

**Durchführung und Auswertung von  
Versuchen mit 2 Lysimetern  
in der Anlage des LUA NRW in Waldfeucht  
zur Beurteilung der mobilen und  
mobilisierbaren Anteile von PAK in der  
ungesättigten Bodenzone**

von

Dr. Frank Pfeifer

Deutsche Montan Technologie GmbH

**Im Auftrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen**

**Essen, 2002**

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
"Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

---

Das Untersuchungsvorhaben wurde von einer Arbeitsgruppe begleitet, der folgende Mitglieder angehörten:

Dr. Axel Barrenstein	LUA, Fachbereich 23
Dr. Thomas Bistry	LUA, Fachbereich 52
Dr. Josef Haider (zeitweise)	LUA, Fachbereich 33
Dr. Andrea Hädicke	LUA, Fachbereich 34
Dr. Anneget Hembrock-Heger (zeitweise)	LUA, Fachbereich 33
Dipl.-Ing. Michael Odenaß (Obmann)	LUA, Fachbereich 34
Dipl.-Ing. Stefan Schroers	LUA, Fachbereich 34
Dr. Frank Pfeifer	DMT

## **Impressum**

Herausgeber: Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA NRW)  
Wallneyer Straße 6 • 45133 Essen • Telefon (02 01) 79 95 - 0 •  
Telefax (02 01) 79 95 – 14 48  
E-Mail: poststelle@lua.nrw.de

Erscheinungsort/-datum: Essen, 2002

Projektleitung und  
Gesamtredaktion: Dipl.-Ing. Michael Odenaß  
Dipl.-Ing. Stefan Schroers  
Landesumweltamt NRW

Informationsdienste  
des LUA NRW: Umweltdaten aus NRW, Fachinformationen:  
• Internet unter <http://www.lua.nrw.de>  
• WDR-Videotext, 3. Fernsehprogramm, Tafeln 177-179

Gedruckt auf 100 % Altpapier ohne Chlorbleiche

## **Inhaltsverzeichnis**

	Seite
1. Ausgangssituation	4
2. Aufgabenstellung	5
3. Projektdaten	6
4. Methoden	7
5. Ergebnisse	8
5.1 Bodenproben	8
5.1.1 Bodenauswahl und Bodenvorbereitung	8
5.1.2 Befüllung der Lysimeter und Versuchsaufbau	8
5.1.3 Eingangscharakterisierung der Bodenprobe 1.1	11
5.1.4 Eingangscharakterisierung der Bodenprobe 6.2	15
5.2 Voruntersuchungen zur Charakterisierung der Bodenmaterialien	20
5.2.1 Charakterisierung des TOC von Boden 1.1	20
5.2.2 Untersuchung des biologischen Abbauverhaltens	21
5.3 Versuchsplan für den Betrieb der Lysimeter	27
5.4 Ergebnisse der Lysimeterversuche	29
5.4.1 Klimatische Gegebenheiten und Sickerwasseranfall	29
5.4.2 Tracerexperimente	33
5.4.3 Zeitlicher Verlauf des Schadstoffaustrages	38
5.4.4 Schadstoffverteilung im Boden nach Versuchsbeendigung	44
5.4.5 Schadstoffbilanzierung	47
5.4.5.1 Boden 1.1	47
5.4.5.2 Boden 6.2	48
5.5 Ergebnisse der Labor-Elutionsversuche	50
6. Zusammenfassung und vergleichende Bewertung der Untersuchungsergebnisse	53

## 1. Ausgangssituation

Nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) vom 17.07.1999 ist die Kenntnis von Gehalten gelöster Stoffe im Sickerwasser Grundlage für die Beurteilung einer von Bodenbelastungen ausgehenden Grundwassergefahr. Um das Gefährdungspotenzial für das Grundwasser durch Schadstoffe im Bereich der ungesättigten Bodenzone zu bestimmen, müssen somit Informationen zum Anteil mobiler und mobilisierbarer Schadstoffe in der jeweiligen Bodenmatrix vorliegen. Zur Ermittlung des Auslaugverhaltens von Schadstoffen aus Böden und Feststoffen stehen prinzipiell folgende Untersuchungsmethoden zur Verfügung:

- Standversuche (statisch, dynamisch)
- Schüttelversuche (statisch, dynamisch)
- Säulenversuche
- Lysimeterversuche

