

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungsbericht 363 01 047
UBA-FB 000721



**Gutachten zur Beschreibung von
fachlichen Eckpunkten für die
Festlegung von
Zuordnungswerten der
Einbauklasse 1.1. (Z 1.1) für
organische Schadstoffe in
mineralischen Abfällen**

von

Prof. Dr. P. Grathwohl

Universität Tübingen

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Diese TEXTE-Veröffentlichung kann bezogen werden bei
Vorauszahlung von 7,50 Euro
durch Post- bzw. Banküberweisung,
Verrechnungsscheck oder Zahlkarte auf das

Konto Nummer 432 765-104 bei der
Postbank Berlin (BLZ 10010010)
Fa. Werbung und Vertrieb,
Wolframstraße 95-96,
12105 Berlin

Parallel zur Überweisung richten Sie bitte
eine schriftliche Bestellung mit Nennung
der **Texte-Nummer** sowie des **Namens**
und der **Anschrift des Bestellers** an die
Firma Werbung und Vertrieb.

Der Herausgeber übernimmt keine Gewähr
für die Richtigkeit, die Genauigkeit und
Vollständigkeit der Angaben sowie für
die Beachtung privater Rechte Dritter.
Die in dem Gutachten geäußerten Ansichten
und Meinungen müssen nicht mit denen des
Herausgebers übereinstimmen.

Herausgeber: Umweltbundesamt
Postfach 33 00 22
14191 Berlin
Tel.: 030/8903-0
Telex: 183 756
Telefax: 030/8903 2285
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>

Redaktion: Fachgebiet II 4.1
Sabine Huck

Berlin, September 2004

Berichts-Kennblatt

1. Berichtsnummer UBA-FB	2.	3.
4. Titel des Berichts Gutachten zur Beschreibung von fachlichen Eckpunkten für die Festlegung von Zuordnungswerten der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1) für organische Schadstoffe in mineralischen Abfällen		
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n) Prof. Dr. Peter Grathwohl	8. Abschlußdatum 28.03.03	9. Veröffentlichungsdatum
6. Durchführende Institution (Name, Anschrift) Universität Tübingen Center for Applied Geoscience Sigwartstr. 10 72076 Tübingen	10. UFOPLAN-Nr.	11. Seitenzahl 39
7. Fördernde Institution (Name, Anschrift) Umweltbundesamt, Postfach 33 00 22, D-14191 Berlin	12. Literaturangaben 27	13. Tabellen und Diagramme 7
	14. Abbildungen 18	
15. Zusätzliche Angaben		
16. Kurzfassung Im Zusammenhang mit der Anpassung der LAGA-Mitteilung 20 an die Bundes- Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) gab es zwischen der Umweltminister- und der Wirtschaftsministerkonferenz unterschiedliche Auffassungen über die materiellen Anforderungen, die an Abfälle/Materialien zu stellen sind, mit denen Abgrabungen (z.B. Ton-, Sand-, Kiesgruben, Steinbrüche) verfüllt werden dürfen. Durch Auswertung wissenschaftlicher Literatur und Berücksichtigung an der Universität Tübingen durchgeföhrten Untersuchungen sollte eine Entscheidungsgrundlage für die Festlegung der neuen Zuordnungswerte für organische Schadstoffe in der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1. neu) geschaffen werden. Die Auswertung der Daten zur Elution von PAK aus verschiedenen Materialien hat gezeigt, dass bereits bei relativ niedrigen Gehalten im Feststoff (3 mg/kg) die Prüfwerte im Wasser von 0,2 µg/l überschritten werden können. Als Ergebnis können folgende Empfehlungen für Feststoffgehalte abgeleitetet werden: Gehalte > 3 mg PAK/kg führen in der Regel zu Überschreitungen des Geringfügigkeitsschwellenwertes von 0,20 µl/l Entsprechendes gilt für Naphthalin. Für B(a)P als Einzelstoff wären höhere Gehalte zulässig, aber dieses ist aufgrund der gängigen PAL-Muster ohne Bedeutung. Bei PCB führt eine Verdoppelung des Vorsorgewertes von 0,05 mg/kg i.d.R. nicht zu einer Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes (GFS). Bei MKW kann unter der Voraussetzung, dass es sich um gealterte Rückstände ohne Aromaten handelt, ein Feststoffgehalt von bis zu 1000 mg/kg zugelassen werden, ohne dass eine Überschreitung der GFS zu erwarten ist. Für BTEX sind Gehalte bis zu 1 mg/kg und für LHKW sind Gehalte bis zu 0,5 mg/kg möglich, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten ist. Für gesicherte Aussagen über organische Schadstoffe im Sickerwasser werden Säulenversuche empfohlen.		
17. Schlagwörter Bodenschutz, organische Schadstoffe, PAK, mineralische Abfälle, Abgrabungen, Landschaftsbau		
18. Preis	19.	20.

Report Cover Sheet

1. Report No. UBA-FB	2.	3.
4. Report Title Report to describe the technical core for the determination of classification for the group of emplacement 1.1 (Z 1.1) for organic pollutants in mineral waste		
5. Autor(s), Family Name(s), First Name(s) Prof. Dr. Peter Grathwohl		8. Report Date 28.03.03
6. Performing Organisation (Name, Address) University of Tübingen Center for Applied Geoscience Sigwartstr. 10 72076 Tübingen		9. Publication Date
		10. UFOPLAN-Ref. No.
7. Sponsoring Agency (Name, Address) Umweltbundesamt, Postfach 33 00 22, D-14191 Berlin		11. No. of Pages 39
		12. No. of Reference 27
		13. No. of Tables, Diagrams 7
		14. No. of Figures 18
15. Supplementary Notes		
16. Abstract The adjustment of the LAGA-Information 20 according to the Federal Soil Protection and Contaminated Sites Ordinance (BBodSchV) showed a conflict between Environmental Minister conference and Minister of Economic Affairs conference about the substancial demands of waste/materials, what should be allowed to fill in excavations. By interpretation of scientific literature and consideration of analysis made by the university of Tübingen a basis of decision for the determination of new assignment criteria for organic pollutants in the emplacement category 1.1 (Z 1.1 new) has been created. The interpretation of data of PAH-elution from different materials has shown that already with low concentrations in solids (3mg/kg) the critical values can be exceeded. As a result the following recommendations can be derived: contents > 3 mg PAH/kg normally cause a exceedance of the lower earnings limit of 0,20µg/l, naphthaline accordingly. For B(a)P as single substance higher contents would be permissible, but because of the usual PAH-pattern this is irrelevant. A duplication of the precaution value for PCB of 0,05 mg/kg normally doesn't cause exceedance of the lower earnings limit. For Petroleum hydrocarbons a solid content up to 1000 mg/kg is acceptable without the danger of exceedance of the lower earnings limit under the condition that these are aged residues without condiments. Contents up to 1 mg/kg for BTEX and up to 0,5 mg/kg are possible without exceedance of the lower earnings limit. Column-tests are advised for assured statements about organic pollutants.		
17. Keywords soil protection, organic pollutants, PAH, mineral waste, excavation, landscaping		
18. Price	19.	20.

Vorwort

Mit In-Kraft-Treten des Bodenschutzrechts haben sich in Deutschland für die Verwertung von mineralischen Abfällen, zum Beispiel auch für Bodenmaterial, neue Rahmenbedingungen und konkrete Anforderungen ergeben. Die bislang geltenden technischen Regelwerke mussten an diese neuen Vorgaben angepasst werden, um den neuen Anforderungen des Bodenschutzrechts und des Wasserrechts zu entsprechen. In diesem Zusammenhang wurde auch die Mitteilung 20 „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen - Technische Regeln“ der Bund-/Länderarbeitsgemeinschaft Abfall (LAGA) überarbeitet.

Ergebnis der Überarbeitung des Allgemeinen Teils dieses Regelwerkes war ein in sich schlüssiges fachliches Konzept, in dem die Anforderungen des vorsorgenden Medienschutzes und der Abfallwirtschaft miteinander verzahnt wurden und das Grundlage für die Ableitung der konkreten Zuordnungsordnungswerte in den einzelnen Technischen Regeln bildete. Damit wurde auch dem Wunsch der Anwender nach Transparenz und Nachvollziehbarkeit Rechnung getragen.

Die Umsetzung der neuen Anforderungen des Bodenschutzes und die daraus abgeleiteten Zuordnungswerte für bodenähnliche Anwendungen (Auffüllung von Abgrabungen und Abfallverwertung im Landschaftsbau außerhalb von Bauwerken, **s. Anlage**) führten aufgrund der neuen Zuordnungswerte für organische Schadstoffe zu erheblichen Diskussionen mit der betroffenen Wirtschaft und im Ergebnis zu einem Widerspruch der Wirtschaftsministerkonferenz gegen einen von der Umweltministerkonferenz verabschiedeten Bericht (**s. Anlage 2 bis 5**). Um zu prüfen ob die neuen Festlegungen fachlich gerechtfertigt sind und um sicherstellen, dass es durch den Austrag von Schadstoffen aus dem Bodenmaterial in das Sickerwasser zu keiner Beeinträchtigung von Boden und Grundwassers kommt, vergab das Umweltbundesamt ein Gutachten, in dem diese Frage geklärt werden sollte (**s. Anlage 6**).

Die vorliegenden Ergebnisse, die in einem Fachgespräch mit Vertretern der betroffenen Länderarbeitsgemeinschaften und der Wirtschaft erörtert wurden (**s. Anlage 7 und 8**), bestätigen im Wesentlichen die von der Arbeitsgruppe der Länder vorgeschlagenen Werte. Sie bilden damit die Grundlage für eine sachgerechte und rechtskonforme Bewertung der Schadlosigkeit der Verwertung von Bodenmaterial. Sie zeigen auch, dass eine wissenschaftlich fundierte Ableitung von Zuordnungswerten auf der Grundlage des der LAGA-Mitteilung 20 zugrunde liegenden Konzeptes grundsätzlich möglich ist und fundierte Aussagen zur Abschätzung der Verlagerung von Schadstoffen aus Bodenmaterial nur durch die Kenntnis der mobilen Anteile mit einer entsprechenden Sickerwasserprognose möglich ist.

Dieses Gutachten ist damit ein grundlegender und wichtiger Schritt für die fachliche begründete und nachvollziehbare Ableitung von Zuordnungswerten für organische Schadstoffe zur Bewertung der Schadlosigkeit der Verwertung von Bodenmaterial gemäß § 5 Abs. 3 KrW-/AbfG.

**„Gutachten zur Beschreibung von fachlichen Eckpunkten für die
Festlegung von Zuordnungswerten der Einbauklasse 1.1. (Z 1.1) für
organische Schadstoffe in mineralischen Abfällen“**

(UBA Förderkennzeichen 363 01 047)

Prof. Dr. P. Grathwohl, Universität Tübingen

Inhalt

1. Einleitung – Ziele	2
2. Beziehung zwischen Gehalten im Feststoff und Konzentrationen im Kontakt- bzw. Sickerwasser	4
2.1 Sichtung vorhandener Daten / Klassifizierung nach Materialien	4
2.2 Methodische Zusammenhänge verschiedener Verfahren zur Bestimmung der Stoff-Konzentrationen im wässrigen Eluat	5
Gleichgewichtstests: Einfluss unterschiedlicher Wasser/Feststoff-Verhältnisse	6
Zeit zum Erreichen des Gleichgewichts: Freisetzung(Desorptions-)kinetik	9
Einfluss von gelöster organischer Substanz und suspendierten Partikeln auf die Gleichgewichtskonzentration	10
Vergleichbarkeit verschiedener Elutionsverfahren	12
3. Berechnung der Konzentrationen im Wasser für die drei angeführten Fälle bzw. Gehalte unter Berücksichtigung typischer Konzentrationsmuster von PAK im Feststoff	15
3.1 Berechnung der Gleichgewichtskonzentration im Wasser bei linearer Sorption unter Verwendung empirische Korrelationen aus der Literatur	16
3.2 Abschätzung der Gleichgewichtskonzentration im Wasser bei nichtlinearen Sorptionsisothermen	20
3.3 Ableitung von Feststoffkonzentrationen für Naphthalin, PCB, MKW, BTEX und LCKW (entsprechend für PAK im nichtlinearen Fall)	26
4. Modellhafte Betrachtung der Kinetik des Schadstoffübergangs zwischen Feststoff und Wasser: Konzentrationen im Ungleichgewicht für die Fall 3 (Computersimulationen der wasserdurchlässigen Tragschicht)	29
5. Verwendung von für Phenanthren gemessenen Sorptionsisothermen für die Bestimmung von PAK Konzentrationen im Wasser bzw. PAK-Gehalten im Feststoff	31
6. Zusammenfassung - Empfehlungen	33
Literatur	35
Anhang I: PAK-Verteilungsmuster	37
Anhang II: Löslichkeitsnormierte Sorptionsisothermen: Freundlich-Parameter	39

1. Einleitung - Ziele

Ziel dieser Arbeit ist es, durch Auswertung in der wissenschaftlichen Literatur vorhandener Daten sowie unter Berücksichtigung von Ergebnissen bisher durchgeföhrter und laufender Untersuchungen der Universität Tübingen die Entscheidungsgrundlage für eine Übergangsregelung bzgl. der Festlegung der neuen Zuordnungswerte für organische Schadstoffe in der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1 neu) zu schaffen, wobei das dabei auftretende Sickerwasser nicht mehr als geringfügig belastet sein soll (siehe Tabelle 1.1). Bewertet werden jeweils 2 für Feststoffe festgelegte Gehalte (Tabelle 1.2) mit dem Schwerpunkt bei den polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK: 3 mg kg^{-1} und 5 mg kg^{-1}) bzw. Benzo(a)pyren (BaP: $0,3 \text{ mg kg}^{-1}$ und $0,5 \text{ mg kg}^{-1}$). Zu klären ist insbesondere, ob Gehalte im Feststoff von 5 mg kg^{-1} tolerierbar sind und ob ggf. bereits bei 3 mg kg^{-1} Überschreitungen der Geringfügigkeitsschwellenwerte im Sickerwasser zu erwarten sind. Für beide Gehalte sind 3 Szenarien (= Fälle) mit unterschiedlichen Humusgehalten bzw. unterschiedlichen Gehalten an organisch gebundenem Kohlenstoff (f_{oc}) zu betrachten:

1. Verfüllung einer Bodenabbaustätte (z.B. Kies-, Sand- oder Tongrube) mit humusarmem Bodenmaterial (Humusgehalt < 1%; $f_{oc} = 0,005$)
2. Durchwurzelbare Bodenschicht mit einer Dicke von 0,5 m bis 2 m (z.B. Abdeckung eines Lärmschutzwalls oder Rekultivierungsschicht einer Deponie) mit humosem Bodenmaterial (1% - 4% Humusgehalt; $f_{oc} = 0,02$)
3. Wasserdurchlässige Tragschicht von 0,25 m bis 0,5 m (z.B. Parkplatz oder Gewerbefläche) ohne wasserundurchlässige Deckschicht (Humusgehalt < 0,5%; $f_{oc} = 0,001$; $f_{oc} = \text{Humusgehalt\% / ca. } 200$); alle Berechnungen wurden mit den angegebenen f_{oc} -Werten durchgeführt.

Die f_{oc} -Angaben betreffen die in den Berechnungen verwendeten Werte. Gegenstand der Betrachtungen ist insbesondere die Verwertung von Materialien mit geringen Humus- bzw. f_{oc} -Gehalten außerhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht zur Herstellung der natürlichen Bodenfunktionen bzw. zur Herstellung einer technischen Funktion (Z 1.1). Zur Beantwortung der Frage, ab welchen Gehalten im Feststoff damit zu rechnen wäre, dass die Geringfügigkeitsschwellen im Sickerwasser an der Unterkante der Maßnahme überschritten sind, werden im folgenden vier verschiedene, voneinander unabhängige Methoden verwendet:

1. Direkter Vergleich von Datenpaaren unterschiedlichster Materialien: Gegenüberstellung von Gehalten im Feststoff vs. Konzentrationen im Kontaktwasser (Kap. 2.1)
2. Berechnung der Konzentrationen im Sickerwasser bei gegebenem Gehalt im Feststoff (5 mg kg^{-1}) mittels empirischer Korrelationen aus der Literatur (lineare Sorption) und für typische PAK-Verteilungsmuster aus Bodenmaterialien (Kap. 3.1 u. Anhang I)
3. Wie 2, aber unter Berücksichtigung von nichtlinearer Sorption und von Ungleichgewichtsbedingungen zwischen Gehalten im Feststoff und Konzentrationen im wässrigen Eluat (letzteres kommt Feldbedingungen am nächsten) (Kap. 3.2 u. Kap. 4)
4. Wie 1, aber unter Verwendung gemessener Phenanthren-Sorptionsisothermen zur Berechnungen der Gehalte im Feststoff bei gegebener PAK-Konzentration im Wasser bzw. umgekehrt (Kap. 5).

In Kapitel 2.2 werden zusätzlich verschiedene Elutionsverfahren erläutert und miteinander verglichen.

Tab. 1.1: Prüfwerte für den Wirkungspfad Boden-Grundwasser für organische Schadstoffe nach Anhang 2, Nr. 3.1 BBodSchV

Parameter		PAK ¹⁾	Naphth.	PCB ²⁾	MKW ³⁾	Σ BTEX ⁴⁾	Σ LHKW ⁵⁾
Konzentration	$\mu\text{g/l}$	0,20	2	0,05	200	20	10

¹⁾ Summe PAK (15 Einzelsubstanzen nach EPA ohne Naphthalin)

²⁾ Polychlorierte Biphenyle, Congenere nach DIN 51527 multipliziert mit 5

³⁾ n-Alkane, Isoalkane, Cycloalkane und aromatische Kohlenwasserstoffe

⁴⁾ Leichtflüchtige aromatische Kohlenwasserstoffe (Benzol, Toluol, Xyole, Ethylbenzol, Styrol, Cumol)

⁵⁾ Leichtflüchtige Halogenkohlenwasserstoffe (Summe der halogenierten C1- und C2-Kohlenwasserstoffe)

Tab. 1.2: Mögliche Varianten für die Festlegung von Zuordnungswerten (Feststoffgehalte) für organische Schadstoffe in der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1 neu)

Parameter		PAK ¹⁾	BaP	PCB ²⁾	EOX	MKW	Σ BTEX	Σ LHKW
Variante 1	mg/kg	3 ³⁾	0,3 ³⁾	0,05 ³⁾	k. A.	k. A.	k. A.	k. A.).
Variante 2	mg/kg	5	0,5	0,1	3	300	1	1

¹⁾ PAK nach EPA

²⁾ Congenere nach DIN 51527

³⁾ Vorsorgewerte BBodSchV bei < 8% Humus

2. Beziehung zwischen Gehalten im Feststoff und Konzentrationen im Kontakt- bzw. Sickerwasser

2.1 Sichtung vorhandener Daten / Klassifizierung nach Materialien

Abb. 2.1 vergleicht PAK-Gehalte in verschiedensten Materialien mit im Sickerwasser gemessenen Konzentrationen (meist Säuleneluate; siehe auch Kap. 2.2, z.B. Abb. 2.7). Dabei wurden nur Proben berücksichtigt, die über sehr lange kontaminiert waren und die keine residualen Öl- bzw. Bitumen-/Teerphasen aufwiesen (Ausnahme: Asphalt). Ausgewertet wurden vorwiegend frühere Arbeiten zu Säulenversuchen mit kontaminiertem Material von Gaswerksstandorten sowie vorläufige Ergebnisse aus laufenden EU- und BMBF-Forschungsprojekten (GRACOS bzw. „Sickerwasserprognose-Quellterm“). Bei letzteren bestehen z.T. noch Unsicherheiten bzgl. Anfangseffekten sowie Langzeitverhalten bei der Elution, die es erschweren, Gleichgewichtsbedingungen im Säulenversuch exakt zu identifizieren.

Wie Abb. 2.1 zeigt, ergibt sich bei Gehalten unter 3 mg kg^{-1} bereits bei 3 Proben eine Überschreitung des Prüfwerts im Wasser. Im Intervall zwischen 3 mg kg^{-1} - 5 mg kg^{-1} kommt es bei zusätzlich 7 Proben (drei davon sandige Böden von Gaswerksstandorten) zu einer Überschreitung des Prüfwerts im Eluat (= Sickerwasser). Insgesamt nur 3 Proben (Kohle, Gießereisand und eine Baggergutprobe aus Spanien) mit Feststoffgehalten über 5 mg kg^{-1} bleiben unter dem Sickerwasserprüfwert im Eluat. 2 Proben (organische Auflagen aus zwei Böden) bleiben knapp unter dem Prüfwert bei Gehalten knapp unterhalb von 5 mg kg^{-1} . Diese Ergebnisse, dass bereits ab 3 mg kg^{-1} mit einer Überschreitung des Prüfwertes im Eluat zu rechnen ist, werden durch die in Kap. 5 aufgeführten Datensätze bestätigt.

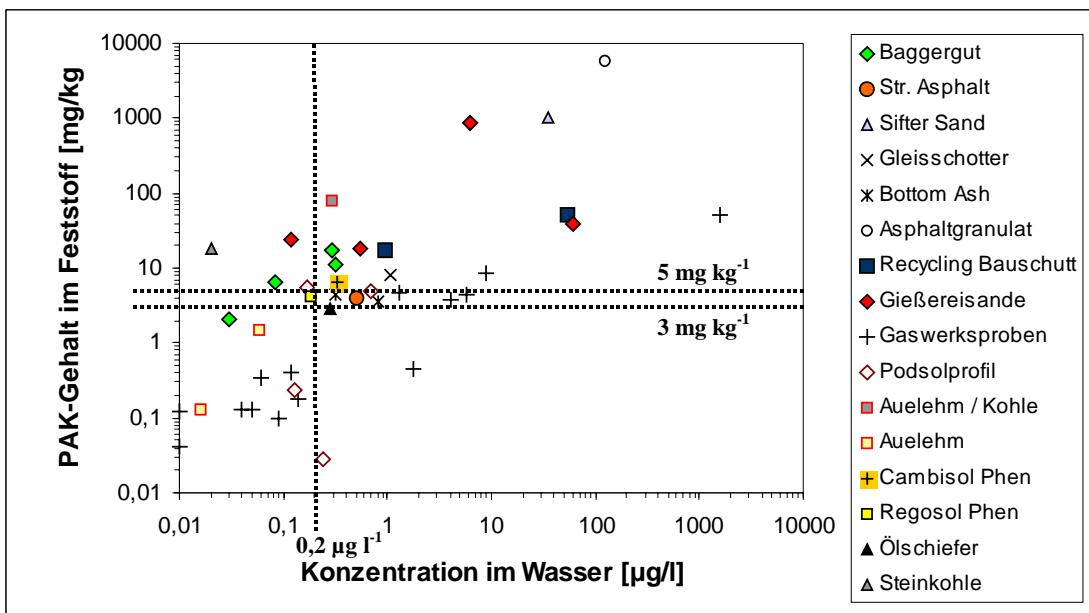


Abb. 2.1: Gegenüberstellung von Gehalten im Feststoff und Konzentrationen im wässerigen Eluat (Säulenversuche)

2.2 Methodische Zusammenhänge verschiedener Verfahren zur Bestimmung der Stoff-Konzentrationen im wässerigen Eluat

Ziel jedes Elutionstests ist es, die Schadstoff-Konzentration abzuschätzen, die im Wasser zu erwarten ist, das in Kontakt mit dem zu prüfenden Feststoff kommt. Entscheidend ist dabei die Kontaktzeit des Wassers mit den jeweiligen Material und die Geschwindigkeit des Stoffübergangs. Bei ausreichend langer Kontaktzeit stellt sich ein Gleichgewicht zwischen dem Gehalt im Feststoff und der Konzentration im Wasser ein, d.h. es findet keine weitere Stoffübertragung zwischen Feststoff und Wasser mehr statt. Die Lage der Gleichgewichtskonzentration kann von weiteren Wasserinhaltsstoffen abhängen. Bei nichtionischen organischen Schadstoffen sind dies z.B. gelöste organische Substanzen und Kolloide, bei Schwermetallen kommen zusätzlich z.B. pH- und Redoxmilieu hinzu. In Schütteltests kann die Gleichgewichtskonzentration infolge Verdünnung mit zunehmendem Wasser-/Feststoffverhältnis abnehmen. Ansonsten stellt die Gleichgewichtskonzentration eine Maximalkonzentration ("worst case") dar, die aus Zeitgründen sowohl im Labortest als auch im Feld nicht immer erreicht wird.

