

# Anwendung von isotophenhydrologischen Methoden bei Einzugsgebietsuntersuchungen

Petra Schneider<sup>1</sup>, Susanne Voerkelius<sup>2</sup>, Karsten Osenbrück<sup>2</sup>, Jürgen Meyer<sup>3</sup>

Hydroisotop-Piewak GmbH, Oberfrohnauer Str., 84, D-09117 Chemnitz

Hydroisotop GmbH, Woelkestr. 9, D-85301 Schweitenkirchen

Wismut GmbH, Jagdschänkenstr. 52, D-09117 Chemnitz

Einzugsgebietsstudien erfordern das hydraulische Verständnis der Fließprozesse in der gesättigten und der ungesättigten Zone. In den Einzugsgebieten von Kohlunzbach und Wiesenbach wurden isotophenhydrologische Untersuchungen mit dem Ziel der Ermittlung der mittleren Verweilzeiten, Austauschraten und Mischungsprozesse von Grund- und Oberflächenwasser durchgeführt. Hierfür kamen radioaktive und stabile Umweltisotope zur Anwendung ( $^2\text{H}$ ,  $^{16/18}\text{O}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{14/15}\text{N}$ ,  $^{34}\text{S}$ ). Die isotophenhydrologischen Untersuchungen wurden mit konventionellen hydrologischen und hydrogeologischen Methoden kombiniert, um ein konzeptionelles Wasserhaushaltsmodell der beiden Einzugsgebiete zu entwickeln. Die Ergebnisse wurden in einem Einzugsgebietsmodell zusammengefasst und bilanziert.

## 1 Einführung

Die Anwendung von Umweltisotopen als hydrologische Tracer umfasst zwei Typen von Untersuchungsmethoden (KENDALL et al. 1998):

- Tracer des Wassers selbst : Isotophenhydrologie des Wassers,
- Tracer der im Wasser gelöste Stoffe: Isotopenbiogeochemie von gelösten Stoffen.

Die Untersuchungen am Wassermolekül können an Sauerstoffisotopen ( $^{16/18}\text{O}$ ) und an Wasserstoffisotopen (Deuterium  $^2\text{H}$ , Tritium  $^3\text{H}$ ) durchgeführt werden. Diese Isotope sind ideale Tracer der Wasserquellen sowie deren Bewegung und mischen sich konservativ.

KENDALL et al. 1998 beschreiben die wesentlichen Prozesse, denen Sauer- und Wasserstoffisotope in Einzugsgebieten unterliegen, folgendermaßen: (1) Phasenänderungen, die das Wasser über oder nahe dem Grundwasserspiegel beeinflussen (Verdunstung, Schmelzprozesse), und (2) einfache Mischungen über oder nahe dem Grundwasserspiegel. In Einzugsgebieten können stabile Sauerstoff- und Wasserstoffisotope genutzt werden, um die Beiträge junger (und alter) Grundwasserkomponenten zu ermitteln. Tritium und Krypton-85 können als Tracer genutzt werden, um Grundwasserverweilzeiten  $< 50$  Jahre zu ermitteln und Mischungsprozesse aufzuklären.

Die Fließwege in einem Einzugsgebiet werden durch die Wechselwirkung der gesättigten mit der ungesättigten Zone bestimmt. Die Speisung des das Einzugsgebiet entwässernden Gewässers kann durch verschieden schnelle Wasserkomponenten erfolgen, die ihren Ursprung je nach geologischem Aufbau des Einzugsgebietes im Grundwasser oder in der ungesättigten Zone haben. In Abhängigkeit davon, ob Matrixfluss oder Kluftzuflüsse im Einzugsgebiet dominieren, können junge oder alte Wässer oberirdisch entwässern. Die Anforderung, die Fließwegedynamik genau zu kennen, zeigt sich beim Einbezug der geochemischen Prozesse in das Einzugsgebietsmodell: wenn die Hydrologie eines Einzugsgebietes unzureichend verstanden ist, kann auch die Beschreibung geochemischer Prozesse auf Einzugsgebietsebene nur unzureichend erfolgen.

## 2 Charakterisierung des Untersuchungsgebietes

Die Einzugsgebiete des Kohlunzbaches und des Wiesenbaches befinden sich im Südwesten von Sachsen in der Nähe der Stadt Aue (vgl. Abbildung 1). Der Hauptvorfluter ist die Zwickauer Mulde mit einer mittleren Wasserführung von ca.  $10 \text{ m}^3/\text{s}$ . Der mittlere korrigierte Niederschlag für den Untersuchungsraum Aue wird mit  $897 \text{ mm}$  (45-jährige Messreihe) angegeben. Das Klein-

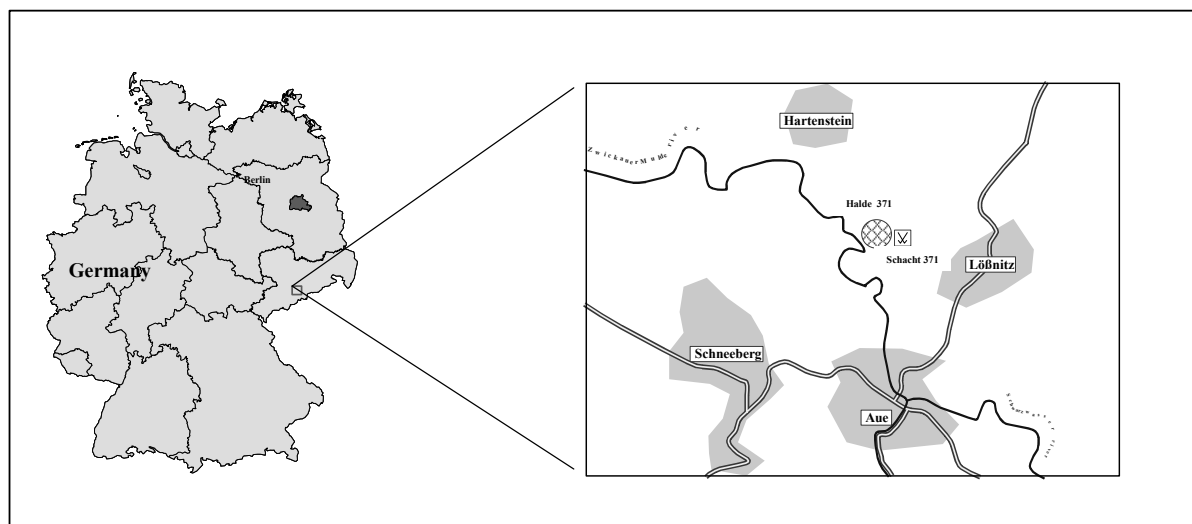


Abb.1: Lage des Untersuchungsgebietes.

klima im Untersuchungsgebiet kann als gemäßigt und niederschlagsreich für die unteren Lagen der Mittelgebirge eingestuft werden.

