werden. Die Schwerpunkte sind die Auswertung von ca. 400 Akten zum Thema „Oberirdische Altölentsorgung“ und die Auswertung von Grubenrissen zur Anzahl und Lage von großen untertägigen Infrastruktureinrichtungen wie Werkstätten, Lokschuppen und Schlammstrecken.

15 REFERENZEN

Achten, C., Hofmann, T. (2010). Umweltrelevanz von natürlichen polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen aus Steinkohlen–eine Übersicht. Grundwasser, 15(1), 5-18.

Ballschmiter, K., Zell, M. (1980). Analysis of polychlorinated biphenyls (PCB) by glass capillary gas chromatography. Composition of Technical Aroclor- and Clophen-PCB Mixtures. Fres. Z. Anal. Chem. 302, 20-31.

Bartz, W. J., Möller, U.J. (2000). Expert Praxislexikon – Tribologie PLUS: 2010 Begriffe für Studium und Beruf. Expert Verlag, Renningen.

BAYER (1971). Elaol S-B/ Elaol V-I. Schwerbrennbare Schmier- und Hydraulikflüssigkeiten.

Becker, L., Düring, R., Hennecke, D. (2010). Expositionsbetrachtung und Beurteilung des Transfers von Dioxinen, dioxinähnlichen PCB und PCB–Literaturstudie. Umweltforschungsplan des Ministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Forschungskennzahl 3709 72 228 UBA-FB 001496. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Dessau-Roßlau.

BMU (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit). Bekanntmachung vom 06.12.1989 - I G II 5 - 134/11 - „Analytische Verfahren zur Bestimmung von polychlorierten Biphenylen (PCB) und polychlorierten Terphenylen (PCT) gemäß § 5 der PCB-, PCT-, VC-Verbotsverordnung vom 18. Juli 1989“.

Brank, F.-R., Wentrup,G.-J. (1985). Quantifizierung von polychlorierten Biphenylen (PCB) in Altöl. Erdöl und Kohle - Erdgas - Petrochemie vereinigt mit Brennstoffchemie, Bd. 38, Heft 10

Bundesgesundsheitsamt (1985). Berechnungsmethode des BGA/ UBA in: Sachstand Dioxine – Stand 1984, Erich Schmidt Verlag. Berlin.

Busch, D., Furtmann, K., Schneiderwind, A., Zyuzinam ,I, Reupert, R., Sielex, K. (2007): Einfluss von Probenahme und Probenvorbereitung auf die Ergebnisse bei der Bestimmung ausgewählter prioritärer Stoffe nach der Wasserrahmenrichtlinie. Landesumweltamt NRW, Düsseldorf. Forschungsbericht 204 22 213, UBA-FB 000982. Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Dessau-Roßlau.

Chen, Y., Bi, X., Mai, B., Sheng, G., & Fu, J. (2004). Emission characterization of particulate/gaseous phases and size association for polycyclic aromatic hydrocarbons from residential coal combustion. *Fuel*, *83*(7), 781-790.

Detzel, A., Patyk, A., Fehrenbach, H., Franke, B., Gingrich, J., Lell, M., & Vogt, R. (1998). Ermittlung von Emissionen und Minderungsmaßnahmen für persistente organische Schadstoffe in der Bundesrepublik Deutschland. Umweltforschungsplan des Ministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Luftreinhaltung. Forschungsbericht 295 44 365 UBA-FB 98-115. Institut für Energie und Umweltforschung Heidelberg GmbH (ifeu). Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Berlin.

Deutscher Bundestag (1984). Antwort der Bundesregierung auf die Kleine Anfrage des Abgeordneten Drabiniok und der Fraktion DIE GRÜNEN - Drucksache 10/2153 - Verwendung von Chlorkohlenwasserstoffen im Untertagebergbau.

de Voogt P, Brinkman U. A. Th. (1989). Production, properties and usage of polychlorinated biphenyls. In: Kimbrough, R. D., Jensen, A. A. (eds.), Halogenated biphenyls, terphenyls, naphthalenes, dibenzodioxins and related products. Elsevier Science Publishers, Amsterdam, The Netherlands. 3 – 43.