Bei den gängigen Elutionstests lassen sich Säulenperkolationsverfahren und Schütteltests sowie bei langsamer diffusiver Schadstoff-Freisetzung (z.B. bei Immobilisierungskörpern) auch Trog- bzw. Tankverfahren unterscheiden. Bei diesen Verfahren werden unterschiedliche Volumina Wasser mit dem zu untersuchenden Feststoff über unterschiedliche Zeiträume in Kontakt gebracht. Unter Berücksichtigung der relevanten Stoffübergangsprozesse können die Ergebnisse der unterschiedlichen Tests im Prinzip aufeinander übertragen werden. Dies ist bei Gleichgewichtsbedingungen relativ einfach möglich - wird dagegen im Test kein Gleichgewicht erreicht, dann muss die Kinetik des Stoffübergangs bekannt sein. Bei Schütteltests wird meistens à priori eine Gleichgewichtseinstellung angenommen (in der Regel ohne dies explizit zu prüfen), während Trogverfahren von vorneherein (z.B. durch mehrfachen Austausch des Wassers) auf Ungleichgewicht ausgelegt sind. In Säulenversuchen kann je nach Fließgeschwindigkeit, Korngröße und Schadstoff-Freisetzungsrate beides auftreten - anfangs Gleichgewicht und später Ungleichgewicht (d.h., dass die Randbedingungen im Säulenversuch nach einer gewissen Zeit denen des Trogversuchs entsprechen). Säulenversuche sind nach der BBodschV (1999) für die Elution organischer Schadstoffe in der Sickerwasserprognose vorgesehen (zur Durchführung siehe Grathwohl und Susset, 2001). Im Folgenden wird anhand einiger Modellrechnungen vorgestellt, wie sich unterschiedliche Verfahrensweisen bzw. Randbedingungen auf die in Elutionstests bestimmten Schadstoffkonzentrationen im Wasser auswirken. Es ist zu beachten, dass die unterschiedlichen Randbedingungen (wie z.B. Wasser-/Feststoffverhältnisse) sich nicht nur auf die Konzentrationen der Zielsubstanz sondern auf den gesamten Wasserchemismus auswirken was wiederum die Schadstoffkonzentrationen beeinflussen kann. Theoretische Grundlagen zum Stoffübergang finden sich in Grathwohl (1998) und z.T. in Förstner und Grathwohl (2002). Beispiele zur Elution verschiedener Schadstoffe aus Bodenmaterialien finden sich in Weiß et al. (1997), Grathwohl (2000) und Grathwohl et al. (2003).

Gleichgewichtstests: Einfluss unterschiedlicher Wasser/Feststoff-Verhältnisse

In der Praxis werden wegen der einfacheren Auswertung und Übertragbarkeit auf Feldbedingungen oft Elutionstests bevorzugt, die das Gleichgewicht erreichen. Diese Tests stimmen mit der im Feld zu erwartenden Konzentration nur überein, wenn auch dort das Gleichgewicht erreicht wird und wenn es zu keinen verdünnungsbedingten Minderbefunden

z.B. bei hohen Wasser/Feststoff-Verhältnissen im Schütteltest kommt. Die Lage des Gleichgewichts ist durch den Verteilungskoeffizienten K_d definiert:

$$K_d = \frac{C_s}{C_w} = \frac{(X_{tot} - X_w)V_w}{X_w m_d} = \frac{X_s V_w}{X_w m_d} \quad (2-1)$$

C_s und C_w bezeichnen den Schadstoffgehalt im Feststoff ("sorbiert") bzw. die Stoffkonzentration im Wasser unter Gleichgewichtsbedingungen. X_{tot} , X_s , X_w , V_w und m_d stehen für die initiale und nach Gleichgewichtseinstellung sorbierte Schadstoffmasse im Feststoff, die Schadstoffmasse, die sich nach Gleichgewichtseinstellung noch im Wasser befindet, das Volumen des Wasser bzw. die Trockenmasse des Feststoffs. Abb. 2.2 zeigt ein Schema zur Verteilung von Schadstoffen im 2-Phasensystem Feststoff/Wasser. Für die Gleichgewichtskonzentration im Wasser gilt:

$$C_w = \frac{C_{s,o}}{\left(K_d + \frac{V_w}{m_d} \right)} \quad (2-2)$$

wobei $C_{s,o}$ den initialen Schadstoffgehalt [mg kg^{-1}] im Feststoff bezeichnet. Der Einfluss eines zunehmenden Wasser-/Feststoff-Verhältnisses ("Liquid/Solid": $LS = V_w / m_d$) auf die Konzentration im Wasser ist in Abbildung 2.3 gezeigt. Wie aus Gl. 2-2 einfach abzuleiten ist, führen hohe Wasser-/Feststoff-Verhältnisse bei gleichzeitig niedrigen K_d -Werten ($K_d \ll V_w/m_d$) zu einer Verdünnung, die mit zunehmendem Wassergehalt linear zunimmt. Im Feld treten generell niedrigere Wasser-/Feststoff-Verhältnisse als im Labor auf und in solchen Fällen würden Labor-Schütteltests mit hohen LS -Verhältnissen zu Minderbefunden führen. Ab wann der Verdünnungseffekt auftritt, hängt entscheidend vom K_d -Wert ab - bei Werten über 100 spielt er selbst bei $LS = 10$ keine große Rolle mehr. Zur Abschätzung der K_d -Werte siehe Kapitel 3.

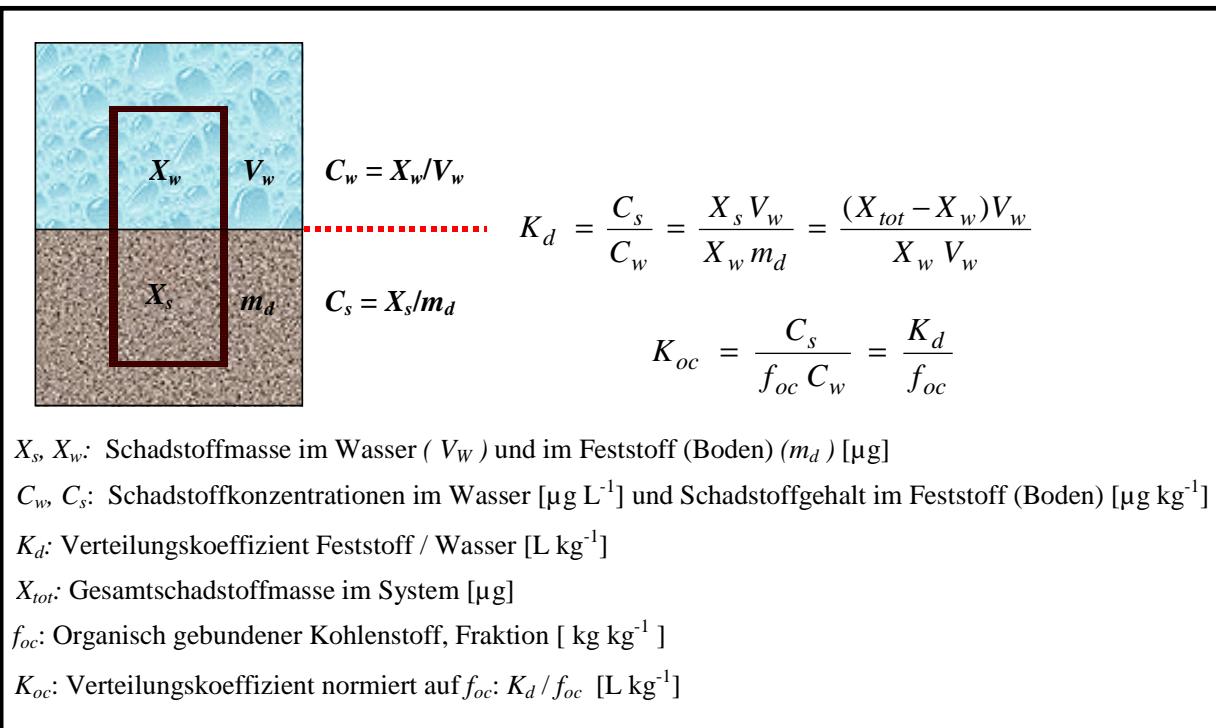


Abb. 2.2: Verteilung von Schadstoffen im 2-Phasensystem Wasser/Feststoff

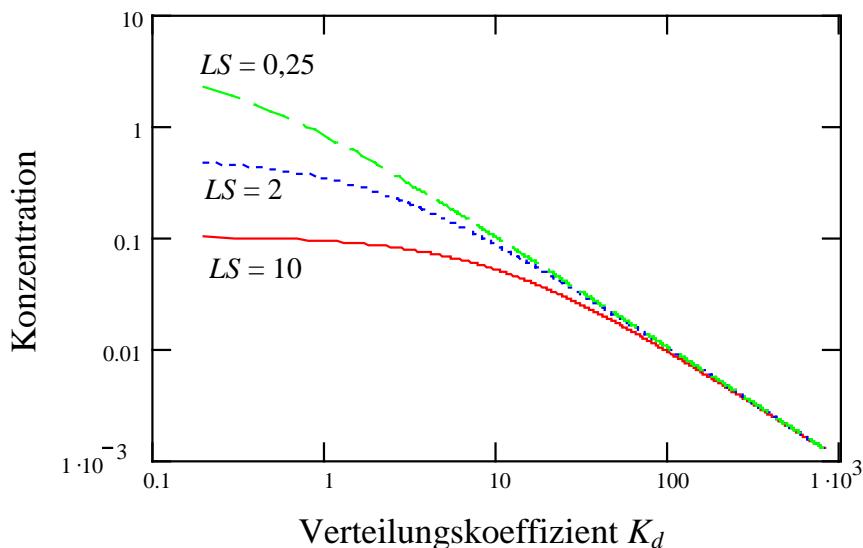


Abb. 2.3: Abnahme der Konzentration im Wasser bei zunehmendem Verteilungskoeffizienten K_d bei unterschiedlichen Wasser-/Feststoff-Verhältnissen (LS) im Schütteltest. Die geringste Verdünnung bzw. gleiche Konzentrationen unabhängig von LS ergeben sich bei $K_d > 100$ (invers lineare Abhängigkeit der Konzentration von K_d). Die höchsten Konzentrationen im Wasser treten bei kleinen LS -Verhältnissen ($LS = 0,25$ entspricht in etwa Säulenversuchs- bzw. Feldbedingungen) und niedrigen K_d -Werten auf.

Zeit zum Erreichen des Gleichgewichts: Freisetzungs(Desorptions-)kinetik

In vielen Fällen wird die Schadstoff-Freisetzung von der Diffusion im porösen Material (z.B. Beton-, Gesteinsfragmente, Immobilisierungskörper etc.) bestimmt ("Porendiffusion"). Die Zeit zum Erreichen von Gleichgewichtsbedingungen nimmt dann mit dem Quadrat der Korngröße und mit zunehmendem LS -Verhältnis zu. Abb. 2.4 zeigt die Unterschiede in der Zeit bis 30% der Gleichgewichtskonzentration in Abhängigkeit von LS und K_d erreicht sind. Bei großen Wasservolumina im Verhältnis zum Feststoff muss zur Gleichgewichtseinstellung relativ viel Schadstoff aus dem Material heraus diffundieren. Mit zunehmendem K_d dauert die Gleichgewichtseinstellung zunächst länger (wegen der Retardation der Porendiffusion), erreicht dann ein Maximum und verläuft danach wieder rascher, weil der Feststoff bei höherem K_d ein größeres Schadstoffreservoir vorhält und damit relativ wenig Schadstoffmasse vom Feststoff ins Wasser diffundieren muss. D.h., dass Nicht-Gleichgewichtsbedingungen, die zu Minderbefunden führen könnten, eher bei hohen Wasser/Feststoff-Verhältnissen auftreten.

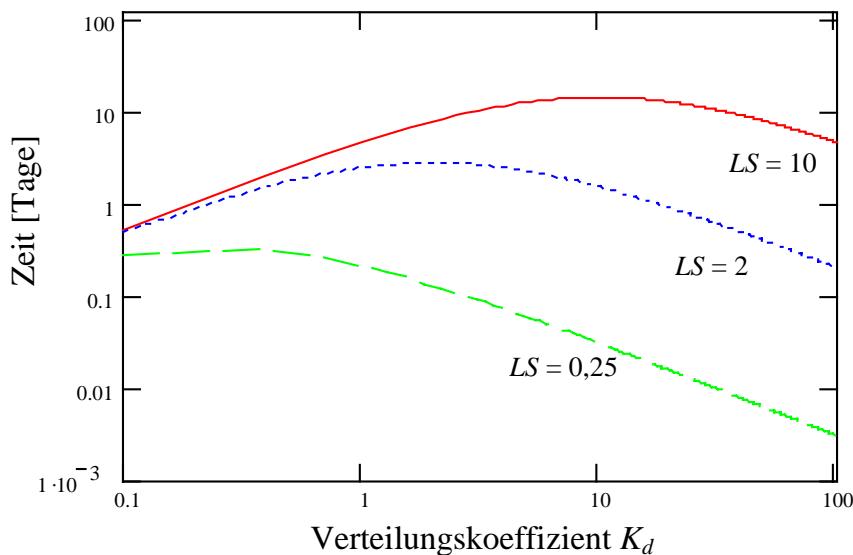


Abb. 2.4: Beispiel für den Einfluss des Wasser-/Feststoff-Verhältnisses (LS) und K_d auf die für die Gleichgewichtseinstellung benötigte Zeit (Tage bis 30% der Gleichgewichtskonzentration erreicht sind). Bei hohen LS -Verhältnissen dauert die Gleichgewichtseinstellung länger, weil verhältnismäßig viel Schadstoff vom Feststoff ins Wasser diffundieren muss bis die Gleichgewichtskonzentration erreicht wird. $LS = 0,25$ entspricht in etwa den Säulenversuchsbedingungen, $LS = 10$ dem 1:10 Schütteltest.

Einfluss von gelöster organischer Substanz und suspendierten Partikeln auf die Gleichgewichtskonzentration

Gelöste organische Substanz sowie suspendierte Partikel können das Verteilungsgleichgewicht in Richtung der wässrigen Phase verschieben und so die Schadstoff-Konzentration im Wasser erhöhen. Die relative Erhöhung der Konzentration im Wasser lässt sich unter Gleichgewichtsbedingungen (d.h. die Konzentration im Wasser steht im Gleichgewicht mit der Schadstoffkonzentration auf den Partikeln/DOC) mit folgendem Faktor berechnen:

$$\frac{C_{w,DOC}}{C_w} = 1 + K_{DOC} f_{DOC} \quad (2-3)$$

$C_{w,DOC}$, K_{DOC} und f_{DOC} bezeichnen den Schadstoffgehalt im Wasser bei Anwesenheit von DOC, den auf organischen Kohlenstoff normierten Verteilungskoeffizienten (in 1 kg^{-1}) zwischen DOC-assoziiertem Stoff und dessen Lösung im Wasser bzw. die Fraktion an organischem Kohlenstoff im Wasser in kg kg^{-1} (der Einfachheit halber beschränkt sich Gleichung 2-3 auf gelösten organischen Kohlenstoff - sie gilt analog aber auch für kolloidale bzw. suspendierte Partikel oder Tenside). Nach Gleichung 2-3, ist ein signifikanter Effekt erst zu erwarten, wenn das Produkt $K_{DOC} f_{DOC}$ deutlich größer als 0,2 wird (z.B. Faktor 2 bei $K_{DOC} f_{DOC} = 1$). Die in Abb. 2.5 gezeigte Modellrechnung verdeutlicht, dass vor allem geringlösliche, gut sorbierende Schadstoffe betroffen sind (hoher K_{DOC}) was durch die in Abb. 2.6 gezeigten Daten zur Elution von PCB zusätzlich bestätigt wird (siehe auch Abb. 2.8).

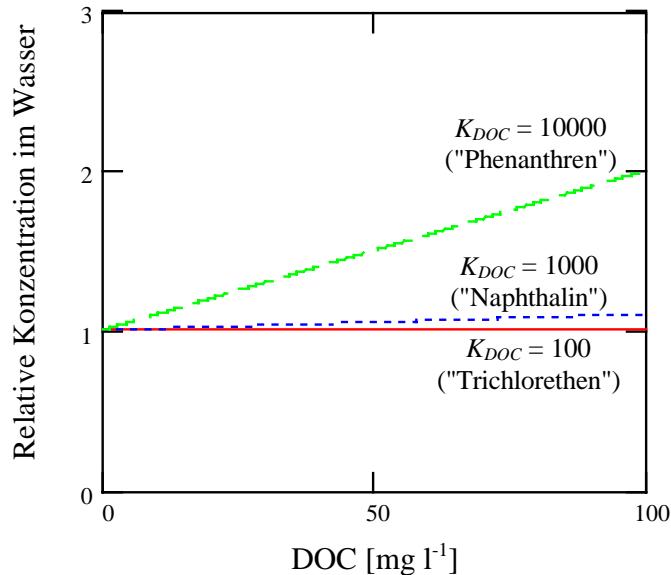


Abb. 2.5: Einfluss des Gehalts an gelöster organischer Substanz (DOC) auf die Eluat-Konzentration organischer Schadstoffe mit unterschiedlicher Sorptionsneigung nach Gleichung 2-3. Nur bei geringlöslichen Verbindungen mit $K_{DOC} > 10000$ tritt bis zu DOG-Gehalten ein signifikanter Effekt auf. Die in Klammer aufgeführten organischen Verbindungen entsprechen nur großensetzungsmäßig den für die Berechnung verwendeten K_{DOC} s.

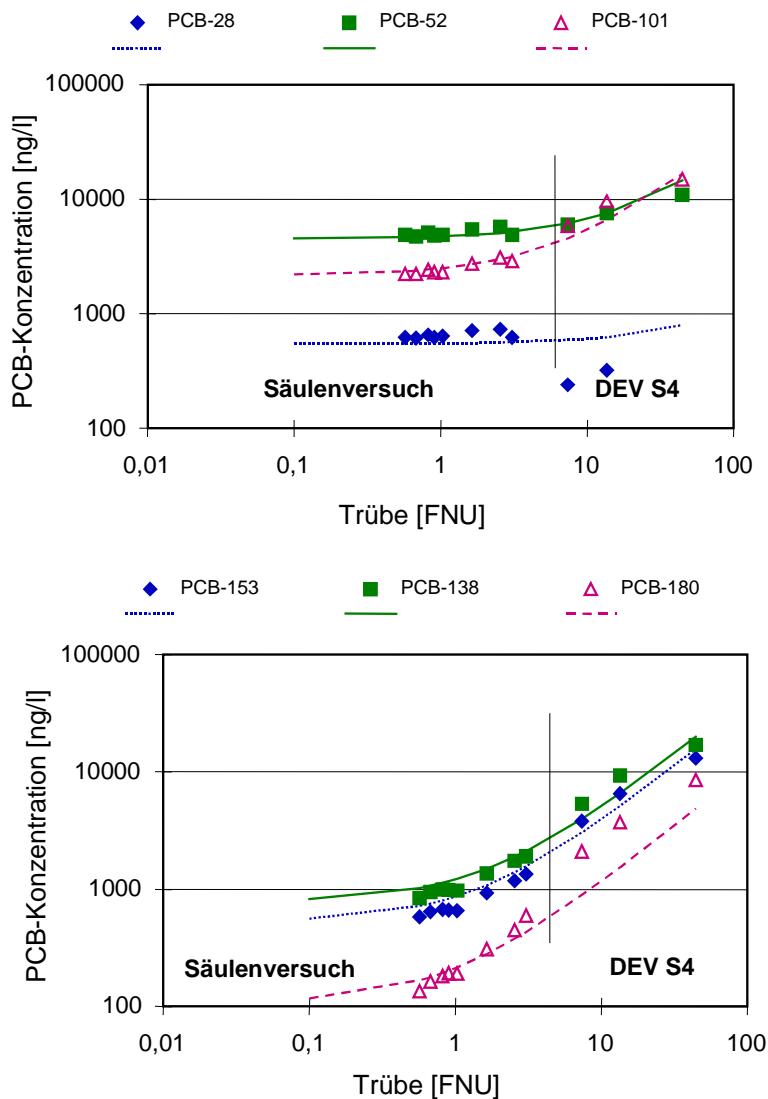


Abb. 2.6: Einfluss der Trübung auf PCB-Konzentrationen in Eluaten aus Säulenversuchen und Schütteltests (DEV-S4, zentrifugiert); Daten aus Eberhardt und Grathwohl (1997); Linien wurden analog zu Gleichung 2-3 berechnet. Die Wasserlöslichkeit nimmt in der Reihenfolge PCB 180, 153, 138, 101, 52, 28 ab (die Sorption nimmt umgekehrt dazu zu).

Vergleichbarkeit verschiedener Elutionsverfahren

Im Prinzip können Ergebnisse aus verschiedenen Elutionsverfahren ineinander überführt werden, vorausgesetzt, dass die für die Schadstoff-Freisetzung verantwortlichen Prozesse bekannt sind und die entsprechenden Parameter quantitativ berücksichtigt werden können. Während eine Verdünnung noch relativ einfach berücksichtigt werden kann (Abb. 2.3, Gleichung 2-2), sind Artefakte, die auf mangelnde Gleichgewichtseinstellung (= Minder-

befunde im Wasser) oder suspendierte Partikel/Kolloide (= Höherbefunde im Wasser) zurückgehen, nur schwer den einzelnen Prozessen zuzuordnen und die zur Quantifizierung notwendigen Parameter sind meist nicht bekannt. Abb. 2.7 zeigt einen Vergleich zwischen PAK-Konzentrationen im Wasser aus Säulenversuchen (DIN V 19736) und Schütteltests (DEV S-4) mit zentrifugiertem Eluat. Bei sehr hohen Konzentrationen (Teeröl in Phase) stimmen zumindest einige Messwerte noch relativ gut miteinander überein, während bei Proben mit niedrigen Schadstoffgehalten die Konzentrationen im Schütteltest deutlich über den Konzentrationen im Säuleneluat liegen.

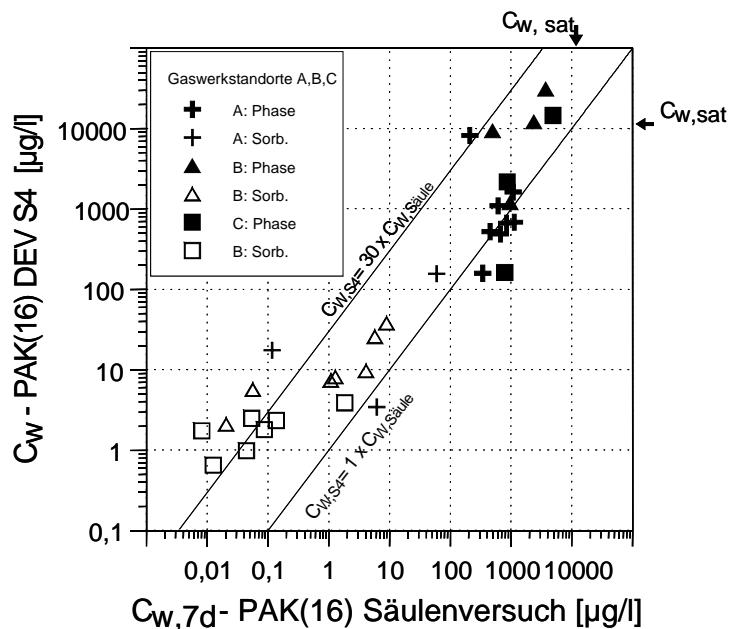


Abb. 2.7: Vergleich von Konzentrationen in Eluaten aus Säulenversuchen und Schütteltests (DEV-S4); PAK(16)-Konzentrationen im Eluat von DEV S4- und Säulenversuch (Fließgeschwindigkeit 1 m d⁻¹, ca. 0,5 kg Probe). Proben von drei Gaswerkstandorten; ausgefüllte und offene Symbole kennzeichnen Bodenmaterial mit residualer Phase und sorbierten PAK (Weiß et al., 1997).