Für eine realitätsnahe Beurteilung des Auslaugverhaltens von schadstoffbelasteten Böden liefern nach gegenwärtigem Kenntnisstand Lysimeterversuche oder Langzeituntersuchungen (Freiland) die verlässlichsten Daten, da i. d. R. auch chemische, mikrobiologische, mineralogische und hydromechanische Vorgänge im Boden erfasst werden. Da diese jedoch sehr zeit- und kostenintensiv sind, werden in der Praxis Labor-Elutionsversuche (Stand-, Schüttelversuche) durchgeführt, welche jedoch bezüglich ihrer Aussagekraft über das Langzeit-Mobilisierungsverhalten von Schadstoffen in kontaminierten Böden kontrovers diskutiert werden. Sie können reale Verhältnisse allenfalls näherungsweise abbilden, weil u.a. das Verhältnis von Wasser zu Feststoff in der Natur wesentlich geringer und die Verweilzeit des Sickerwassers in der Natur eine andere ist. Als zusätzliche Schwierigkeit ist die Aufbereitung trüber Lösungen für die chemische Analytik zu nennen (Sorptionsverluste durch Filtration). U. a. aufgrund dieser Sachverhalte ist in der BBodSchV neben Lysimeteruntersuchungen der Säulenversuch als Verfahren zur Prognose von Stoffgehalten (organische Stoffe) im Bodensickerwasser vorgesehen. Eine vorläufige Verfahrens- und Auswertevorschrift wurde mit der Vornorm DIN 19736 (10/98) vorgelegt, welche durch das im März 2000 vom LUA-NRW herausgegebene Merkblatt Nr. 20 bezüglich der Durchführung und Auswerteformel vereinfacht und konkretisiert wird. Jedoch ist auch beim Säulenversuch anzumerken, dass aufgrund größtenteils fehlender Vergleichsdaten zu realen Sickerwasserkonzentrationen zumindest für wesentliche Schadstoffgruppen noch eine Validierung aussteht.

Ein erster Vergleich von Ergebnissen aus Lysimeter- und Säulenversuchen wurde im Rahmen des vom LUA-NRW finanzierten Forschungsvorhabens „Durchführung von Versuchen mit 4 klimatisierten Großlysimetern zur Beurteilung PAK-kontaminierter Böden im Hinblick auf den Wirkungspfad Grundwasser“ (9/94 - 11/97) anhand von 3 PAK-kontaminierten Böden durchgeführt (MALBO Band 6, 1998). Dabei zeigte sich, dass die Schadstoffkonzentrationen im Säuleneluat und Lysimetersickerwasser vergleichbare Werte liefern können, dass jedoch eine Auswertung über die Emissionsraten, wie sie für die untersuchten Bodenproben durch o. g. DIN-Vornorm festgelegt ist, drastische Höherbefunde bei den Säulenversuchen im Vergleich zu den realitätsnahen Lysimeteruntersuchungen lieferte. Da weitere Untersuchungen zum Methodenvergleich nach unserem Kenntnisstand bislang

nicht vorliegen, war bei der Konzeptionierung dieses Vorhabens mit Bezug auf die anstehende Umsetzung des Bundes-Bodenschutzgesetzes akuter Untersuchungsbedarf zu folgenden Punkten ableitbar:

- Validierung der Versuchsdurchführung und Auswerteformel zu den Säulenversuchen sowie Vergleich mit weiteren Kurzzeit-Elutionsmethoden
- Ergebnisvergleich von Kurzzeit-Labormethoden (insbesondere Säulenversuche) mit realitätsnahen Lysimeteruntersuchungen

Der erste Punkt wurde aktuell im Rahmen des Anfang 2000 abgeschlossenen LUA-NRW-Projektes „Vergleich und Bewertung von Untersuchungsmethoden zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile von Gehalten ausgewählter organischer Schadstoffe in der ungesättigten Bodenzone“ (Kurztitel: Vergleich von Elutionsmethoden) anhand einer größeren Anzahl PAK-belasteter Bodenproben untersucht. Als wesentliches Projektergebnis konnte hier eine für die Schadstoffklasse der PAK validierte und vereinfachte Vorschrift für die Versuchsdurchführung und die Auswerteformel abgeleitet werden, welche im bereits erwähnten Merkblatt Nr. 20 des LUA-NRW „Empfehlungen für die Durchführung und Auswertung von Säulenversuchen nach BBodSchV“ dokumentiert ist.

Der 2. Punkt ist Gegenstand des vorliegenden Projektes, zu dessen Durchführung die Deutsche Montan Technologie GmbH (DMT) vom Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA-NRW) mit Werkvertrag vom 04.09.1998 und ergänzendem Werkvertrag vom 02.01.2001 beauftragt wurde.

## **2. Aufgabenstellung**

Zielsetzung des Vorhabens ist es, Lysimeteruntersuchungen an 2 PAK-kontaminierten Böden über einen Zeitraum von 22 Monaten durchzuführen, um das Verhalten der Schadstoffe im Boden bei unterschiedlichen Bodenarten im Hinblick auf den Wirkungspfad „ungesättigte Bodenzone → Grundwasser“ unter realitätsnahen Bedingungen zu bestimmen. Ein wesentliches Teilziel stellt dabei die Erarbeitung einer realitätsnahen Bezugsgröße (reale PAK-Sickerwasserkonzentration) für einen Ergebnisabgleich mit den Untersuchungen im Rahmen des Projektes „Vergleich von Elutionsmethoden“ dar, was zu einer Validierung insbesondere der Säulenversuche beitragen soll. Entsprechend werden die Lysimeteruntersuchungen mit kontaminierten Bodenproben durchgeführt, welche parallel im Rahmen des o. g. Vorhabens für Elutionsversuche eingesetzt wurden. Die Durchführung weiterer Elutionsversuche erfolgte mit den Böden nach Beendigung der Lysimeterversuche.