Der Kohlunbach drainiert eine Einzugsgebietsfläche von ca. 131 ha, wobei 59,5 % auf Wald, 3,9 % auf versiegelte Flächen, 2,2 % auf Wiesen und 34,4 % auf Bergematerial aus dem Uranerzbergbau (Halde 371/I der Wismut GmbH) entfallen. Der Wiesenbach drainiert eine Einzugsgebietsfläche von ca. 81 ha, wobei 22,9 % auf Wald, 3,7 % auf versiegelte Flächen, 44,1 % auf landwirtschaftliche Nutzfläche und 28,3 % auf Bergematerial aus dem Uranerzbergbau (Halde 371/II der Wismut GmbH) entfallen. Beide Bäche

che treten im oberen Teil des Einzugsgebietes in das grobkörnige Haldenmaterial ein, durchfließen es und treten im abstromigen Bereich des Einzugsgebietes wieder aus. Von dort entwässern die Bäche die einzugsgebietstypische Stofffracht in die Zwickauer Mulde.

Das Untersuchungsgebiet befindet sich nördlich der Lößnitz-Zwönitzer Zwischenmulde, die aus oberordovizischen, silurischen und devonischen Gesteinslagen besteht, die in die unterordovizischen Phyllite der Erzgebirgsnordrandzone eingefaltet sind. Das Gestein kann als Kluftaquifer mit Störungen beschrieben werden. Es unterliegt

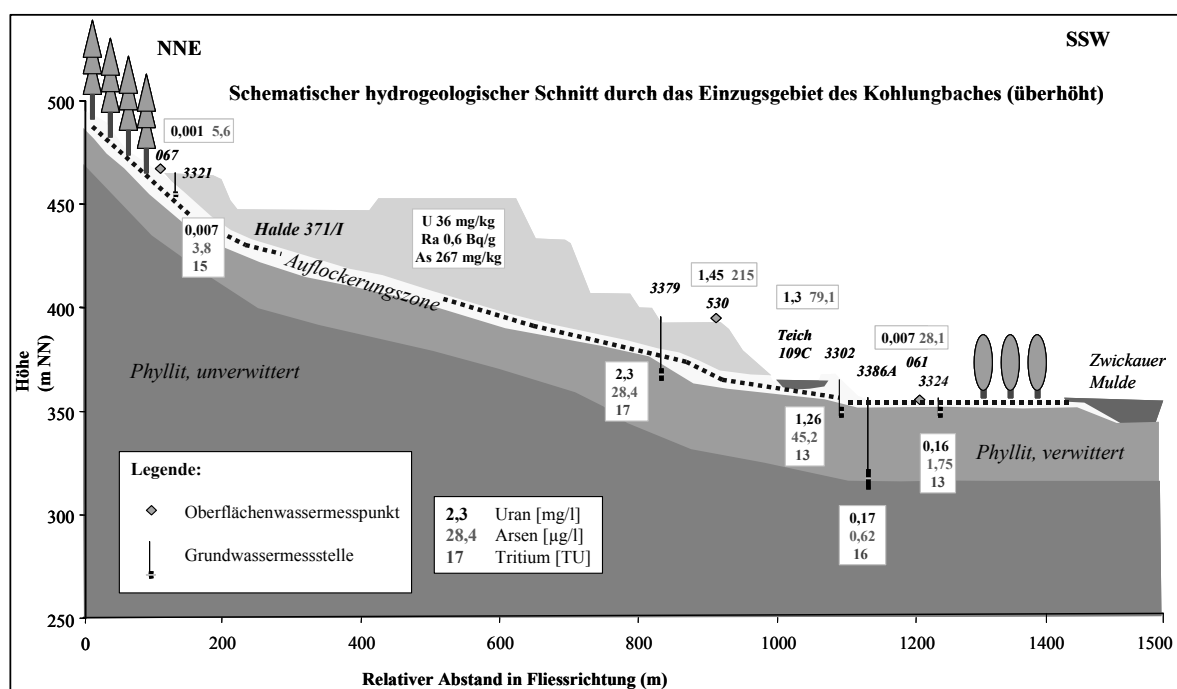


Abb. 2: Schematischer hydrogeologischer Schnitt durch das Einzugsgebiet des Kohlunzbaches.

einer oberflächigen lehmigen Verwitterung bis in Tiefen von 2 m im Bereich von Hanglagen und bis zu 30 m im Bereich von Talsohlen. Grundwassermessstellen, die zur Aufklärung der hydraulischen Verhältnisse abgeteufte wurden, zeigen, dass sich der größte Teil des Grundwassers in der Verwitterungszone der Phyllite bewegt (vgl. Abbildung 2).

Die Verwitterungszone besteht aus einer Auflockerungszone des Festgesteines und einer überlagernden Lehmzone, die von Braunstaugleyböden bedeckt ist. In Pumpversuchen wurden in der Auflockerungszone mittlere hydraulische Durchlässigkeiten von  $10^{-7}$  bis  $10^{-8}$  m/s ermittelt, wobei erhöhte hydraulische Durchlässigkeiten von bis zu  $10^{-5}$  m/s im Bereich tektonischer Strukturen angetroffen wurden. Die überlagernde Lehmzone hat eine hydraulische Durchlässigkeit im Bereich von  $10^{-6}$  m/s. Das überlagernde Haldenmaterial ist überwiegend sandig/kiesig mit hohem Steinanteil beschaffen und ist daher mit hydraulischen Durchlässigkeiten von bis zu  $10^{-2}$  m/s sehr gut durchlässig. Grundwasserneubildung im Einzugsgebiet findet im wesentlichen durch Infiltration an vertikalen Lekagen statt. Lokal findet man in der überlagernden Lehmzone einen Druckspiegel des Grundwassers.