Abb. 2.8 zeigt am Beispiel einer PCB-kontaminierten Probe, dass insbesondere zentrifugierte Eluate Höherbefunde im Vergleich zum Säuleneluat liefern können, während filtrierte Wasserproben eher zu deutlichen Minderbefunde neigen. Auf sorptionsbedingte Minderbefunde beim Filtrieren haben bereits Herbert et al. (1992) hingewiesen. Als Fazit kann festgehalten werden, dass sich die verschiedenen Elutionsverfahren vor allem hinsichtlich der möglicherweise auftretenden Artefakte unterscheiden, wobei der Säulenversuch natürlichen Bedingungen am nächsten kommt. DOC, Trübe- und Salzgehalte im Eluat hängen entscheiden vom Wasser-/Feststoffverhältnis ab und können deshalb je nach Versuchsanordnung und Schadstoff das Ergebnis beeinflussen. Unterschiedliche Elutionstests

liefern vergleichbare Ergebnisse, wenn diese versuchsabhängigen Einflussgrößen erkannt und quantifiziert werden können.

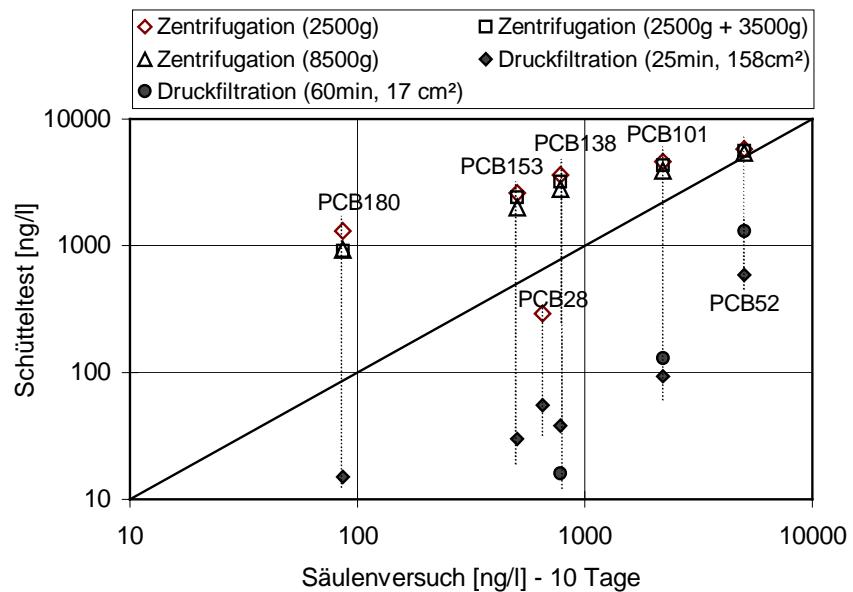


Abb. 2.8: Höher- und Minderbefunde im zentrifugierten bzw. filtrierten Eluat (DEV-S4 Schütteltest) im Vergleich zur Konzentration von PCB in Eluaten aus Säulenversuchen; Höherbefunde gehen auf suspendierte Partikel/Kolloide nach Zentrifugation und Minderbefunde auf Sorption der PCB im Filtermaterial zurück. Betroffen sind jeweils die gering löslichen aber gut sorbierbaren PCB (Ballschmiter PCB: 180, 153, 138) während beim relativ gut löslichen PCB52 eine sehr gute Übereinstimmung zwischen zentrifugiertem DEV-S4 Eluat und Säuleneluat zu beobachten ist.

3. Berechnung der Konzentrationen im Wasser für die drei angeführten Fälle bzw. Gehalte unter Berücksichtigung typischer Konzentrationsmuster von PAK im Feststoff

Im folgenden werden Beispielberechnungen für die Konzentration von PAK im Wasser bei einem Gehalt im Feststoff von 5 mg kg^{-1} vorgestellt. Den Berechnungen liegen typische PAK-Verteilungsmuster zugrunde, die, wie z.B. in Abb. 3.1 gezeigt, relativ ähnlich sind. Verwendet wurde das in Böden festgestellte Verteilungsmuster, das wie Abb. 3.1 zeigt, auch mit der atmosphärischen Deposition und Bauschutt relativ gut übereinstimmt. Kap. 3.1 stellt die in der Literatur aufgeführten linearen empirischen Korrelationen vor. In Kap. 3.2 werden auch nichtlineare Sorptionsisothermen berücksichtigt. In Kap. 3.3 werden die für PAK abgeleiteten Ergebnisse auf weitere organische Schadstoffgruppen übertragen. Ungleich-Gewichtsbedingungen werden in Kapitel 4 betrachtet. Kapitel 5 bringt zusätzliche Beispiele, die auf gemessenen Sorptionsisothermen für Phenanthren beruhen.

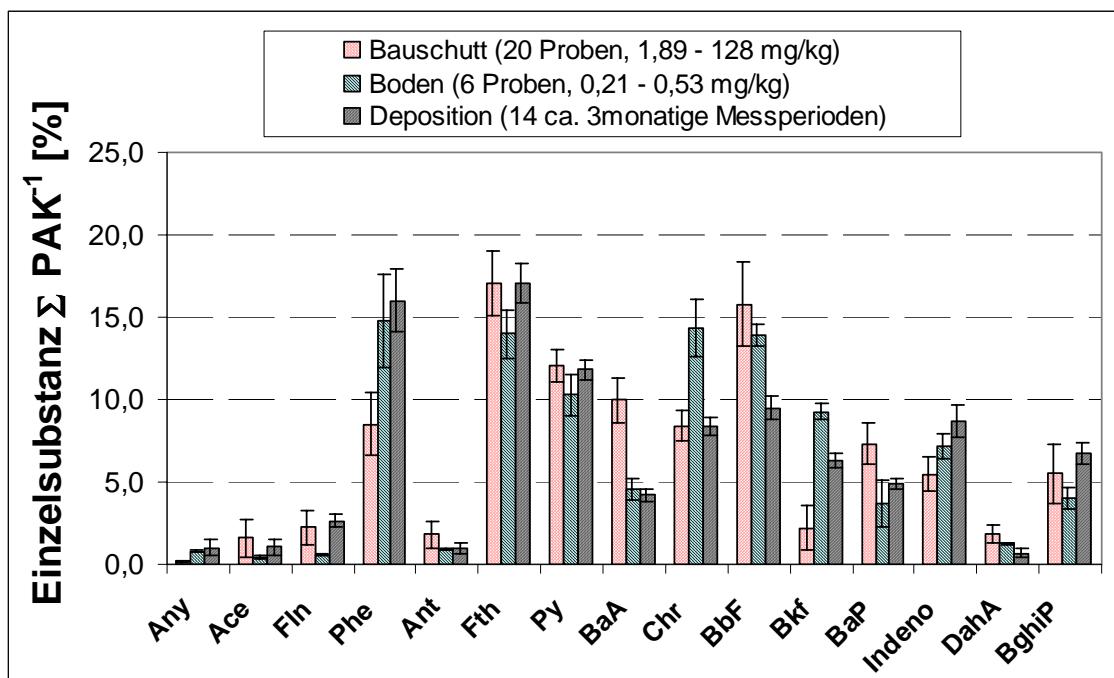


Abb. 3.1: Beispiel für die prozentuale Verteilung von PAK (Verteilungsmuster) in Bauschutt (Daten aus Rother und Friese, 2001), Boden (Beispiele aus dem Schwarzwald und dem Schönbuch, Baden-Württemberg) und der atmosphärischen Deposition (ebenfalls Baden-Württemberg).

3.1 Berechnung der Gleichgewichtskonzentration im Wasser bei linearer Sorption unter Verwendung empirische Korrelationen aus der Literatur

In den letzten 2 Jahrzehnten wurde eine Vielzahl von empirischen Korrelationen zur Abschätzung des auf organischen Kohlenstoff normierten Sorptionskoeffizienten entwickelt. Abb. 3.2 zeigt eine umfassende Übersicht. Insbesondere die neueren Korrelationen, die auf einer kritischen Auswertung von Literaturdaten bzw. neuen Messungen beruhen, stimmen relativ gut miteinander überein. Die u.a. für PAK entwickelten Korrelationen zwischen K_{oc} und $\log K_{ow}$ (Oktanol/Wasser-Verteilungskoeffizient) von Karickhoff et al. (1979), Seth et al. (2000) und Xia (1998) liegen insbesondere im für die PAK relevanten Bereich von $\log K_{ow}$ 4 - 7 sehr nahe zusammen. Die ausgeprägt nichtlinearen Beziehungen zwischen K_{oc} und S beruhen auf Datensätzen, die z.T. auf die Löslichkeit der festen Substanzen oder mangelnde Gleichgewichtseinstellung zurückgehen, während in neueren, eher linearen Beziehung die Löslichkeit der unterkühlten Flüssigkeit als Referenzzustand und längere Versuchzeiten verwendet werden. Tabelle 3.1 listet einige der wichtigsten bzw. bekanntesten Korrelationen auf. Für die hier vorgestellten vergleichenden Berechnungen von Gleichgewichtskonzentrationen im Wasser (bei gegebenen Gehalten im Feststoff, z.B. 5 mg kg^{-1}) wurden besonders gut belegte (z.B. durch kritische Bewertung von Literaturdaten oder neue präzise Messungen) und bewährte Korrelationen ausgewählt (in Tabelle 3.1 fettgedruckt, in Abb. 3.2 grau unterlegt; siehe auch Allen-King et al., 2002).

Tabelle 3.2 zeigt die Gleichgewichtskonzentrationen im Wasser, die nach verschiedenen empirischen Korrelationen für einen Feststoffgehalt von 5 mg kg^{-1} und einen Humusgehalt von 8% ($f_{oc} = 0,04$) berechnet wurden. Für das Verteilungsmuster in den Böden wurde die Konzentration der einzelnen PAK aufgelistet. Für die Verteilungsmuster der anderen Materialien ist nur die Summe der zu erwartenden Konzentrationen aufgeführt (die verwendeten Verteilungsmuster finden sich in Anhang I). Die PAK-Konzentrationen im Wasser liegen selbst für diesen günstigen Fall hoher f_{oc} -Gehalte ("best case"), unabhängig von den PAK-Verteilungsmustern in den betrachteten Materialien, deutlich über den Geringfügigkeitsschwellenwerten (bei rund $2 \mu\text{g l}^{-1}$). Die Überschreitungen würden auch bei einem Gehalt im Feststoff von 3 mg kg^{-1} noch auftreten (ca. $1,2 \mu\text{g l}^{-1}$); bei niedrigeren Humusgehalten (< 8%) würde sich die im Wasser zu erwartende Konzentration proportional erhöhen (z.B.: ca. $20 \mu\text{g l}^{-1}$ bei 0,8% Humusgehalt und 5 mg kg^{-1}).

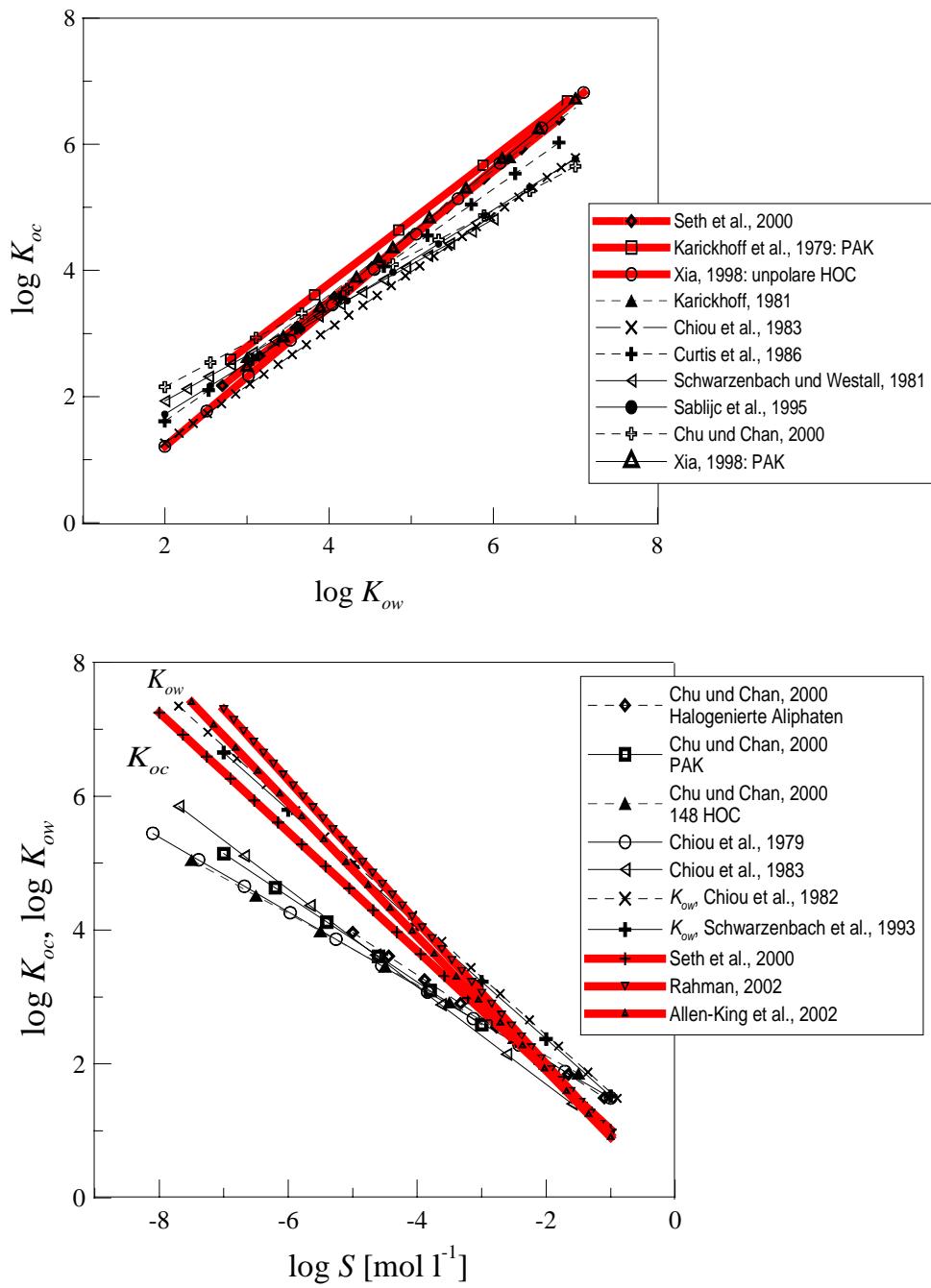


Abb. 3.2: Übersicht zu empirischen Korrelationen zur Abschätzung des auf organischen Kohlenstoff normierten Verteilungskoeffizienten K_{oc} (die hier verwendeten Korrelationen sind grau unterlegt); in Anlehnung an Allen-King et al. (2002).

Tab. 3.1: Konstanten a und b zur Berechnung von K_{oc} mittels K_{ow} oder S (in mol L⁻¹ falls nicht anders angegeben; die hier verwendeten Korrelationen sind fett unterlegt).

a	b	r ²	n	Verbindungen	Quelle
$\log K_{oc} = a \log K_{ow} - b$					
0,99 – 1,08	0,81 – 0,41			PAK, PCB, Pestizide	
1,03	0,61	0,98	117		Seth et al., 2000
1,00	0,21			PAK	Karickhoff et al., 1979
1,06	0,72	0,962	37	PAK Böden mit hohem f_{oc}	Xia, 1998
0,699	- 0,755	0,692	148	Div. org. Verbindungen	Chu u. Chan, 2000
$\log K_{oc} = -a \log S + b$					
0,634	0,794	0,865		Halogenierte Aliphaten	Chu u. Chan, 2000
0,639	0,669	0,856		PAK	Chu u. Chan, 2000
0,532	1,056	0,692	148	Div. org. Verbindungen	Chu u. Chan, 2000
0,557	0,698	0,988	15	PCBs, halogenierte Alkane, DDT, Lindan	Chiou et al., 1979 $K_{oc} = 1,72 K_{om}$
0,729	0,001	0,996	12	Benzen, Chlorbenzen, PCB	Chiou et al., 1983 $K_{oc} = 1,72 K_{om}$
0,85 – 0,93 (0,89)	-0,107 – 0,36 (0,127)			Vergleich von Literaturdaten (Mittelwerte)	Seth et al., 2000
1,06 1,06*	-0,119 5,4*			TCE, Carbofuran, Phenanthren, Chlorbenzen	Rahman, 2002 bzw. Grathwohl u. Rahman, 2002
1*	5,2*			(siehe Abb. 3.4)	Allen-King et al., 2002

* S im mg l⁻¹; r²: Korrelationskoeffizienten; n: Zahl der betrachteten Stoffe

Tab. 3.2: Prozentuale Verteilung der PAK in Böden (siehe Abb. 3.1) und daraus nach verschiedenen empirischen Korrelationen (siehe Tab. 3.1 bzw. Abb. 3.2) berechnete Gleichgewichtskonzentrationen im Wasser (Summen: **fett**) bei einem Gehalt im Feststoff von 5 mg kg⁻¹ und einem Humusgehalt von 8% ($f_{oc} = 0,04$). Bei niedrigeren Schadstoffgehalten im Feststoff reduziert sich die Konzentration im Wasser entsprechend (bzw. umgekehrt bei niedrigeren Humusgehalten). Anhang I zeigt die PAK-Verteilungsmuster von Bauschutt, Gleisschotter, Baggergut etc..

		Karickhoff et al., 1979	Seth et al., 1999	Xia, 1998	Allen-King et al., 2002	Rahman, 2002 (aus S mol/L)	Rahman, 2002 (aus S mg/l)
Oberböden [%]	PAK 16-1 [%]	$C_w \mu\text{g l}^{-1}$	$C_w \mu\text{g l}^{-1}$				
Any	0,78	0,13459	0,25521	0,24820	0,59282	0,313219	0,22671
Ace	0,41	0,03888	0,07241	0,06917	0,12225	0,058297	0,03965
Fln	0,54	0,07233	0,13611	0,13137	0,14988	0,076359	0,05191
Phe	13,86	0,97426	1,79835	1,70245	1,80625	0,898734	0,58309
Ant	0,91	0,06546	0,12091	0,11454	0,09410	0,0455	0,02906
Fth	14,38	0,13635	0,23701	0,21129	0,49281	0,235922	0,14095
Py	10,63	0,10314	0,17941	0,16005	0,45561	0,224227	0,13600
BaA	4,74	0,02359	0,04022	0,03516	0,02885	0,012591	0,00674
Chr	13,79	0,06862	0,11700	0,10230	0,10771	0,04848	0,02641
BbF	13,73	0,00749	0,01195	0,00978	0,01138	0,00429	0,00202
BkF	9,15	0,00268	0,00420	0,00337	0,00409	0,00143	0,00065
BaP	4,14	0,00765	0,01267	0,01075	0,01113	0,004852	0,00247
Indeno	7,31	0,01588	0,02641	0,02252	0,15376	0,095373	0,05620
DahA	1,34	0,00006	0,00009	0,00007	0,00292	0,001361	0,00069
BghiP	4,26	0,00051	0,00078	0,00061	0,00252	0,000998	0,00046
Summe% / $\mu\text{g/l}$	100,0	1,65	3,01	2,82	4,04	2,02	1,30
$K_{d,eff}$		3027,57	1659,63	1772,03	1238,82	2473,25	3837,25
$\log K_{oc,eff}$		4,88	4,62	4,65	4,49	4,79	4,98
*Bauschutt $\mu\text{g/l}$		1,46	2,64	2,44	3,76	1,85	1,16
$K_{d,eff}$		3422,71	1895,86	2045,19	1329,66	2705,96	4316,93
$\log K_{oc,eff}$		4,93	4,68	4,71	4,52	4,83	5,03
*Gleisschotter $\mu\text{g/l}$		1,79	3,26	3,06	4,38	2,18	1,41
$K_{d,eff}$		2796,67	1532,87	1636,47	1142,50	2290,31	3551,81
$\log K_{oc,eff}$		4,84	4,58	4,61	4,46	4,76	4,95
*Sifter Sand $\mu\text{g/l}$		2,63	4,82	4,53	5,83	2,87	1,84
$K_{d,eff}$		1900,68	1037,32	1103,12	858,28	1740,32	2713,35
$\log K_{oc,eff}$		4,68	4,41	4,44	4,33	4,64	4,83
*Hamburger Hafenschlick $\mu\text{g/l}$		2,18	4,00	3,76	5,17	2,56	1,65
$K_{d,eff}$		2289,00	1250,79	1331,43	966,90	1954,73	3034,03
$\log K_{oc,eff}$		4,76	4,50	4,52	4,38	4,69	4,88
*Baggergut $\mu\text{g/l}$		2,21	4,02	3,76	5,06	2,49	1,57
$K_{d,eff}$		2264,57	1243,65	1330,53	987,73	2010,97	3180,73
$\log K_{oc,eff}$		4,75	4,49	4,52	4,39	4,70	4,90

* Daten aus laufenden Arbeiten

3.2 Abschätzung der Gleichgewichtskonzentration im Wasser bei nichtlinearen Sorptionsisothermen

Nichtlineare Sorptionsisothermen werden meist auf eine heterogene Verteilung (z.B. log-normal oder Gauß) der Sorptionsenergien im Sorbenten zurückgeführt. In aller Regel wird eine relative Zunahme der Sorptionskapazität mit abnehmender Konzentration beobachtet (d.h. bei geringen Konzentrationen ist die Sorption höher). In neueren Arbeiten wird die Nichtlinearität darauf zurückgeführt, dass im Boden eine Vielzahl unterschiedlich sorbierender Partikel vorkommen können (heterogene Zusammensetzung des organischen Materials in Böden, Ligouis et al., 2003), deren Sorptionskapazitäten sich überlagern (Allen-King et al., 2002). Man unterscheidet im wesentlichen 2 verschiedene Typen an Sorbentien in Böden:

1. Natürliches organisches Material (Huminstoffe etc.), das durch eine lineare Sorptionsisotherme gekennzeichnet ist und Schadstoffe über einen Verteilungsprozess ("partitioning", Absorption) aufnimmt.
2. Thermisch verändertes organisches Material, welches eine Adsorption organischer Verbindungen analog zur Adsorption auf Aktivkohlen zulässt ("pore filling").

Abb. 3.3 demonstriert, wie die Nicht-Linearität z.B. einer Freundlich-Sorptionsisotherme durch den Beitrag eines Adsorptions- bzw. Porenfüllungsmechanismus, der vor allem bei niedrigen Konzentrationen wirksam ist, erklärt werden kann (Allen-King et al., 2002). Bei nicht-linearen Sorptionsisothermen treten im unteren Konzentrationsbereich viel höhere Gehalte im Feststoff auf als im linearen Fall (wie z.B. in Kap. 3.1. berechnet) bei gleicher Konzentration im Wasser zu erwarten wären (umgekehrt gilt, dass trotz hoher Gehalte im Feststoff dann nur relativ geringe Konzentrationen im Wasser auftreten).

Die Berechnung der Konzentrationen im Wasser aus den Gehalten im Feststoff kann über Freundlich-Sorptionsisothermen erfolgen, die wie in Abb. 3.3 gezeigt die Kombination verschiedener Sorptionsmechanismen über einen weiten Konzentrationsbereich gut abbilden können. Traditionell werden Freundlich-Sorptionsisothermen wie folgt definiert:

$$C_s = K_{Fr} C_w^{1/n} \quad (3-1)$$

Einheiten und numerischer Wert für K_{Fr} hängt von den für C_w bzw. C_s gewählten Einheiten ab. Bei C_s in mg kg^{-1} und C_w in mg l^{-1} hat K_{Fr} die Einheit $(\text{mg kg}^{-1}) (\text{l mg}^{-1})^{1/n}$. Dieses "Problem" verschwindet bei Verwendung der auf die Wasserlöslichkeit (S) normierten Konzentration:

$$C_s = K_{Fr}^* \left(\frac{C_w}{S} \right)^{1/n} \quad (3-2)$$

K_{Fr}^* bezeichnet hier den einheits-äquivalenten ("unit-equivalent") Freundlichparameter (Einheiten z.B. mg kg^{-1} , siehe Allen-King et al., 2002; Förstner u. Grathwohl, 2002; Kleineidam et al., 2002).