Für die Lysimeterversuche sollten jeweils ein PAK-belasteter anthropogen beeinflusster Boden (Anschüttung) und ein gewachsener Boden (Schluff/Sand) eingesetzt werden.

Die Untersuchungen wurden in 2 Lysimetern der Anlage des LUA-NRW in Waldfeucht (Abmessungen: A = 1,5 m<sup>2</sup>, h = 1.500 mm, Kapazität ca. 3.000 kg Boden) durchgeführt. Die Lysimeter sollten den natürlichen Temperatur- und Niederschlagsereignissen ausgesetzt werden.

Das Untersuchungsprogramm umfasste neben der Berichterstattung folgende Teilleistungen:

1. Bodenauswahl sowie Entnahme und Transport der Böden zur Lysimeteranlage
2. Einbau der Böden in die Lysimeter
3. Entsorgung überschüssiger Bodenmengen
4. Eingangsanalytik der Bodenproben
5. Erstellung eines Versuchsplanes
6. Betrieb der Lysimeteranlage sowie analytische Bestimmungen im Sickerwasser
7. Abschlussanalytik der Böden nach Versuchsbeendigung
8. Elutionsversuche mit den Böden nach Beendigung der Lysimeterversuche

Die Durchführung des Projektes erfolgte in enger Absprache mit der projektbegleitenden Arbeitsgruppe des LUA-NRW. Bei einigen der oben aufgeführten Teilleistungen wurde auf personelle und analytische Kapazitäten des LUA-NRW zurückgegriffen.

Im vorliegenden Abschlussbericht werden die ausgeführten Arbeiten und wesentlichen Ergebnisse zu den Positionen 1, 2, 4, 5, 6, 7 und 8 zusammenfassend dargestellt, welche im Zeitraum 09/98 – 02/01 erzielt wurden.

### **3. Projektdaten**

Projekttitel: Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile von PAK in der ungesättigten Bodenzone

Auftraggeber: Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
Fachbereich 34 – Altlasten-  
Wallneyer Straße 6  
45133 Essen

Laufzeit: 04.09.1998 – 28.02.2001

Projektleiter: Dr. rer. nat. Frank Pfeifer

zeitlicher Verlauf: 09/98-10/98 Entnahme und Transport der Böden  
11/98-12/98 Befüllung der Lysimeter  
01/99-10/00 Betrieb der Lysimeter  
11/00 Abschlussbeprobung der Lysimeterböden  
01/01-02/01 Elutionsversuche mit den Lysimeterböden  
11/00-02/01 Auswertung und Berichterstattung

#### 4. Methoden

In Tab. 1 sind die für die Bestimmung der chemischen, physikalischen und bodenkundlichen Parameter in Feststoffen und wässrigen Lösungen im Rahmen des Untersuchungsvorhabens eingesetzten Methoden aufgeführt. Sofern standardisierte Analyseverfahren eingesetzt wurden, wird auf die entsprechenden Normen oder Zitatstellen verwiesen. Alle im Rahmen dieses Berichtes angegebenen Analyseergebnisse von Bodenproben beziehen sich auf Trockensubstanz.

**Tab. 1     Analysenmethoden für Feststoffe und wässrige Proben**

Parameter	Analysenverfahren	
	Feststoff	wässrige Lösungen
PAK (EPA)	LUA-Merkblatt Nr. 1 (Extraktion mit THF im Ultraschallbad)	analog DIN 38407 F8
BTEX	LWA-Merkbl. Nr.12, Methode 13	DIN 38407-F9-2
Phenolindex	analog DIN 38409-H16-2	DIN 38409-H16-2
Kohlenwasserstoffe	LAGA-Richtl. KW 85	DIN 38409 H18
EOX	DIN 38414 S17	-
DOC	-	DIN 38409-H3
TOC	analog LWA-Merkbl. Nr. 12, Methode 69	-
pH-Wert	DIN 19684-T1 (Aufschlammung) DIN 38404-C5	DIN 38404-C5
Wassergehalt	DIN 38414-S2	-
Trübung	-	DIN EN 27027 (quantitatives Verfahren)

Bei der Auswertung der Ergebnisse zur PAK-Bestimmung in den Bodeneluaten wurden neben den PAK-Gesamtgehalten nach EPA die PAK zu Gruppen entsprechend der Zahl der aromatischen Ringe zusammengefasst und vergleichend bewertet.

