

Modellierung von Arsen in der Mulde

Modelling of arsenic concentrations in the River Mulde

von Christiane Zarfl, Jörg Klasmeier und Michael Matthies

Ausgehend vom Elbe-Hochwasser 2002, das die Frage der zusätzlichen Mobilisierung von Schwermetallen aus dem Sediment aufwarf, wurde die Normalsituation der Arsenbelastung im Einzugsgebiet der Mulde, einem Nebenfluss der Elbe, analysiert. Auf der Basis von vier Messkampagnen aus den Jahren 1992 und 1993 wurde ein datenbasiertes Massenbilanzmodell erstellt und kalibriert, das die gemessenen Arsenkonzentrationen gut abbildet. Durch inverse Modellierung konnten die Eintragsfrachten aus verschiedenen Quellen bestimmt werden. Neben einer erhöhten geogenen Hintergrundbelastung wird Arsen durch Erosion, Abschwemmung und Auslaugung aus den Halden der Bergbau- und Verhüttungsregionen des Einzugsgebietes in das Gewässer eingetragen. Die Analyse der Daten und Modellrechnungen ergab, dass so die Nebenflüsse Zschopau und das Schwarzwasser stark zur Arsenbelastung des Mulde-Hauptlaufes beitragen. Da alle vier Messkampagnen in Zeiten mit nur geringen Niederschlägen durchgeführt wurden, ist keine Aussage über einen erhöhten Eintrag durch Niederschlagsereignisse möglich. Der Muldestausee in der Vereinigten Mulde (bei Bitterfeld) stellt eine Schwebstoffs Senke und somit auch eine Senke für das partikulär gebundene Arsen dar, das mit dem Schwebstoff zu 63 % im See sedimentiert. Anhand des Modells konnte gezeigt werden, dass diese Senke den beobachteten Konzentrationssprung in den Messergebnissen erklären kann. Stromabwärts von Muldenstein bewirkt eine Erhöhung des Eisengehaltes der Partikel eine verstärkte Arsensorption an den Partikeln, wodurch sich das Verhältnis zwischen partikulär gebundenem und gelöstem Arsen (ausgedrückt als Verteilungskoeffizient K_d) um eine Größenordnung erhöht (von 34 auf 388 m³/kg). Beim Vergleich der Modellergebnisse mit den gemessenen Arsenkonzentrationen fällt allerdings eine Unterschätzung der Werte in der Freiburger Mulde (v.a. in der gelösten Phase) auf. Es wird vermutet, dass hier zusätzliche, diffuse Arseneinträge stattfinden, die mit den vorliegenden Informationen und Daten noch nicht näher spezifiziert werden können. Es wurde ein Referenzszenario aus mittleren Parameterwerten erstellt, das die durchschnittlichen Arsenkonzentrationen unter Normalbedingungen im Einzugsgebiet der Mulde widerspiegelt. Ein Vergleich des Referenzszenarios mit Messergebnissen des Jahres 2003 zeigt, dass die Einträge aus den Halden über lange Zeit eine konstante Quellstärke aufweisen und sich die Situation nach dem Hochwasser wieder auf Normalbedingungen eingestellt hat. Weitere Untersuchungen, auch im Hinblick auf die Einträge bei Starkregenereignissen, benötigen eine zeitlich höher aufgelöste Datenbasis und zusätzliche Messungen in den stark belasteten Nebenflüssen.

Arsenic is a toxic element, which has been the subject of several monitoring campaigns in the River Mulde, a tributary of the River Elbe. The Elbe-flood in 2002 poses the question about the mobilization of arsenic and other toxic elements out of the sediment. We thus investigated the sources, transport, loads and concentrations of arsenic in the catchment of the River Mulde. We developed a data-based mass-balance-model and calibrated it against measured data from four monitoring campaigns in the years 1992 and 1993. We could identify discharges from different point and non-point sources by inverse modelling. Elevated background contamination as well as former mining constitute a significant source of arsenic inputs into the River Mulde. Arsenic enters the river by erosion, washout and leaching from mining-waste dumps and historical smelting sites. The data analysis identified the tributaries Zschopau and Schwarzwasser as important sources of arsenic loads to the main channel of the Mulde. As all monitoring campaigns were carried out during low-rainfall periods, no correlation between increased loads and precipitation could be found. The Muldestausee, an artificial lake of the Vereinigte Mulde near Bitterfeld, is a sink for suspended matter and thus for particle-bound arsenic, with 63 % of suspended matter sedimenting in the reservoir. Downstream of Muldenstein, a higher iron content of the particles causes stronger sorption of arsenic to particles and an increase in the equilibrium sorption coefficient K_d by one order of magnitude (from 34 to 388 m³/kg). The measured arsenic concentrations are obviously underestimated by the model (particularly in the dissolved phase). This deviation strongly suggests additional diffuse loads of arsenic, which we could not specify. We defined a reference scenario by using average model parameters, which simulates arsenic in the River Mulde under mean flow conditions. A comparison of the reference scenario with the monitoring data of 2003 showed that the loads from the mining dumps remain constant over a long period and that the situation has returned to conditions before the flood. Further research, also in view of loads during intense rain events, needs more data on arsenic discharges and frequent measurements along contaminated tributaries.

1 Einleitung

Ausgangspunkt der Untersuchungen ist das Elbe-Hochwasser 2002, das die Frage der zusätzlichen Mobilisierung von Schwermetallen und Arsen aus dem Sediment aufwarf. Im Vergleich zu der Situation unter normalen Abflussbedingungen verliert bei solchen Hochwasserereignissen die Rolle des Wassers für die Schadstoffbelastung gegenüber der des Sediments an Bedeutung. Dies ist darauf zurückzuführen, dass unter extremen Wetterbedingungen das Sediment im Flussbett mechanisch mobilisiert und als Schwebstoff durch Advektion transportiert wird. Wenn anschließend das Wasser wieder abfließt, ein Prozess, der normalerweise deutlich langsamer verläuft als die Überspülung, bleiben viele der sedimentierten Partikel zurück und bilden die oberste Bodenschicht des gefluteten Gebietes. Abhängig von den Substanzeigenschaften und den spezifischen Umweltbedingungen ist diese Bodenschicht häufig mit unterschiedlich hohen Konzentrationen von toxischen Elementen und Schwermetallen belastet. Abbildung 1 vergleicht gemessene Werte von solchen Schadstoffen in den Überflutungsgebieten des Elbe-Einzugsgebietes mit den zugehörigen Grenzwerten der Bundes-Bodenschutzverordnung (VON TÜMLING et al. 2005, BBODSCHV 2005). Die Abbildung verdeutlicht, dass alle gemessenen Konzentrationen über den Grenzwerten liegen, die für Kinderspielflächen gelten. Arsen erreicht sogar Konzentrationen, die die oberste Grenze für Böden der Industrie- und Gewerbegrundstücke teilweise um mehr als das Doppelte übersteigen. Somit wird noch einmal die Wichtigkeit weiterer Untersuchungen von Hochwasserprozessen unterstrichen, damit vorsor-

gende Maßnahmen getroffen werden können. Ein BMBF-Projekt, welches sowohl praktische als auch theoretische Forschung im Bereich der Schadstoffe beinhaltet, hat hierzu bereits begonnen (VON TÜMLING et al. 2006).

Die vorliegende Untersuchung soll die Grundbelastung mit Arsen im Einzugsgebiet der Mulde, einem stark betroffenen Nebenfluss der Elbe, anhand der Ergebnisse von vier Messkampagnen in den Jahren 1992 und 1993 beschreiben, da zur Einschätzung der zusätzlichen Gefahr durch die Mobilisierung des Schadstoffes in Folge von Extremereignissen zunächst die Grundbelastung unter Normalbedingungen bekannt sein muss. Im Einzelnen werden durch eine Datenanalyse die Arsenquellen analysiert, lokalisiert und semi-quantitativ erfasst, die zur Belastung der Mulde beitragen. Außerdem werden eventuelle Austrags- oder Verlustpfade aufgezeigt oder ausgeschlossen. Zu diesem Zweck wird ein Massenbilanzmodell erstellt, das die Arsenbelastung im Mulde-Einzugsgebiet unter stationären Bedingungen (Fließgleichgewicht) abbildet. Die Evaluierung erfolgt mit Hilfe der Messdaten des Ad-hoc-Projektes (OCKENFELD 2004). Das Modell ermöglicht einerseits die Überprüfung der Konsistenz der Messdaten der vier Kampagnen und erlaubt andererseits eine erste Analyse der Frage nach ereignisbezogenen Variationen der Quellstärke des Arsens. Dabei wird die Quellstärke der Arsenemissionen mit Hilfe von inverser Modellierung erfasst. Es wird ein Referenzszenario definiert, das die durchschnittliche Situation und die Grundbelastung des Einzugsgebietes der Mulde mit Arsen durch geogenen Hintergrund und kontinuierlichen Eintrag aus Altstandorten in den einzelnen Muldeabschnitten beschreibt.