DMT (2010). Mobilisations- und Transportverhalten von PCB aus dem Schotterbett alter Streckenauffahrungen.

Dsikowitzky, L., Schwarzbauer, J., & Littke, R. (2002). Distribution of polycyclic musks in water and particulate matter of the Lippe River (Germany). Organic Geochemistry, 33(12), 1747-1758.

Duinker, J. C. (1986). The role of small, low density particles on the partition of selected PCB congeners between water and suspended matter (North Sea area). Netherlands Journal of Sea Research, 20(2), 229-238.

Engel, W., Kihl, H. (1987). Schwerentflammbare und gesundheitsschädliche Hydraulikflüssigkeiten des Typs HFD für den Bergbau.

Erickson, M. D. (1997). Analytical Chemistry of PCBs, 2nd Edition. CRC Press, Boca Raton, FL.

Fiedler H. (2001). Global and local disposition of PCB. In: PCBs—Recent Advances in the Environmental Toxicology and Health Effects, pp. 11-15. University Press of Kentucky.

GD NRW (2011). Unkonventionelle Erdgasvorkommen in NEW. –Online im Internet: http//www.gd.nrw,de/zip/l_rcbm01.pdf

Gebhardt, L., Mitze, M., Reichel, J. (1974). Schwerentflammbare Hydraulikflüssigkeiten. Technischer Schlußbericht des Steinkohlenbergbauvereins/ Bergbau-Forschung GmbH in Essen. In :Kommission der Europäischen Gemeinschaft (Hrsg.): Forschungsheft Kohle. Bergtechnik Heft Nr. 54. Luxemburg.

Gesamtverband des Deutschen Steinkohlenbergbaus (1982), Stellungnahme des deutschen Steinkohlenbergbaus zur Verwendung polychlorierter Biphenyle (PCB) als Hydraulikflüssigkeit untertage vom 4. Mai 1981 und Zusatz zu der Stellungnahme des deutschen Steinkohlenbergbaus vom 4. Mai 1981 vom 20. Januar 1982. Mitteilung an das Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene.

Götz, R., Enge, P., Friesel, P., Roch, K., Kjeller, L. O., Kulp, S. E., & Rappe, C. (1994). Sampling and analysis of water and suspended particulate matter of the river Elbe for polychlorinated dibenzo-p-dioxins (PCDDs) and dibenzofurans (PCDFs). Chemosphere, 28(1), 63-74.

Govers H.A.J., Krop H.B. (1996). Partition constants of chlorinated dibenzofurans and dibenzo-p-dioxins. Chemosphere. 37(9-12). 2139-2152.

Hutzinger, O., Safe, S., Zitko, V. (1974). The Chemistry of PCB's. CRC Press, Boca Raton, FL

Jensen, S., Johnels, A. G., Olsson, M., Olterlind (1969). DDT and PCB in marine animals form Swedish waters. Nature (London) 224:247 - 250

LAGA (Bund/ Länder-Arbeitsgemeinschaft Abfall. LAGA-Methodensammlung Abfalluntersuchung. LAGA-Forum Abfalluntersuchung. Stand: 01. Oktober 2012.

LANUV (2015). Belastung von Oberflächengewässern und von aktiven Grubenwassereinleitungen mit bergbaubürtigen PCB (und PCB-Ersatzstoffen); Ergebnisse des LANUV-Sondermessprogramms 2015.

Lehnik-Habrink, P., Schütz, S., Redlich, C., Win, T., Philipp, R., Kaminski, K. (2005). Erarbeitung und Validierung von Verfahren zur Bestimmung von polychlorierten Biphenylen und polychlorierten Terphenylen in organischen Materialien. Umweltforschungsplan des Ministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Abfallwirtschaft. Förderzeichen (UFOPLAN) 201 31 327. Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM). Im Auftrag des Umweltbundesamtes, Berlin.

Lorenz, H.; Neumeier, G. (Hg.) (1983). Polychlorierte Biphenyle (PCB) – Ein gemeinsamer Bericht des Bundesgesundheitsamtes und des Umweltbundesamtes. In: bga-Schriften 4/83, MMV Medizin Verlag, München.