Die im Rahmen des Vorhabens eingesetzten Elutionsmethoden werden zu Beginn der jeweiligen Kapitel im Ergebnisteil dargestellt. Entsprechend wird bei den Lysimeterversuchen vorgegangen.

## **5. Ergebnisse**

### **5.1 Bodenproben**

#### **5.1.1 Bodenauswahl und Bodenvorbereitung**

Die kontaminierten Böden wurden Mitte September 1998 im Zuge von Erdaushubarbeiten auf dem Gelände einer ehemaligen Zeche und Kokerei im Ruhrgebiet entnommen. Dabei war in Absprache mit dem Auftraggeber vorgesehen, jeweils ein Anschüttungsmaterial und einen gewachsenen Boden für die Untersuchungen einzusetzen, welche Kontaminationen mit  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$  im Bereich von 500-1.000 mg/kg aufweisen sollten.

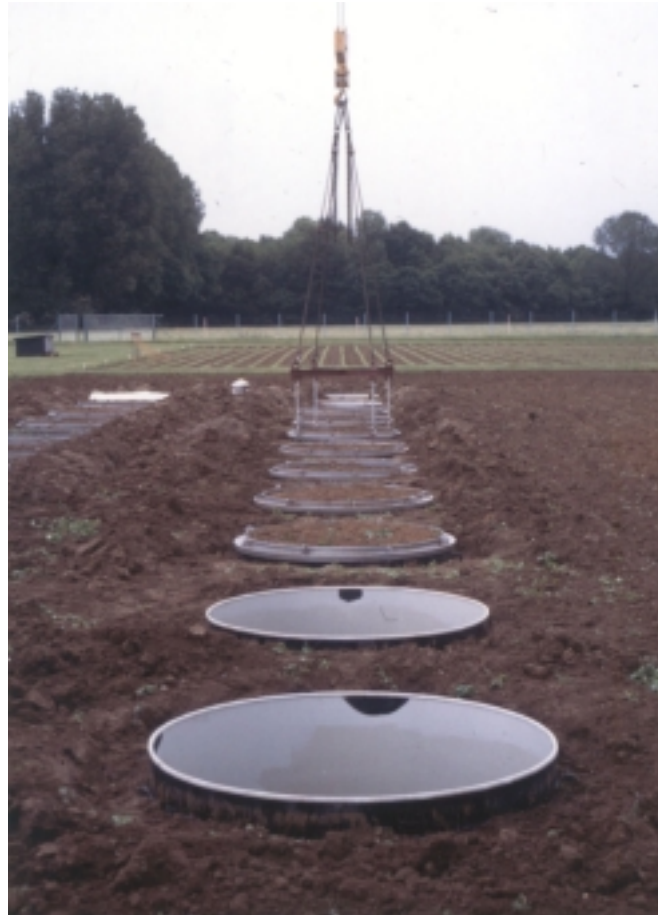
Da auf dem Gelände keine vor-Ort Analytik zur Verfügung stand, mussten die Bodenproben zunächst nach organoleptischer Ansprache ausgewählt werden. Um für die endgültige Auswahl auf ein möglichst breites Spektrum an Bodenchargen zurückgreifen zu können, wurden 3 Chargen von jeweils ca. 4 Tonnen an gewachsenem Boden und Anschüttungsmaterial mittels Bagger entnommen. Dabei wurde darauf geachtet, dass der Aushub keine größeren Kontaminationsherde in Form von Teerlinsen etc. enthielt. Anschließend wurden die Bodenchargen mittels Radlader so weit wie möglich homogenisiert und anhand von Mischproben auf ihren PAK-Gehalt analysiert. Nach Auswahl der Bodenchargen mit dem gewünschten Kontaminationsprofil wurden die Böden nochmals durchmischt und zum Transport in Deckelcontainer verfüllt.

Der gewachsene Boden entstammt einer Tiefe von 2-4 m aus der ungesättigten Bodenzone und stellt sich mit Ausnahme von geringen Mengen an Fremdstoffen (Bauschutt, von Fundamentresten oberhalb des Entnahmebereichs stammend) als relativ homogen dar. Die Lagerungsdichte des Bodens im Gelände wurde auf  $1,69 \text{ g}_{\text{TS}}/\text{cm}^3$  bestimmt. Das Anschüttungsmaterial, welches aus einer Tiefe zwischen 0,5-1,5 m entnommen wurde, besitzt eine dunkelbraune bis schwarze Färbung und setzt sich überwiegend aus Schlacke, Asche, Erdaushub sowie Bergematerial zusammen. Die Lagerungsdichte des Bodens im Gelände wurde auf  $1,29 \text{ g}_{\text{TS}}/\text{cm}^3$  bestimmt.