### 3 Isotopenhydrologische Untersuchungsmethoden

Inhalt der Studie war die Einzugsgebietscharakterisierung mit dem Ziel der Ermittlung von Fliesswegen, Verweilzeiten und Stofftransporten. Dabei sollte auch die Prognose der Entwicklung der Stofftransporte berücksichtigt werden. Zu Beginn der Untersuchungen war über die Hydraulik der Einzugsgebiete nur wenig bekannt. Mit Hilfe konventioneller hydrogeologischer Methoden wurden die Schichtabfolgen und Aquiferdrücke ermittelt. Mit den isotopenhydrologischen Untersuchungen sollten spezielle Fragen zum Stofftransport und der hydraulischen Wirksamkeit der ermittelten Kluftwasserwegsamkeiten ermittelt werden. Eine spezielle Frage war die Ermittlung der Mittleren Grundwasserverweilzeiten, um die Grundwasserneubildung im Einzugsgebiet abschätzen zu können. Folgende isotopenhydrologischen Untersuchungen wurden neben der hydrochemischen und hydraulischen Charakterisierung durchgeführt:

- Grundwasseraltersdatierung mittels Tritium ( $^3\text{H}$ ) und Krypton-85,

- Sauerstoff-18/Deuterium-Untersuchungen,
- Sauerstoff-18-Zeitreihenuntersuchungen,
- Untersuchung der Gehalte von Schwefel-34 und Sauerstoff-18 am Sulfat,
- Untersuchung von Stickstoff-15 und Sauerstoff-18 am Nitrat.

Die hydrologisch-hydraulische Charakterisierung der Einzugsgebiete wurde außerdem mit klassischen hydrogeologischen und hydrochemischen Methoden vorgenommen (Hydrotopkartierung, hydrogeologische Bohrungen, Pump- und Versickerungsversuche, Erstellung von Grundwassergleichplänen, Abflussmessung, Wasserhaushaltsbilanzierung, Hydrochemische und Gasgehaltsanalytik).

### 4 Isotopenhydrologische Charakterisierung der Einzugsgebiete

An den Grund- und Oberflächenwässern wurde die Bestimmung von Umweltisotopengehalten durchgeführt, um

- Aussagen zur Versauerungsproblematik abzuleiten,
- eine von hydrochemischen Ergebnissen unabhängige Klassifizierung der Wässer vornehmen zu können,
- Wässer unterschiedlicher Herkunft zu charakterisieren,
- Aussagen zur mittleren Verweilzeit der Wässer im Einzugsgebiet abzuleiten.

#### 4.1 Sauerstoff-18/Deuterium-Untersuchungen

Die hydrologische Anwendung von Messungen des Gehaltes an den stabilen Isotopen  $^2\text{H}$  und  $^{18}\text{O}$  am Wassermolekül beruht im wesentlichen auf den in natürlichen Wässern auftretenden Konzentrationsunterschieden. Die verschiedenen Isotopeneffekte führen zu einer örtlich und zeitlich charakteristischen Markierung der Niederschläge und damit auch zu einer örtlich und zeitlich charakteristischen Markierung der verschiedenen Wasserkörper des Wasserkreislaufes. Die durch die Isotopeneffekte hervorgerufenen Schwankungen der Gehalte an den stabilen Isotopen  $^2\text{H}$  und  $^{18}\text{O}$  im Wasserkreislauf sind hauptsächlich durch Isotopenfraktionierungen bei Pha-

senumwandlungen (Verdampfung, Kondensation u.ä.) bedingt.

Wesentlich ist dabei, dass die Isotopenfraktionierung temperaturabhängig ist. Aus der Bestimmung der stabilen Isotope des Wassermoleküls Sauerstoff-18 und Deuterium in einer Wasserprobe lassen sich somit in erster Linie Rückschlüsse auf die klimatischen Bildungsbedingungen sowie die Höhenlage und geographische Lage bei der Wasserneubildung ziehen. Liegen die  $\delta^2\text{H}$ - $^{18}\text{O}$ -Meßwertpaare von Wasserproben im Bereich der Niederschlagsgeraden, kann daraus geschlossen werden, dass die Wässer meteorischer Herkunft sind. Dies ist in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach der Fall (vgl. Abbildung 3).

Die an Hand der Untersuchung der stabilen Isotope ermittelten Ergebnisse zeigen, dass alle in den Einzugsgebieten untersuchten Grund- und Oberflächenwässer Anteile junger Wasserkomponenten ( $< 2$  a) enthalten. Auch die Oberflächenwässer werden von Anteilen junger holozäner Grundwässer gespeist. Dies ist für die Wasserhaushaltsbilanzierung der Einzugsgebiete wesentlich, da diese auf Klüften migrierende Komponente für den kurzfristigen Stofftransport,

insbesondere nach Starkregenereignissen, verantwortlich ist.

## 4.2 Sauerstoff-18-Zeitreihenuntersuchungen

Sauerstoff-18-Zeitreihenuntersuchungen wurden an Kohlunbach und Wiesenbach in Anstrom und im Abstrom der Bergehalden durchgeführt. Ziel war es, die Zeitschiene des Stofftransportes im Haldenmaterial selbst zu ermitteln. Hierfür wurden z.T. in 14-tägigem Rhythmus, sowie während Starkregenereignissen täglich Sauerstoff-18-Proben entnommen und untersucht. Die Datierung über die  $^{18}\text{O}$ -Gehalte beruht auf der jahreszeitlichen Schwankung dieser Isotopengehalte im Niederschlag und damit im neugebildeten Grundwasser. Soweit die  $^{18}\text{O}$ -Schwankungen im Grundwasser noch messbar sind, lassen sich Grundwasserverweilzeiten im Bereich von Monaten bis Jahren angeben. Geht die  $^{18}\text{O}$ -Variation im untersuchten Grundwasser über die Messgenauigkeit der Methode ( $\pm 0,15$  ‰) hinaus, kann anhand des Ausmaßes der Dämpfung der  $^{18}\text{O}$ -Variation sowie der zeitlichen Verzögerung gegenüber dem Niederschlags auf den Anteil und die mittlere Verweilzeit einer schnell zufließen-