Mierheim, H. (1983) Wirtschaftliche Aspekte der Substitution der PCB. In: Lorenz, H.; Neumeier, G. (Hg.) (1983). Polychlorierte Biphenyle (PCB) – Ein gemeinsamer Bericht des Bundesgesundheitsamtes und des Umweltbundesamtes. In: bga-Schriften 4/83, MMV Medizin Verlag, München.

National Research Council (NRC) (1979). Polychlorinated Biphenyls. Washington D.C.: National Academy of Sciences.

Pies, C., Yang, Y., & Hofmann, T. (2007). Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) distribution in bank and alluvial soils of Mosel and Saar River. *J Soils Sediments*, *7*, 216-22.

Poppe, A., Alberti, J., Friege, H., Roennefahrt, B. (1988). Umweltgefährdung durch chlorierte Diphenylmethane (Ugilec 141). Vom Wasser 70, 33-42.

Püttmann, W. (1988). Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in solid sample material using a desorption device coupled to a GC/MS system. *Chromatographia*, *26*(1), 171-177.

Radke, M., Willsch, H., & Teichmüller, M. (1990). Generation and distribution of aromatic hydrocarbons in coals of low rank. *Organic Geochemistry*, *15*(6), 539-563.

RAG (1994). Abschlußbericht Grimberg 2

RAG (1995). Abschlußbericht Grimberg 1

RAG (1995). Abschlußbericht Grimberg 16

RAG (1995). Abschlußbericht Grimberg 17

RAG (1998). Abschlußbericht Grimberg 31

RAG (2015). Historie PCB/PCDM. Stand 01.10.2015

Reichel, J. (1973). Schwerentflammbare Druckflüssigkeiten für hydraulische Bergwerksmaschinen.

Reuter, E.-U. (1982). Einführung in den Bergbau. Ein Leitfaden der Bergtechnik und der Bergwirtschaft. Verlag Glückauf GmbH, Essen.

Schulte, E., Malisch, R., 1983. Berechnung der wahren PCB-Gehalte in Umweltproben. Fresenius. Z. Anal. Chem. 314, 545 – 551.

Schulz, D.E., Petrick, G., Duinker, J.C., 1989. Complete characterization of polychlorinated biphenyl congeners in commercial Aroclor and Clophen mixtures by multidimensional gas chromatography-electron capture detection. Environ. Sci. Technol. 23, 852–859.

Schwarzbauer, J., Littke, R., & Weigelt, V. (2000). Identification of specific organic contaminants for estimating the contribution of the Elbe river to the pollution of the German Bight. Organic Geochemistry, 31(12), 1713-1731.

Schwarzenbach, R. P., Gschwend, P. M., & Imboden, D. M. (1993). Environmental organic chemistry. John Wiley & Sons, New York, 681 S.

Shiu, W. Y., & Mackay, D. (1986). A critical review of aqueous solubilities, vapor pressures, Henry's law constants, and octanol–water partition coefficients of the polychlorinated biphenyls. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 15(2), 911-929.

Shiu, W. Y., Doucette, W., Gobas, F. A., Andren, A., & Mackay, D. (1988). Physical-chemical properties of chlorinated dibenzo-p-dioxins. Environmental science & technology, 22(6), 651-658.

Statistik der Kohlenwirtschaft e.V. Persönliche Kommunikation mit Joachim Löchte (RAG).

Stout, S. A., & Emsbo-Mattingly, S. D. (2008). Concentration and character of PAHs and other hydrocarbons in coals of varying rank–implications for environmental studies of soils and sediments containing particulate coal. *Organic Geochemistry*, *39*(7), 801-819.

Stout, S. A., Uhler, A. D., McCarthy, K. J., & Emsbo-Mattingly, S. (2002). Chemical fingerprinting of hydrocarbons. *Introduction to environmental forensics*, 137-260.