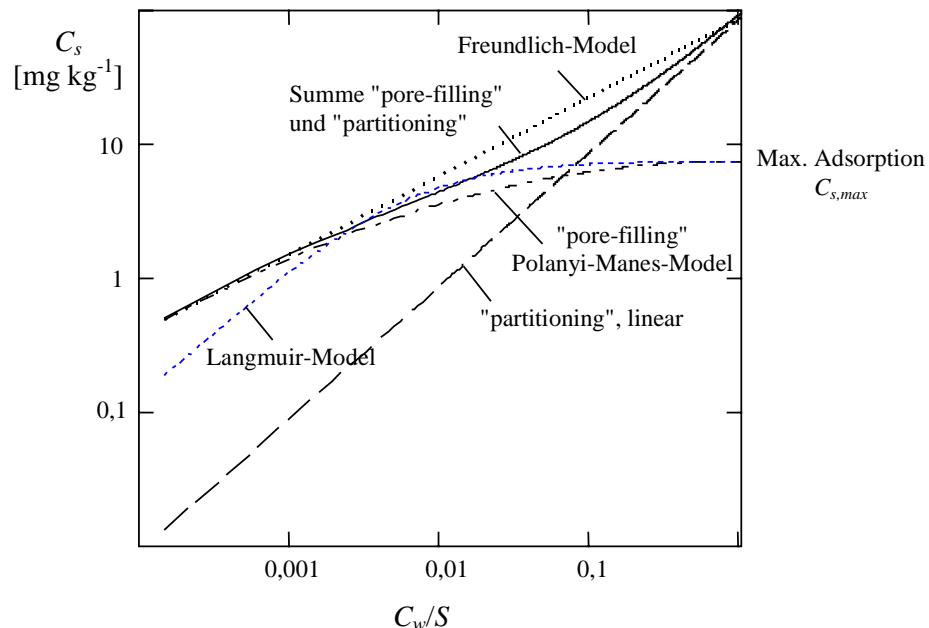


Abb. 3.3: Beispiel für die Kombination Adsorption (z.B. in Poren des organischen Materials = "pore-filling") und Verteilung ("partitioning"). Die maximale Kapazität des "Pore-Filling"-Mediums wird bereits bei einer Konzentration von ca. 10% der Wasserlöslichkeit der Verbindung erreicht ($C_w/S = 0,1$); das "Partitioning"-Medium dominiert nur bei sehr hohen Konzentrationen nahe der Wasserlöslichkeit bei $C_w/S \gg 0,1$; die Addition von beiden (durchgezogene Linie) wird relativ gut durch das Freundlich-Modell beschrieben (gepunktete Linie). Da beide Isothermen – "partitioning" und "pore-filling" – gegen die S -normierte Konzentration aufgetragen werden, ist zu erwarten, dass die kombinierte Sorptionsisotherme repräsentativ für eine ganze Gruppe ähnlicher Verbindungen ist (z.B. PAK, chlorierte Aliphaten/Aromaten etc., siehe Abb. 3.4). Für die Berechnung verwendete Parameter: $K_{oc} = 68$ (z.B. Trichlorethen, TCE); $f_{oc} = 0,001$; $K_d = 0,068$; maximale Adsorptionskapazität: $q_{max} = 7,3 \text{ mg kg}^{-1}$, 10% des "partitioning" f_{oc} 's steht für die Adsorption zur Verfügung ("pore filling"); (weitere Parameter: PDM-Exponent = 2; $E = 13 \text{ kJ mol}^{-1}$; Freundlich fit: $K_f^* = K_{oc} f_{oc} S = 86 \text{ mg kg}^{-1}$; $1/n = 0,6$).

Durch die Normierung auf die Wasserlöslichkeit ergibt sich im günstigsten Fall eine einheitliche Sorptionsisotherme, die für eine ganze Reihe ähnlicher organischer Verbindungen auch bei nichtlinearer Sorption gilt (z.B. PAK, PCB, BTEX, CKW; siehe Abb. 3.4). Abb. 3.4 zeigt auch, dass im nichtlinearen Fall im Bereich der Prüfwertkonzentrationen deutlich höhere Gehalte im Feststoff als im linearen Fall möglich wären.

Wenn man die sorbierte Schadstoffmasse auf den Gehalt an organisch gebundenem Kohlenstoff normiert, dann ergibt sich eine Sorptionsisotherme, die nicht nur für verschiedene Verbindungen sondern auch für die meisten Böden gilt, sofern letztere gleichartiges organisches Material enthalten. Nimmt man weiterhin an, dass bei Konzentrationen nahe der Wasserlöslichkeit, wie in Abb. 3.1 gezeigt, die Sorption durch einen Verteilungsprozess ("partitioning") dominiert wird (Allen-King et al., 2002), dann konvergieren dort die verschiedenen nichtlinearen Sorptionsisothermen und man erhält einen einheitlichen Wert für K_{Fr}^*/f_{oc} (bzw. $K_{oc} S$). Bei gegebener Konzentration im Wasser (z.B. $1 \mu\text{g l}^{-1}$) ist der Gehalt im Feststoff nur noch vom Freundlich-Exponenten $1/n$ und der Wasserlöslichkeit S der betrachteten Verbindung abhängig. Aus den Gleichungen 3-1 und 3-2 lässt sich folgende Beziehung zwischen C_s/f_{oc} , K_{Fr}^* und der Wasserlöslichkeit ableiten (siehe Abb. 3.5):

$$\frac{C_s}{f_{oc}} = \frac{K_{Fr}^*}{f_{oc}} \left(\frac{C_w}{S} \right)^{1/n} = \frac{K_{Fr}^* C_w^{1/n}}{f_{oc}} \frac{1}{S^{1/n}} \quad (3-3)$$

Bei einer gegebenen Konzentration von $C_w = 1$ (z.B. $\mu\text{g l}^{-1}$) ist, wie in Abb. 3.5, dargestellt eine invers-lineare Korrelation zwischen C_s/f_{oc} und $S^{1/n}$ zu erwarten. Abb. 3.5 zeigt weiterhin, dass K_{Fr}^*/f_{oc} (bzw. das Produkt $C_s/f_{oc} S^{1/n}$) auch bei nichtlinearer Sorption für eine Vielzahl verschiedenster organischer Verbindungen und Böden zumindest der Größenordnung nach gleich ist (vgl. auch die gute Übereinstimmung der in Abb. 3.5 gezeigten empirischen Korrelation im linearen Fall in Abb. 3.2).

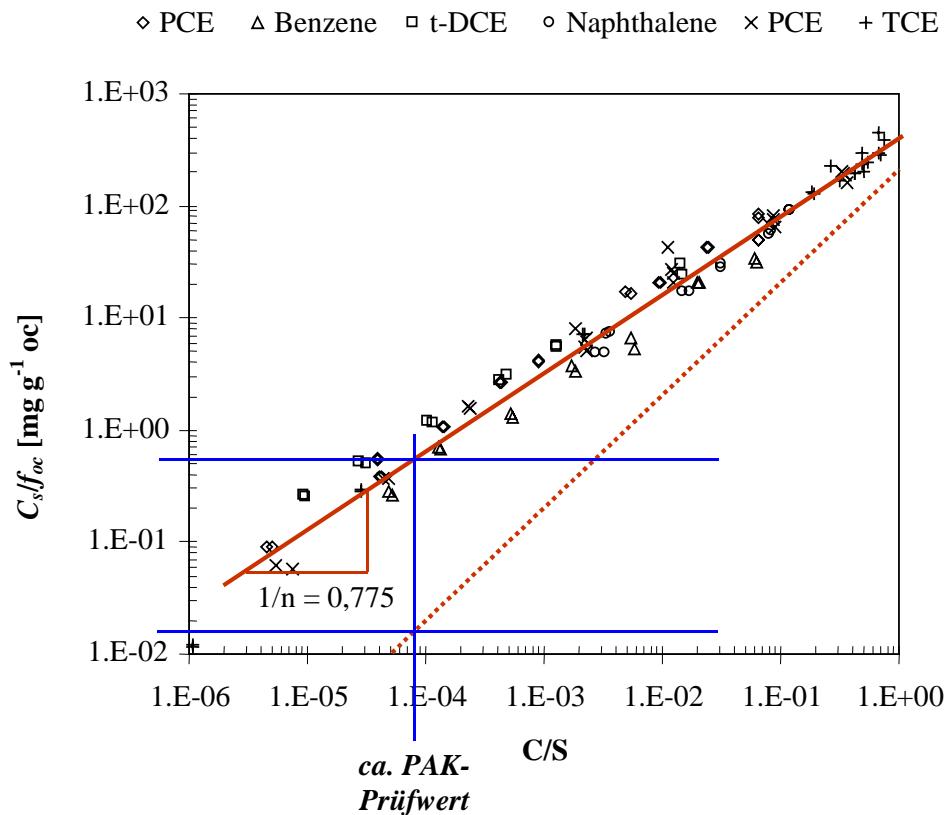


Abb. 3.4: Beispiel für einheitliche nichtlineare *S*-normierte Freundlich-Sorptionsisotherme für verschiedene organische Schadstoffe (aus Allen-King et al., 2002) in einem Schieferton; gestrichelte Linie: lineare Beziehung zwischen C_s und C_w nach Allen-King et al. (2002) mit einem Interzept von 160 g kg^{-1} . Im Bereich des PAK-Prüfwerts im Wasser liegt der zulässige PAK-Gehalt im Feststoff im nichtlinearen Fall um einen Faktor von ca. 30 über dem bei linearer Sorption zu erwartenden Wert (vgl. Kap. 3.1).

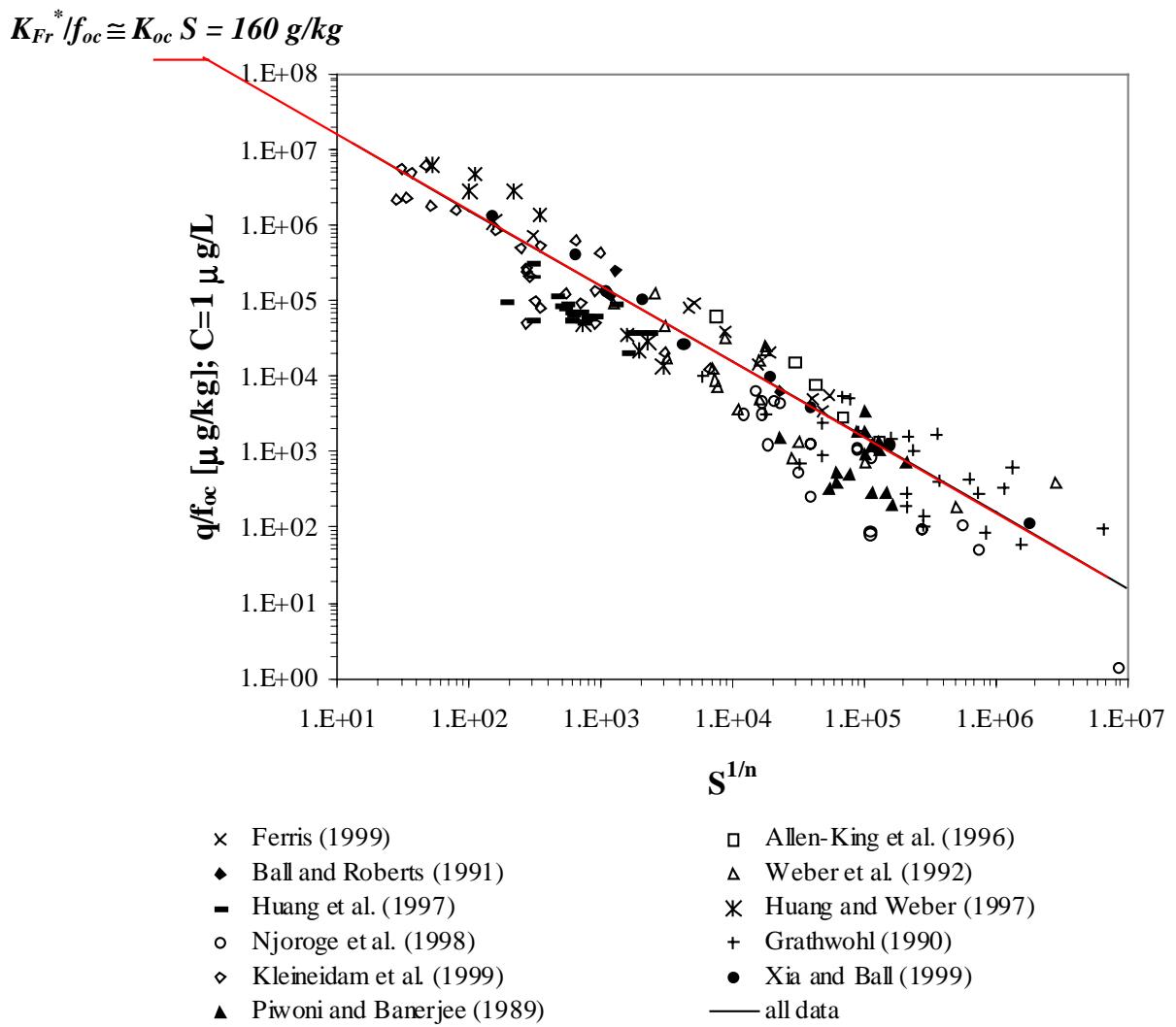


Abb. 3.5: Daten zur invers-linearen Beziehung zwischen dem auf f_{oc} -normierten Gehalt im Feststoff q/f_{oc} ($= C_s/f_{oc}$) und $S^{1/n}$. $q/f_{oc} S^{1/n} = C_s/f_{oc} S^{1/n} = K_{Fr}^*/f_{oc}$ (hier: 160 g kg^{-1}); aus Allen-King et al. (2002).

Abb. 3.6 zeigt, dass für den Datensatz, der bereits in Kap. 2.1 verwendet wurde (siehe Abb. 2.1), die Konzentrationen im unteren Konzentrationsbereich eher mit den nichtlinearen Sorptionsmodellen übereinstimmen (allerdings könnten die Minderbefunde im Wasser bei einigen Proben auch auf Nichtgleichgewichtsbedingungen zurückgehen). Für bestimmte Materialien (z.B. mit Kohleanteilen) wären damit deutlich höhere Gehalte (1 - 2 Größenordnungen) im Feststoff möglich als mit den linearen empirischen Korrelationen in Kap. 3.1 berechnet wurden (Tab. 3.1).

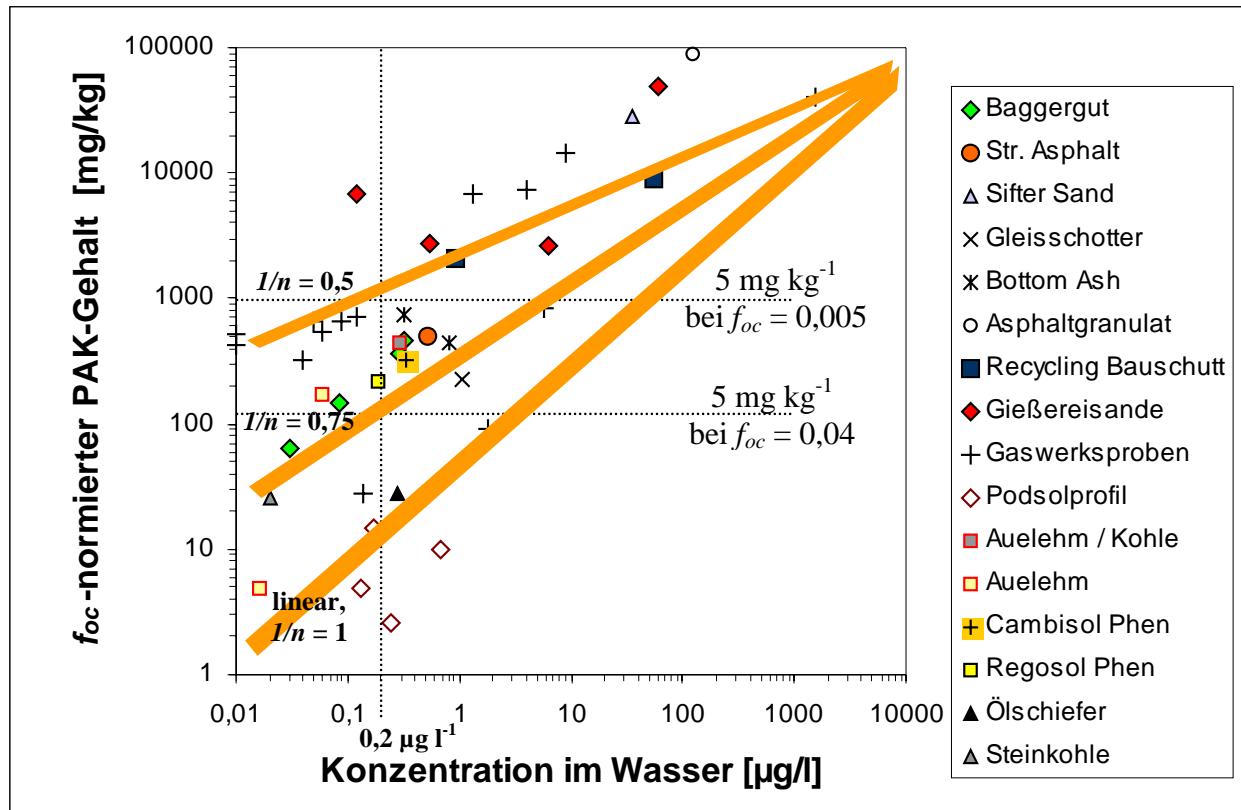


Abb. 3.6: Vergleich der auf den organischen Kohlenstoff (f_{oc}) normierten PAK-Gehalts mit linearen und nichtlinearen Sorptionsmodellen (grau unterlegte Flächen). Im unteren Konzentrationsbereich treten deutlich höhere Gehalte auf als nach dem linearen Sorptionsmodell ($I/n = 1$) zu erwarten wären. Bei niedrigen Gehalten an organischem Kohlenstoff (z.B. $f_{oc} = 0,005$) treten bei einem Schadstoffgehalt von 5 mg kg^{-1} sehr hohe f_{oc} -normierte Konzentrationen auf (z.B. $5 \text{ mg kg}^{-1} / 0,005 = 1000 \text{ mg kg}^{-1}$).

Tabelle 3.3 zeigt die Ergebnisse einiger Beispielrechnungen mit nichtlinearen Isothermen und einem Freundlich-Exponenten (I/n) von 0,75 für das Fallbeispiel 1 (Verfüllung einer Abgrabung mit einem Humusgehalt von 1% bzw. $f_{oc} = 0,005$) und einem Gehalt im Feststoff von 5 mg kg^{-1} . In diesem Fall liegen die Konzentrationen im Wasser zwischen $0,8 \mu\text{g/l}$ und $3,5 \mu\text{g/l}$, also noch deutlich über der Geringfügigkeitsschwelle. Bei einem Freundlich-Exponenten von 0,6 würden die Konzentrationen im Wasser um $0,2 \mu\text{g/l}$ und bei $I/n = 0,5$ schließlich deutlich unter $0,1 \mu\text{g/l}$ ($0,03 - 0,07 \mu\text{g/l}$) liegen.

Tab. 3.3: Konzentrationen im Wasser in $\mu\text{g l}^{-1}$ (**fett**) bei nichtlinearer Sorption (Freundlich-Exponent $1/n = 0,7$) und Sorptionskoeffizienten nach verschiedenen empirischen Korrelationen (vgl. Tab. 3.2); für Fall 1 (Verfüllung einer Abgrabung mit Humusgehalt unter 1%, $f_{oc} = 0,005$); Konzentration im Feststoff = 5 mg kg^{-1} .

Korrelationen Materialien \	Karickhoff et al., 1979	Seth et al., 2000	Xia, 1998	Allen-King et al., 2002
Böden $\mu\text{g/l}$	0,79	1,73	1,56	1,27
$K_{d,eff}$	6348	2897	3215	3923
$\log K_{oc,eff}$	6,10	5,76	5,81	5,89
Bauschutt $\mu\text{g/l}$	0,79	1,70	1,52	1,30
$K_{d,eff}$	6364	2936	3293	3861
$\log K_{oc,eff}$	6,10	5,77	5,82	5,89
Gleisschotter $\mu\text{g/l}$	0,86	1,90	1,71	1,33
$K_{d,eff}$	5784	2634	2916	3753
$\log K_{oc,eff}$	6,06	5,72	5,77	5,88
Sifter Sand $\mu\text{g/l}$	1,56	3,50	3,21	2,11
$K_{d,eff}$	3197	1430	1556	2372
$\log K_{oc,eff}$	5,81	5,46	5,49	5,68
Baggergut Hamburger $\mu\text{g/l}$	1,19	2,66	2,44	1,62
$K_{d,eff}$	4191	1881	2052	3090
$\log K_{oc,eff}$	5,92	5,58	5,61	5,79
Baggergut Rhein $\mu\text{g/l}$	1,22	2,68	2,41	1,89
$K_{d,eff}$	4092	1867	2072	2640
$\log K_{oc,eff}$	5,91	5,57	5,62	5,72

3.3 Ableitung von Feststoffkonzentrationen für Naphthalin, PCB, MKW, BTEX und LCKW (entsprechend für PAK im nichtlinearen Fall)

Ausgehend von den in Kapitel 3.2 für die PAK gezeigten Berechnungen können unter Berücksichtigung der Wasserlöslichkeit auch entsprechende Gehalte im Feststoff für andere organische Schadstoffe abgeleitet werden. Tab. 3.4 zeigt die verwendeten Prüfwerte sowie die für die Berechnung verwendeten effektiven Wasserlöslichkeiten (S_{eff}), die für Stoffgemische z.T. geschätzt werden mussten. Naphthalin wurde als Monokontamination (kristallin) behandelt. Bei BaP handelt es sich um einen rein hypothetischen Fall, da BaP als Monokontamination praktisch nicht vorkommt. Die für PAK, PCB, BTEX und LHKW verwendeten Wasserlöslichkeiten repräsentieren in etwa Fluoranthen/Pyren, PCB 52, Toluol bzw. Trichlorethen. Bei Mineralölkohlenwasserstoffen wurde angenommen, dass es sich um eine gealterte Mischung von Aliphaten handelt – Aromaten wurden hier nicht berücksichtigt.

Tab. 3.4: Prüfwerte sowie für die Abschätzung von Gehalten im Feststoff verwendete effektive Wasserlöslichkeiten (S_{eff}).

	Prüfwert $C_w \mu\text{g l}^{-1}$	S_{eff} mg l^{-1}
PAK ("Fluoranthen/Pyren")	0,2	2,5
Nap (Monokont., kristallin)	2	31
BaP ("subcooled")	0,1	0,15
PCB (3-4fach chloriert)	0,05	0,25
MKW ("gealtert")	200	0,5*
BTEX ("Toluol")	20	500
LHKW ("Trichlorethen")	10	1000

*Oktan = $0,66 \text{ mg l}^{-1}$

Tab. 3.5 listet die Ergebnisse für PCB, MKW, BTEX und LCKW auf. Geht man vom nach Abb. 3.5 durchaus plausiblen Fall einer nichtlinearen Sorption mit einem Freundlich-Exponenten (l/n) von 0,75 aus, dann läge der zulässige Gehalt von PAK im Feststoff beim Prüfwert ($0,2 \mu\text{g l}^{-1}$) bei knapp 3 mg kg^{-1} . Davon ausgehend wären die entsprechenden Werte für Naphthalin in der gleichen Größenordnung (ca. 3 mg kg^{-1}), bei PCB ca. 5 mg kg^{-1} , MKW ca. 1000 mg kg^{-1} , BTEX ca. 1 mg kg^{-1} und LHKW ca. $0,5 \text{ mg kg}^{-1}$. Tolerierbare PCB-Gehalte blieben auch im ungünstigsten Fall ($f_{oc} = 0,005$) noch über dem in Tab. 1.2 genannten Wert von $0,1 \text{ mg kg}^{-1}$ (Z 1.1).