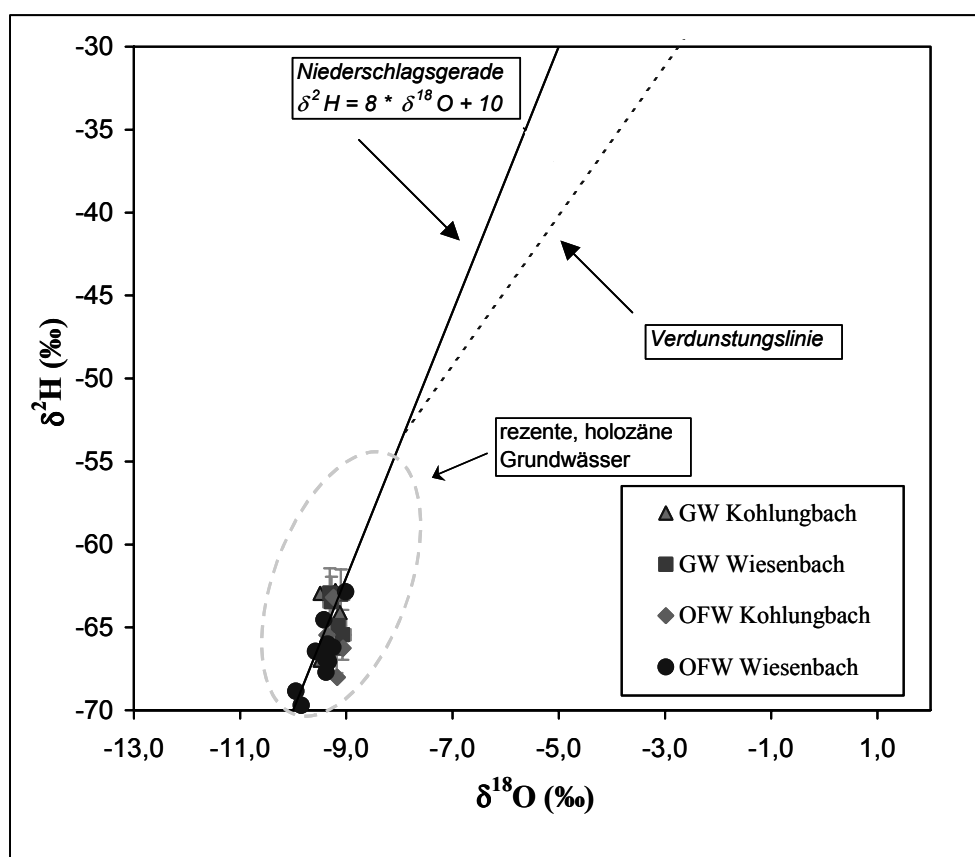


Abb. 3: Korrelation der Sauerstoff-18-Gehalte gegen die Deuteriumgehalte in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach (Werte des gesamten Einzugsgebietes).

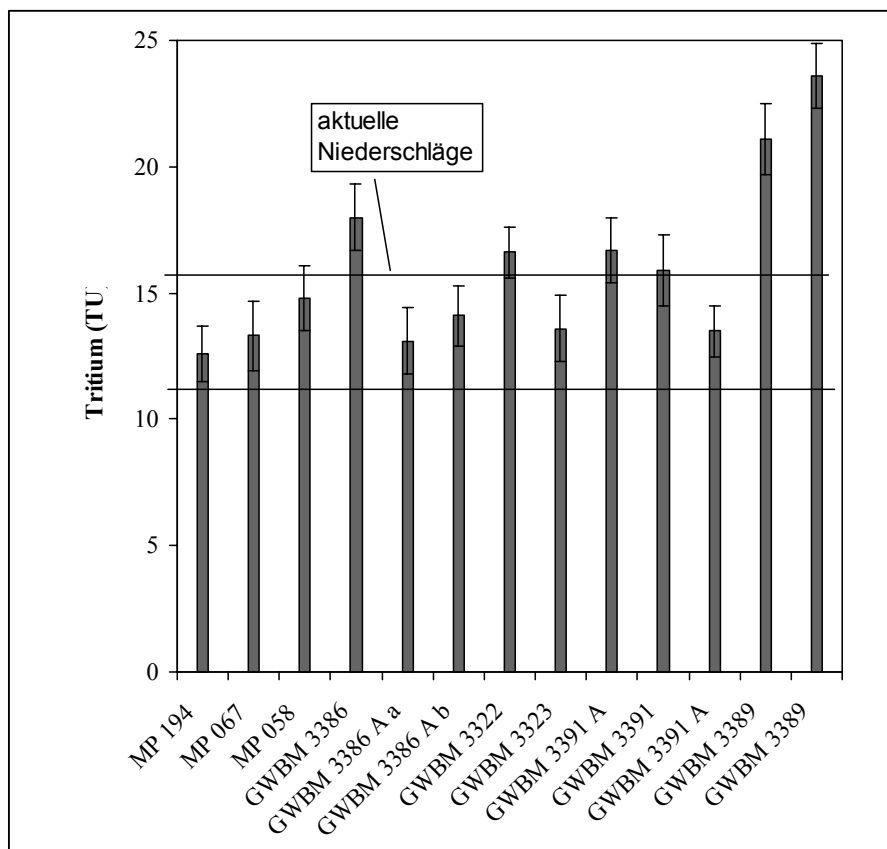


Abb. 4: Grafische Darstellung der Tritiumgehalte in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach (z.T. Mehrfachmessungen an Messstellen), Niederschlagswerte aus dem Einzugsgebiet (Zuordnung: Anstrom Wiesenbach: MP 194, GWBM 3389, GWBM 3323, Abstrom Wiesenbach: MP 058, GWBM 3322, Anstrom Kohlunbach: MP 067, Abstrom Kohlunbach: MP 058, GWBM 3386, GWBM 3386a, GWBM 3391).

den Grundwasserkomponente geschlossen werden. Ziel der  $^{18}\text{O}$ -Zeitreihenuntersuchungen war die Bestimmung der Herkunft der Grund- und Sickerwässer im Haldenbereich und die Bestimmung der unterirdischen Abflussraten/Verweilzeiten in der Auflockerungszone sowie die nähere Untersuchung der Beziehung zwischen den Niederschlagsintensitäten und dem Zufluss schnell infiltrierender Komponenten.

Die durchgeführten Untersuchungen zeigten für die hypodermischen Wässer beider Einzugsgebiete etwa ein mit den Niederschlägen gleichsinigen Verlauf der  $^{18}\text{O}$ -Gehalte. Eine zeitliche Verzögerung zwischen der Input- (Niederschlag) und der Outputkurve lag im Prinzip nicht vor. Es wurde festgestellt, dass der Sauerstoff-18 – Jahresgang im Anstrombereich des Kohlunbaches die niedrigste mittlere Verweilzeit aufwies und eine gute Übereinstimmung mit dem Jahresgang des Niederschlags erkennen ließ. Peakmaximas und –minimas zeigten prinzipiell keine zeitliche Verschiebung. Im Einzugsgebiet des

Wiesenbaches wurde dagegen eine deutliche Dämpfung festgestellt. Der tendenzielle Verlauf der Niederschläge ließ sich jedoch erkennen.