Takasuga, T., Senthilkumar, K., Matsumura, T.,Shiozaki, K.,Sakai, S., 2006. Isotope dilution analysis of polychlorinated biphenyls (PCBs) in transformer oil and global commercial PCB formulations by high resolution gas chromatography–high resolution mass spectrometry. Chemosphere 62, 469–484.

Van den Berg, M., Birnbaum, L. S., Denison, M., De Vito, M., Farland, W., Feeley, M., ... & Rose, M. (2006). The 2005 World Health Organization reevaluation of human and mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds. Toxicological sciences, 93(2), 223-241.

Willsch, H., & Radke, M. (1995). Distribution of polycyclic aromatic compounds in coals of high rank. Polycyclic Aromatic Compounds, 7(4), 231-251.

Zhao, Z. B., Liu, K., Xie, W., Pan, W. P., & Riley, J. T. (2000). Soluble polycyclic aromatic hydrocarbons in raw coals. *Journal of hazardous materials*, *73*(1), 77-85.

Dokumentation Literaturrecherche

- Literatursuche in wissenschaftlichen Online-Datenbanken wie zum Beispiel: Science Direct, Google Scholar, Elsevier

Suchwörter TEIL A

Organische Schadstoffe, RAA-Schlämme	Organic pollutants, residual sludge
Organische Schadstoffe, Filterstäube	Organic pollutants, RAA sludge
Organische Schadstoffe, Müllverbrennung	Organic pollutants, filter residues
Organische Schadstoffe, Müllverbrennungsanlagen	Organic pollutants, waste incinerator, ashes
Organische Schadstoffe, Filterkuchen	Organic pollutants, waste incinerator, residues
	Organic pollutants, incineration plants
	Organic pollutants, waste incinerator, filter dust

Suchwörter TEIL B

PCB, Rhine	PCB, adsorption, coal	PCB, distribution
PCB, Lippe	PCB, hard coal	PCB, Punktquelle
PCB, Risk Assessment	PCB, mining	PCB, Kinetik
PCB, risk, mining	PCB, coal	PCB, Ausbreitung
PCB, mass balance	PCB, mobility	PCB, Massenbilanz
PCB, quantification	PCB, mobilisation	PCB, Quantifizierung
PCB, quantification, mining	PCB, remobilisation	PCB, Bergbau
mining contamination	PCB, adsorption	PCB, Kohle
Mining, Contamination, PCB	PCB, Discharge, Mine	PCB, Hydrauliköl
PCB, Output, Mine	PCB, Release	PCB, hydraulic oil
PCB, Input	PCB, Input, Mining	PCB, Risikoanalyse
Walsum, PCB	Walsum, Mine	PCB, Transport
Walsum, Mine, Risk	PCB Kinetics	PCB, Mobilität
PCB, Kinetics, Equilibrium	PCB, point source	PCB, sources, mining

- Recherche in öffentlich zugänglichen Dokumenten der Europäischen Kommission und zwischenstaatlicher Kommissionen

- Quellenrecherche in deutschen Universitätsbibliotheken

- Daten und Dokumente, die von der RAG erhalten wurden und öffentlich zugängliche Dokumente von Zuliefererfirmen

- Daten und Dokumente, die von der Bezirksregierung Arnsberg erhalten wurden

- öffentlich zugängliche Ausschussprotokolle und Vorlagen des Landtages in NRW, Drucksachen des Deutschen Bundestages

- öffentlich zugängliche Publikationen des LANUV in NRW und des Bundesumweltamtes; direkt vom LANUV NRW erhaltenen Dokumente und Messdaten

16 ANHANG: ANGEWENDETE METHODEN PCB-ANALYTIK

Labor für organisch-geochemische Analyt k,
Lehrstuhl für Geologie, Geochemie
und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle
RWTH-Aachen
Arbeitsgruppe Prof. Dr. [redacted]

Quantifizierung von ausgewählten PCB-Kongeneren in der wässrigen Phase einer Grubenwasserprobe vom Victoriadamm, Bergwerk Haus Aden/Monopol

Probenvolumen: 108 L, Probenahme am 18.02.2016

Extraktion der Probe: 22.-24.02.2016

Die Filtration der Grubenwasserprobe wurde durch die Fa UCL (Umwelt Control Labor GmbH, Lünen) durchgeführt. Zur Filtration wurden Glasfaserfilter mit einer Porengröße von 0,7 µm benutzt (Whatman, GF/F-Filter) (DIN 38409 H2-3; L).