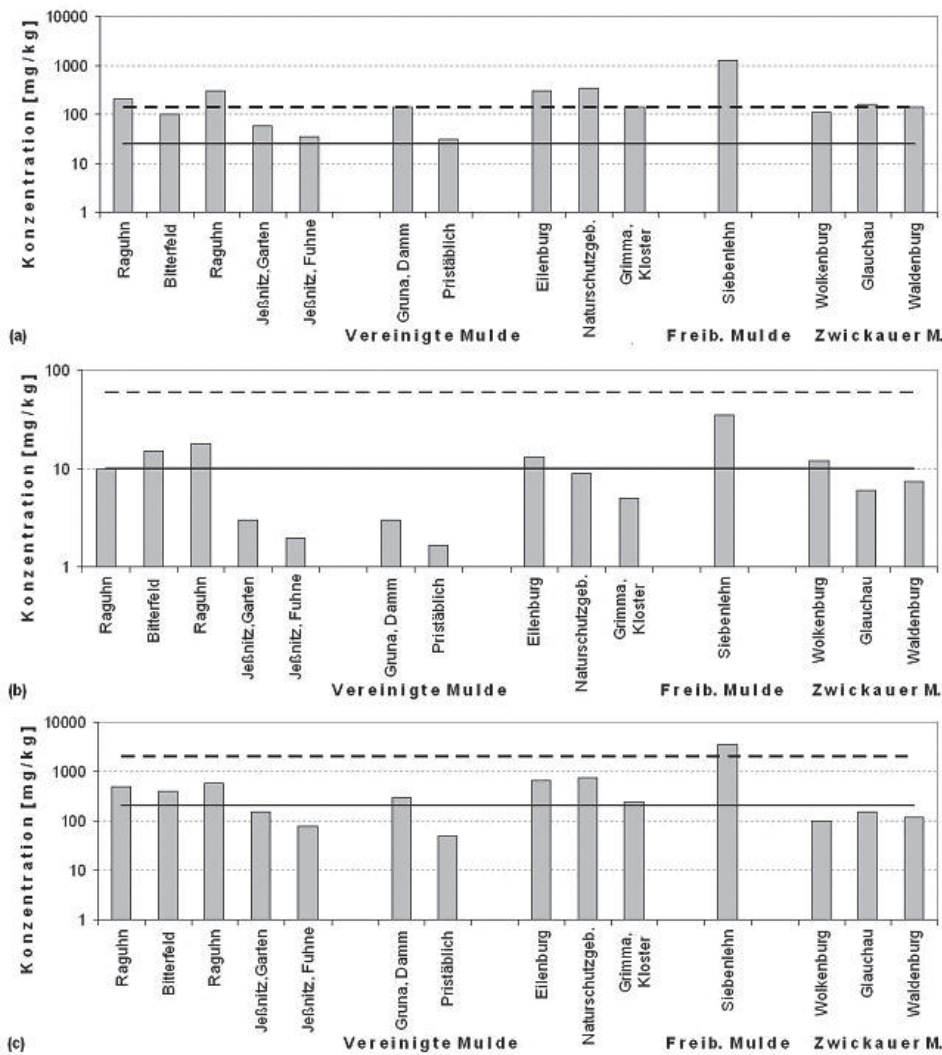


Abbildung 1
Gemessene Konzentrationen und Grenzwerte von Schadstoffen in verschiedenen Böden des Elbe-Einzugsgebietes: (a) Arsen; (b) Cadmium; (c) Blei. Die gestrichelte Linie markiert den jeweiligen Grenzwert der Bodenschutzverordnung für Industrieflächen, die durchgezogene den Grenzwert für Kinderspielflächen (VON TÜMP-LING 2005).

Measured concentrations and soil-quality standards in different soils of the Elbe catchment: (a) arsenic; (b) cadmium; (c) lead. The dashed line marks the soil-quality standard of industrial sites, the continuous one marks that of playgrounds (VON TÜMP-LING 2005).

Dieses Referenzszenario wird mit Messergebnissen des Jahres 2003 verglichen, um eventuelle Änderungen des Systems durch das Elbe-Hochwasser aufzeigen zu können.

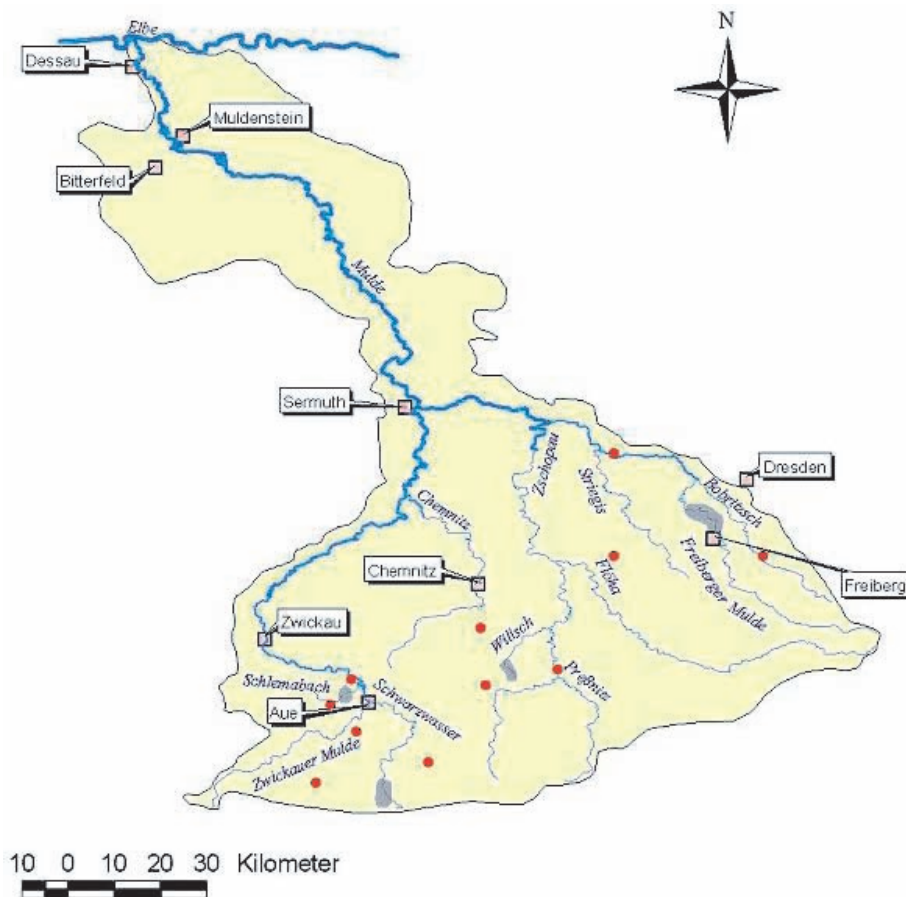
2 Beschreibung des Untersuchungsgebietes

Das Einzugsgebiet der Mulde befindet sich im östlichen Teil Deutschlands in den Bundesländern Sachsen und Sachsen-Anhalt und weist eine Fläche von etwa 7600 km² auf. Der südliche Teil besteht aus den Flüssen Freiberger Mulde im Osten und Zwickauer Mulde im Westen, die beide im Erzgebirge entspringen. Diese beiden Flüsse fließen südlich von Grimma in der Stadt Sermuth zusammen und bilden dort die Vereinigte Mulde, die nördlich von Dessau in die Elbe mündet (BEUGE et al. 1994). Eine Karte des Gebietes ist in Abb. 2 dargestellt. Die Freiberger Mulde umfasst ein Einzugsgebiet von 2985 km² und weist auf einer Länge von 123,9 km ein mittleres Gefälle von 5,5 ‰ auf. Die Zwickauer Mulde, deren Einzugsgebiet 2361 km² umfasst, zeigt mit einer Länge von 166,2 km und einem mittleren Gefälle von 4 ‰ eine ähnliche Morphometrie, die bei beiden Flüssen durch ihren Ursprung im Erzgebirge bedingt ist (PRANGE et al. 2000). Im Vergleich hierzu hat die Vereinigte Mulde auf einer Strecke von 120,7 km im Mittel ein deutlich geringeres Gefälle von nur 0,7 ‰ (KLEMM et al. 2004). Da die Zwickauer Mulde sowohl länger ist als die Freiberger Mulde als auch einen höheren Durchfluss aufweist, stellt sie den Quellfluss des Systems dar. Dies ist dann von Bedeutung, wenn bei Messungen und entsprechenden grafischen

Darstellungen bei der Flusskilometerangabe auf die Zwickauer Mulde Bezug genommen wird. Diese Angabe beginnt an der Quelle und wird dann in Fließrichtung gemessen.