Für die Bezeichnung der Bodenproben wurde die Probennomenklatur aus dem Projekt „Vergleich von Elutionsmethoden“ übernommen. Im folgenden wird somit für das Anschüttungsmaterial die Bezeichnung 1.1 und für den gewachsenen schluffigen Boden die Bezeichnung 6.2 geführt.

#### **5.1.2 Befüllung der Lysimeter und Versuchsaufbau**

Bei der für die Untersuchungen vorgesehenen Lysimeteranlage des LUA-NRW in Waldfeucht handelt es sich um eine Freilandanlage, welche aus einem Lysimeterkeller mit zentralem Mittelgang und 22 Lysimetergefäßen, in 2 Reihen zu je 11 Gefäßen angeordnet, besteht. Für die Untersuchungen wurden vom Auftraggeber die Lysimetergefäße 1 und 2 zur Verfügung gestellt. Jedes Lysimetergefäß hat eine runde Querschnittsfläche von  $1,5 \text{ m}^2$  und eine maximale Füllhöhe von 1,5 m. An jedes Gefäß ist eine Sickerwassersammelleitung angeschlossen, welche das Sickerwasser des gesamten Querschnitts in einen 40 l Auffangbehälter leitet. Sämtliche mit Boden und Sickerwasser in Berührung kommende Bauteile inkl. der Sickerwasserleitung sind aus Edelstahl ausgeführt, um Sorptionsverluste weitgehend zu unterbinden. Eine Ausschnitt der Lysimeteranlage im Gelände zeigt Abb. 1.



**Abb. 1 Ausschnitt der Lysimeteranlage des LUA-NRW in Waldfeucht**

Nach dem Transport der Böden nach Waldfeucht konnte die Befüllung der Lysimeter witterungsbedingt erst am 22./23.10.1998 in Angriff genommen werden. Zunächst wurden auftragsgemäß die aus vorhergehenden Versuchen in den Lysimetern befindlichen kontaminierten Böden mittels Kleinbagger ausgebaut und in einen bereitstehenden Container verfüllt. Diese Böden wurden über die Firma Heitkamp GmbH ordnungsgemäß entsorgt. Danach wurden die Sickerwasserauffangwannen demon-tiert und die Lysimeter incl. Sammelleitung und Auffangbehälter gründlich mit Wasser und Aceton gereinigt.

Vor dem Einfüllen der Bodenmaterialien wurden in die Lysimeter Filterschichten aus Kies und Grob-sand abgestufter Kornfraktionen in der folgenden Schichtung und in der Reihenfolge ihrer Nennung eingebracht:

ca. 250 kg Filterquarz	16 -32 mm:	10 cm Schichthöhe
ca. 250 kg Filterquarz	8 -16 mm:	10 cm Schichthöhe
ca. 250 kg Filterquarz	1 - 2 mm:	10 cm Schichthöhe

Anschließend wurde das kontaminierte Anschüttungsmaterial 1.1 vor Ort auf  $d < \text{ca. } 20 \text{ mm}$  gesiebt, gewogen, in Portionen zu ca. 80 kg in das Lysimeter 2 gefüllt und je 10 – 20 cm Schichthöhe durch

Festtreten manuell verdichtet. Nach Einbau einer ca. 110 cm mächtigen Schicht des kontaminierten Bodens wurde das Lysimeter mit Sand ( $d = 1-2 \text{ mm}$ , ca. 10 cm) bis zum Gefäßrand aufgefüllt, um Verwehungen von kontaminiertem Boden zu verhindern. Insgesamt wurden 2.325 kg erdfeuchtes Anschüttungsmaterial in das Lysimeter gefüllt, woraus sich unter Berücksichtigung der Schütthöhe und des Wassergehaltes (Tab. 2) eine Lagerungsdichte von  $1,17 \text{ g}_{\text{TS}} / \text{cm}^3$  ergibt. Die in dem Lysimeter realisierte Schüttdichte liegen für das Anschüttungsmaterial 1.1 somit nur geringfügig (ca. 9 %) unter der im Gelände bestimmten Lagerungsdichte (siehe Kap. 5.1.1).

Während des Einfüllens des Bodens in das Lysimeter wurden pro ca. 35 cm Schütthöhe jeweils 10 Einzelproben entnommen, welche zu 3 Mischproben für die analytischen Bestimmungen (Kap. 5.1.3, 5.1.4) mit der Bezeichnung 1.1u (0-35 cm Schütthöhe kontaminierter Boden), 1.1m (36-70 cm Schütthöhe) und 1.1o (71-110 cm Schütthöhe) vereinigt wurden. Zusätzlich wurden bei Schütthöhen von 40 cm und 80 cm von der DMT Proben (Bezeichnung 1.1(40cm)/1-6 bzw. 1.1(80cm)/1-6) zur Bestimmung der  $K_f$ -Werte und vom LUA-NRW Proben zur Bestimmung der Porenverteilung genommen.