Die Ganglinien aus dem abstromigen Gebiet des Kohlunbaches zeichnete den tendenziellen Verlauf der Niederschläge nach. Das Alter der jung zufließenden Komponente ließ sich in den Outputkurven aufgrund fehlender Parallelität zum Verlauf der Inputkurve im Untersuchungszeitraum nicht ableiten. Eine mögliche Peakzuordnung war im Untersuchungszeitraum nur punktuell möglich. Eine mögliche Erklärung hierfür ist, dass das Wasser im Einzugsgebiet des Wiesenbaches eine Mischung aus zwei jungen Komponenten darstellt, die in etwa gleiche aber zeitlich versetzte Ganglinien aufwiesen. Hierdurch reagiert Sickerwasser in den Meßstellen nach einer längeren Trockenperiode zunächst unmittelbar auf ein Niederschlagsereignis, im folgenden ließ sich aber eine Peakabfolge nicht mehr der Niederschlagsganglinie zuordnen.

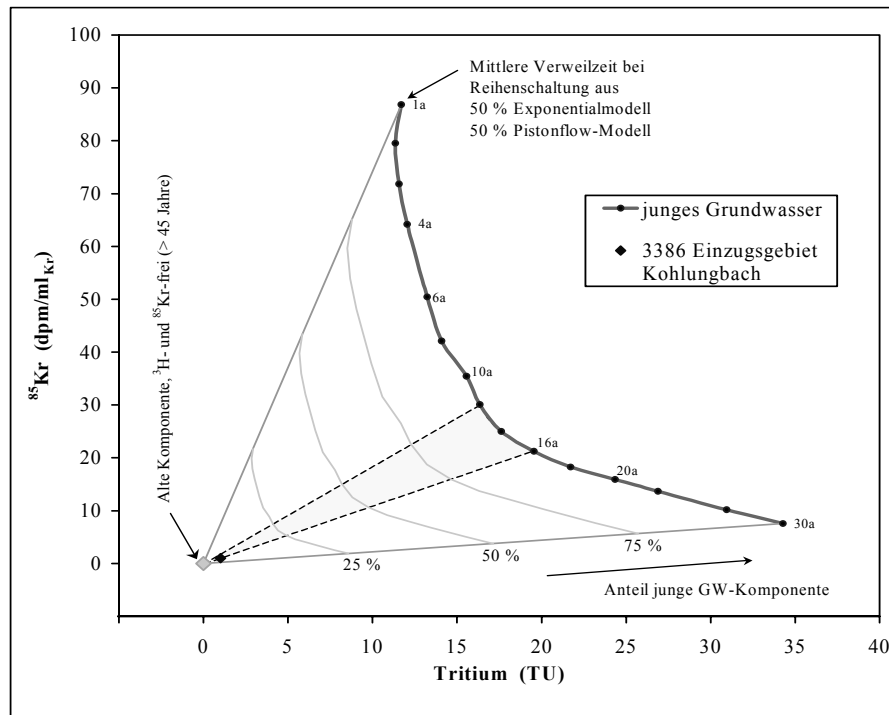


Abb. 5: Grafische Darstellung der Krypton-85-Gehalte in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach.

Aus dem Verlauf der  $^{18}\text{O}$ -Gehalte ist abzuleiten, dass von Spätwinter bis Sommer nur lokal ein Zufluss einer schnell infiltrierenden Komponente in der Auflockerungszone stattfindet. Hohe Niederschlagsmengen während Sommerniederschlägen führten allerdings flächendeckend in den gesamten Einzugsgebieten zum Zufluss einer schnell infiltrierenden Komponente in die Auflockerungszone, die an bevorzugte Fließwege gebunden ist. Für diese Komponente wurde eine mittlere Verweilzeit von 2 bis 5 Monaten berechnet. Dabei konnte zwischen der mittleren Verweilzeit von 2 Monaten im Anstrombereich und 5 Monaten im Abstrombereich differenziert werden. Hieraus ist abzuleiten, dass der Stofftransport im Bergematerial eine Dämpfung erfährt. Der Anteil der schnell abfließenden Komponente im Oberflächenwasser schwankt in Abhängigkeit vom Witterungsgeschehen zwischen 20 und 50 %, und ist in der Auflockerungszone deutlich geringer.

### 4.3 Ermittlung der Grundwasser- verweilzeit mittels Tritium und Krypton-85

#### 4.3.1 Tritiumuntersuchungen

Mit dem Ziel der Altersbestimmung der Wässer wurde eine Untersuchung der Tritiumgehalte

durchgeführt. Die Ergebnisse sind Abbildung 4 zu entnehmen. Die an den Grundwässern der verschiedenen Entnahmestellen analysierten Tritiumgehalte liegen in einem Bereich von 11 bis 24 TU. Für Grundwasserproben mit  $^3\text{H}$ -Gehalten deutlich über 15 TU lässt sich mit dem Programm unter Annahme des Exponential-Modells mit Hilfe von MULTIS (RICHTER 1995) eine Mittlere Verweilzeit (MVZ) im Bereich von 10 bis 20 a berechnen. Alle Grundwasserproben mit  $^3\text{H}$ -Gehalten unter 15 TU sind vermutlich jünger als 5-10 Jahre. Hydrogeologisch gesehen handelt es sich um einen Klufttransport.

#### 4.3.2 Krypton-85

Das Edelgasisotop Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ , Halbwertszeit 10,8 Jahre) stammt hauptsächlich aus kerntechnischen Anlagen. Der Konzentrationsverlauf von  $^{85}\text{Kr}$  in der Atmosphäre ist wegen des weltweit zunehmenden Kernbrennstoffverbrauchs seit Mitte der 50er Jahre monoton steigend. Die Aktivität von  $^{85}\text{Kr}$  liegt derzeit bei ca. 90 dpm/ml Kr (Kernzerfälle pro Minute und ml Krypton). Krypton löst sich im Niederschlagswasser und wird durch dieses in das Grundwasser eingetragen. Da der Input von  $^{85}\text{Kr}$  gut bekannt ist und keine größeren regionalen Unterschiede auftreten, kann aus der Aktivität von  $^{85}\text{Kr}$  in Grundwasserproben eine eindeutige Al-

tersangabe bzw. Aussage über die Verweilzeit des beprobten Grundwassers gemacht werden.

Liegen komplexere Grundwassersysteme vor, die sich aus Mischungen von Grundwasserkomponenten verschiedener Alter zusammensetzen, liefert die Bestimmung des  $^{85}\text{Kr}$ -Gehaltes wegen der Eindeutigkeit des Inputverlaufes genaue Informationen über die Verweilzeit des Grundwassers bzw. seiner Komponenten.