Einer der größten Nebenflüsse des betrachteten Fließgewässersystems ist die Zschopau, die in die Freiberger Mulde mündet. Mit einem mittleren Durchfluss von 25,4 m³/s bewirkt sie eine erhebliche Verdünnung zahlreicher Substanzen wie Arsen, Cadmium, Kobalt und Zink im Hauptlauf. Ebenfalls zu erwähnen sind die beiden größeren Nebenflüsse der Zwickauer Mulde, Schwarzwasser und Chemnitz, die durch mittlere Durchflussmengen von 6,21 m³/s und 7,47 m³/s in analoger Weise eine Reduktion der Konzentrationen in der Mulde bewirken (BEUGE et al. 1999). Der Lauf der Vereinigten Mulde enthält einen künstlich angelegten Stausee, den Muldestausee, dessen Ursprung in der industriellen Geschichte der Region Bitterfeld liegt und der eine Länge von 5,8 km aufweist. Die mittlere Tiefe beträgt 15 m, die maximale Tiefe beträgt 30 m (BORN 1996). Der Muldestausee stellt eine Senke für Schwebstoffe dar und spielt so eine wichtige Rolle für den Verbleib des partikulär gebundenen Arsens.

In den Jahren 1990 und 1991 wurden die letzten Stollen und zugehörigen Aufbereitungsanlagen geschlossen, so dass derzeit nur noch geringe Kapazitäten an Bergwerken, Eisen- und Stahlwerken, metallverarbeitender Industrie und Papierindustrie existieren. Da außerdem die Abwasserrückhaltung und -reinigung mittlerweile deutlich verbessert wurde, konnte das Ausmaß an Schwermetallverschmutzungen der Vorfluter

**Abbildung 2**

Einzugsgebiet der Mulde: Dargestellt sind der Hauptlauf, bestehend aus Zwickauer, Freiberg und Vereinigter Mulde, sowie die für die Untersuchung relevanten Nebenflüsse. Die Punkte markieren die Lage der Klimastationen, die für die Untersuchung des Einflusses von Niederschlägen auf den Arseneintrag herangezogen wurden. Dunkelgraue Flächen repräsentieren Bergbaugebiete.

Catchment of the River Mulde: The main river course formed by the Zwickauer Mulde, the Freiberg Mulde, and after their confluence the Vereinigte Mulde as well as the relevant tributaries are shown. Points mark the climate stations considered to analyze the dependence of arsenic loads on precipitation. Dark-grey areas represent mining regions.

durch Abwässer reduziert werden. Im Gegensatz dazu erlangen diffuse Einträge die hauptsächliche Bedeutung. Diese Emissionen erfolgen aus Halden und Absatzbecken der Erzgewinnung seit dem Mittelalter entlang des Fließgewässersystems. In Bezug auf Arsen muss auch besonders die in diesem Einzugsgebiet deutlich erhöhte Hintergrundbelastung (VON TÜMLING et al. 2005) im Fließgewässer berücksichtigt werden. Diese Hintergrundbelastung ist nicht anthropogenen, sondern lithogenen Ursprungs und steht in Zusammenhang mit den speziellen Böden des Erzgebirges. Die natürlichen Belastungen resultieren aus der Erosion und Verwitterung von Gesteinen. Daher sind hohe Hintergrundfrachten eine Folge der geologischen Eigenschaften des Einzugsgebietes und müssen bei der Differenzierung von Schwermetall- und Arsenkonzentrationen im Flusssystem zwischen natürlichen und anthropogenen Quellen berücksichtigt werden. Die Relevanz dieser Information wird zusätzlich dadurch hervorgehoben, dass allein schon die Hintergrundbelastung in der Freiberg Mulde die mittleren globalen Werte um 80 % übersteigt (PRANGE et al. 2000). Jedoch sind in der Regel bei konstanter Eintragsmenge die Konzentrationen nur im Oberlauf signifikant erhöht. Mit zunehmender Wasserführung ab dem Mittellauf erfolgt einerseits eine Verdünnung und andererseits kommen weitere mengenmäßig bedeutsamere Einträge hinzu.

3 Methoden

3.1 Datenanalyse

Die Fließgewässermodellierung hat u. a. zum Ziel, die Konzentrationen von Arsen entlang des Hauptlaufs zu berechnen. Die Systemgrenze wird dabei so festgelegt, dass in die Untersuchung der Hauptlauf, bestehend aus Freiberg, Zwickauer und Vereinigter Mulde, sowie die Mündungen der Nebenflüsse

se mit einbezogen werden, da nur diese Fließstrecken durch die vorliegenden Daten abgedeckt werden. Die Grundlage dafür liefern die Daten, die unter anderem im Muldeprojekt erarbeitet wurden, einem Verbundprojekt des Instituts für Mineralogie der TU Bergakademie Freiberg mit dem Institut für Angewandte und Anorganische Chemie der Universität Hamburg (BEUGE et al. 1999). Die Analysen basieren auf Durchflussmessungen, Messungen der Schwebstoffgehalte und der gelösten und gebundenen Arsenkonzentrationen an Probenahmestellen in den drei Mulden und den Mündungsbereichen der relevanten Nebenflüsse sowie auf Ergebnissen vorangegangener Studien (BEUGE et al. 1999, BORN 1996).

3.2 Massenbilanzmodell

Anhand der durch die Datenanalyse gewonnenen Informationen über mögliche Arsenquellen (Halden, Tagebau) und Senken (Muldestausee) wird das Fließgewässernetz so in einzelne Abschnitte unterteilt, dass der entstandene Flussabschnitt als chemisch und hydrologisch homogen und durchmischt angesehen werden kann. Die Betrachtung des Systems erfolgt eindimensional in Fließrichtung, wobei der Transport durch Advektion beschrieben wird. Entscheidend dabei ist, dass die Unterteilungen immer dort vorgenommen werden, wo sich die hydrologische oder chemische Situation des Fließgewässers signifikant ändert. Da dies unter natürlichen Bedingungen jedoch überwiegend kontinuierlich stattfindet (River-Continuum-Concept) (VANNOTE et al. 1980), wird hier eine grobe Diskretisierung und somit modellhafte Abbildung erstellt. Die Annahme ist, dass über große räumliche Gebiete gemittelt werden kann und ein kontinuierlicher Arseneintrag aus geogenen (Hintergrund) und anthropogenen Quellen vorliegt. Ein Segment wird abgegrenzt durch (i) punktuelle Arseneinleitungen, die zu einer Erhöhung der Substanzfracht in der Mulde führen

und (ii) durch größere Zuflüsse, die eine Verdünnung der Konzentrationen nach sich ziehen. Als „größere“ Zuflüsse werden hier diejenigen Nebenflüsse definiert, die mehr als 10 % des Durchflusses führen, den der Hauptlauf aufweist. Innerhalb eines Segmentes können verschiedene Verlustprozesse (Abbau, Ausgasung) stattfinden. Für Arsen wird davon ausgegangen, dass es sich konservativ verhält, d.h. es finden weder Abbau noch Verflüchtigung statt und zwischen Schwebstoff und Wasser herrscht ständiges thermodynamisches Sorptionsgleichgewicht. Im Modell muss neben advektivem Transport in Fließrichtung noch Sedimentation berücksichtigt werden. Dabei wird angenommen, dass sich innerhalb der meisten Flussabschnitte Sedimentation und Resuspension im Mittel gegenseitig quantitativ aufheben und die Netto-Sedimentationsrate gegen Null geht. Für den Schwebstoff gilt daher analog zu der Annahme für den Durchfluss, dass sich die jeweilige Fracht in Fließrichtung genau dann erhöht, wenn über einen Zufluss zusätzliche Fracht in den Hauptlauf eingetragen wird. Die Ausnahme bildet der als Schwebstoffslenke bekannte Muldestausee. Aufgrund der relativ großen Nettosedimentation im Muldestausee ist hier eine veränderte Schwebstofffracht im ersten Segment nach dem See zu beobachten.