Tab. 3.5: Zulässige Gehalte im Feststoff bei den in Tab. 3.4 angegebenen Konzentrationen im Wasser (Prüfwerte) in Abhängigkeit von f_{oc} und der Nichtlinearität der Freundlich-Sorptions-
isotherme (l/n). Berechnung nach K_{Fr}^*/f_{oc} aus Allen-King et al. (2002).

f_{oc}	0,04	0,02	0,005
	C_s [mg/kg]	C_s [mg/kg]	C_s [mg/kg]
linear: $l/n = 1$			
PAK ("Fluoranthen/Pyren")	0,51	0,26	0,06
Nap (Monokont., kristallin)	0,41	0,21	0,05
BaP ("subcooled")	4,27	2,13	0,53
PCB (3-4fach chloriert)	1,28	0,64	0,16
MKW ("gealtert")	2560	1280	320
BTEX ("Toluol")	0,26	0,13	0,03
LHKW("Trichlorethen")	0,06	0,03	0,01
nichtlinear: $l/n = 0,75$			
PAK ("Fluoranthen/Pyren ")	5,41	2,71	0,68
Nap (Monokont., kristallin)	4,61	2,30	0,58
BaP ("subcooled")	26,55	13,28	3,32
PCB (3-4fach chloriert)	10,76	5,38	1,35
MKW ("gealtert")	3219	1610	402
BTEX ("Toluol")	3,22	1,61	0,40
LHKW("Trichlorethen")	1,14	0,57	0,14
nichtlinear: $l/n = 0,5$			
PAK ("Fluoranthen/Pyren ")	57,24	28,62	7,16
Nap (Monokont., kristallin)	51,41	25,70	6,43
BaP ("subcooled")	165,25	82,62	20,66
PCB (3-4fach chloriert)	90,51	45,25	11,31
MKW ("gealtert")	4048	2024	506
BTEX ("Toluol")	40,48	20,24	5,06
LHKW("Trichlorethen")	20,24	10,12	2,53

4. Modellhafte Betrachtung der Kinetik des Schadstoffübergangs zwischen Feststoff und Wasser: Konzentrationen im Ungleichgewicht für den Fall 3 (Computersimulationen der wasserdurchlässigen Tragschicht)

Wie oben beschrieben, kann eine mangelnde Gleichgewichtseinstellung zu Minderbefunden in Laborelationsversuchen führen. Um zu prüfen, ob bei langsamer Gleichgewichtseinstellung während der Versickerung Konzentrationen weit unter dem Prüfwert im Sickerwasser zu erwarten wären, wurde für den ungünstigsten Fall "wasserdurchlässige Tragschichten" (hohe Konzentrationen im Sickerwasser) eine Modellierung des Schadstoffübergangs ins Sickerwasser durchgeführt (siehe Abb. 4.1). Dabei wurde angenommen, dass die Schadstoffe sorbiert vorliegen und nur langsam über Intrapartikeldiffusion freigesetzt werden. Stellvertretend für die PAK wurde Fluoranthen bzw. Pyren betrachtet, die ähnliche Sorptionseigenschaften bzw. Wasserlöslichkeiten aufweisen. Abb. 4.1 zeigt, dass nach einem Meter Sickerstrecke bei keinem der betrachteten Kornradien (welcher die Kinetik wesentlich beeinflusst) das Gleichgewicht erreicht wird. Allerdings zeigt es sich auch, dass der Prüfwert für PAK bereits nach wenigen Dezimetern Fließstrecke überschritten wird. Dass es sich hier um keine rasche Auslaugung der Schadstoffe handelt, zeigt Abb. 4.2: trotz anfänglich rasch abnehmender Konzentration werden die Prüfwerte in 0,5 m Tiefe auch nach 10 Jahren noch überschritten. Fazit dieser Betrachtungen ist, dass selbst unter Nichtgleichgewichtsbedingungen bei Fall 3 (wasserdurchlässige Tragschicht ohne Abdeckung und ohne bevorzugte Wegsamkeiten) zur Zeit nicht davon ausgegangen werden kann, dass die PAK-Prüfwerte unterschritten werden würden bzw. für diesen Fall deutlich höhere Gehalte im Feststoff tolerierbar wären.

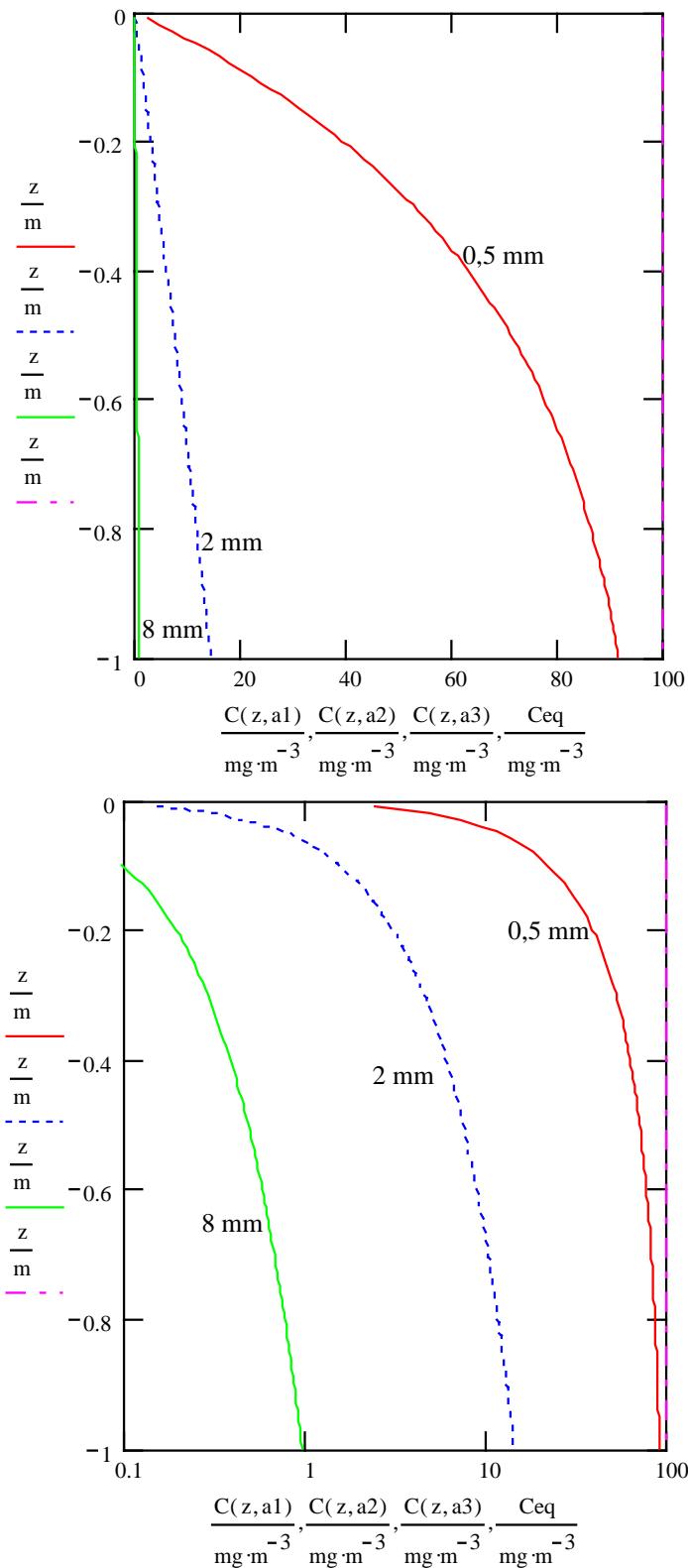


Abb. 4.1: Zunahme der Konzentration im Sickerwasser in einer wasserdurchlässigen Tragschicht (oben: linear; unten: logarithmische Darstellung der Konzentrationen) für 3 mögliche Kornradien: 0,5 mm, 2 mm, 8 mm; Infiltrationsrate = 0.1 m Tag^{-1} ; $K_d = 50$ (entspricht in etwa Fluoranthen, $f_{oc} = 0,001$; $\log K_{oc}$ ca. 4,7), Intrapartikelporosität = 2%, Feststoffgehalt = 5 mg/kg. Die Gleichgewichtskonzentration im Wasser liegt damit bei $100 \mu\text{g l}^{-1}$ (100 mg m^{-3}). Selbst im besten Fall (langsamste Schadstoff-Freisetzung bei 8 mm Kornradius) werden in

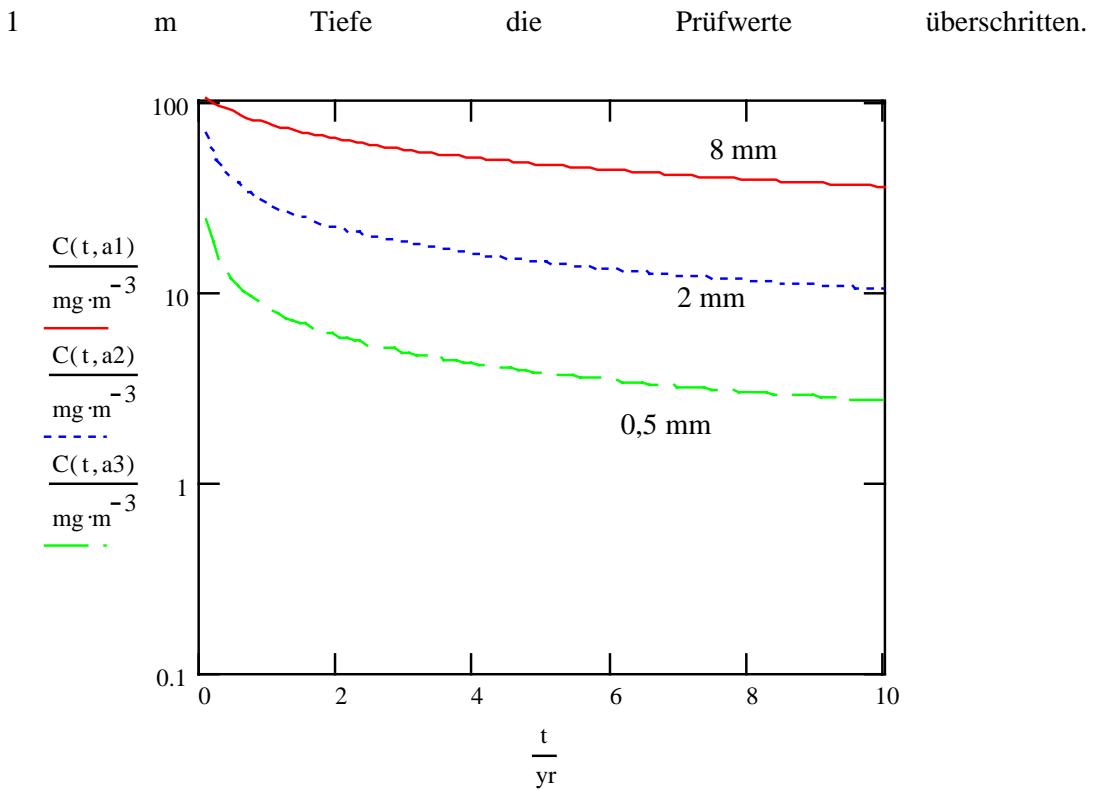


Abb. 4.2: Abnahme der Konzentration in einer wasserdurchlässigen Tragschicht in einer Tiefe von 0,5 m über einen Zeitraum von 10 Jahren (yr); Infiltrationsrate = 0,1 m Tag⁻¹, 3 Kornradien = 0,5 mm, 2 mm, 8 mm; K_d = 50 (entspricht ca. Fluoranthen/Pyren, f_{oc} = 0,001), Intrapartikelporosität = 2%, Feststoffgehalt = 5 mg/kg. Selbst im besten Fall (schnellste Konzentrationsabnahme bei der kleinsten Korngröße) bleiben die Konzentrationen Jahrzehnte über den Prüfwerten.

5. Verwendung von für Phenanthren gemessenen Sorptionsisothermen für die Bestimmung von PAK Konzentrationen im Wasser bzw. PAK-Gehalten im Feststoff

Zusätzlich zu den oben verwendeten Methoden (Kap. 2 - 4) wurden für Phenanthren in verschiedenen Boden- und Kohlenproben gemessene Sorptionsisothermen verwendet, um aus aktuellen Messwerten bei gegebenem PAK-Gehalt im Feststoff (5 mg kg^{-1}) auf die zugehörige Konzentration im Wasser bzw. umgekehrt zu schließen. Die Berechnungen erfolgten für eine effektive Wasserlöslichkeit (S_{eff}) der aus den Verteilungsmustern abgeleiteten PAK-Mischungen von ca. $2,5 \text{ mg l}^{-1}$ (vgl.: Fluoranthen = $2,1 \text{ mg l}^{-1}$ bzw. Pyren = $2,7 \text{ mg l}^{-1}$), d.h. die für Phenanthren (Wasserlöslichkeit der unterkühlten Flüssigkeit = $8,3 \text{ mg l}^{-1}$) vorliegenden Messwerte wurden auf $2,5 \text{ mg l}^{-1}$ übertragen, was zu einer gegenüber Phenanthren erhöhten Sorption führt. Die verwendeten Literaturdaten sind in Anhang II aufgelistet. Auch hier bestätigt sich, dass bei Proben mit PAK-Gehalten von 5 mg kg^{-1} nur bei organischen Kohlenstoffgehalten von über 10% eine Unterschreitung der Geringfügigkeitsschwelle von

$0,2 \mu\text{g l}^{-1}$ zu erwarten ist (Abb. 5.1). Umgekehrt gilt, dass nur Proben mit $f_{oc} > 10\%$ bei einer Konzentration im Wasser von $0,2 \mu\text{g l}^{-1}$ PAK-Gehalte von über 5 mg kg^{-1} zulassen würden (Abb. 5.2). Damit werden die in Kapitel 2 und 3 durchgeführten Berechnungen und Schlussfolgerungen durch einen weiteren, unabhängigen Datensatz bestätigt.

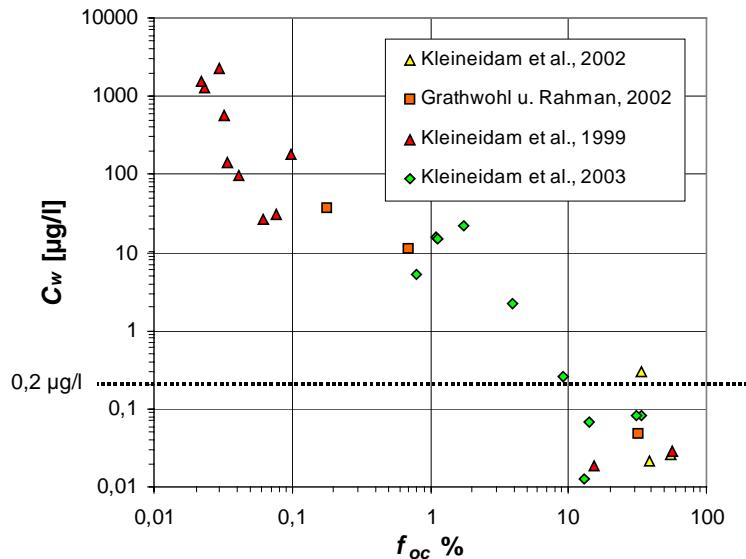


Abb. 5.1: Konzentrationen im Wasser bei einem PAK-Feststoffgehalt von 5 mg kg^{-1} (berechnet aus für Phenanthren gemessenen Sorptionsisothermen für eine effektive PAK-Löslichkeit von $2,5 \mu\text{g l}^{-1}$); unterhalb der Geringfügigkeitschwelle (gestrichelt) von $0,2 \mu\text{g l}^{-1}$ liegen nur Proben mit f_{oc} -Gehalten über 10%

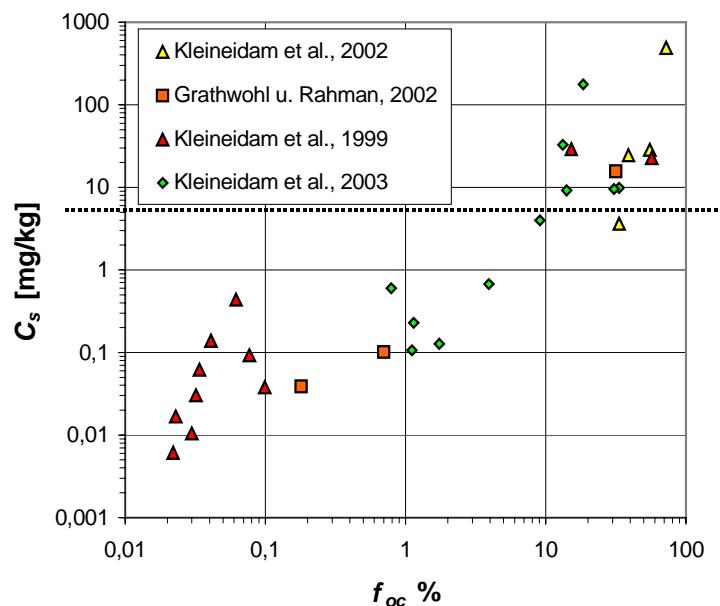


Abb. 5.2: PAK-Feststoffgehalte bei Konzentrationen im Wasser von $0,2 \mu\text{g kg}^{-1}$ (berechnet aus für Phenanthren gemessenen Sorptionsisothermen für eine effektive PAK-Löslichkeit von $2,5 \mu\text{g l}^{-1}$); oberhalb von 5 mg kg^{-1} (gestrichelt) liegen praktisch nur Proben mit f_{oc} -Gehalten von über 10%

6. Zusammenfassung - Empfehlungen

Die Auswertung von Daten zur Elution von PAK aus verschiedenen Materialien zeigt, dass bereits bei relativ niedrigen Gehalten im Feststoff (3 mg kg^{-1}) die Prüfwerte im Wasser überschritten werden können. Nach den in der Literatur häufig verwendeten empirischen Korrelationen zur Abschätzung der Sorption von Schadstoffen ergeben sich selbst im besten Fall mit sehr hohen Humusgehalten von 8% ($f_{oc} = 0,04$) für alle betrachteten Materialien bei einem PAK-Gehalt im Feststoff von 5 mg kg^{-1} noch deutliche Überschreitungen des Prüfwertes im Wasser von $0,2 \mu\text{g l}^{-1}$. Erst bei Annahme von nichtlinearen Sorptionsisothermen mit einem Freundlich Exponenten $< 0,75$ ergeben sich bei einem Feststoffgehalt von ca. 3 mg kg^{-1} und f_{oc} von 0,02 (Humusgehalt ca. 4%) Werte im Wasser um den Prüfwert. Darauf basierend lassen sich aus Vorsorgegesichtspunkten für den Pfad Boden-Grundwasser folgende Empfehlungen für Feststoffgehalte ableiten:

- Gehalte $> 3 \text{ mg PAK/kg}$ führen in der Regel zu Überschreitungen des Geringfügigkeitsschwellenwertes von $0,20 \mu\text{g/l}$ für die hier betrachteten Fälle.
- Entsprechendes gilt für Naphthalin (die Geringfügigkeitsschwelle liegt um den Faktor 10 höher bei einer entsprechend verminderten Sorption).
- Für Benz(a)pyren als Einzelstoff wären zwar höhere Gehalte zulässig, jedoch ist dieses aufgrund der gängigen PAK-Muster für die Praxis ohne Bedeutung (in der Regel dominieren Phenanthren, Fluoranthen und Pyren die Konzentrationen im Wasser).
- Bei PCB führt eine Verdoppelung des Vorsorgewertes von $0,05 \text{ mg kg}^{-1}$ auf $0,10 \text{ mg kg}^{-1}$ in der Regel nicht zu einer Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes für die hier betrachteten Fälle.
- Bei MKW kann unter der Voraussetzung, dass es sich um gealterte Rückstände mit aliphatischen Kohlenwasserstoffen handelt (ohne Aromaten, d.h. ohne BTEX, die bei „frischem“ Öl auftreten und ohne PAK bei Diesel und Altöl), ein Feststoffgehalt von bis zu 1000 mg/kg zugelassen werden, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten wäre.*
- Bei BTEX sind Gehalte bis zu 1 mg/kg möglich, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten wäre.*
- Bei LHKW sind Gehalte bis zu $0,5 \text{ mg/kg}$ möglich, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten wäre.*

- Um eine gesicherte Aussage über organische Schadstoffe im Sickerwasser zu erhalten, werden Säulenversuche empfohlen.

(^{}Die Ableitungen für BTEX, MKW und LHKW gelten nur für die gleichen Annahmen, die bei PAK zu einem Wert von ca. 3 mg kg⁻¹ führen (nicht-lineare Sorption mit 1/n = 0,75 und f_{oc} = 0,02). Bei geringeren Werten für f_{oc} und bei linearer Sorption können höhere Konzentrationen im Wasser auftreten).*

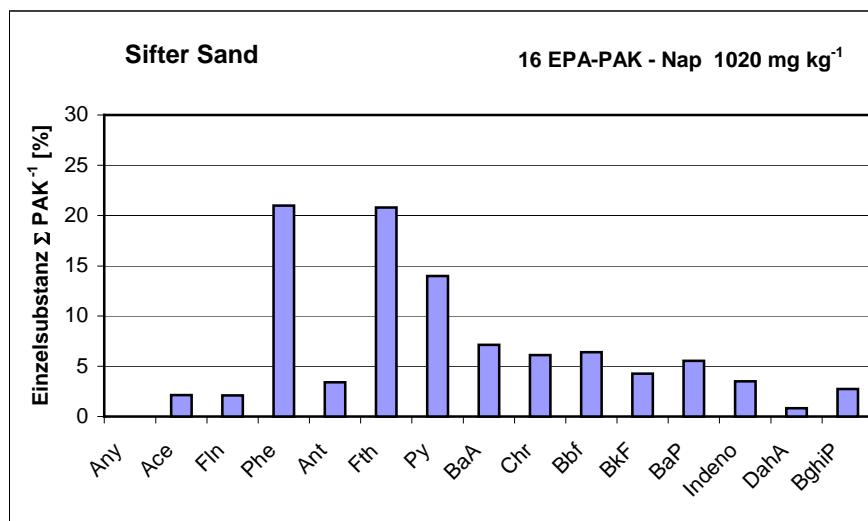
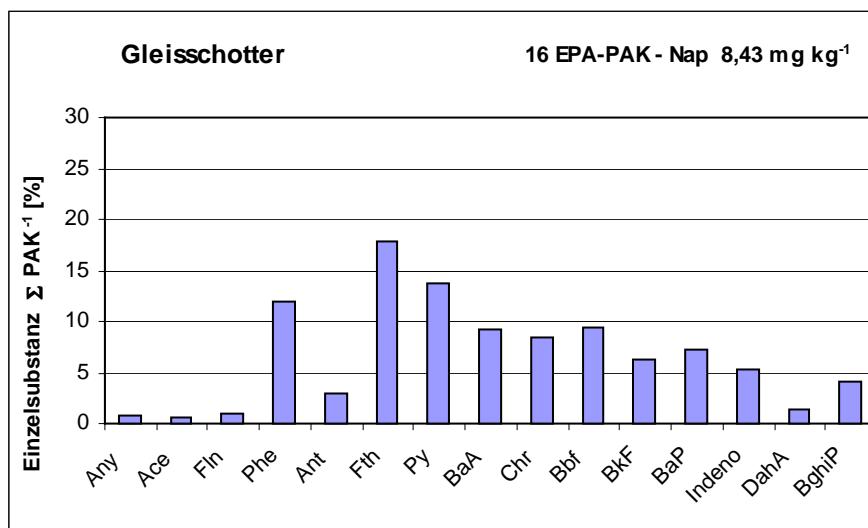
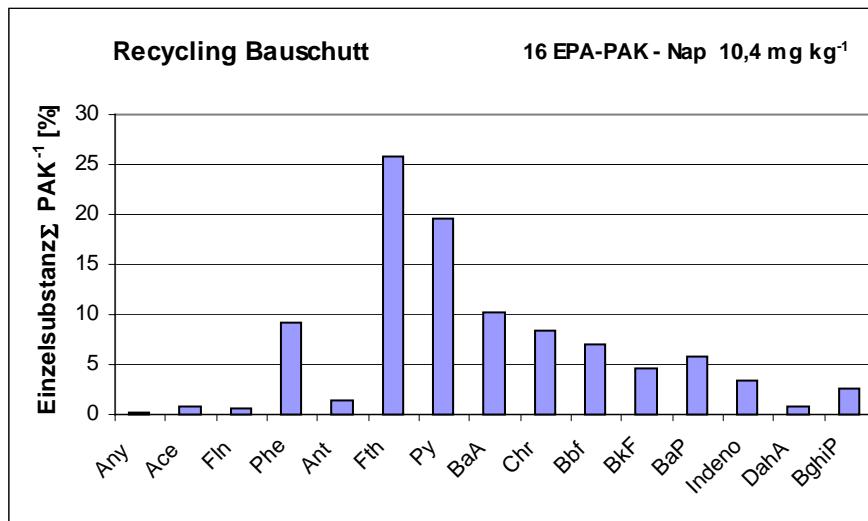
Bei rascher Durchsickerung z.B. von Tragschichten (Fall 3) werden bei grobem (= kiesigem) Material keine Gleichgewichtsbedingungen erreicht – im hier modellierten Szenario (Kap. 4) kommt es dennoch zur Überschreitung der Prüfwerte bei geringen Gehalten an organischem Kohlenstoff ($f_{oc} = 0,001$). Inwieweit bei schneller Durchströmung bzw. langsamerer Kinetik (langsamere Porendiffusion, höhere org. Kohlenstoffgehalte) Unterschreitungen des Prüfwertes zu erwarten sind, müsste im Einzelfall geprüft werden.