Die  $^{85}\text{Kr}$ -Gehalte der untersuchten Proben lagen im Bereich von 70 dpm/mlKr. und sind den aktuellen Eintragswerten zur Zeit der Probenahme vergleichbar (vgl. Abbildung 5). Dieser Messwert gibt einen Hinweis auf Grundwasser, welches unmittelbar aus den Niederschlägen neu gebildet wird. Aus den  $^3\text{H}$ -Gehalten wurde unter Annahme des Exponential-Modells eine Mittlere Verweilzeit von etwa 15 Jahren berechnet. Aufgrund der vorliegenden Abweichung der Mittleren Verweilzeit, die über  $^{85}\text{Kr}$  bzw.  $^3\text{H}$  ermittelt wurde, muss davon ausgegangen werden, dass unterschiedliche Eintragsprozesse von Krypton-85 und von Tritium in das Grundwasser eine Rolle spielen. Derartige Vorgänge sind möglich, wenn eine mächtige ungesättigte Zone vorhanden ist, so dass sich aufgrund der langsamen Versickerung des Niederschlags ein zeitlicher Unterschied zwischen dem  $^3\text{H}$ -Alter (Nullpunkt zu Beginn der Versickerung) und dem  $^{85}\text{Kr}$ -Alter (Nullpunkt beim letzten Kontakt des Sickerwassers mit atmosphärischer Luft an der Basis der ungesättigten Zone) einstellt. Dies bedeutet für das Untersuchungsgebiet, dass im Haldenbereich, also oberstromig der untersuchten GWM ein Gasaustausch von Atmosphäre und Grundwasser möglich ist. Als Konsequenz für Stoffumsetzungsprozesse bedeutet dies, dass in der Halde aerobe Prozesse ablaufen.

## 5 Untersuchung spezieller Einzugsgebietseigenschaften

### 5.1 Hydrochemische Charakterisierung

Die untersuchten Grund- und Oberflächenwässer sind dem  $\text{HCO}_3\text{-SO}_4$ -Typ zuzuordnen. Entsprechend den im Gestein vorkommenden  $\text{HCO}_3$ -Gehalten werden die Wässer durch neutrale pH-Werte charakterisiert. Diese wirken auch puffernd gegenüber Versauerung, die im Waldeinzugsgebiet des Kohlunzbaches zu verzeichnen ist. Die natürliche Mineralisation liegt bei etwa 0,4 mS/cm. Kontaminanten, die durch das Berg-

material im Einzugsgebiet emittiert werden, sind Uran (0,8-2,5 mg/L) und Arsen (28-270  $\mu\text{g/L}$ ). Diese werden über die Oberflächenwässer und die Kluft-Wasserwegsamkeiten der Grundwässer transportiert.

### 5.2 Ergebnisse der Gehalte von Schwefel-34 und Sauerstoff-18 am Sulfat

Die Untersuchung der  $^{34}\text{S}$ -Gehalte am Schwefel und am Sulfat werden für die Herkunftsbestimmung der im Wasser gelösten S-Komponenten eingesetzt. Die zusätzliche Bestimmung der  $^{18}\text{O}$ -Isotopengehalte am Sulfat ermöglicht eine bessere Differenzierung der Sulfatquellen und erlaubt die Kontrolle von im Schwefelkreislauf ablaufenden Redoxreaktionen. Bei der Oxidation von Pyriten bzw. den damit immer vergesellschafteten, anderen metallhaltigen Sulfidmineralen werden beträchtliche Mengen an Säure gebildet. Diese führen bei der Erschöpfung des Puffervermögens karbonathaltiger Gesteine oder von Tonmineralien zur Versauerung von Haldensickerwässern und damit zur Mobilisierung der meisten Schwermetalle. Aufgrund der im neutralen Bereich liegenden pH-Werte der Sickerwässer sind die meisten Metalle bis auf z.B. Arsen immobil und werden nicht mit den Sickerwässern ausgetragen.

Ziele der Untersuchung war es, Aussagen zur Versauerungsproblematik bzw. Hinweise auf Reaktionsmechanismus der Pyritoxidation abzuleiten damit einen Beitrag zu einem besseren Verständnis der stattfindenden hydrochemischen Reaktionen zu leisten. Des Weiteren sollte eine Charakterisierung der vorkommenden Schwefelverbindungen vorgenommen werden. Zur Charakterisierung der im Haldenkörper vorkommenden Schwefelverbindungen wurden die  $^{34}\text{S}$ - und  $^{18}\text{O}$ -Isotopengehalte am Sulfat in Sickerwasser-austritten sowie Bohrkernproben aus dem Bereich der Halde bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6 dargestellt.

Die analysierten Isotopengehalte des Schwefels aus den Bohrungen überstreichen einen Wertebereich von -6,2 bis +4,2 ‰, der typisch für Pyrite/Metallsulfide ist. Die im Sickerwasser gelösten Sulfate zeigen den gleichen  $^{34}\text{S}$ -Wertebereich ( $\delta^{34}\text{S}_{\text{so4}}$ : -2,2 bis 2,0 ‰  $\delta^{18}\text{O}_{\text{so4}}$  -6,2 bis -2,0 ‰). Hieraus kann abgeleitet werden, dass die Schwefelverbindungen des analysierten Bohrguts auch die Quellen der gelösten Sulfate sind. Da das in den Sickerwässern analysierte Sulfat durch Oxi-