3.2.1 Technische Details

Grundlage dieser Arbeit ist ein deterministisches Massenbilanz-Flussmodell, welches Fließgleichgewicht (steady-state) annimmt. Im Massenbilanzmodell gilt das Prinzip der Massenerhaltung. Über die einzelnen Abschnitte werden dabei die Frachten, der Durchfluss und somit auch die Konzentrationen als quasi konstant angesehen, wenn es weder zu Einträgen noch zu Austrägen des Arsens kommt. Die Bilanzgröße, über die die Transportflüsse modelliert werden, ist die Arsenmenge in dem entsprechenden Segment. Als Modellergebnis werden für einen Vergleich mit den Messungen die berechneten Konzentrationen dargestellt. Die Arsenfrachten werden über die hydraulisch verbundenen Segmente weitertransportiert und addieren sich an den Zuflüssen bzw. Einleiterstellen. Innerhalb eines Flussstückes wird zwischen im Wasser gelöstem Arsen und am Schwebstoff adsorbierten Arsen unterschieden. Die Verteilung zwischen gelöster und partikulär gebundener Phase wird durch die angegebenen K_d -Werte bestimmt. Das Sediment wird nicht als eigenes zusätzliches Kompartiment betrachtet, da die Charakterisierung dieses Kompartimentes weitere Daten erfordert hätte. Die Berücksichtigung der Hintergrundbelastung erfolgt durch die Auswertung der vorliegenden Daten der Messkampagnen des Muldeprojektes. Hierbei wird angenommen, dass die Hintergrundbelastung eines Flussabschnittes proportional mit dessen Einzugsgebietsfläche ansteigt, da die Frachten geogenen Ursprungs sind und mit dem Grundwasser flächenhaft eingetragen werden. Die Flächen werden hierfür aus den Werten der im Mulde-Einzugsgebiet befindlichen Pegelstammdaten entnommen. Mit steigendem Durchfluss des Fließgewässers ist die Bedeutung der Hintergrundfrachten bezogen auf die Substanzkonzentration jedoch zu vernachlässigen, da das hinzukommende Wasser im Laufe des Flusses hauptsächlich den Niederschlag des Einzugsgebietes sowie Abwassereingleitungen umfasst.

3.2.2 Sorptionsgleichgewicht gelöste und partikulär gebundene Phase

Die invers abgeschätzten Arsen-Eintragsfrachten an den bekannten Quellen Schwarzwasser, Schlemabach, Muldenhütten und Zschopau werden über den Gleichgewichtssorptionskoeffizient K_d auf die partikulär gebundene und die gelöste Phase umgerechnet. Gegeben sei die gesamte Arsenfracht

N_{tot} (mg/s), die Partikelfracht Q_P (kg/s) und der Durchfluss Q (m^3/s) sowie der K_d (m^3/kg). Aus der Definition des K_d ergibt sich:

$$K_d = \frac{C_P}{C_W} = \frac{N_{\text{sorb}} \cdot Q}{Q_P \cdot N_{\text{gel}}} = \frac{N_{\text{sorb}} \cdot Q}{Q_P \cdot (N_{\text{tot}} - N_{\text{sorb}})}$$

$$N_{\text{sorb}} = \frac{K_d \cdot Q_P \cdot N_{\text{tot}}}{(Q + K_d \cdot Q_P)}$$

mit C_P = Arsenkonzentration an Partikeln (mg/kg), C_W = Arsenkonzentration im Wasser (mg/m^3), N_{sorb} = partikulär gebundene Arsenfracht (mg/s), N_{gel} = gelöste Arsenfracht (mg/s), Q_P - Schwebfracht (kg/s). Auf diese Weise kann aus der Gesamtfracht N_{tot} für jedes Segment die Konzentration an partikulär gebundenem und gelöstem Arsen berechnet werden, wenn Durchfluss und Schwebstofffracht gegeben sind.

3.3 Inverse Modellierung der Arseneinträge

Aus der Datenanalyse sind einige Eintragsorte für Arsen eindeutig lokalisierbar. Die Eintragsfrachten werden durch inverse Modellierung bestimmt, in dem man für jede Arsenemission den Wert ermittelt, der im Modell die beste Übereinstimmung mit allen flussabwärts vorliegenden Messdaten ergibt. Da der Arseneintrag in das Muldesystem hauptsächlich aus Halden in ehemaligen Bergbaugebieten erfolgt, soll zusätzlich überprüft werden, ob und inwiefern der partikulär gebundene Arseneintrag dynamisch von der Niederschlagsmenge im jeweiligen Teileinzugsgebiet abhängen könnte. Es werden die bereits identifizierten Eintragsorte Niederschlema an der Zwickauer Mulde, der eine hohe partikulär gebundene Arsenfracht über das Schwarzwasser zugeführt wird, der Zufluss des Schlemabachs in die Zwickauer Mulde, das Bergbau- und Hüttengebiet Muldenhütten bei Freiberg und der Zufluss der Zschopau in die Freiburger Mulde untersucht. Für jede dieser Arsenquellen wird mit Hilfe des Massenbilanzmodells invers die eingetragene Arsenfracht aus den vier Messkampagnen des Muldeprojektes bestimmt. Dabei wird nicht nach gelöstem und partikulär gebundenem Arsen differenziert, da beispielsweise an den Mündungsmessungen nicht mehr unterschieden werden kann, ob der Eintrag flussaufwärts durch Abschwemmung von Partikeln und/oder Auslaugung erfolgt ist, wenn an der Mündung jeweils die Schwebstoff- und Wasserphase bezüglich des Arsens wieder im Gleichgewicht ist. Diese Ergebnisse werden qualitativ mit der Niederschlagsmenge des Probenahmezeitraumes in Verbindung gebracht. Dafür werden zu jedem Eintragsort drei Klimastationen gewählt, die diese Quelle abdecken. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Arsenfrachten, die über die Nebenflüsse Schwarzwasser und Zschopau in die Mulde gelangen, ihren Ursprung in den südlich der Mündung gelegenen Bergbaugebieten von Johanngeorgenstadt bis Erla bzw. in Ehrenfriedersdorf haben. In diesen Fällen werden die Klimastationen (DWD 2004) im Bereich der tatsächlichen Arsenquelle gewählt. Zu jeder Messung wird schließlich die Niederschlagsmenge am Tag der Messung selbst und am Tag vor dieser Messung bestimmt.

3.4 Referenzszenario

Ziel des Referenzszenarios ist es, die durchschnittlichen Arsenkonzentrationen unter Normalbedingungen im Einzugsgebiet der Mulde widerzuspiegeln und alle Messkampagnen mit mittleren Werten für die Parameter zu beschreiben. Dazu müssen zunächst die Eingabeparameter Durchfluss und Schwebstoffkonzentration für jedes Segment sowie die eingetragene Arsenfracht an den Quellen Schwarzwasser, Schlemabach, Muldenhütten und Zschopau festgelegt werden. An jeder Messstelle des Muldeprojektes werden der Durchfluss

und die Konzentration des Schwebstoffes über die vier Kampagnen gemittelt und als Modellparameter für das Referenzszenario verwendet. Dieses Vorgehen ist nur deshalb möglich, weil die Schwankungen zwischen den Messkampagnen gering sind und die Werte daher als näherungsweise konstant angenommen werden können. Der Eingabewert für den Arseneintrag sowie der Partikelverlust im Muldestausee ergeben sich jeweils als Mittelwert der invers berechneten eingebrachten Frachten bzw. der invers bestimmten Partikelfracht, die im See verbleibt, aus den vier Messkampagnen des Muldeprojektes. Darüber hinaus werden die beiden benötigten K_d -Werte ebenfalls aus den vorliegenden Daten des Muldeprojektes bestimmt, indem der K_d -Wert an allen Messstellen der Vereinigten Mulde berechnet wird, die durch einen stabilen Konzentrationsverlauf gekennzeichnet sind. Anschließend wird einerseits über alle Werte stromaufwärts von Muldenstein (bis einschließlich Flusskilometer 250) und andererseits über die Ergebnisse stromabwärts von Muldenstein gemittelt, so dass jeweils ein K_d -Wert zur Charakterisierung der unterschiedlichen Verhältnisse am Schwebstoff vorliegt.