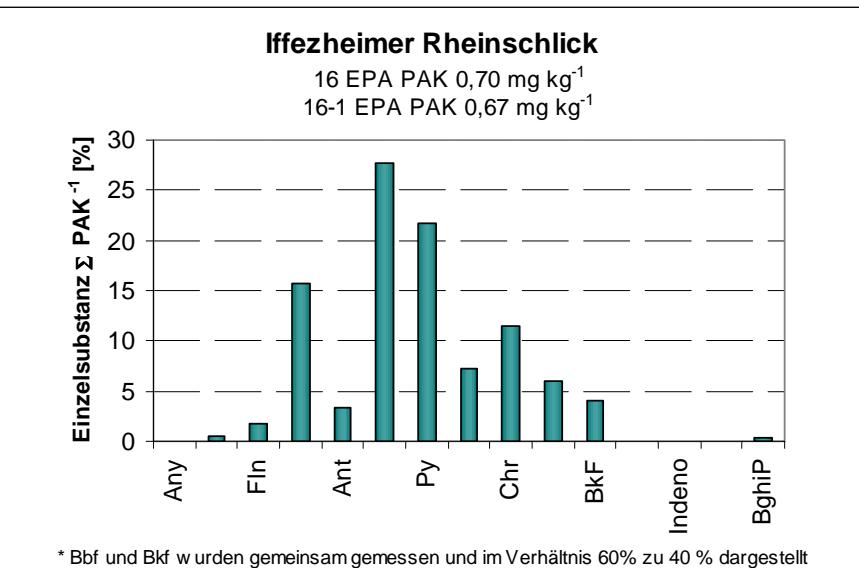
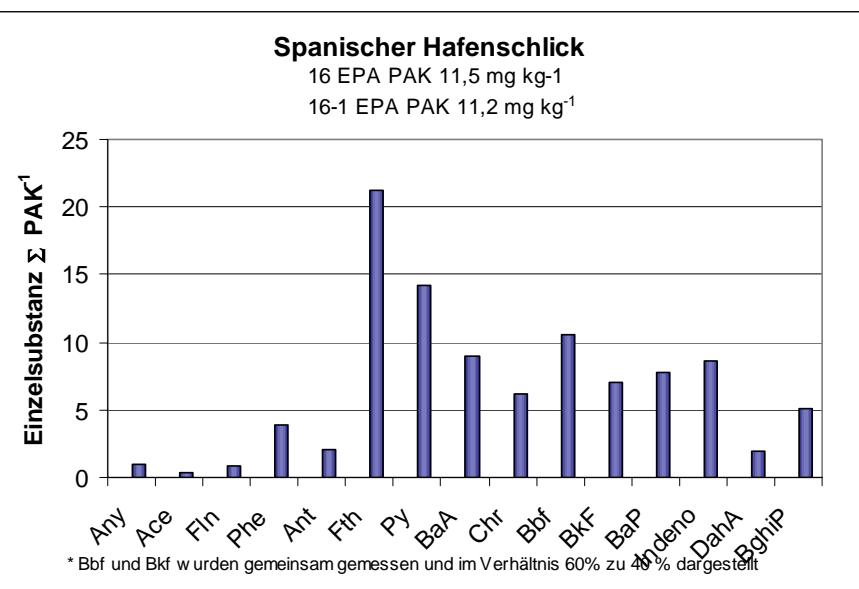
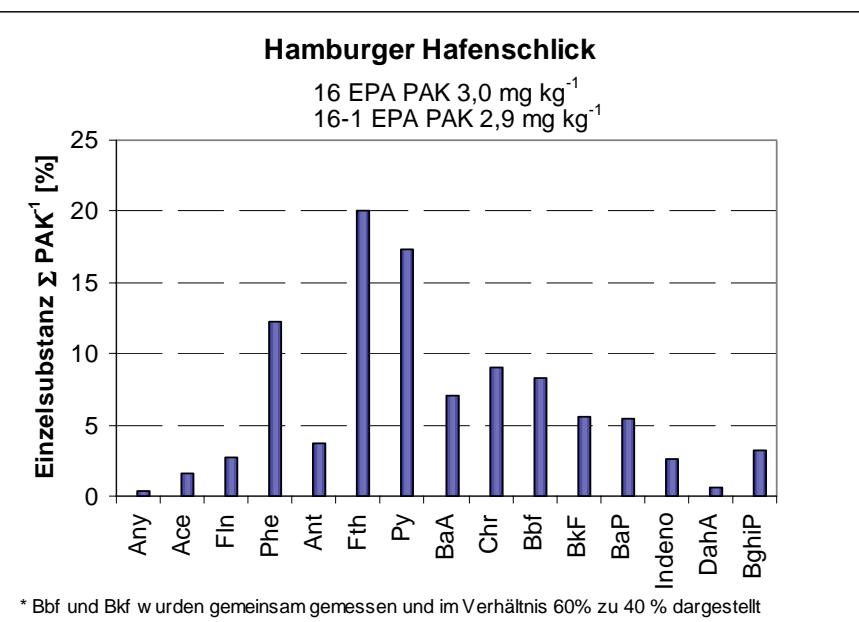
Literatur

- Allen-King, R., Grathwohl, P., Ball, W.P. (2002): New Modeling Paradigms for the Sorption of Hydrophobic Organic Chemicals to Heterogeneous Carbonaceous Matter in Soils, Sediments, and Rocks.- Advances in Water Research, 25/8-12, 985-1016 (Review)
- BBodSchV: Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung. Bundesgesetzblatt Jahrgang 1999, Teil I Nr.36, S. 1554-1682
- Chiou, C.T., Porter, P.E., Schmedding, D.W. (1983): Partition equilibria of nonionic organic compounds between soil organic matter and water. Environ Sci Technol 17: 227 – 231
- Chiou, C.T., Peters, L.J., Freed, V.H. (1979): A physical concept of soil-water equilibria for nonionic organic compounds. Science 206, 830-832
- Chu, W., Chan, K.-H. (2000): The prediction of partitioning coefficients for chemicals causing environmental concern. The science of the total environment. 248: 1-10
- DIN V 19736 (1998): Ableitung von Konzentrationen organischer Stoffe im Bodenwasser.- Beuth Verlag, Berlin
- Eberhardt, C., Grathwohl, P. (1997): Optimierung von Säulenversuchen zur Bestimmung der Schadstoffemission aus kontaminierten Böden: Schwerflüchtige Kohlenwasserstoffe (PCB).- Abschlußbericht, Landesanstalt für Umweltschutz, Baden Württemberg, 19 S.
- Förstner, U., Grathwohl, P. (2002): Ingenieurgeochemie.- Springer, 392 S.
- Grathwohl, P.; Halm, D., eds. (2003): Guidelines for groundwater risk assessment.- Campus Druck, Tübingen, 66 S. (<http://www.uni-tuebingen.de/gracos/>)
- Grathwohl, P., Rahman, M. (2002): Partitioning and pore-filling: Solubility-normalized sorption isotherms of nonionic organic contaminants in soils and sediments. Israel J. of Chemistry, 42, 67 - 75
- Grathwohl, P. (1990): Influence of organic matter from soils and sediments from various origins on the sorption of some chlorinated aliphatic hydrocarbons: Implications on K_{oc} -correlations.- Environ. Sci. Technol., 24, (11): 1687-1693
- Grathwohl, P. (1992): Die Rolle der molekularen Diffusion als limitierender Faktor bei der Sanierung von Untergrundverunreinigungen.- UWSF- Z. Umweltchem. Ökotox. 4, (4), 231-236
- Grathwohl, P. (1998): Diffusion in Natural Porous Media: Contaminant Transport, Sorption/Desorption and Dissolution Kinetics.- Kluwer Academic Publishers, Boston, 224 p.
- Grathwohl, P. (1999): Empirische Korrelation zur Sickerwasserprognose.- Bodenschutz, 2/99, S. 44-47
- Grathwohl, P. (2000): Elemente der Sickerwasserprognose zur Gefahrenbeurteilung "Grundwasser" bei kontaminierten Böden/Materialien/Altlasten, Handbuch Bodenschutz, BoS. Lfg. V/00, 40 S.
- Grathwohl, P., Susset, B. (2001): Sickerwasserprognose für organische Schadstoffe: Grundlagen und Stand der Forschung.- altlastenspektrum, 6, 285-293
- Herbert, M., Schüth, C., Pyka, W. (1992): Sorption polycyclischer aromatischer Kohlenwasserstoffe (PAK) bei der Filtration von Wasserproben.- Wasser und Boden, 8, 504 - 507.
- Karickhoff, S.W., Brown. D.S., Scott, T.A. (1979): Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments. Water Research, 13 (3): 241-248; Oxford (Pergamon Press)
- Kleineidam, S., Schüth, C., Grathwohl, P. (2002): Solubility-Normalized Combined Pore-Filling-Partitioning Sorption Isotherms for Organic Pollutants.- Environ. Sci. Technol. 36, 4689-4697
- Kleineidam, S., Rügner, H., Ligouis, B., Grathwohl, P. (1999): Organic matter facies and equilibrium sorption of phenanthrene.- Environ. Sci. Tech., 33, 10, 1637 - 1644
- Ligouis, B., Kleineidam, S., Karapanagioti, H.K., Kiem, R., Grathwohl, P., Niemz, C. (2003): Organic petrology: a new tool to study contaminants in soils and sediments. In Lichtfouse, E., Dudd, S. and Robert, D. (Eds.), Environmental chemistry. Springer Verlag, Berlin.
- Rahman, M. (2002): Sorption and transport behaviour of hydrophobic organic compounds in soils and sediments of Bangladesh and their impact on groundwater pollution – Laboratory investigations and model simulations. TGA, 63; 73 S.
- Rother, A., Friese, K. (2001) : PAK-Muster ehemaliger Bauschuttdeponien.- Z. dt. geol. Ges., 152/1: 99-107.
- Rügner, H., Kleineidam, S., Grathwohl, P. (1999): Long-term sorption kinetics of phenanthrene in aquifer materials.- Environ. Sci. Tech., 33, 10, 1645 - 1651
- Seth, R., Mackay, D., Muncke, J. (1999): Estimating the organic carbon partition coefficient and its

- variability for hydrophobic chemicals. Env. Sci. Technol., 33, 4, 2390-2394
- Weiß, H., Eberhardt, C., Grathwohl, P. (1997): Säulenversuche zur Grundwassergefährdungsabschätzung an kontaminierten Standorten.- TerraTech 5, 52-55
- Xia, G. (1998): Sorption behavior of nonpolar organic chemicals on natural sorbents, Ph.D. thesis, The Johns Hopkins University, Baltimore, MD

Anhang I: PAK-Verteilungsmuster





Anhang II: Löslichkeitsnormierte Sorptionsisothermen: Freundlich-Parameter

Probe	log KFr*	1/n	f _{oc}	log KFr*/foc
	(mg/kg)		%	(mg/kg)
Kleineidam et al., 2002; overall isotherm (TCE, 1,4 DCB, 1,2 DCB, Phen)				
peat	4,0	0,84	33,4	4,48
lignite	4,3	0,71	38,9	4,71
sub-bit. coal	4,94	0,85	55,1	5,20
high volatile bit. Coal	5,23	0,62	72,1	5,37
charcoal	5,19	0,26	81,7	5,28
lignite coke	5,39	0,23	88	5,45
activated carbon	5,94	0,28	89	5,99
Grathwohl u. Rahman, 2002				
Deltaic soil	2,98	0,97	0,7	5,13
Aquifer sediment	2,4	0,93	0,18	5,14
Peat	4,47	0,8	31,7	4,97
Kleineidam et al., 1999 (Phenanthren)				
DLH	1,52	0,58	0,041	4,91
DSH	1,69	0,5	0,062	4,90
LLH	0,89	0,65	0,023	4,53
LSH	1,10	0,64	0,032	4,60
QZh	0,49	1,15	0,004	4,89
MsK	1,54	0,67	0,034	5,01
JK	0,86	0,75	0,022	4,52
SS	0,72	0,66	0,03	4,25
BS	-0,21	0,67	0,004	4,18
MsKr	2,20	0,79	0,077	5,32
JKr	1,53	0,72	0,099	4,53
RHr	0,04	0,92	0,004	4,43
Ler	4,49	0,74	15,2	5,31
Bcoalr	4,55	0,78	57	4,79
Kleineidam et al., 2003 (Phenanthren auf der Basis Sscl: 6.17mg/l)				
G2 Histosol	4,15	0,77	33,4	4,63
Tvö Histosol	3,97	0,73	30,69	4,48
V1 Luvisol	2,63	0,88	1,11	4,58
S8 Greyzem	2,44	0,65	0,79	4,54
S7 Chernozem	2,27	0,71	1,14	4,21
S 6 Chernozem	2,3	0,78	1,74	4,06
B3 Phaeozem	4,3	0,68	13,2	5,18
Tro1 Regosol	4,01	0,43	18,47	4,74
P3 Regosol	3,96	0,82	9,09	5,00
P4 Regosol	3,3	0,57	14,09	4,15
Kr96 Anthrosol	3,23	0,83	3,92	4,64

Vorbemerkung zum Arbeitspapier „Verfüllung von Abgrabungen“

"Der Inhalt dieses Arbeitspapiers ist Bestandteil der LAGA-Mitteilung 20 "Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen - Technische Regeln" und wird durch diese umgesetzt.

Bei der Überarbeitung der LAGA-Mitteilung 20 wurde die Systematik der Einbauklassen aufgrund der neuen Anforderungen des Bodenschutzes und der im Vollzug gewonnenen Erfahrungen verändert. Für die bodenähnlichen Anwendungen (Auffüllung von Abgrabungen und Abfallverwertung im Landschaftsbau außerhalb von Bauwerken) bedeutet das, dass alle Maßnahmen, die damit im Zusammenhang stehen, der Einbauklasse 0 zugeordnet werden. Dabei werden die Feststoffgehalte Z0 und Z0* unterschieden.

Diese Nomenklatur war zu dem Zeitpunkt der Verabschiedung des Arbeitspapiers "Verfüllung von Abgrabungen" noch nicht abschließend festgelegt worden. Daher wird in diesem Papier anstelle der Bezeichnung "Zuordnungswerte Z0*" noch die Bezeichnung "Zuordnungswerte Z1.1" verwendet.

Für das Verständnis des Arbeitspapiers "Verfüllung von Abgrabungen" ist es daher wichtig, dass sowohl die fachlichen Randbedingungen als auch Zahlenwerte, die unter der Bezeichnung "Zuordnungswerte Z1.1" festgelegt werden, identisch sind mit den "Zuordnungswerten Z0*" der überarbeiteten LAGA-Mitteilung 20."

Anlage

**LABO in Zusammenarbeit mit
LAGA und LAWA, unter Mitwirkung des LAB**

Verfüllung von Abgrabungen

1. Sachstand und Veranlassung

Die 24. Amtschefkonferenz (ACK) der Umweltministerkonferenz (UMK) hat am 13./14.10.1999 die Länderarbeitsgemeinschaften Bodenschutz (LABO, Federführung), Wasser (LAWA), Abfall (LAGA) und den Länderausschuss Immissionsschutz (LAI) beauftragt, die bestehenden Werteregelungen des Bodenschutzes sowie die Werteregelungen anderer Rechtsbereiche, die den Schutz des Bodens berühren, zu überprüfen. Eine gemeinsame Arbeitsgruppe hat hierzu Vorschläge zur "Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen" erarbeitet¹, die u. a. auch das LAGA-Regelwerk „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen – Technische Regeln“ (LAGA-Mitteilung 20) betreffen:

"Im LAGA-Regelwerk soll festgelegt werden, dass bei "bodenähnlichen Anwendungen" (Auffüllung² von Abgrabungen und Abfallverwertung im Landschaftsbau außerhalb von Bauwerken) ausschließlich Bodenmaterial der Einbauklasse 0 verwertet werden darf. Der Einbau von anderen Abfällen soll ausgeschlossen werden. Der Vorschlag bezieht sich nur auf die Verwertung von Bodenmaterial unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht in der Einbauklasse 0. Diese ist wie folgt zu bewerten:

1. Sofern bei einer Baumaßnahme anfallendes Bodenmaterial keiner der in Anhang 2 Nr. 4.1 BBodSchV genannten Bodenarten zugeordnet werden kann (z. B. bei kleinräumig wechselnden Bodenarten) oder bei Bodenmaterial aus der Bodenbehandlung, gelten die Vorsorgewerte für die Bodenart Lehm/Schluff bei gleichzeitiger Einhaltung der Zuordnungswerte Z 0 (Eluat)³ der TR Boden des LAGA-Regelwerkes.
2. Ist auf Grund einer flächigen und bezogen auf die Aushubtiefe einheitlichen Verbreitung der Bodenarten im Bereich der Baumaßnahme dagegen eine Zuordnung zu einer der in Anhang 2 Nr. 4.1 BBodSchV genannten Bodenarten möglich, gelten für die Metalle die entsprechenden Vorsorgewerte. Eine Eluatuntersuchung ist in diesem Falle nicht erforderlich.
3. In den unter 1. und 2. genannten Fällen gelten zusätzlich die Vorsorgewerte des Anhangs 2 Nr. 4.2 BBodSchV (Humusgehalt < 8 %⁴) und für die nicht in der BBodSchV

¹ Bericht der gemeinsamen Arbeitsgruppe von LABO, LAGA, LAWA und LAI "Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen"

² Aus systematischen Gründen wird im Folgenden ausschließlich der Begriff "Verfüllung" verwendet, weil dieser im Zusammenhang mit den Beschlüssen von ACK und WMK verwendet worden ist

³ Eluatwerte des Bodenmaterials, die an die Vorgaben des vorsorgenden Boden- und Grundwasserschutzes angepasst werden und die sicherstellen, dass die Geringfügigkeitsschwellen im Sickerwasser unterhalb des verwerteten Bodenmaterials eingehalten werden.

⁴ Im LAGA-Regelwerk ist zu ergänzen, dass unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht nur humusarmes Bodenmaterial eingebaut werden darf.

geregelten Parameter die Zuordnungswerte Z 0 (Feststoff)⁵ der TR Boden des LAGA-Regelwerkes.

4. Die Ausnahmeregelung für Böden mit naturbedingt oder großflächig siedlungsbedingt erhöhten Gehalten in § 9 Abs. 2 und 3 in Verbindung mit § 12 Abs. 10 BBodSchV ist entsprechend anzuwenden.“

Die 26. ACK⁶ hat am 11./12.10.2000 dem Bericht der gemeinsamen Arbeitsgruppe zugestimmt und unter anderem die LAGA beauftragt, die Empfehlungen bei der Anpassung des LAGA-Regelwerkes “Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen - Technische Regeln“ zu übernehmen und gegebenenfalls zu konkretisieren.

Die Wirtschaftsministerkonferenz (WMK)⁷ hat am 01./02.03.2001 dem Beschluss der 26. ACK widersprochen und die UMK ausdrücklich gebeten, es bei den bisher geltenden Regelungen für die Verfüllung von Tagebauen unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht zu belassen, da diese sich in der Praxis bewährt hätten und eine flexible und sachgerechte Anwendung des Bodenschutzrechtes ermöglichten. Sie begründet dies u. a. damit, dass in Folge des Beschlusses ein Großteil der Abbaustätten nicht mehr verfüllt werden könnte, bereits festgelegte Folgenutzungen nicht realisierbar wären sowie Festlegungen aus bereits erteilten Zulassungen nicht umgesetzt werden könnten.

Die 27. ACK⁸ hat am 03./04.05.2001 die LABO, die LAGA und die LAWA gebeten, unter Mitwirkung des LAB die von der WMK aufgeworfene Frage (Verfüllung von Abgrabungen) im Rahmen der derzeit tätigen Arbeitsgruppen von LABO, LAGA, LAWA und LAB zu klären, dabei auch eine Abgrenzung zwischen “Tagebauen“ und “Abgrabungen“ vorzunehmen und der 28. ACK zu berichten.

Der Vorsitzende der LABO hat den LABO-ad-hoc-Unterausschuss “Vollzugshilfe zu § 12 BBodSchV“ in Absprache mit den Vorsitzenden der übrigen betroffenen Länderarbeitsgemeinschaften um Bearbeitung dieses ACK-Auftrages gebeten⁹.

⁵ Die nicht durch die BBodSchV festgelegten Zuordnungswerte Z 0 (Feststoff) der TR Boden des LAGA-Regelwerkes sind im Rahmen der Überarbeitung durch die LAGA-AG “Mineralische Abfälle“ auf der Grundlage der Ableitungskriterien der BBodSchV anzupassen.

⁶ 26. Amtschefkonferenz am 11./12.10.2000 in Berlin, TOP 53.2: “Anpassung der Zuordnungswerte des LAGA-Regelwerkes “Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen - Technische Regeln“ an die Vorgaben der Bundes-Bodenschutzverordnung - Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen

⁷ Wirtschaftsministerkonferenz am 01./02.03.2001 in Mainz, TOP 30: “Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen)“

⁸ 27. Amtschefkonferenz am 03./04.05.2001 in Bremen, TOP 32/33: “Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen)“

⁹ Sitzung LABO-Unterausschuss „Vollzugshilfe § 12 BBodSchV“, am 11.6.2001 in Hannover

2. Zur Klärung des WMK-Widerspruchs

Zur Bearbeitung des o.g. ACK Auftrags sind die Begriffe „Tagebaue / Abgrabungen“, voneinander abzugrenzen und die Auswirkungen des Bodenschutzrechts und der Beschlüsse der 26.ACK zu TOP 53.1 und 53.2 („Abgrenzungsgrundsätze,¹⁰ und „Werteharmonisierung“) auf die bisherigen Anforderungen an die Verfüllung von Abgrabungen zu beschreiben.

Durch den Beschluss der 26. ACK kommt es im Hinblick auf die zukünftige Anpassung des LAGA-Regelwerkes im Vergleich zur bisherigen Praxis zu folgenden Änderungen:

1. Es darf nur noch Bodenmaterial eingebaut werden.
2. Das Bodenmaterial muss grundsätzlich die an die bodenartspezifischen Vorsorgewerte der BBodSchV¹¹ angepassten Zuordnungswerte Z 0 (neu) einhalten (vgl. auch Beschluss der 54.UMK zu TOP 4.31.5). Die Änderungen sind in folgender Tabelle dargestellt.

¹⁰ LABO, LAGA und LAWA haben unter Beteiligung des LAB „Abgrenzungsgrundsätze zu den Anwendungsbereichen der BBodSchV hinsichtlich des Auf- und Einbringens von Materialien auf und in den Boden von den diesbezüglichen abfallrechtlichen Vorschriften (Stand 8.8.2000) formuliert. Die Amtschefinnen und Amtschefs der Länder haben diesen Grundsätzen einschließlich der Begründung in der Fassung vom 18.09.2000 zugestimmt (Beschluss zu TOP 53.1 der 26.ACK vom 11./12. Oktober 2000)

¹¹ Die Vorsorgewerte der BBodSchV wurden so hergeleitet, dass das 90. Perzentil aller Böden in Deutschland (außerhalb von Siedlungsgebieten) diese Werte einhalten.

Tabelle: Vergleich der bisher zulässigen Zuordnungswerte (alt) mit den neuen Zuordnungswerten (neu) gemäß Vorschlag der Arbeitsgruppe „Werteharmonisierung“

Wertekategorien	Cd	Pb	Cr	Cu	Hg	Ni	Zn
Z 0-Wert (alt)	0,6	100	50	40	0,3	40	120
Z 1.1-Wert (alt)	1,0	200	100	100	1,0	100	300
Z 1.2-Wert (alt) (nur bei hydrogeologisch günstigen Bedingungen)	3,0	300	200	200	3,0	200	500
Vorsorgewert Ton (Z 0-Wert neu)	1,5	100	100	60	1,0	70	200
Vorsorgewert Lehm/Schluff¹⁾ (Z 0-Wert neu)	1,0	70	60	40	0,5	50	150
Vorsorgewert Sand (Z 0-Wert neu)	0,4	40	30	20	0,1	15	60

¹⁾ Werte gelten auch für Bodenmaterial, das keiner der Bodenarten zugeordnet werden kann (z. B. bei kleinräumig wechselnden Bodenarten) oder für Bodenmaterial aus der Bodenbehandlung bei gleichzeitiger Einhaltung der überarbeiteten Z 0-Werte (Eluat neu) des LAGA-Regelwerkes.