Der gewachsene Boden 6.2 wurde ebenfalls am 22.10.98 in Lysimeter 1 verfüllt. Dabei stellte sich heraus, dass der Boden aufgrund einer überwiegend hohen Wassersättigung eine plastische Konsistenz aufwies, wodurch keine befriedigende Durchströmung des Bodenkörpers im Lysimeter zu erwarten war. Die Befüllung von Lysimeter 1 musste aus organisatorischen Gründen am 22.10.1998 abgeschlossen werden. Nach Rücksprache mit dem Auftraggeber wurde der Boden wieder ausgebaut, in Flachcontainer verfüllt und zwecks Trocknung in eine Halle der Firma Frauenrath (Heinsberg) untergestellt. Diese Maßnahme führte zu einer Reduzierung des Wassergehaltes von 18,0 % auf 12,6 %. Der Wiedereinbau des Bodens 6.2 in das Lysimeter erfolgte am 21.12.1998, wobei 2.550 kg erdfeuchtes Bodenmaterial verfüllt wurden. Unter Berücksichtigung der Schütthöhe (100 cm) und des Wassergehaltes ergibt sich für Boden 6.2 eine Lagerungsdichte von  $1,49 \text{ g}_{\text{TS}} / \text{cm}^3$ , welche nur geringfügig (ca. 9 %) unter der im Gelände bestimmten Lagerungsdichte liegt (siehe Kap. 5.1.1).

Die Siebung des Bodens, die Lysimeterbefüllung sowie die Probenahme für die chemischen und physikalischen Bestimmungen erfolgte analog der für Boden 1.1 beschriebenen Vorgehensweise.

Nach der Befüllung wurden die Lysimeter mit einer oberen Abdeckung versehen, um den Zutritt von Niederschlagswasser zu unterbinden. Mit dem Betrieb der beiden Lysimeter wurde zeitgleich am 02.01.1999 begonnen, indem die oberen Abdeckungen entfernt und die Bodenschüttungen den natürlichen Niederschlagsereignissen ausgesetzt wurden.

### 5.1.3 Eingangskarakterisierung der Bodenprobe 1.1

Um die Homogenität der Bodenproben in der Lysimeterschüttung beurteilen zu können, wurde die chemisch/analytische, mikrobiologische und bodenkundliche Charakterisierung an 3 Mischproben pro Lysimeter durchgeführt. Für die Untersuchungen wurden die schichthöhenabhängig gewonnenen Mischproben 1.1u, 1.1m und 1.1o eingesetzt (siehe Kap. 5.1.2). Die Ergebnisse sind in Tab. 2 und 3 zusammengefasst.

Der Boden 1.1 enthält 498 mg PAK<sub>EPA</sub>/kg (Mittelwert) mit Anthracen als quantitativ dominierender Einzelkomponente (Tab. 2). Für die analytisch erfassten Begleitkontaminationen wurden ausnahmslos unterhalb der Nachweisgrenze liegende oder geringe Gehalte ermittelt. Der mit 28 % deutlich erhöhte TOC-Gehalt ist charakteristisch für Anschüttungsmaterialien von ehemaligen Kokerei- und Zechengeländen und kann ursächlich auf C<sub>org</sub>-reiche Fraktionen (Kohle/Koks-Partikel, vergleiche Kap. 5.2.1) zurückgeführt werden. Der Fe-Gesamtgehalt von 26.400 mg/kg (Tab. 3) liegt bodenkundlich im Normalbereich. Welche Anteile davon auf anthropogene Beimengungen wie Schlacke und Rost im Anschüttungsmaterial (Kap. 5.2.1) entfallen, wurde nicht untersucht.

Der Boden 1.1 besitzt mit pH 7,3 einen pH-Wert im neutralen Bereich, sehr geringe verfügbare N-haltige Nährstoffe (Ammonium, Nitrat) und hohe verfügbare Gehalte der Nährstoffe Kalium (2.300 mg/kg) und Phosphat (1.533 mg/kg). Die gesamte Kationenaustauschkapazität (Barium) ist primär auf das zweiwertige Kation Calcium zurückzuführen. Mit Bezug auf die Korngrößenverteilung ist Boden 1.1 als „stark schluffiger Sand, mittel kiesig (Fein- + Mittelkies)“ anzusprechen. Die mikrobiologische Besiedelung ist mit  $1,3 \times 10^6$  Kolonie bildenden Einheiten pro Gramm als eher gering einzustufen (Vergleichswerte: bis ca.  $10^8$  KBE/g bei humösen oberflächennahen Böden, bis ca.  $10^9$  KBE/g während biologischer Mietensanierung), wobei eine auf den Abbau von PAK (Naphthalin) spezialisierte Bakterienpopulation in geringer Zellzahl ( $3,1 \times 10^5$  KBE/g) vorliegt.