3.5 Vergleich des Referenzszenarios mit der Situation nach dem Elbe-Hochwasser 2002

Im Einzugsgebiet der Mulde kam es durch die Schließung der Bergwerke sowie durch das Elbe-Hochwasser von 2002 zu veränderten Bedingungen. So wurde z.B. ab 1998 mit dem Wasser der Mulde die Goitzsche, ein ehemaliger Braunkohle Tagebau bei Bitterfeld, geflutet (MÜLLER 2005). Das Hochwasser wiederum mobilisierte Schadstoffe aus Halden und der Industrie, die gelöst und partikulär gebunden auch in Wohngebiete transportiert wurden. Das Referenzszenario, für das die Messergebnisse des Muldeprojektes aus den Jahren 1992 und 1993 grundlegend sind, wird mit Arsenkonzentrationen verglichen, die im Mai 2003 während des Ad-hoc-Verbundprojektes des Umweltforschungszentrums Leipzig-Halle (GELLER et al. 2004) in der Freiburger und der Zwickauer Mulde erhoben wurden. Hieran wird überprüft, ob sich eine deutliche Änderung der Arsenkonzentrationen im Muldesystem ablesen lässt und welche Konsequenzen dieses Ergebnis auf die Modellierung des Arsens in der Mulde hat. Da bei dieser Messkampagne der Durchfluss an den Probenahmestellen nicht erfasst wurde, werden die jeweiligen Tagesmittelwerte an den Hauptpegeln des Einzugsgebietes der Mulde betrachtet (LAU 2003), so dass anhand dieser Daten und im Vergleich mit den Ergebnissen der vorliegenden Durchflussmessungen des Muldeprojektes die Durchflüsse für die einzelnen Segmente

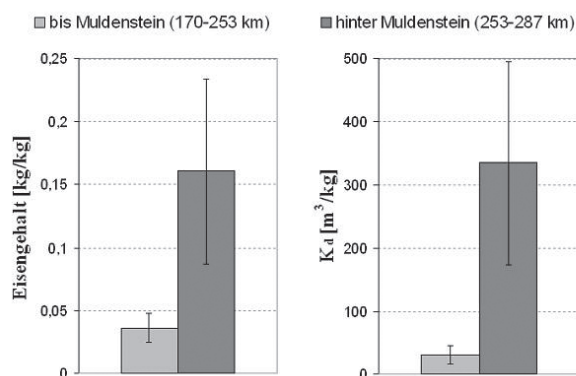


Abbildung 3
Eisengehalt des Schwebstoffes und K_d -Werte für Arsen in der Vereinigten Mulde stromauf- und stromabwärts der Messstelle Muldenstein.

Iron content of particulate matter and K_d -values upstream and downstream of the monitoring site Muldenstein.

abgeschätzt werden können. Mit Hilfe dieser zusätzlichen Information lassen sich die gemessenen Arsenkonzentrationen im Schwebstoff (in mg/kg) auf die Wasserphase (in g/L) umrechnen, so dass ein Vergleich mit den Modellergebnissen ermöglicht wird.

4 Ergebnisse und Diskussion

4.1 Datenanalysen

Aus den vorliegenden Messdaten konnten vier Arsenquellen identifiziert werden, die eindeutig auf Bergbau zurückgeführt werden können. Die Daten belegen die Annahme, dass neben diesen Einträgen im wesentlichen Verdünnungseffekte sowie die Sedimentation im Muldestausee die Arsenkonzentrationen beeinflussen. Lediglich stromabwärts von Niederschlema ist ein Konzentrationsrückgang zu beobachten, der an dieser Stelle nicht durch Verdünnungseffekte erklärbar ist. Auch ein Austrag durch Sedimentation kann aus den vorliegenden Informationen nicht entnommen werden, da keine Talsperre vorliegt und die Messdaten auch keine signifikante Änderung der Schwebstofffracht stromabwärts von Niederschlema erkennen lassen. Eindeutiger ist die Situation am Muldestausee in der Vereinigten Mulde (bei Bitterfeld). Dieser Stausee stellt eine Schwebstoffsänke und somit auch eine Senke für das partikulär gebundene Arsen dar, das mit dem Schwebstoff zu 63 % im See sedimentiert. Ein weiteres Resultat der Analyse ist, dass kurz hinter dem See bei Muldenstein der Zufluss des Leinedurchstichs eisenhaltigen Schwebstoff in die Vereinigte Mulde einträgt, der zu einer verstärkten Arsensorption und somit zu einer Erhöhung des K_d -Wertes um eine Größenordnung führt (Abb. 3). So ergibt sich das in Abb. 4 dargestellte Systemdiagramm, das basierend auf der Datenanalyse die Segmentierung verdeutlicht.

4.2 Arseneinträge

Für eine Bilanzierung der Arseneinträge müssen sowohl geogene als anthropogene Emissionen berücksichtigt werden. Messwerte des Arsens im Oberlauf deuten auf eine leicht erhöhte Hintergrundbelastung im Einzugsgebiet der Mulde hin. Der Mittelwert der Freiburger und Zwickauer Mulde liegt im

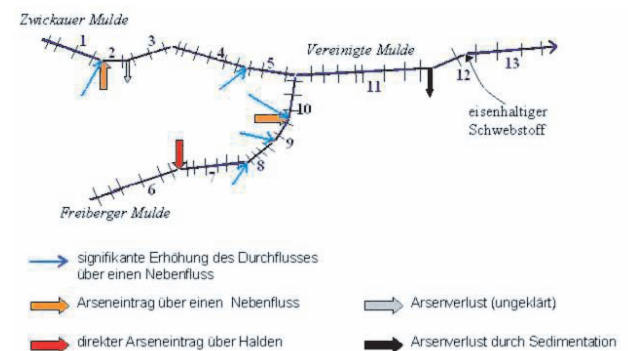
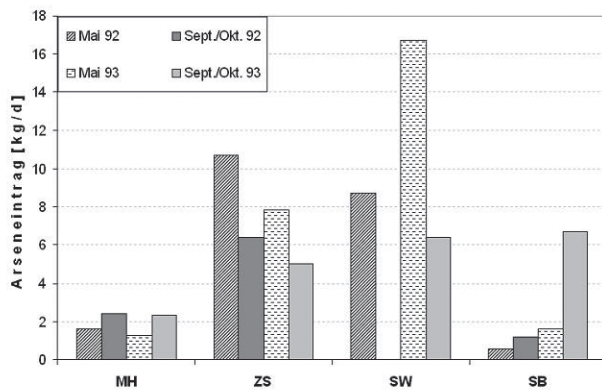


Abbildung 4
Hydraulisches Netzwerk zur Modellierung von Arsen in der Mulde: Die durchnummerierten Segmente repräsentieren die Flussabschnitte des Hauptlaufs, die durch Nebenflüsse (schmale Pfeile) beeinflusst werden. Zusätzlich kennzeichnen Blockpfeile Arseneinträge bzw. Verlustprozesse. Die zu den Segmenten senkrechten Linien verdeutlichen die Lage der Messstellen des Muldeprojektes.

Hydraulic network for modelling arsenic in the River Mulde: The numbered segments represent the river reaches of the main river course influenced by discharges from tributaries (fine arrows). Block arrows mark sources or sinks of arsenic, respectively. The lines vertical to the segments indicate the monitoring sites of the Mulde-Project.

**Abbildung 5**

Arseneinträge als Ergebnis der inversen Modellierung. MH: Muldenhütten, ZS: Zschopau, SW: Schwarzwasser und Niederschlema, SB: Schlemabach. Die Frachten wurden aus Messungen des Durchflusses sowie der Schwebstoff- und Arsenkonzentrationen während des Muldeprojektes berechnet.

Loads of arsenic calculated by inverse modelling. MH: Muldenhütten, ZS: Zschopau, SW: Schwarzwasser und Niederschlema, SB: Schlemabach. The loads were calculated from measurements of streamflow and particulate-matter and arsenic concentrations during the Mulde-Project.

Oberlauf (0-20 km) bei 2,6 bzw. 2,9 µg/L, während der mittlere globale Wert 1,4 µg/L beträgt (PRANGE et al. 2000). Die inverse Modellierung ermöglicht anhand gemessener Durchflusswerte, Schwebstoff und Arsenkonzentrationen, die Eintragsfrachten des Arsens an den vier bereits identifizierten Quellen zu bestimmen. In Abb. 5 sind die mit Hilfe des Modells berechneten Arsenemissionen für die einzelnen Kampagnen aufgetragen. Da die Messungen im Bereich der Mündung des Schwarzwassers während der Kampagne im September und Oktober 1992 nicht konsistent sind, wird dieses Ergebnis hier

vernachlässigt. Die Darstellung verdeutlicht, dass hauptsächlich die durch einen hohen Durchfluss gekennzeichneten Nebenflüsse Zschopau und Schwarzwasser zu einem Arseneintrag in die Mulde beitragen, der um einen Faktor 2 bis 6 höher ausfällt als bei Muldenhütten und über den Schlemabach. Die signifikante Abweichung der Arsenfracht, die im Herbst 1993 über den Schlemabach eingetragen wurde, könnte auf Unsicherheiten bei der Frachtabschätzung beruhen. Allerdings sind auch im Schwarzwasser und in der Zschopau Unterschiede in der eingetragenen Arsenfracht zwischen den einzelnen Kampagnen zu erkennen. Deshalb wird in dem folgenden Abschnitt näher untersucht, ob diese Abweichungen auf einen Zusammenhang mit Niederschlagsereignissen zurückzuführen sind.