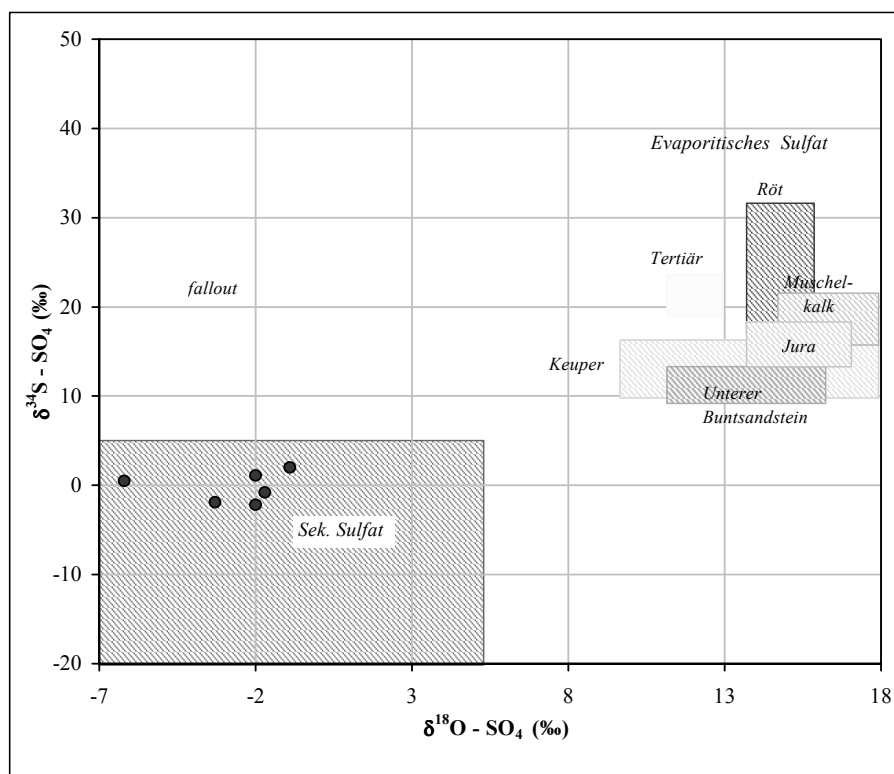


Abb. 6: Grafische Darstellung der Schwefelisotopengehalte in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach.

dationsreaktionen gebildet wurde, kann die sich bildende Säuremenge aus den Sulfatgehalten über die stöchiometrischen Reaktionsgleichungen abgeschätzt werden. Darüber hinaus gibt die gebildete Sulfatmenge Aufschluss über die tatsächliche Reaktionsgeschwindigkeit. Die Untersuchungen zum Reaktionsmechanismus geben den Hinweis auf einen vorwiegend abiotischen, oberflächenkatalytischen Mechanismus der Oxidation der Sulfide. Die sich bildende Säuremenge wird durch den Karbonatgehalt in der Halde abgepuffert, wodurch die meisten Schwermetalle immobilisiert werden.

### 5.3 Ergebnisse der Untersuchung von Stickstoff-15 und Sauerstoff-18 am Nitrat

Die Wässer im abstromigen Teil des Einzugsgebietes weisen zeitweise hohe Nitratgehalte auf, so dass sich die Frage nach der Quelle der Nitratgehalte stellte. Für die Herkunft von Ammonium- und Nitratgehalten in Wasserproben bildet die Stickstoff- und Sauerstoffisotopensignatur einen Quellenindikator. Mögliche Nitratquellen in den Untersuchungsgebieten sind:

- Nitrat aus organischer oder mineralischer Düngung (landwirtschaftliche Nutzflächen)
- Nitrat aus den forstwirtschaftlich genutzten Waldflächen
- Nitrat aus dem Niederschlag
- Ammonium/Nitrat aus den auf der Halde abgelagerten Kompost

Die Bestimmung der  $^{18}\text{O}$ -Gehalte am Nitrat ermöglicht die Identifizierung von Nitrat aus Mineraldünger, aus den Niederschlägen und von Nitrat, welches durch Nitrifikation gebildet wurde. Eine weitere Differenzierung/Identifizierung von Nitratquellen ergibt sich über die zusätzliche Analyse der  $^{15}\text{N}$ -Isotopengehalte. Diese gibt Aufschluss über die Herkunft von Nitrat, das durch Nitrifikation aus Mineraldünger, organischem Dünger bzw. Streu gebildet wurde.

Bei der Auswahl der Entnahmestellen wurden die in Frage kommenden Nitratquellen erfasst, deren Isotopensignatur bestimmt und diese mit der Signatur der Wässer im Abstrom des Einzugsgebietes verglichen. Die beprobten Nitratquellen waren die Messpunkte MP 067 (Wasser aus Waldeinzugsgebiet) und MP 194 (Wasser aus landwirtschaftlichen Nutzflächen). Die im



Tab. 1:  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  und  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ –Werte am Nitrat der Wässer der Einzugsgebiete von Kohlunbach und Wiesenbach [Angabe der Messwerte im relativen Vergleich zum Internationalen Standard (AIR / SMOW) in der  $\delta$ -Notation].

Messpunkt	$\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ [‰]	$\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ [‰]	$\text{NO}_3$ [mg/l]
Proben möglicher Nitrat-Quellen			
MP 194 (Landwirtschaft)	6,7	9,5	43,4
MP 067 (Forst)	1,0	44,7	5,2
Auslauf Kompost			1
Proben aus dem Abstrom			
MP 058	8,8	29,2	36
MP 113	9,1	28,1	37,2

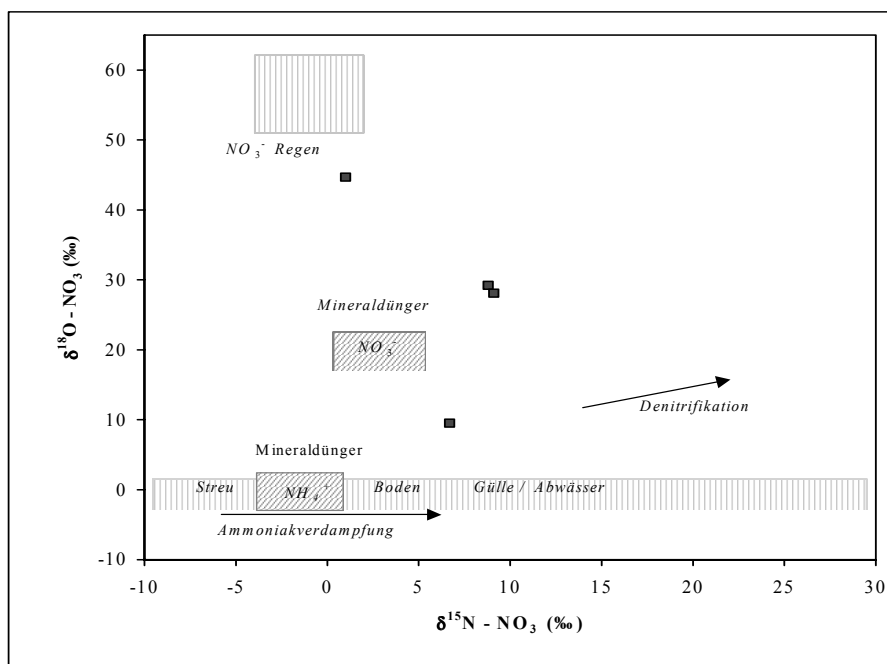


Abb.7: Grafische Darstellung der Nitratisotopengehalte in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach.