Ein Vergleich der analytischen Parameter der Mischproben 1.1u, 1.1m und 1.1o mit dem Mittelwert belegt eine weitgehend homogene Bodenschüttung im Lysimeter. So ist z. B. für den Gehalt an PAK<sub>EPA</sub> bei einem Mittelwert von 498 mg/kg eine Schwankungsbreite zwischen 454 mg/kg und 548 mg/kg zu verzeichnen. Abweichungen vom Mittelwert von > Faktor 2 wurden bei Betrachtung aller Parameter nur für die in geringer Konzentration vorliegenden Einzelkomponenten Naphthalin und Acenaphthen gefunden.

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

---

**Tab. 2: Chemisch/analytische Charakterisierung der Bodenproben 1.1**

Parameter/Bodenprobe	Probe 1.1 o	Probe 1.1 m	Probe 1.1 u	Probe 1.1 (Mittelwert)
Naphthalin [mg/kg]	0,51	0,71	0,05	0,42
Acenaphthylen [mg/kg]	< 0,50	< 0,50	< 0,50	< 0,50
Acenaphthen [mg/kg]	6,2	7,4	1,4	5,0
Fluoren [mg/kg]	5,7	6,8	6,9	6,5
Phenanthren [mg/kg]	15	22	17	18
Anthracen [mg/kg]	66	49	180	98
Fluoranthren [mg/kg]	22	38	22	27
Pyren [mg/kg]	26	34	26	29
Benzo(a)anthracen [mg/kg]	52	55	27	45
Chrysen [mg/kg]	55	52	33	47
Benzo(b)fluoranthren [mg/kg]	62	60	27	50
Benzo(k)fluoranthren [mg/kg]	24	27	15	22
Benzo(a)pyren [mg/kg]	47	60	33	47
Dibenzo(a,h)anthracen [mg/kg]	9,2	11	5,5	8,6
Benzo(g,h,i)perylen [mg/kg]	53	68	26	49
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [mg/kg]	46	57	34	46
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>490</b>	<b>548</b>	<b>454</b>	<b>498</b>
PAK nach TVO [mg/kg]	254	310	157	241
Kohlenwasserstoffe [mg/kg]	57	50	64	57
EOX [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Phenolindex [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Benzol [mg/kg]	0,15	0,22	0,22	0,20
Toluol [mg/kg]	0,32	0,39	0,44	0,38
Ethylbenzol [mg/kg]	0,06	0,10	0,07	0,08
Xylol [mg/kg]	0,44	0,53	0,78	0,58
TOC [ % ]	29	27	27	28

**Tab. 3: Bodenkundliche und mikrobiologische Charakterisierung der Bodenproben 1.1**

Parameter/Bodenprobe	Probe 1.1 o	Probe 1.1 m	Probe 1.1 u	Probe 1.1 (Mittelwert)
pH-Wert	7,3	7,2	7,4	7,3
Wassergehalt [%]	17,1	16,9	16,9	17,0
Stickstoff gesamt [mg/kg]	2.100	3.100	2.700	2.600
Eisen gesamt [mg/kg]	27.000	26.000	26.000	26.300
verfügbare Nährstoffe				
Ammonium-N (CaCl <sub>2</sub> -Auszug) [mg/kg]	2,0	2,0	2,0	2,0
Nitrat-N (CaCl <sub>2</sub> -Auszug) [mg/kg]	< 10	< 10	< 10	< 10
Kalium (Lactat-Auszug) [mg/kg]	2.200	2.400	2.300	2.300
Phosphate (Lactat-Auszug) [mg/kg]	1.600	1.600	1.400	1.533
Kationenaustauschkapazität				
Calcium [mg/kg]	13.100	13.400	13.700	13.400
Kalium [mg/kg]	564	604	602	590
Magnesium [mg/kg]	293	295	295	294
Natrium [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Austauschkapazität gesamt (Ba)[mg/kg]	22.000	22.600	24.100	22.900
Korngrößenverteilung				
T [%]	4,9	4,3	5,0	4,8
fU [%]	5,3	4,6	6,0	5,4
mU [%]	12,2	9,3	11,6	11,0
gU [%]	29,0	31,5	29,1	29,8
fS [%]	10,7	12,7	14,3	12,6
mS [%]	18,8	16,7	16,8	17,4
gS [%]	19,1	20,9	17,2	19,0
G 2 – 20 mm [g/100 g]	30,8	33,0	29,6	31,1
Bodenart	Su4, fmG3	Su4, fmG3	Su4, fmG3	Su4, fmG3
Mikrobiologische Besiedelung				
Gesamtzellzahl (1) [KBE/g]	1,1 x 10 <sup>6</sup>	1,3 x 10 <sup>6</sup>	1,4 x 10 <sup>6</sup>	1,3 x 10 <sup>6</sup>
Zellzahl PAK-Verwerter (1) [KBE/g]	2,9 x 10 <sup>5</sup>	4,0 x 10 <sup>5</sup>	2,4 x 10 <sup>5</sup>	3,1 x 10 <sup>5</sup>