In Tab. 1 sind für jede Arsenquelle im Einzugsgebiet der Mulde die Mittelwerte über die an den je drei Klimastationen gemessenen Niederschlägen aufgeführt. Zur besseren Übersicht verdeutlicht die Darstellung des Einzugsgebietes (Abb. 2) die geographische Lage der Arsenquellen und der berücksichtigten Klimastationen. Für die Betrachtung der Dynamik des Arseneintrags über die Nebenflüsse Zschopau und Schwarzwasser sind aufgrund der Entfernung der Arsenquelle zur Mündung vor allem die Niederschlagsverhältnisse am Tag vor der Messung relevant. Aus den Daten der Tab. 1 lässt sich erkennen, dass an den in Frage kommenden Messstellen und Tagen kein signifikantes Niederschlagsereignis stattgefunden hat. Die Ausnahme bildet die Messung an der Zwickauer Mulde. Am Tag vor der Messung bei Niederschlema ist es im Mai 1992 zu starken Regenfällen gekommen. Jedoch liegt im Vergleich mit den Kampagnen im Jahr 1993, wo es am Vortag der Messung nicht geregnet hat, keine sichtbare Erhöhung der berechneten Arsenfracht vor. Im Schlemabach lässt sich die Verdünnung der Arsenkonzentration im Mai 1992 durch das Regenereignis und den damit verbundenen höheren Abfluss von 0,3 m³/s erklären. In der Kampagne September/Oktober 1993 ist die Arsenkonzentration bei einem gerin-

Tabelle 1

Gemittelte Tagesniederschläge und berechnete Arseneinträge im Bereich der durch den Altbergbau verursachten Arsenquellen. Grundlage der Darstellung sind Niederschlagsmessungen des Deutschen Wetterdienstes, die am jeweiligen Tag bzw. Vortag der Arsenmessungen des Muldeprojektes aufgezeichnet wurden. Der Arseneintrag ergibt sich aus der inversen Modellierung und der Umrechnung der gemessenen Arsenkonzentrationen auf Arsenfrachten. Da die Messungen im Bereich der Mündung des Schwarzwassers im September/Oktober 1992 nicht konsistent sind, werden diese Ergebnisse hier vernachlässigt. Für das Schwarzwasser liegen keine Konzentrationsmessungen der betrachteten Kampagnen vor.

Mean daily precipitation and calculated loads of arsenic in the source region of arsenic (mining-waste dumps). Precipitation data are taken from the German Meteorological Service during the time of the measurements of the Mulde-Project. Discharges are calculated by inverse modelling and converting arsenic concentrations into loads. Measurements near the mouth of the River Schwarzwasser are not consistent in September/October 1992 and were thus neglected in this investigation. Measured concentrations in the River Schwarzwasser were not available.

		Niederschlag		Q [m³/s]	Arsen- konzent- ration [µg/L]	Arsen- eintrag [kg/d]
		Tag vor der Messung [mm]	Tag der Messung [mm]			
Muldenhütten	Mai 1992	0	0	3,4	6,7	1,6
	Sept./Okt. 1992	0,53	0	1,8	16,1	2,4
	Mai 1993	0	0	1,8	15,2	1,3
	Sept./Okt. 1993	0	0	2,0	36,0	2,3
Zschopau	Mai 1992	0	0	22,5	5,5	10,7
	Sept./Okt. 1992	0	0,13	8,0	9,3	6,4
	Mai 1993	0	4,0	12,5	7,2	7,8
	Sept./Okt. 1993	0	0	4,0	14,5	5,0
Schwarzwasser/ Niederschlema	Mai 1992	15,3	0	-	-	8,7
	Sept./Okt. 1992	-	-	-	-	-
	Mai 1993	0	0	-	-	16,7
	Sept./Okt. 1993	0	0	-	-	6,4
Schlemabach	Mai 1992	17,0	0	0,3	22,3	0,58
	Sept./Okt. 1992	0	2,5	0,12	113,0	1,2
	Mai 1993	0	0	0,21	87,4	1,6
	Sept./Okt. 1993	0	0	0,16	483,7	6,7

Tabelle 2

Eingabewerte für das Referenzszenario. Die Parameterwerte wurden aus den Messergebnissen der vier Kampagnen des Muldeprojektes hergeleitet.

Input values for the reference scenario. Parameter values were derived from monitoring data of the four campaigns of the Mulde-Project.

Segmentnummer	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Durchfluss [m³/s]	0,9	5,7	5,8	9,4	15,3	0,9	2,2	3,8	5,8	16,3	31,9	32,3	34,0
Schwebstoffgehalt [mg/L]	7,9	9,1	11,2	8,9	11,2	3,9	5,1	4,3	4,7	7,1	7,9	3,3	7,4
Arsenquellen	Schwarzwasser			Schlemabach		Muldenhütten			Zschopau				
Eintragsfrachten [kg/d]	10,6			2,5		1,9			7,5				
Verlust hinter Niederschlema [%]	25												
Partikelverlust im Muldestausee [%]	63												
K _d vor Muldenstein [m³/kg]	34												
K _d hinter Muldenstein [m³/kg]	388												

gen Durchfluss von 0,16 m³/s hingegen extrem hoch. Dies weist insgesamt auf eine konstante Arsenfracht im Schlemabach hin, wobei die Abweichungen auf Unsicherheiten bei der Frachtabschätzung beruhen. Berücksichtigt werden muss bei dieser Untersuchung, dass es insgesamt nur vier Niederschlagswerte gibt, die auf ein möglicherweise relevantes Niederschlagsereignis hinweisen. Es ist in der Regel kaum möglich, dynamische Analysen anhand von Einzelmessungen durchzuführen. Daher sind kontinuierliche Messungen über einen längeren Zeitraum notwendig, um zu überprüfen, ob und in welchem Maße die eingetragene Arsenfracht durch Niederschläge erhöht wird.

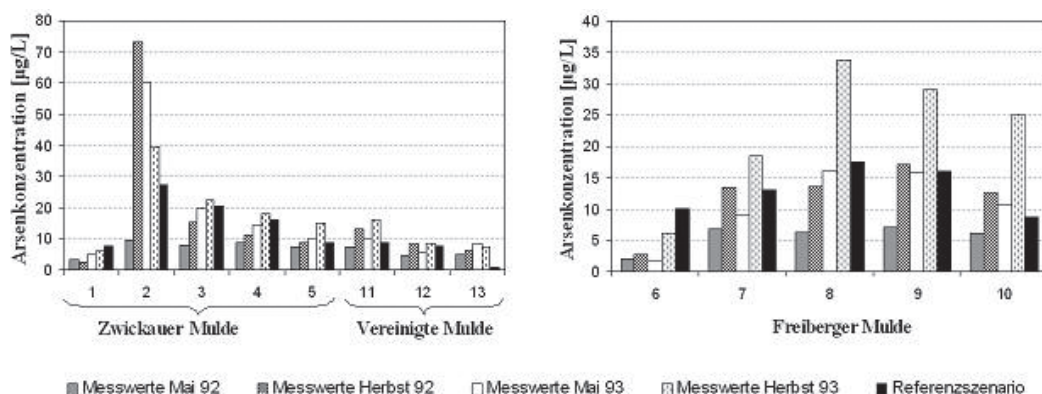
4.3 Referenzszenario

Aufgrund der im vorigen Abschnitt gezeigten geringen Variabilitäten der invers berechneten Eintragsfrachten zwischen den vier Messkampagnen können diese als mittlere Emissionen für ein Referenzszenario verwendet werden. Das Referenzszenario unterscheidet nicht nach den einzelnen Kampagnen, sondern verwendet verallgemeinerte Parameterwerte für das Massenbilanzmodell (Tab. 2). Ein Vergleich mit den jeweiligen Messergebnissen der Arsenkonzentration zeigt, dass die Simulationen den Konzentrationsverlauf gut wiedergeben und die Abweichungen, die in der Zwickauer, Freiburger und Vereinigten Mulde zu beobachten sind, im natürlichen Schwankungsbereich der Messkampagnen liegen (Abb. 6). Mit Hilfe des Referenzszenarios lässt sich schließlich eine Bilanz der Arsenfracht bezogen auf die Mündung der Vereinig-

ten Mulde in die Elbe aufstellen. Für die Hintergrundbelastung errechnet sich über die Einzugsgebietsfläche der Mulde von 7600 km² eine Eintragsfracht von 12,7 kg Arsen/d. Diese wird durch die invers modellierten Emissionen der Arsenquellen bei Muldenhütten, der Zschopau, dem Schwarzwasser und dem Schlemabach um 22,5 kg/d erhöht. Im Muldestausee kommt es zu einer Sedimentation, bei der 63 % des gebundenen Arsens im See verbleiben. Da der größere Teil der Arsenfracht hier jedoch in gelöster Form vorliegt, erreichen noch 25,4 kg/d die Mündung der Vereinigten Mulde. Verglichen mit der mittleren berechneten Fracht der Konzentrationsmessungen des Muldeprojektes von 18 kg Arsen/d, liegt die vorangegangene Abschätzung zwar etwas zu hoch, aber im Rahmen der durch die Frachtberechnung begründeten Unsicherheiten.