Im Labor für organisch-geochemische Analytik des Lehrstuhls für Geologie, Geochemie und Lagerstätten des Erdöls und der Kohle, RWTH-Aachen University, wurden jeweils 1 L-Aliquote der filtrierten Probe in einen Scheidetrichter überführt und 30 mL Dichlormethan hinzugefügt. Durch flüssig/flüssig Extraktion und Abtrennen der wässrigen Phase wurden die Zielsubstanzen aus der Probenmatrix isoliert. Der Extrakt wurde eingeengt, mit Natriumsulfat getrocknet und mit elementarem Kupfer entschwefelt. Nach Überführung in n-Hexan erfolgte die Fraktionierung des Extrakts flüssigchromatographisch unter Verwendung von Kieselgel als stationärer Phase. Dazu wurde der auf ca. 0,5 mL eingeengte Extrakt auf eine mit 2 g Kieselgel trocken gepackte und anaschließend mit 5mL Pentan konditionierte Mikrosäule (Typ Bakerbond SPE, Borosilikatglas) gegeben. Die Elution erfolgte mit Lösungsmitteln unterschiedlicher Polarität: 5 ml n-Pentan (WB1), 5 mL n-Pentan-Dichlormethan (90:10, v/v) (WB2), 5 mL n-Pentan-Dichlormethan (40:60, v/v) (WB3), 5 mL Dichlormethan (WB4) und 5 mL Methanol (WB5). Zu den Fraktionen WB2-WB4 wurden 25 µL eines Surrogatstandards hinzugefügt (6 ng/µL d34-Hexadacen und 6.3 ng/µL d10-Benzophenon). Alle Fraktionen wurden auf 50 µL eingeengt. Die nachfolgende gaschromatographisch-massenspektrometrische Analyse der PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153 und 180 erfolgte an den Fraktionen WB2, WB3 und WB4.

Experimentelle Kd-Wertbestimmung für ausgewählte PCB-Kongenere an Proben partikulären Materials aus dem Bergwerk Haus Aden/Monopol

Für die Bestimmung von Kd-Werte wurden Aliquote von zwei Proben (18.1 und 18.7) aus der Probenahme vom 18.02.2016 benutzt.

Die Proben wurden bei 100 °C getrocknet. Jeweils 1 g der getrockneten, gemörserten Probe wurde mit 100 µL eines Standards mit den PCB-Kongeneren 28, 52, 101, 118, 138, 153 und 180, dotiert (Konzentration: jeweils 1 µg/µL pro Kongener, Lösungsmittel Dichlormethan). Nach dem Dotieren wurden die Proben erneut 15 min. bei 50 °C getrocknet. Die Proben wurden mit 1 L Leitungswasser versetzt, und die entstandene Suspension wurde 96 h mit einem Magnetrührer intensiv durchmischt. Danach wurde das partikuläre Material abfiltriert (MNGF-6 Glasfaserfilter, Macherey-Nagel, Deutschland, Porengröße 0,45 µm).

Das Filtrat wurde mit jeweils 50 ml n-Pentan und Dichlormethan gemäß Abschnitt 1 extrahiert. Zu beiden Fraktionen wurde jeweils 50 µL Surrogatstandard (6 ng/µL d34-Hexadacen und 6,3 ng/µL d10-Benzophenon) hinzugefügt.