Abstrombereich beprobten Messstellen der Einzugsgebiete waren die Messpunkte MP 058 (Kohlunbach) und MP 113 (Wiesenbach). Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 und Abbildung 7 dargestellt.

Die Ergebnisse zeigen für das Nitrat der Messstelle MP 067 (Forst) typische niedrige Werte für forstlich genutzte Einzugsgebiete und eine relative Nähe zu typischen Werten des Niederschlags. Hier spiegelt sich wider, dass Bäume durch die Auskämmung des Nitrates aus dem Niederschlag eine Erhöhung der Nitratgehalte bewirken können (SCHNEIDER et al. 2003). Die Signatur des Nitrats der Messstelle MP 194 ist typisch für Nitrat aus der Landwirtschaft mit einem hohem Anteil an organischem Dünger. Die Probe der Kompostflächen wies nur einen Nitratgehalt von 1 mg auf, weshalb die Bestimmung der Isotopengehalte nicht möglich war. Mögliche redukti-

ve/denitrifizierende Prozesse spielen keine entscheidende Rolle. Daher bleibt die Isotopensignatur der Ausgangsquellen erhalten. Die Nitratgehalte im Abfluss zeigen, dass eine Mischquelle vorliegt (aus Nitrat aus landwirtschaftlichen Bereich, Nitrat aus Niederschlägen). Somit findet keine sekundäre Erhöhung der Stickstoff- und Sauerstoffisotopengehalte durch die Kompostflächen statt.

## 6 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen haben wesentliche Beiträge zum Systemverständnis der hydrologischen Prozesse in den Einzugsgebieten von Kohlunbach und Wiesenbach geliefert. Die aus den Isotopengehaltmessungen ermittelten Ergebnisse und Interpretationen lassen

sich schwerpunktmäßig folgendermaßen zusammenfassen:

- anhand der isotonhydrologischen Untersuchungen ist eine Klassifizierung bzw. Unterscheidung der Grund- und Sickerwässer entsprechend ihrer Herkunft möglich,
- die mittleren Verweilzeiten der Grundwässer in der Auflockerungszone liegen im Einzugsgebiet des Kohlunbachs zwischen 10 und 20 Jahren,
- nach Starkregenperioden ist der Eintritt von Sickerwasser durch den grundwasserhemmenden Verwitterungslehm in die Auflockerungszone möglich, wobei der Zustrom dieser jüngeren Komponente über den Zeitbereich von etwa zwei Monaten erfolgt,
- die am Haldenfuß austretenden Sickerwässer bilden ein Mischsystem (schnell infiltrierende Komponente und Grundwasser) und haben eine mittlere Verweilzeit im Bergematerial von zwei bis fünf Jahren,
- Niederschlagsereignisse lösen eine schnell infiltrierende Komponente im Bergematerial aus, deren mittlere Verweilzeit mit etwa zwei Monaten angegeben werden kann,
- aufgrund der vorliegenden Abweichung der Mittleren Verweilzeit, die über  $^{85}\text{Kr}$  bzw.  $^3\text{H}$  ermittelt wurde, muss davon ausgegangen werden, dass Bereiche der über dem Grundwasser liegenden ungesättigten Zone im Austausch mit der Atmosphäre stehen,
- aus der Bestimmung der Schwefelisotopengehalte der Haldensickerwässer kann abgeleitet werden, dass die Quelle des in den Wässern gelösten Sulfates ausschließlich auf die Verwitterung und Oxidation der im Haldenmaterial enthaltenen Metall-Sulfide zurückzuführen ist,
- reduktiv-denitrifizierende Prozesse finden wenn überhaupt, nur in geringem Umfang statt. Die Isotopensignatur der ursprünglichen Nitratquellen bleibt weitgehend erhalten und es ist nicht mit einer sekundären Erhöhung der Stickstoff- und Sauerstoffisotopengehalte zu rechnen.

Auf der Basis der ermittelten Fließkomponenten mit verschiedenen Verweilzeiten und deren Jahreszeitabhängigkeit konnten Mischungsanteile

berechnet, Fließwege erkannt sowie die abfließenden Mengen bilanziert werden. Darüber waren wesentliche Beiträge zur Bilanzierung des Stofftransportes möglich.

## Quellen

- KENDALL, C., & MCDONNELL, J.J. (eds.): Isotope Tracers in Catchment Hydrology: Amsterdam, Elsevier, p. 611-646.
- MEYER, J., JENK, U., SCHUPPAN, W. & KNAPIK, R. (1998): Hydrogeochemical Aspects of the Aue pit Flooding. In: Merkel B, Helling C (eds.): Uranium-Mining and Hydrogeology, GeoCongress II, S. 124-129, Verlag Sven von Loga, Köln.
- OSENBRÜCK, K., VOERKELIUS, S. & SCHNEIDER, P. (2000): Einsatz von Isotopenuntersuchungen zur unabhängigen Validierung hydrologischer und hydrochemischer Modellvorstellungen für die Erarbeitung von Monitoringkonzepten. In: Tagungsband „Internationale Konferenz Bergbausanierung - Technologien, Strategien, Revitalisierung“, Wismut GmbH, Schlema, Juli 2000.
- REINCKE, H., HURST, S. & SCHNEIDER, P. (2002): Strategy Concept Elbe, in: Merkel B.J.; Planer-Friedrich, B.; Wolkersdorfer, C: Uranium in the Aquatic Environment, pp. 41-48, Springer Verlag.
- RICHTER, J. & SZYMCAK, P. (1995): MULTIS – ein Computerprogramm zur Auswertung isotonhydrologischer Daten auf der Grundlage gekoppelter konzeptioneller Boxmodelle, Veröffentlichung der TU Bergakademie Freiberg, Lehrstuhl für Hydrogeologie.
- SCHNEIDER, P., VOERKELIUS, S., OSENBRÜCK, K. & MEYER, J. (2002): Radioactive Contaminant Transport of Aue Mine Dump 371: A Geochemical and Isotopic Case Study, in: Merkel B.J.; Planer-Friedrich, B.; Wolkersdorfer, C: Uranium in the Aquatic Environment, pp. 841-847, Springer Verlag.
- SCHNEIDER, P., NEITZEL, P., SCHAFFRATH, M. & SCHLUMPRECHT, H. (2003): Leitbildorientierte physikalisch-chemische Gewässerbewertung - Referenzbedingungen und Qualitätsziele, UBA Texte 15/03, Forschungsbericht 200 24 226, UBA-FB 000322, ISSN 0722-186X.