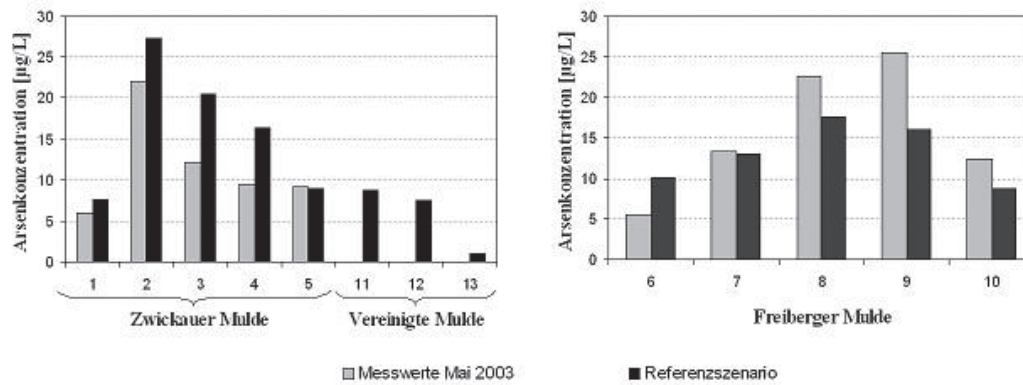
4.4 Vergleich des Referenzszenarios mit der Situation nach dem Elbe-Hochwasser

Der Vergleich der berechneten Arsenkonzentrationen des Referenzszenarios mit Messergebnissen des Ad-hoc-Verbundprojektes für 2003 (GELLER et al. 2004) ist nur in der Freiburger und Zwickauer Mulde möglich. Da sich an diesen beiden Flüssen die hauptsächlichen Arsenquellen (direkt bzw. indirekt über Nebenflüsse) befinden, ist dieser Vergleich dennoch sinnvoll. Auffallend ist, dass in der Zwickauer Mulde der Verlauf der Arsenkonzentrationen sowohl qualitativ als auch quantitativ durch das Referenzszenario des Massenbilanzmodells gut abgebildet wird (Abb. 7). Das bedeutet, dass das Schwarzwasser und der Schlemabach, die anhand der Mess-

**Abbildung 6**

Vergleich des Referenzszenarios mit den Messwerten des Elbis-Muldeprojektes: Das Szenario basiert auf gemittelten langjährigen Durchflusswerten und auf den aus dem Muldeprojekt gemittelten Schwebstoffgehalten und Eintragsfrachten des Arsens. Auf der x-Achse sind die Segmentnummern des hydraulischen Netzwerks angegeben (vgl. Abb. 4).

Comparison of the reference scenario with measured values of the Elbis-Mulde Project: The scenario is based on mean streamflow values and on the mean loads of particulate matter and arsenic during the Mulde-Project. The numbers on the x-axis signify the segment numbers of the hydraulic network (cf. Fig. 4).

**Abbildung 7**

Vergleich des Referenzszenarios mit den Messwerten des Ad-hoc-Verbundprojektes. Auf der x-Achse sind die Segmentnummern des hydraulischen Netzwerks angegeben (vgl. Abb. 4).

Comparison of the reference scenario with measured values of the Ad-hoc-Project. The numbers on the x-axis signify the segment numbers of the hydraulic network (cf. Fig. 4).

daten des Muldeprojektes von 1992/1993 als bedeutende Arsenzuflüsse charakterisiert wurden, auch nach dem Elbe-Hochwasser Arsenquellen darstellen. Darüber hinaus zeigt sich, dass der in der Systemanalyse identifizierte „unbekannte“ Verlustprozess stromabwärts von Niederschlema auch im Jahre 2003 nicht zu vernachlässigen ist, so dass es weiterer Untersuchungen bedarf, um diesen Prozess näher zu beschreiben. Die quantitative Übereinstimmung der Arsenkonzentrationen verdeutlicht, dass sich die Gleichgewichtsverteilung des Arsens zwischen der gelösten und der gebundenen Phase im Mai 2003 verglichen mit den Messergebnissen von 1992/1993 nicht auffallend verändert hat.

Schlussfolgerungen und Ausblick

Das Referenzszenario des datenbasierten Massenbilanzmodells spiegelt den Verlauf der gemessenen Arsenkonzentrationen des Muldeprojektes im Einzugsgebiet gut wider. Auch quantitativ gleichen die Simulationsergebnisse den Messwerten, da sowohl Unsicherheiten in den Eingabewerten als auch in den Probenahmen berücksichtigt wurden. Das bedeutet, dass die im Modell integrierten Prozesse advektiver Transport und Sedimentation im Muldestausee sowie mittlere Eintragsfrachten an den analysierten Quellen des Arsens für das Referenzszenario ausreichend sind, um die mittlere Belastung der Mulde mit Arsen in den Jahren 1992 und 1993 abzubilden. Weitere wichtige und für dieses System auch sensitive Parameter sind die unterschiedlichen K_d -Werte, die die Gleichgewichtsverteilung des gelösten und des partikulär gebundenen Arsens stromauf- bzw. stromabwärts von Muldenstein beschreiben. Eine dynamische Betrachtung des Arseneintrags im Einzugsgebiet ist auf der vorliegenden Datengrundlage des Muldeprojektes nicht möglich. Daher sollten weitere Untersuchungen kontinuierliche Messungen im Bereich der Arsenquellen über einen längeren Zeitraum umfassen, um zu analysieren, ob und in welchem Maße der Arseneintrag aus den Bergbauhalden vom Niederschlag oder anderen Randbedingungen abhängt. Für diese Messungen müssen die Parameter Durchfluss, Schwebstoffgehalt und Arsenkonzentration in der gelösten und der partikulär gebundenen Phase, sowie meteorologische Bedingungen (v.a. Niederschlag) am Messort berücksichtigt werden. Darüber hinaus besteht Untersuchungsbedarf bezüglich des „unbekannten“ Verlustprozesses stromabwärts von Niederschlema. Für eine Modellierung von Arsen in der Mulde, die den Zustand nach dem Elbe-Hochwasser repräsentiert, spielt sowohl die durch die Flut veränderte Situation als auch das Ende des Bergbaus eine Rolle.

Dies konnte mit den vorliegenden Daten jedoch nur an der Freiburger und Zwickauer Mulde untersucht werden, da die Messergebnisse des Ad-hoc-Verbundprojektes die Vereinigte Mulde nicht erfassen. Da das aus den Messkampagnen 1992/1993 abgeleitete Referenzszenario analog die Messungen des Jahres 2003 beschreiben kann, bedeutet das einerseits, dass die diffusen Einträge aus den Halden über einen langen Zeitraum eine konstante Quellstärke aufweisen und auch die Hintergrundbelastung nicht rückläufig ist. Andererseits zeigt sich, dass sich die Situation der Arsenbelastung nach dem Elbe-Hochwasser wieder auf Normalbedingungen eingestellt hat. Die direkten Auswirkungen des Elbe-Hochwassers, die in diesem Zusammenhang nicht Gegenstand der Untersuchung waren, lassen sich vor allem durch Betrachtung der Sedimentkonzentrationen beurteilen. In der Zwickauer und Freiburger Mulde liegen die Messwerte der Kampagne 2003 im Schwankungsbereich der Messergebnisse des Muldeprojektes 92/93. Einzige Ausnahme bildet die Messstelle hinter dem Arseneintrag durch das Bergbaugelände Muldenhütten, wo die Arsenkonzentration im Sediment 2003 die Konzentrationen des Muldeprojektes um etwa das Doppelte übersteigt. Für eine genaue Analyse wäre hier jedoch die Entnahme und Untersuchung von Sedimentbohrkernen sinnvoll. Zur dynamischen Simulation von Hochwasserereignissen selbst werden bei einer Fragestellung nach der Größe der Arsenfracht und nach dem Verbleib des Arsens im Einzugsgebiet der Mulde zusätzliche Informationen benötigt, die u. a. lokal spezifische Sedimentationsraten und eventuelle weitere Arsenquellen sowie Eisenquellen als Einflussfaktor für den K_d -Wert des Arsens betreffen. Die eingetragene Arsenfracht müsste im Falle einer in dieser Arbeit nicht widerlegbaren Abhängigkeit vom Niederschlag bei Hochwasserereignissen deutlich höher als die hier analysierte Grundfracht ausfallen.