Das partikuläre Material im Filtrationsrückstand wurde mit 50 ml Aceton versetzt und 15 min. mit Ultraschall extrahiert. Danach wurde die Suspension 24 h mit einem Magnetrührer intensiv durchmischt. Nach der Abtrennung des Acetons wurde diese Prozedur mit einer n-Hexan-Aceton-Mischung (30 ml n-Hexan und 20 ml Aceton) wiederholt. Nach Abtrennen dieses Lösungsmittelgemischs erfolgte eine nochmalige Extraktion mit n-Hexan (10 min., Ultraschall). Die Lösungsmittel wurden in einem Scheidetrichter zusammengeführt, eingeengt und die wässrige Phase wurde abgetrennt. Der Extrakt wurde auf ca. 1 mL eingeengt, mit elementarem Kupfer entschwefelt und mit Natriumsulfat getrocknet. Die flüssigchromatographische Fraktionierung des Extrakts erfolgte wir in Abschnitt 1 beschrieben mit folgenden Elutionsmitteln: 5 mL n-Pentan (B1), 8,5 mL n-Pentan-Dichlormethan (95:5, v/v) (B2), 5 mL n-Pentan-Dichlormethan (90:10, v/v) (B3), 5 mL n-Pentan-Dichlormethan (60:40, v/v) (B4), 5 mL Dichlormethan (B5) und 5 mL Methanol (B6). Die Fraktionen B1 bis B5 wurden mit je 50 µL Surrogatstandard (6 ng/µL d34-Hexadacen und 6,3 ng/µL d10-Benzophenon) versetzt und auf 50 µL eingeengt. Die sechste Fraktion wurde mit 200 µL Surrogatstandard versetzt und auf 200 µL eingeengt.

Um Kontaminationen durch das für die Versuche verwendete Leitungswasser auszuschließen, wurde ein Blankversuch durchgeführt. Der Blank wurde extrahiert wie in Abschnitt 1 beschrieben. Es wurden keine Fremdkontaminationen durch PCB festgestellt.

Analyse mit Gaschromatographie-Massenspektrometrie

Die Analyse der Extrakte erfolgte mit einem Quadrupol-Trace MS Massenspektrometer, das an einen Trace GC gekoppelt war (Thermoquest, Deutschland). Für die gaschromatographische Separation der organischen Verbindungen wurde eine ZB-5 Kapillarsäule verwendet (Phenomenex, Deutschland, 30 m x 0,25 mm ID x 0,25 µm Filmdicke). Der Gaschromatograph wurde mit folgendem Temperaturprogramm betrieben: 3 min. bei 60°C, mit 3°C/Min. auf 310 °C, 20 min bei 310 °C. Die Injektion erfolgte im Splittless-Modus, bei einer Injektortemperatur von 270 °C. Es wurde jeweils 1 µL injiziert. Folgende Einstellungen des Massenspektrometers wurden benutzt: Quellentemperatur 200 °C, EI+-Modus (70 eV). Die Detektion der PCBs erfolgte im SIM-Modus (Single Ion Monitoring) von zuvor ausgewählten charakteristischen Ionen für die verschiedenen PCB-Kongenere (m/z 190,192, 224, 226, 258, 260, 292, 294, 326, 328, 362, 364, 396 und 398).

Die Kalibration des Messsystems für die Quantifizierung erfolgte als externe 5-Punkt-Eichung mit Referenzsubstanzen in einem Konzentrationsbereich (0,125 – 5 ng/µL), der innerhalb des linearen Bereichs des Detektors und innerhalb des erwarteten Konzentrationsbereichs in den Probenextrakten lag. Der Regressionskoeffizient der Kalibration lag bei > 0,99 (für jedes der sieben Einzelkongenere).

Dabei wurde für jedes PCB-Kongener der Response-Faktor von jeweils einem ausgewählten charakteristischen Ion bestimmt. Die Quantifizierung der Zielsubstanzen erfolgte über die Integration der Peakflächen in die jeweiligen charakteristischen Ionenspuren. Bei der Berechnung wurden die eingesetzten Probenmengen und unterschied-

liche Volumina der Fraktionen sowie Injektionsvolumina (Korrektur durch Surrogatstandard) berücksichtigt.

Die angewendeten Methoden zur Identifizierung und Quantifizierung ein breiten Spektrums lipophiler niedermolekularer organischer Verbindungen in Wasserproben und Sedimentproben wurde detailliert unter anderem in Schwarzbauer et al. (2000) und Dsikowitzky et al. (2002) beschrieben.