Z 0-Wert (neu) größer oder gleich Z 1.1-Wert (alt)
Z 0-Wert (neu) größer oder gleich Z 0-Wert (alt) sowie kleiner Z 1.1 (alt)

2.1 Abgrenzung der Begriffe Tagebau / Abgrabung (vgl. auch ANHANG 1)

Soweit mineralische Rohstoffe in offenen Gruben gewonnen werden, werden diese Abbaustätten als Tagebau bzw. Abgrabung bezeichnet. Die Bezeichnung Tagebau oder Abgrabung begründet sich mit der unterschiedlichen rechtlichen Zuordnung unter das Bundesberggesetz (BBergG) einerseits oder das Bundes-Immissionsschutzgesetz, Baurecht, Abgrabungsrecht o. ä. andererseits.

Unter das BBergG fallen die Gewinnungsbetriebe auf grundeigene und bergfreie mineralische Rohstoffe, deren Katalog abschließend im § 3 des BBergG festgelegt ist (**Tagebaue**).

Für die Gewinnung von anderen mineralischen Rohstoffen sind andere bundes- bzw. landesspezifische Gesetze oder Verordnungen einschlägig. Für diese Gewinnungsbetriebe wird der Begriff **Abgrabung** verwendet.

Bei der Verwertung von Abfällen in unter das Bergrecht fallenden Tagebauen, wie z.B. der

Verfüllung von **Tagebauen des Braunkohlenbergbaus sowie sonstigen Tagebauen, die bergbauliche Besonderheiten aufweisen**, stehen überwiegend bergtechnische Gesichtspunkte und nicht die Herstellung natürlicher Bodenfunktionen am Standort im Vordergrund. Hier müssen die Maßnahmen *als Ganzes* betrachtet werden. Von diesen Maßnahmen darf *insgesamt* nicht die Besorgnis des Entstehens einer schädlichen Bodenveränderung ausgehen¹².

Für unter das Bergrecht fallende **Tagebaue, die keine bergbaulichen Besonderheiten aufweisen** und die mit dem Ziel der Herstellung natürlicher Bodenfunktionen verfüllt werden sollen, ist es dagegen sachgerecht, die materiellen Vorgaben des Boden- und Grundwasserschutzes für die Verfüllung von Abgrabungen über die Generalklauseln des Bergrechts voll zur Anwendung zu bringen. Diese Fallkonstellation wird insbesondere für Steine- und Erden-Tagebaue in den Neuen Bundesländern zutreffen, da der Einigungsvertrag insoweit einen erweiterten Geltungsbereich des Bergrechts vorsah. Dieser erweiterte Geltungsbereich wurde im Rahmen des Gesetzes zur Vereinheitlichung der Rechtsverhältnisse bei Bodenschätzten vom 15.04.1996 (BGBl. I, S. 602) aufgehoben. Bedingt jedoch durch die mit dem Gesetz verbundenen Übergangsregelungen ist auch in Zukunft von der Anwendung des BBergG und damit des Begriffes Tagebau für einen großen Teil der mineralischen Rohstoffgewinnungen in den neuen Bundesländern auszugehen.

Bei den weiteren Ausführungen wird folglich von folgender Abgrenzung der Begriffe "Abgrabungen" und "Tagebaue" ausgegangen:

Abgrabungen sind Gewinnungsbetriebe für feste mineralische Rohstoffe in offener Grube zur Gewinnung von Steinen und Erden. Unter Abgrabungen im Sinne dieser Begriffsbestimmung fallen auch solche Abbaustätten, die als Tagebaue nach BBergG zugelassen worden sind, jedoch keine bergbaulichen Besonderheiten aufweisen und die mit dem Ziel der Herstellung natürlicher Bodenfunktionen verfüllt werden sollen. Nicht dazu gehören alle **Tagebaue** der Braunkohle (siehe Anhang 1).

Der Sonderfall der sog. Nassabgrabungen (Gewinnung des mineralischen Rohstoffes unterhalb des anstehenden Grundwasserspiegels) wird in das vorliegende Konzept nicht einbezogen. Über diese wird im Rahmen der wasserrechtlichen Genehmigungsverfahren im Einzelfall entschieden¹³.

¹² Die Anforderungen ergeben sich insbesondere aus den „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von Abfällen im Bergbau über Tage – Technische Regeln für den Einsatz von bergbaufremden Abfällen im Bergbau“.

¹³ Der Anwendungsbereich des LAGA-Regelwerkes „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von

2.2 Anforderungen an mineralische Abfälle zur Verfüllung von Abgrabungen¹⁴ unter Berücksichtigung des Boden- und Gewässerschutzes sowie der Abfallwirtschaft

Ausgehend vom Widerspruch der WMK ist die Frage nach dem Erfordernis einer Verfüllung nicht Gegenstand der Erörterung. Sie wird daher nicht weiter behandelt. Vielmehr ist die Frage zu klären, bis zu welchen Schadstoffgehalten im Feststoff und Schadstoffkonzentrationen im Eluat (bzw. Sickerwasser) die Verwertung von mineralischen Abfällen bei der Verfüllung von Abgrabungen ordnungsgemäß und schadlos und damit zulässig ist. Die Anforderungen ergeben sich insbesondere aus den Vorgaben des Boden- und Grundwasserschutzes.

Inwieweit eine Verfüllung von Abgrabungen mit mineralischen Abfällen erforderlich und insbesondere unter Berücksichtigung der Anforderungen des Boden- und Gewässerschutzes zulässig ist, muss im Rahmen der Zulassung geprüft und entschieden werden. Dabei ist zu berücksichtigen, dass es sich bei bereits zugelassenen Verfüllungen vielfach nicht um Verfüllungsverpflichtungen, sondern um Verfüllungsrechte handelt.

Im Falle bergrechtlich durch einen Betriebsplan zuzulassender Verfüllungen von Abgrabungen ist insbesondere zu prüfen, ob die erforderliche Vorsorge zur Wiedernutzbarmachung der Oberfläche in dem nach den Umständen gebotenen Ausmaß getroffen ist und einer beabsichtigten Verfüllungsmaßnahme keine öffentlichen Interessen entgegenstehen; dazu gehören u.a. auch abfallrechtliche Vorgaben.

2.3 Ergebnis (Vorschlag)

1. Für die Verfüllung von Abgrabungen unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht eignet sich in der Regel nur Bodenmaterial. Geeigneter Bauschutt, der die nachfolgend beschriebenen Anforderungen des Boden- und Grundwasserschutzes erfüllt, darf nur für betriebstechnische Zwecke verwendet werden.

2. Natürliches Bodenmaterial, das die bodenartspezifischen Vorsorgewerte bzw. für weitere Schadstoffparameter die (überarbeiteten) Z0-Werte (neu) des LAGA-Regelwerkes einhält, erfüllt neben den Anforderungen des vorsorgenden Bodenschutzes auch die Anforderungen des vorsorgenden Gewässerschutzes.

mineralischen Abfällen - Technische Regeln“ bezieht sich gemäß Kap. I.1 nicht auf das „Einbringen von Abfällen in Gewässer“

¹⁴ „Abgrabungen“, im Sinne der in Kap. 2.1 formulierten Begriffsdefinition

3. Eine Verfüllung von Abgrabungen mit Bodenmaterial, das die Vorsorgewerte überschreitet, ist bei Einhaltung folgender Bedingungen zulässig („Ausnahmen von der Regel“):

- Die Abgrabungen/Verfüllungen liegen außerhalb folgender (Schutz-)Gebiete:
 - festgesetzte, vorläufig sichergestellte oder fachbehördlich geplante Trinkwasserschutzgebiete, Zone I bis III B
 - festgesetzte, vorläufig sichergestellte oder fachbehördlich geplante Heilquellschutzgebiete, Zone I bis IV
 - Wasservorranggebiete, die im Interesse der künftigen Wasserversorgung raumordnerisch ausgewiesen worden sind
 - Karstgebiete und Gebiete mit stark klüftigem, besonders wasserwegsamem Untergrund

und

- das Bodenmaterial hält Eluatwerte ein, die so abzuleiten sind, dass das Sickerwasser an der Unterkante des eingebauten Bodenmaterials die Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes (Zuordnungswerte Z 1.1 (Eluat neu) des LAGA-Regelwerkes „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen – Technische Regeln“) einhält,

und

- das Bodenmaterial überschreitet nicht die Z 1.1-Werte (Feststoff neu). Diese Werte werden grundsätzlich aus den zweifachen Vorsorgewerten für die Bodenart Lehm/Schluff abgeleitet (Ausnahmen Cd: 1 mg/kg für die Bodenart Sand und Lehm/Schluff; 1,5 mg/kg für die Bodenart Ton) (vgl. ANHANG 2).

und

- das Bodenmaterial überschreitet nicht die für organische Schadstoffe gemäß Anhang 2 Nr.4.2 BBodSchV geltenden Vorsorgewerte für $\leq 8\%$ Humusgehalt¹⁵.

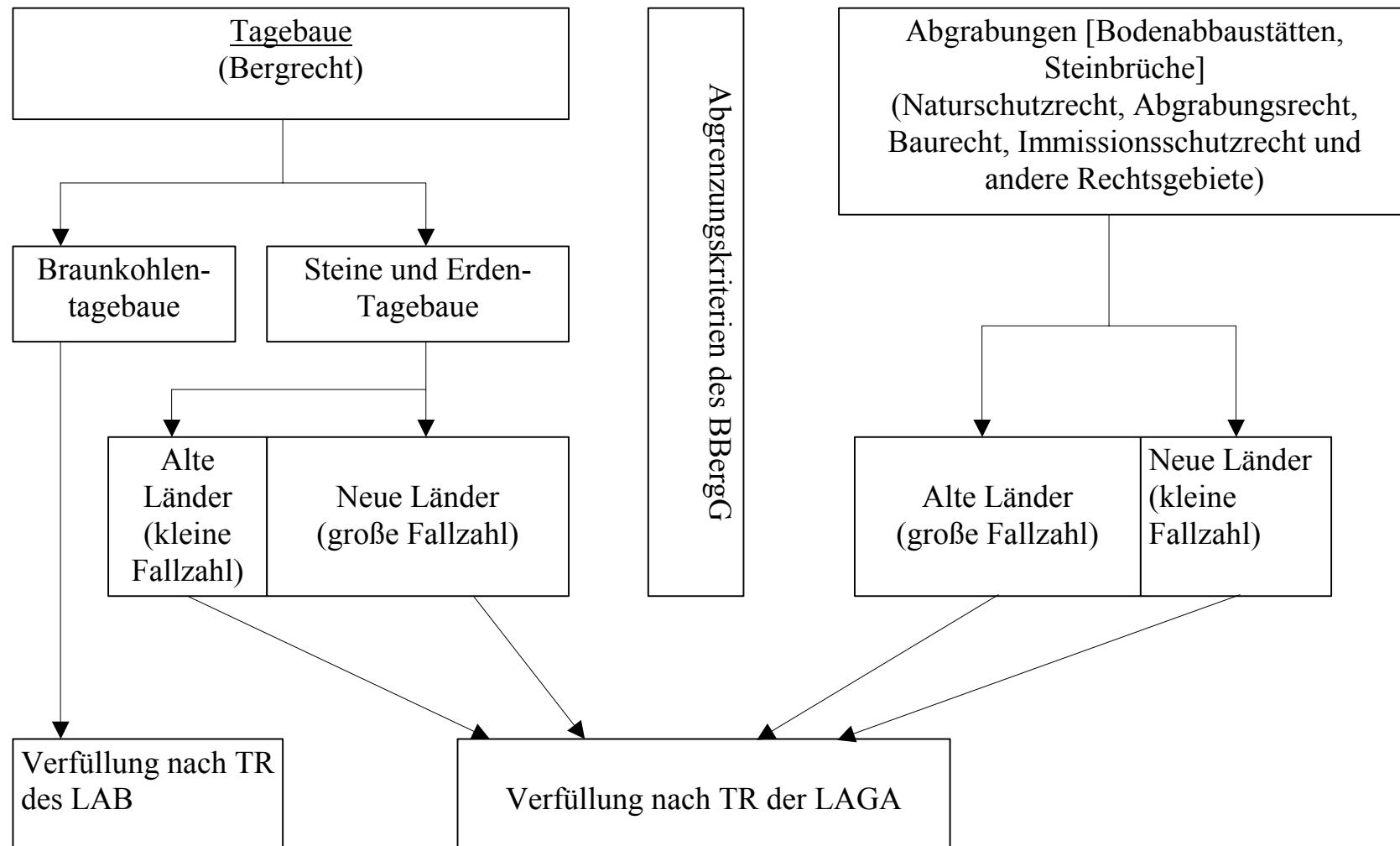
¹⁵ nach erfolgter Ableitung geeigneter Eluatwerte können für diese Parameter ggf. höhere Z 1.1-Werte (Feststoff) zugelassen werden.
Die Vorsitzenden der LABO, LAGA und LAWA werden sich unter Mitwirkung des LAB Anfang Januar 2002 über das weitere Vorgehen in dieser Frage beraten und verständigen.

und

- oberhalb des verfüllten Bodenmaterials wird eine Schicht aus Bodenmaterial, das die Vorsorgewerte der BBodSchV einhält und somit alle natürlichen Bodenfunktionen übernehmen kann, aufgebracht. Diese Bodenschicht oberhalb der Verfüllung muss eine Mindestmächtigkeit von 2m aufweisen. Nutzungs- und standortspezifisch kann eine größere Mächtigkeit festgelegt werden.
4. Eine Verwertung von Bodenmaterial, das die Zuordnungswerte Z 1.1 (Feststoff/ Eluat neu) überschreitet, ist aus Gründen des vorsorgenden Boden- und Grundwasserschutzes auch bei günstigen hydrogeologischen Bedingungen nicht zulässig.
 5. In Gebieten mit naturbedingt oder großflächig siedlungsbedingt erhöhten Gehalten können unter Berücksichtigung der Sonderregelung des § 9 Abs.2 und Abs.3 BBodSchV für einzelne Parameter spezifische Zuordnungswerte (als Ausnahmen von den Vorsorgewerten nach Anhang 2 Nr.4 BBodSchV) festgelegt werden, soweit die dort genannten weiteren Tatbestandsvoraussetzungen erfüllt sind.

ANHANG 1

Anwendungsbereiche der Technischen Regeln für die Verfüllung von Abgrabungen und Tagebauen



ANHANG 2

Vergleich der Vorsorgewerte für Böden nach § 8 Abs. 2 Nr. 1 BBodSchG / Anhang 2 Nr.4.1 BBodSchV mit den Zuordnungswerten Z 0 und Z 1 (Feststoff) der TR Boden des LAGA-Regelwerkes (Mitteilung 20)

		Cd	Pb	Cr	Cu	Hg	Ni	Zn
Vorsorgewert Ton	mg/kg	1,5	100	100	60	1,0	70	200
Vorsorgewert Lehm/Schluff	mg/kg	1,0	70	60	40	0,5	50	150
Vorsorgewert Sand	mg/kg	0,4	40	30	20	0,1	15	60
LAGA Z 0 (alt)	mg/kg	0,6	100	50	40	0,3	40	120
LAGA Z 0 (neu)¹⁶	mg/kg	1,0	70	60	40	0,5	50	150
LAGA Z 1.1 (alt)	mg/kg	1,0	200	100	100	1,0	100	300
LAGA Z 1.1 (neu)	mg/kg	1,0 ¹⁷	140	120	80	1,0	100	300
LAGA Z 1.2 (alt)¹⁸	mg/kg	3,0	300	200	200	3,0	200	500

¹⁶ Soweit Bodenmaterial Bodenarten zuordenbar ist, gelten die bodenartspezifischen Vorsorgewerte nach Anhang 2 Nr.4 BBodSchV

¹⁷ Werte gelten für Bodenmaterial der Bodenart Sand und Lehm/Schluff. Für Bodenmaterial der Bodenart Ton gilt der Wert 1,5 mg/kg

¹⁸ Bei der Verfüllung von Abgrabungen sind Z 1.2 – Verwertungen aus Gründen des vorsorgenden Boden- und Grundwässerschutzes nicht zulässig

Beschluss der 26. ACK am 11./ 12.Oktober 2000 in Berlin zu TOP 53.1:

Anpassung der Zuordnungswerte des LAGA-Regelwerkes „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen – Technische Regeln“ an die Vorgaben der Bundes-Bodenschutzverordnung

- Abgrenzung der Anwendungsbereiche der Bundes-Bodenschutzverordnung hinsichtlich des Auf- und Einbringens von Materialien auf und in den Boden von den diesbezüglichen abfallrechtlichen Vorschriften

1. Die Amtschefinnen und Amtschefs der Länder stimmen den von LABO, LAGA und LAWA unter Beteiligung des Länderausschusses Bergbau formulierten Abgrenzungsgrundsätzen zu den Anwendungsbereichen der BBodSchV hinsichtlich des Auf- und Einbringens von Materialien auf und in den Boden von den diesbezüglichen abfallrechtlichen Vorschriften (Stand 08.08.2000) sowie der Begründung zu den Abgrenzungsgrundsätzen in der Fassung vom 18.09.2000 zu.
2. Die Amtschefkonferenz beauftragt die LABO auf der Grundlage der Abgrenzungsgrundsätze eine fachliche Vollzugshilfe zu § 12 BBodSchG zu erstellen und der 28.Amtschefkonferenz zu berichten.

Beschluss der 26. ACK am 11./ 12.Oktober 2000 in Berlin zu TOP 53.2:

Anpassung der Zuordnungswerte des LAGA-Regelwerkes „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Abfällen – Technische Regeln“ an die Vorgaben der Bundes-Bodenschutzverordnung

- Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen

1. Die Amtschefkonferenz stimmt dem Bericht der gemeinsamen Arbeitsgruppe von LABO, LAGA, LAWA und LAI „Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen“ zu.
2. Die Amtschefkonferenz beauftragt die LAWA eine aktualisierte Liste der Geringfügigkeitsschwellenwerte für die Beurteilung eines Grundwasserschadens zu erstellen.
3. Die Amtschefkonferenz beauftragt die LAGA die Empfehlungen der gemeinsamen Arbeitsgruppe „Harmonisierung bodenbezogener Werteregelungen“ bei der Anpassung des LAGA-Regelwerkes „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von Mineralischen Reststoffen/ Abfällen – Technische Regeln“ zu übernehmen und gegebenenfalls zu konkretisieren.
4. Die Amtschefkonferenz bittet das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit die Empfehlungen der gemeinsamen Arbeitsgruppe „Harmonisierung bodenbezogener Werteregelungen“ zur AbfKlärV, BioAbfV, UVPVwV, TA Luft und BBodSchV umzusetzen.
5. Die Amtschefkonferenz löst die gemeinsame Arbeitsgruppe „Harmonisierung der den Boden betreffenden Werteregelungen“ auf.

Einstimmiger Beschluss der WMK am 01./02.03.2001 zu TOP 30:

Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen)

Die Wirtschaftsministerkonferenz widerspricht dem Beschluss der Amtschefkonferenz der Umweltminister, bei einer Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen) ausschließlich Bodenmaterial der Einbauklasse 0 zu verwenden und bittet die Umweltministerkonferenz nachdrücklich, es bei den bisher geltenden Regelungen für die Verfüllung von Tagebauen unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht zu belassen, da diese sich in der Praxis bewährt haben und eine flexible und sachgerechte Anwendung des Bodenschutzrechts ermöglichen. Begründung: ...

Zu TOP 53.2 der 26.ACK

Bericht der gemeinsamen Arbeitsgruppe von LABO, LAGA, LAWA, LAI „Harmonisierung von Werteregelungen“

Harmonisierungsvorschläge, Pkt.4:

- LAGA-Regelwerk „Anforderungen an die stoffliche Verwertung von mineralischen Reststoffen/Abfällen - Technische Regeln“:**

Im LAGA-Regelwerk soll festgelegt werden, dass bei „bodenähnlichen Anwendungen“ (Auffüllung von Abgrabungen und Abfallverwertung im Landschaftsbau außerhalb von Bauwerken) ausschließlich Bodenmaterial der Einbauklasse 0 verwertet werden darf. Der Einbau von anderen Abfällen soll ausgeschlossen werden. Der Vorschlag bezieht sich nur auf die Verwertung (den Einbau) von Bodenmaterial unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht in der Einbauklasse 0. Diese ist wie folgt zu bewerten:

1. Sofern bei einer Baumaßnahme anfallendes Bodenmaterial keiner der in Anhang 2 Nr. 4.1 BBodSchV genannten Bodenarten zugeordnet werden kann (z.B. bei kleinräumig wechselnden Bodenarten) oder bei Bodenmaterial aus der Bodenbehandlung, gelten die Vorsorgewerte der Bodenart Lehm/Schluff bei gleichzeitiger Einhaltung der Zuordnungswerte Z0 (Eluat)¹ der TR Boden des LAGA-Regelwerkes.
2. Ist auf Grund einer flächigen und bezogen auf die Aushubtiefe einheitlichen Verbreitung der Bodenarten im Bereich der Baumaßnahme dagegen eine Zuordnung zu einer der in Anhang 2 Nr. 4.1 BBodSchV genannten Bodenarten möglich, gelten für Metalle die entsprechenden Vorsorgewerte. Eine Eluatuntersuchung ist in diesem Falle nicht erforderlich.
3. In den unter 1. und 2. genannten Fällen gelten zusätzlich die Vorsorgewerte des Anhangs 2 Nr. 4.2 BBodSchV (Humusgehalt < 8 %²) und für die nicht in der BBodSchV geregelten Parameter die Zuordnungswerte Z0 (Feststoff)³ der TR Boden des LAGA-Regelwerkes.
4. Die Ausnahmeregelung für Böden mit naturbedingt oder großflächig siedlungsbedingt erhöhten Gehalten in § 9 Abs. 2 und 3 i.V.m. § 12 Abs. 10 BBodSchV ist entsprechend anzuwenden.

¹ Eluatwerte des Bodenmaterials, die an die Vorgaben des vorsorgenden Boden- und Grundwasserschutzes angepasst werden und die sicherstellen, dass die Geringfügigkeitsschwellen im Sickerwasser unterhalb des verwerteten Bodenmaterials eingehalten werden.

² Im LAGA-Regelwerk ist zu ergänzen, dass unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht nur humusarmes Bodenmaterial eingebaut werden darf.

³ Die nicht durch die BBodSchV festgelegten Zuordnungswerte Z0 (Feststoff) der TR Boden des LAGA-Regelwerks sind im Rahmen der Überarbeitung durch die LAGA-AG „Mineralische Abfälle“ auf der Grundlage der Ableitungskriterien der BBodSchV anzupassen.

TOP 30:

Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen)

Die Wirtschaftsministerkonferenz hat einstimmig nachfolgenden Beschluss gefasst:

Die Wirtschaftsministerkonferenz widerspricht dem Beschluss der Amtschefkonferenz der Umweltminister, bei einer Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen) ausschließlich Bodenmaterial der Einbauklasse 0 zu verwenden und bittet die Umweltministerkonferenz nachdrücklich, es bei den bisher geltenden Regelungen für die Verfüllung von Tagebauen unterhalb der durchwurzelbaren Bodenschicht zu belassen, da diese sich in der Praxis bewährt haben und eine flexible und sachgerechte Anwendung des Bodenschutzrechtes ermöglichen.