Conclusions and outlook

The reference scenario of the data-based mass-balance model gives a good reflection of the profile of the arsenic concentrations that were measured under the Mulde-Project in the Mulde river basin. In quantitative terms too, the simulation outputs coincide with the measurements, because uncertainties both in the input values and in the sampling procedure were taken into account. This means that the processes that are integrated in the model, namely advective transport, sedimentation in the dam Muldestausee, and the mean input loads at the surveyed arsenic sources, are sufficient for the reference scenario to depict the mean arsenic load in the River Mulde in the

years 1992 and 1993. Other significant parameters that are also relevant for this system are the K_d values that describe the equilibrium distribution of dissolved and particle-bound arsenic upstream and downstream of the municipality of Muldenstein. With the database available in the Mulde-Project it is not possible to perform a dynamic analysis of arsenic inputs in the catchment. That is why further studies should include regular measurements in the area of arsenic sources over a longer period to find out whether and how much the arsenic input from mining-waste dumps depends on precipitation and other boundary conditions. Such measurements should cover the parameters streamflow, suspended-matter content, and arsenic concentration in the dissolved and particle-bound phases, along with meteorological conditions (above all precipitation) on the day of sampling. Moreover, there is a need for research regarding the "unknown" process that causes the arsenic sink downstream of Niederschlema. For the modelling of arsenic concentrations in the River Mulde that is representative of the status after the Elbe flood of 2002, the flood-induced changes are just as relevant as the close-down of the mining industry. This phenomenon, however, could be studied with the available data only on the Freiburger Mulde and the Zwickauer Mulde, because the measurements of the *Ad-hoc* Joint Project did not cover the Vereinigte Mulde River. The fact that the reference scenario derived from the measuring campaigns 1992/1993 can analogously describe the measurements made in the year 2003 means – on the one hand – that the diffuse inputs from the mining-waste dumps have constant intensity over a long period and that the background load is not decreasing. On the other hand, it was found that after the Elbe flood the arsenic contamination has returned to the normal level. The direct impacts of the Elbe flood (that were not the subject of this study) can best be assessed by examination of the sediment-borne concentrations. In the Zwickauer Mulde and the Freiburger Mulde, the measurements of the campaign in 2003 were within the range of the measurements of the Mulde-Project in 1992/1993. The only exception was the sampling site downstream of the arsenic input from the mining areas Muldenhütten, where the arsenic concentration in the sediment exceeded in 2003 the concentration measured under the Mulde-Project by about the two-fold. Here, an exact analysis would require sediment-core sampling. The dynamic simulation of flood events regarding the amount of the arsenic load and its fate requires additional information on the Mulde river basin, such as local sedimentation rates, possible other arsenic sources, and sources of iron that is an influencing factor for the K_d value of arsenic. If a dependence on precipitation exists, which could not be disproved in this study, the arsenic import load should be significantly higher during flood events than the baseline load determined in this study.

Danksagung

Wir danken Herrn Dr. von Tümpling (UFZ-Institut für Gewässerkunde, Magdeburg) für die Unterstützung bei der Datenbeschaffung.

Anschrift der Verfasser:

Prof. Dr. M. Matthies
Dr. J. Klasmeier
Dipl.-Systemwiss. C. Zarfl
Institut für Umweltsystemforschung
Universität Osnabrück
49096 Osnabrück
matthies@usf.uni-osnabrueck.de

Literaturverzeichnis

- BBodSCHV (2005): Bundes-Bodenschutzverordnung, Anhang 2, (<http://www.umweltbundesamt.de/altlast/web1/deutsch/bboschv.pdf>, 11.10.2005)
- BEUGE, P., A. GREIF, T. HOPPE, W. KLEMM, R. KLEEBERG, A. KLUGE, U. MOSLER, R. STARKE, J. ALFARO, M. HAURAND, A. KNÖCHEL & A. MEYER (1994): Erfassung und Beurteilung der Schadstoffbelastung des Muldesystems. – In: Die Belastung der Elbe Teil I – Elbenebenflüsse. – Forschungszentrum Karlsruhe, S. 27–36
- BEUGE, P., A. GREIF, T. HOPPE, W. KLEMM, A. KLUGE, M. MARTIN, U. MOSLER, R. STARKE, J. ALFARO, B. ANDERS, K. BEHRENS, N. GRUNWALD, M. HAURAND, A. KNÖCHEL, A. MEYER, H. POTGETER, S. STAUB & M. STOCKER (1999): Die Schwermetallsituation im Muldesystem Band I-III – Schlussbericht zu den Fördervorhaben. – Technische Universität Bergakademie Freiberg, Universität Hamburg
- BORN, J. (1996): Sedimentgeochemie des Muldestausees bei Bitterfeld. – (Dissertation). – Heidelberger Beiträge zur Umwelt-Geochemie 9, Universität Heidelberg
- DWD (2004): Deutscher Wetterdienst, Klimadaten. (<http://www.dwd.de>, 11.10.2005)
- GELLER, W., K. OCKENFELD, M. BÖHME & A. KNÖCHEL (2004): Schadstoffbelastung nach dem Elbe-Hochwasser 2002 – Endbericht des Ad-hoc-Verbundprojekts, Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle, Department. Fließgewässerökologie, Magdeburg (<http://www.ufz.de/data/HWEnd1333.pdf>, 11.10.2005)
- KLEMM, W., A. GREIF & U. KNITTEL (2004): Schwermetall- und Arsenverlagerungen in der Freiburger und Zwickauer Mulde. – In: W. Geller, K. Ockenfeld, M. Böhme, A. Knöchel (Hrsg.), Schadstoffbelastung nach dem Elbe-Hochwasser 2002. – Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle. Department Fließgewässerökologie Magdeburg, S. 159–172
- LAU (2003): Deutsches Gewässerkundliches Jahrbuch, Elbegebiet, Teil I. – Landesamt für Umweltschutz (LAU) Sachsen-Anhalt (Hrsg.), Halle
- MÜLLER, G. (2005): Goitzsche – Landkreis Bitterfeld, <http://www.goitzsche.de/goitzsche/indexgoi.htm>
- OCKENFELD, K. (2004): Die Flutkatastrophe im Elbe-Einzugsgebiet 2002 – ein Ereignisüberblick. – In: W. Geller, K. Ockenfeld, M. Böhme, A. Knöchel (Hrsg.), Schadstoffbelastung nach dem Elbe-Hochwasser 2002. – Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle, Department Fließgewässerökologie, Magdeburg, S. 12–13
- PRANGE, A., R. FURRER, J.W. EINAX, P. LOCHOVSKY, S. KOFALK & H. REINCKE (2000): Die Elbe und ihre Nebenflüsse – Belastung, Trends, Bewertung, Perspektiven. – ATV-DVWK Forschungsberichte, Hennef
- VANNOTE, R.L., G.W. MINSHALL, K.W. CUMMINS, J.R. SEDELL & C.E. CUSHING (1980): The river continuum concept. – Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences, 37:130–137
- VON TÜMLING, W., M. OVARI, M. MAGES, U. KUHLICKE & T. NEU (2005): TXRF CSLM investigation of Arsenic accumulation in biofilms from the river Freiburger Mulde. – Colloquium Analytische Atomspektroskopie (CANAS'05), 6.–10.3.2005, Freiberg
- VON TÜMLING, W., M. RODE, O. BÜTTNER, M. BABOROWSKI, M. BÖHME, C. GLÄßER, B. SONNABEND, M. MATTHIES, M. SCHULZ, J. SCHANZE, U. WALZ & A. SAUER (2006): Entwicklung eines Schadstoffausbreitungsmodells zur stoffbezogenen Risikoanalyse und -bewertung extremer Hochwasserereignisse am Beispiel des Landkreises und der Stadt Bitterfeld. – Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung 18 (2), S. 129–131