Begründung:

Mit Beschluss vom 11./12. Oktober 2000 hat die 26. Amtschefkonferenz der Umweltminister einem Bericht „Harmonisierung bodenbezogener Werteregelungen“ und seiner Umsetzung zugestimmt, der den Gremien der Wirtschaftsministerkonferenz in seinen Einzelheiten erst jetzt bekannt wurde. In diesem Bericht ist u.a. ausgeführt, dass bei „Auffüllung von Abgrabungen“ ausschließlich Bodenmaterial der Einbauklasse 0 verwendet werden darf. Der Einbau von anderen Abfällen soll ausgeschlossen werden. Einbauklasse 0 heißt, dass das Auffüllmaterial von jeglicher Schadstoffbelastung frei sein muss, also reiner unbelasteter Boden, wie es die Vorsorgewerte der Bundesbodenschutzversorgung bei anderer Verwendung vorsehen. Eine Voraussetzung, die kaum von Blumenerde erfüllt werden kann. Materialien dieser Güteklaasse sind so gut wie nicht verfügbar.

Das Gleiche gilt für die unter Bergaufsicht stehenden Tagebaue, bei denen die Verwirklichung der auch dem Bodenschutz dienenden Schutzziele des Bundesberggesetzes durch die Berücksichtigung bodenbezogener Werte erfolgt, allerdings unter Beachtung der besonderen Verhältnisse des Bergbaus.

Bisher können Materialien (Bodenaushub, Bauschutt und sonstige geeignete mineralische Abfälle) in Abhängigkeit von den jeweiligen Standortbedingungen – und in Abstimmung mit den beteiligten Umweltschutzbehörden – beim Vorliegen hydrogeologisch günstiger Bedingungen bis Einbauklasse 1.2 und in Verbindung mit zusätzlichen technischen Sicherungsmaßnahmen auch bis Einbauklasse 2, unter Zugrundelegung bestimmter Grenzwerte, für die Verfüllung zugelassen werden. Dabei wird grundsätzlich sichergestellt, dass in der durchwurzelbaren Bodenschicht (Oberboden) die bodenbezogenen Vorsorgewerte eingehalten werden.

Die bisher praktizierte Festlegung einer standortspezifischen Einbauklasse trägt den Anforderungen des vorbeugenden Umwelt- und Bodenschutzes angemessen Rechnung und hat sich in der Praxis als sachgerecht und flexibel bewährt.

In der gesamten Bundesrepublik Deutschland werden pro Jahr - mit steigender Tendenz – nach bisherigen Schätzungen mehr als 100 Mio. t der o.g. Materialien zur Verfüllung eingesetzt. Selbst bei konservativster Abschätzung, dass nur etwa 50 % der zu verwertenden Bodenmaterialien oberhalb von Zuordnungswerten der Einbauklasse 0 liegen, verbleiben immer noch ca. 50 Mio. t, die künftig keiner Verfüllung mehr zugeführt werden könnten bzw. für die entsprechende Deponiekapazitäten zu schaffen wären.

Eine Festlegung der Verwertung auf LAGA-Einbauklasse 0, wofür es letztlich keine ausreichend sachliche Begründung gibt, würde eine nicht tragbare, drastische Verschärfung der Anforderungen an die Zulässigkeit der Verwertung von Abfällen beim Abbau von Rohstoffen bedeuten, mit der Folge, dass:

- ein Großteil der Tagebaue generell nicht mehr oder nicht im erforderlichen Umfang verfüllt werden könnte, da nicht ausreichend Bodenmaterial der Güteklaasse 0 zur Verfügung steht,
- behördlich vorgesehene und bereits festgelegte Folgenutzungen nicht realisierbar wären,
- Festlegungen aus bereits zugelassenen Betriebsplänen oder Planfeststellungsverfahren nicht umgesetzt werden könnten, was erhebliche juristische Probleme mit sich bringt letztlich die Rohstoffwirtschaft nachhaltig eingeschränkt würde, weil sie die Wiedernutzbarmachungsverpflichtungen nicht mehr erfüllen kann.

Die mit einer solchen Vorgabe verbundenen finanziellen Belastungen lassen sich kaum abschätzen.

(Ende TOP)

**58. Umweltministerkonferenz
am 6./7. Juni 2002
in Templin**

TOP 14: Verfüllung von Abgrabungen

Beschluss:

1. Die Umweltministerkonferenz nimmt den zwischen LABO, LAGA und LAWA unter Mitwirkung des LAB abgestimmten Bericht „Verfüllung von Abgrabungen“ zur Kenntnis.
2. Die Umweltministerkonferenz stimmt den im Bericht „Verfüllung von Abgrabungen“ getroffenen Regelungen zu.
3. Die Umweltministerkonferenz hält den Bericht für geeignet, den Widerspruch der WMK vom 01./02. März 2001 gegen den Beschluss der 26. Amtschefkonferenz zu TOP 53.2 auszuräumen.
4. Die Umweltministerkonferenz bittet das Umweltministerkonferenz-Vorsitzland, die WMK über die Regelungen zur Verfüllung von Abgrabungen zu unterrichten.

„Protokollerklärung Sachsen:

Der Freistaat Sachsen ist der Auffassung, dass dem Betreiber ergänzend zu der Bemessung des Schadstoffpotenzials an der Unterkante des eingebauten Bodenmaterials die Möglichkeit des Nachweises eingeräumt werden muss, dass trotz Überschreitung der Eluatwerte an der Unterkante der Verfüllung die Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes am Übergang der gesättigten zur ungesättigten Zone im Einzelfall eingehalten werden.“

TOP 6.2:

Verfüllung von Abgrabungen

Die Amtschefskonferenz hat für die Wirtschaftsministerkonferenz einstimmig (14 : 0 : 2) nachfolgenden Beschluss gefasst:

1. Die Wirtschaftsministerkonferenz nimmt den zwischen LABO, LAGA und LAWA unter Mitwirkung des LAB erstellten Bericht "Verfüllung von Abgrabungen" zur Kenntnis und stimmt dem Arbeitsergebnis zu.
2. Die Wirtschaftsministerkonferenz weist angesichts der grundsätzlichen Bedeutung für die Verwertung von Boden und das Recycling von Baustoffen auf das Fehlen von harmonisierten Eluat-Werten hin. Die Umsetzung des Geringfügigkeitsschwellenkonzeptes auf neue Eluat-Werte darf nur aufgrund von gesicherten wissenschaftlichen Erkenntnissen erfolgen. Bei der Umsetzung ist außerdem den ökonomischen Bedürfnissen der betroffenen Industrie (Steine-Erden, Baustoffrecycling und Baustoffe) Rechnung zu tragen.
3. Die Wirtschaftsministerkonferenz geht davon aus, dass bis zum Vorliegen harmonisierter Werte für Eluate die bisherigen Regelungen in den Ländern auch weiterhin gelten.

(Ende TOP)

...

Anlage 6

Leistungsbeschreibung für ein Gutachten zur Beschreibung von fachlichen Eckpunkten für die Festlegung von Zuordnungswerten der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1) für organische Schadstoffe in Bodenmaterial und Bauschutt (Stand 01.03.2002)

1. Problemstellung

Im Zusammenhang mit der Anpassung der LAGA-Mitteilung 20 an die Bundes-Boden- schutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) gab es zwischen der Umweltministerkonfe- renz und der Wirtschaftsministerkonferenz unterschiedliche Auffassungen über die materiel- len Anforderungen, die an Materialien/Abfälle zu stellen sind, mit denen Abgrabungen (Bo- denabbaustätten, z. B. Ton-, Sand-, Kiesgruben, Steinbrüche) verfüllt werden dürfen¹. Nach intensiven Beratungen zwischen den zuständigen Länderarbeitsgemeinschaften² ist der Bericht „Verfüllung von Abgrabungen“, (Stand: 29.10.2001) erstellt worden, der einen Lö- sungsweg aufzeigt und in nahezu allen Punkten einvernehmlich von allen betroffenen Län- derarbeitsgemeinschaften getragen wird (siehe Anlage).

Eine abweichende Auffassung des Länderausschusses Bergbau (LAB) besteht noch hin- sichtlich der Übernahme der Vorsorgewerte für organische Schadstoffe gemäß Anhang 2 Nr. 4.2 BBodSchV (Humusgehalt $\leq 8\%$) als Zuordnungswerte Z 1.1 (Feststoff - neu) der Einbauklasse 1.1 (Variante 1 gemäß Tabelle 1). Der LAB fordert hier die Beibehaltung der bisher für die Einbauklasse 1.1 festgelegten Zuordnungswerte Z 1.1 (Feststoff) für organi- sche Schadstoffe (Variante 2 gemäß Tabelle 1) analog zur Erhöhung der Vorsorgewerte für Schwermetalle. Bei den Schwermetallen ist diese Erhöhung verknüpft mit Eluatwerten, die sicherstellen, dass die Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes eingehalten werden. Für organische Schadstoffe gibt es jedoch noch keine Eluatwerte, da zurzeit kein geeignetes und anerkanntes Elutionsverfahren zur Verfügung steht. Das BMBF-Verbund- forschungsvorhaben „Sickerwasserprognose“ wird hierfür wesentliche Erkenntnisse liefern, mit denen jedoch frühestens in 2 bis 3 Jahren zu rechnen ist.

Bis zum Vorliegen eines Elutionsverfahrens für organische Schadstoffe müssen daher für den Übergangszeitraum Zuordnungswerte (Z 1.1 neu) auf der Grundlage der derzeit vorlie- genden Erkenntnisse festgelegt werden. Dabei ist insbesondere das Verhältnis zwischen den Gehalten im Feststoff und den Konzentrationen im Eluat der verschiedenen Abfälle zu berücksichtigen. Der Besorgnisgrundsatz des Wasser- und Bodenschutzrechtes und der Grundsatz der Schonung von natürlichen Ressourcen in Verbindung mit der Pflicht zur schadlosen und ordnungsgemäßen Abfallverwertung sind dabei zu beachten.

¹ Beschluss der Wirtschaftsministerkonferenz am 01./02./03.2001 zu TOP 30: „Verfüllung von Tagebauen (Abgrabungen),“

² LAWA, LABO und LAGA für den Bereich der Umweltministerkonferenz und LA Bergbau für den Bereich der Wirtschaftsministerkonferenz

2. Untersuchungsauftrag

Im Rahmen einer wissenschaftlichen Ausarbeitung ist mit Hilfe einer Auswertung der Literatur sowie bisher durchgeführter Untersuchungen eine Entscheidungsgrundlage für die Festlegung der neuen Zuordnungswerte für organische Schadstoffe in der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1 Feststoff - neu) zu schaffen. Diskutiert werden zwischen LABO, LAWA, LAGA und LAB folgende Alternativen:

Tabelle 1: Mögliche Varianten für die Festlegung von Zuordnungswerten (Feststoffgehalte) für organische Schadstoffe in der Einbauklasse 1.1 (Z 1.1 neu)

Parameter		PAK ¹⁾	BaP	PCB ²⁾	EOX	MKW	Σ BTEX	Σ LHKW
Variante 1	mg/kg	3	0,3	0,05	k. A.	k. A.	k. A.	k. A.
Variante 2	mg/kg	5	0,5	0,1	3	300	1	1

¹⁾ PAK nach EPA

²⁾ Congenere nach DIN 51527

Einvernehmen besteht zwischen den betroffenen Länderarbeitsgemeinschaften, dass das Sickerwasser, das aus einer solchen Maßnahme in den Untergrund eintritt, nicht mehr als nur geringfügig belastet sein darf. Das heißt, die Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes müssen in diesem Sickerwasser unterschritten werden. In Tabelle 2 sind die Prüfwerte für den Wirkungspfad Boden-Grundwasser nach Anhang 2 Nr. 3.1 BBodSchV aufgeführt. Die Konzentration eines Schadstoffs, ab der eine Gefahr für das Grundwasser besteht, ist unabhängig davon, ob sie durch eine vorhandene Bodenverunreinigung oder eine geplante Maßnahme hervorgerufen wird. Insoweit sind die Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes mit den Prüfwerten der BBodSchV gleichzusetzen.

Tabelle 2: Prüfwerte für den Wirkungspfad Boden-Grundwasser für organische Schadstoffe nach Anhang 2, Nr. 3.1 BBodSchV
(fachlicher Bezug zu den Geringfügigkeitsschwellen des Grundwasserschutzes vgl. Text)

Parameter		PAK ¹⁾	Naphth.	PCB ²⁾		MKW ³⁾	Σ BTEX ⁴⁾	Σ LHKW ⁵⁾
Konzentration	µg/l	0,20	2	0,05		200	20	10

¹⁾ Summe PAK (15 Einzelsubstanzen nach EPA ohne Naphthalin)

²⁾ Congenere nach DIN 51527 multipliziert mit 5

³⁾ n-Alkane, Isoalkane, Cycloalkane und aromatische Kohlenwasserstoffe

⁴⁾ Leichtflüchtige aromatische Kohlenwasserstoffe (Benzol, Toluol, Xylole, Ethylbenzol, Styrol, Cumol)

⁵⁾ Leichtflüchtige Halogenkohlenwasserstoffe (Summe der halogenierten C1- und C2-Kohlenwasserstoffe)

Im Rahmen der Untersuchung (Auswertung vorhandener Untersuchungen und daraus abgeleitete Abschätzungen) ist zu ermitteln, ob bzw. inwieweit es bei einer der beiden o. g. Varianten zu einer Überschreitung der Geringfügigkeitsschwellen im Sickerwasser kommen kann. Der Schwerpunkt der Untersuchungen soll dabei bei dem Parameter PAK (BaP) liegen. Soweit Daten zur Verfügung stehen, sind auch die anderen Parameter zu bewerten. Zu betrachten sind die folgenden Fallgestaltungen/Materialien, die jeweils eine Belastung aufweisen, die den Varianten 1 und 2 gemäß Tabelle 1 entspricht:

Fall 1: Verfüllung einer Bodenabbaustätte (z. B. Kies, Sand- oder Tongrube) mit humusarmem Bodenmaterial (TOC < 0,5 %):

- 1.1: die Belastung entspricht der Variante 1
- 1.2: die Belastung entspricht der Variante 2

Zur Beurteilung dieser Fallgestaltung sind insbesondere Daten zu TOC (Feststoff) und PAK (Feststoff, Eluat, Perkolat, ggf. Sickerwasser) von Bodenmaterial aus dem Unterbodenbereich (ungestörte Verhältnisse, Stadtböden) von Bedeutung. Sofern Daten zu Unterböden mit TOC-Gehalten > 0,5 % verfügbar sind, sollten diese bei der Auswertung mit berücksichtigt werden.

Fall 2³: Durchwurzelbare Bodenschicht mit einer Dicke von 0,5 bis 2,0 m (z. B. Abdeckung eines Lärmschutzwalls oder Rekultivierungsschicht einer Deponie) mit humosem Bodenmaterial (TOC ≥ 1 bis ca. 4 %):

- 2.1: die Belastung entspricht der Variante 1
- 2.2: die Belastung entspricht der Variante 2

Zur Beurteilung dieser Fallgestaltung sind insbesondere Daten zu TOC (Feststoff) und PAK (Feststoff, Eluat, Perkolat, ggf. Sickerwasser) von Bodenmaterial aus dem Oberbodenbereich (ungestörte Verhältnisse, Stadtböden) von Bedeutung.

Fall 3⁴: Wasserdurchlässige Tragschicht aus Recyclingbaustoff (gebrochener Bauschutt) mit einer Dicke von 0,25 bis 0,50 m (z. B. Parkplatz oder Gewerbefläche) ohne eine wasserundurchlässige Deckschicht (ohne technische Sicherungsmaßnahme):

- 3.1: die Belastung entspricht der Variante 1

³ Das in dieser Fallgestaltung beschriebene Material soll nicht für die Verfüllung von Abgrabungen sondern für eine durchwurzelbare Rekultivierungsschicht z. B. von Siedlungsabfalldeponien verwendet werden. Auch hier stellt sich die Frage, ob und in welchem Umfang bei einem derartigen Material und bei diesem Verwendungszweck Abweichungen von den Vorsorgewerten der BBodSchV zugelassen werden können, ohne dass gegen die Anforderungen des vorsorgenden Umweltschutzes verstoßen wird.

⁴ Die Bewertung des in dieser Fallgestaltung beschriebenen Materials soll zur Klärung der Grundwasserrelevanz von PAK-Belastungen im Recycling-Baustoff, der im offenen Verkehrswegebau verwendet wird, beitragen. Der Recycling-Baustoff soll nicht für die Verfüllung von Abgrabungen verwendet werden.

3.2: die Belastung entspricht der Variante 2

Zur Beurteilung dieser Fallgestaltung sind in Anlehnung an die Feststoffzuordnungswerte Z 1.1 für Bauschutt (offener Einbau, ungünstige hydrogeologische Bedingungen) Recycling-Baustoffe mit PAK-Gehalten bis zu 20 mg/kg (Feststoff) von Bedeutung.

Die Ergebnisse des Gutachtens sollen in einem Fachgespräch unter Beteiligung von Vertreterinnen und Vertretern der betroffenen Länderarbeitsgemeinschaften und Fachleuten aus Wissenschaft und Verbänden präsentiert und erörtert werden.

**Ergebnisvermerk des Arbeitsgespräches zum UBA-Gutachten „Beschreibung von fachlichen Eckpunkten für Festlegung von Zuordnungswerten für die Einbauklasse 1.1 (Z 1.1) für organische Schadstoffe in mineralischen Abfällen“
(Stand: 08.04.2002)**

1. Herr Dr. Bannick begrüßt die Teilnehmerinnen und Teilnehmer (siehe Anwesenheitsliste) und erläutert den Hintergrund des Vorhabens.
2. Herr Dr. Bertram erläutert den Konflikt bei der Verfüllung von Abgrabungen und den aktuellen Stand der Lösung. Offen ist zur Zeit noch die Höhe der Zuordnungswerte für organische Schadstoffe, insbesondere PAK. Er bedankt sich beim UBA dafür, dass es möglich war, einen Lösungsvorschlag für den Konfliktpunkt „organische Schadstoffe“ im Rahmen eines UBA-Gutachtens zu erarbeiten.
3. Herr Prof. Dr. Grathwohl stellt die Ergebnisse des Gutachtens vor. Er erläutert die Ergebnisse der drei gewählten methodischen Ansätze (Auswertung von Versuchsergebnissen, empirische Korrelationen aus der Literatur, Berücksichtigung nichtlinearer Sorption). Daraus werden folgende Empfehlungen abgeleitet:
 - Gehalte > 3 mg PAK/kg führen in der Regel zu Überschreitungen des Geringfügigkeitsschwellenwertes von 0,20 µg/l.
 - Entsprechendes gilt für Naphthalin (die Geringfügigkeitsschwelle liegt um den Faktor 10 höher bei einer entsprechend verminderten Sorption).
 - Für Benz(a)pyren als Einzelstoff wären zwar höhere Gehalte zulässig, jedoch ist dieses aufgrund der gängigen PAK-Muster für die Praxis ohne Bedeutung.
 - Bei PCB führt eine Verdoppelung des Vorsorgewertes von 0,05 mg PCB/kg auf 0,10 mg PCB/l in der Regel nicht zu einer Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes.
 - Bei MKW kann unter der Voraussetzung, dass es sich um gealterte Rückstände mit aliphatischen Kohlenwasserstoffen > C₁₀ handelt, ein Feststoffgehalt von bis zu 1000 mg/kg zugelassen werden, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten ist.
 - Bei BTEX sind Gehalte bis zu 1 mg/kg möglich, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten ist.
 - Bei LHKW sind Gehalte bis zu 0,5 mg/kg möglich, ohne dass eine Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes zu erwarten ist.
 - um eine gesicherte Aussage über organische Schadstoffe im Sickerwasser zu erhalten, werden Säulenversuche empfohlen.

Die Ableitungen für PCB, BTEX, MKW und LHKW gilt unter den gleichen Annahmen, die bei PAK zu einem Wert von ca. 3 mg/kg führen (nicht lineare Sorption mit $1/n = 0,75$ und TOC = 2%).

4. Die Diskussion ergab Folgendes:

- Die fachliche Konzeption des Gutachtens und seine Durchführung durch Herrn Prof. Dr. Grathwohl sind in der vorgelegten Form für die Festlegung neuer Zuordnungswerte (Feststoffwerte, bei denen von der Einhaltung der Geringfügigkeitsschwellenwerte ausgegangen werden kann) geeignet. Die Ergebnisse können für die Festlegung von Anforderungen an die Entsorgung von mineralischen Abfällen, insbesondere zur Verfüllung von Abgrabungen und vergleichbaren Fallgestaltungen (z. B. technische Bauwerke gemäß LAGA-Mitteilung 20), zugrunde gelegt werden.
- Die Teilnehmer sprechen sich für Festlegung von Feststoffgehalten - entsprechend dem Vorschlag von Prof. Dr. Grathwohl - für organische Schadstoffe in mineralischen Abfällen, die bei der Verfüllung von Abgrabungen verwertet werden sollen, aus. Für die Festlegung der neuen Zuordnungswerte Z 1.1 folgt daraus, dass für organische Schadstoffe grundsätzlich die zweifachen Vorsorgewerte (Humusgehalt < 8 %) zugelassen werden können. Da bei PAK-Gehalten > 3 mg PAK/kg die Gefahr einer Überschreitung des Geringfügigkeitsschwellenwertes von 0,20 µg/l erheblich ist, muss bei PAK-Gehalten zwischen 3 und 6 mg/kg zusätzlich mit Hilfe eines Säulenversuches nachgewiesen werden, dass die Geringfügigkeitsschwellenwerte im Sickerwasser eingehalten werden. Für PCB und BaP ist aufgrund der Ergebnisse des Gutachtens ein solcher Nachweis nicht erforderlich. Bei LHKW-Gehalten > 0,5 mg/kg und < 1 mg/kg ist analog zum Parameter PAK die Einhaltung des Geringfügigkeitsschwellenwertes mit Hilfe eines Säulenversuches nachzuweisen. Die neuen Zuordnungswerte sind als Anlage beigefügt.
- Die Ergebnisse sollten bei Vorliegen weitergehender Erkenntnisse, insbesondere im Rahmen des BMBF-Forschungsvorhabens „Sickerwasserprognose“, überprüft und weiterentwickelt werden. Hierzu ist es auch erforderlich, dass geeignete Untersuchungsergebnisse (Datensätze mit der Konzentration im Sickerwasser und dem Gehalt im Feststoff) gesammelt und in auswertbarer Form vorgehalten werden.
- Für grobkörnige Materialien, die in dünnen Schichten eingebaut werden und schnell durchströmt werden (kurze Kontaktzeiten zwischen Material und Sickerwasser), das heißt Fallgestaltungen, bei denen sich aufgrund der Randbedingungen eine Gleichgewichtskonzentration im Sickerwasser nicht einstellt,

len kann (z. B. Recyclingbaustoff in Tragschichten), ist auf der Grundlage der Ergebnisse des Gutachtens zu prüfen, inwieweit höhere Zuordnungswerte zulässig sind.

5. Herr Dr. Schuldt als Vertreter des LABO-Vorsitzes zeigt sich erfreut über das Gesprächsergebnis und teilt mit, dass er dieses in die nächste LABO-Sitzung einbringen wird, die am 10. und 11.04.2002 stattfinden wird. Er geht davon aus, dass auf dieser Grundlage der Konflikt zwischen WMK und UMK ausgeräumt werden kann.
6. Herr Dr. Bannick wird den Entwurf des Ergebnisvermerkes allen Teilnehmern kurzfristig zur Abstimmung zusenden. Die Endfassung des Gutachtens wird allen Beteiligten nach Vorlage zur Verfügung gestellt.
7. Herr Dr. Bannick bedankt sich für die konstruktive Diskussion und insbesondere bei Herrn Prof. Dr. Grathwohl für die hervorragende Arbeit und Präsentation der Ergebnisse.

Anlage 8

Teilnehmerliste

Arbeitsgespräch zum Gutachten des Umweltbundesamtes zur Beschreibung
fachlicher Eckpunkte für die Festlegung von Zuordnungswerten der Einbauklasse Z
1.1 für organische Schadstoffe in mineralogischen Abfällen
Am 08.04.2002 in Hannover

Name	Organisation/Behörde
Leuchs, Wolfgang	LAWA
Böhme, Martin	LAWA-AG
Ast, Martin	LAWA-Gsst.
Oberacker, Frank	Gsst. BMBF-Verbund
Huck, Sabine	UBA – Abt. Boden
Dinkelberg, Wolfgang	LABO
Möller-Lindenholz,	LAB
Neidhart, Volker	BVB
Larres, Ulf	LAB
Müller, Wolf	B.V. Steine+Erden
Szenkler, Christa	B.V. Steine+Erden
Schuldt, Manfred	LABO
Bertram, Heinz-Ulrich	LAGA
Neumann, Wolfgang	BGR