(1) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

Zur Beurteilung der Homogenität der Bodenschüttung im Lysimeter bezüglich der Wasserdurchlässigkeit wurden die Durchlässigkeitsbeiwerte ( $K_f$ ) an 12 Stechzylinderproben bestimmt. Für die Untersuchungen wurden die aus Schichthöhen von 40 cm und 80 cm gezogenen Proben der Bezeichnung 1.1(40cm)/1-6 und 1.1(80cm)/1-6 eingesetzt (siehe Kap. 5.1.2). Die Ergebnisse sind in Tab. 4 zusammengefasst.

Die Bodenschüttung 1.1 im Lysimeter weist einen durchschnittlichen  $K_f$ -Wert von  $5,0 \times 10^{-6}$  m/sec entsprechend 43,3 cm/d (geometrisches Mittel) auf, wobei kein wesentlicher Unterschied zwischen den Probenahmetiefen 40 cm und 80 cm festzustellen war. Die bestimmten Werte schwanken

zwischen  $3,2 \times 10^{-5}$  m/sec und  $1,3 \times 10^{-6}$  m/sec. Die Streuung der Einzelwerte um den Mittelwert kann durch den hohen Kiesanteil (31,1 g/100g 2-20 mm, Tab. 3) und damit verbundenen Inhomogenitäten in der Stechzylinderprobe erklärt werden. Die gemessene Leitfähigkeit ist mit Bezug auf die Körnung/Lagerungsdichte von Boden 1.1 als hoch zu bezeichnen. Wird die erwartete Leitfähigkeit aus der Korngrößenverteilung und der Lagerungsdichte nach „Bodenkundlicher Kartieranleitung (4)“ geschätzt, erhält man mit 41 cm/d einen der gemessenen Größe sehr nahekommenden Wert

**Tab. 4:  $K_f$ -Werte der mittels Stechzylinder aus dem Lysimeter gewonnenen Bodenproben 1.1**

Bodenprobe/Parameter	$K_f$ -Wert [m/s]
1.1(40cm)/1	$3,2 \times 10^{-5}$
1.1(40cm)/2	$1,5 \times 10^{-6}$
1.1(40cm)/3	$1,3 \times 10^{-6}$
1.1(40cm)/4	$8,0 \times 10^{-6}$
1.1(40cm)/5	$7,3 \times 10^{-6}$
1.1(40cm)/6	$2,5 \times 10^{-6}$
1.1(80cm)/1	$6,4 \times 10^{-6}$
1.1(80cm)/2	$5,7 \times 10^{-6}$
1.1(80cm)/3	$2,3 \times 10^{-6}$
1.1(80cm)/4	$1,7 \times 10^{-5}$
1.1(80cm)/5	$5,1 \times 10^{-6}$
1.1(80cm)/6	$3,6 \times 10^{-6}$
geometrischer Mittelwert	$5,0 \times 10^{-6}$

Zusätzlich wurden beim Einbau des Bodens in das Lysimeter vom LUA-NRW Proben zur Bestimmung der Porenverteilung genommen (Kap. 5.1.2). Die Porengrößenverteilung wurde mit dem Überdruckverfahren nach Hartke und Horn (1991) bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 5 zusammengefasst.

**Tab. 5: Porenverteilung der mittels Stechzylinder aus dem Lysimeter gewonnenen Bodenproben 1.1**

Poren	gemessen [Vol.-%]	übliche Werte (1) [Vol.-%]
GPV (Gesamt-Porenvolumen)	49,5	37-55
wGP (weite Grobporen > 50 $\mu$ m)	23,4	10-20
eGP (enge Grobporen 50-10 $\mu$ m)	5,8	20-40
MP (Mittelporen 10-0,2 $\mu$ m)	12,9	3-12
FP (Feinporen < 0,2 $\mu$ m)	7,5	2-8

(1) Werte für Sande nach Hartke und Horn, 1991

Das Gesamtporenvolumen des Bodens 1.1 liegt für sandige Böden im Normalbereich, der Mittel- und Feinporenanteil im oberen Normbereich. Der Boden hat einen zu geringen Anteil an engen Grobporen und zu große Anteile an weiten Grobporen. Der Boden wurde mechanisch aufgearbeitet, was zum Verlust der Bodenstruktur führte. Der Boden zeigt Verdichtungserscheinungen mit sekundärer Lockerung. Die Verdichtung beim Einbau scheint sich eher in den Bodenaggregaten abzuspielen. Das bestehende Gefüge ist aufgrund der Bodenart recht stabil und wird in dieser Form auch während des Lysimeterbetriebs vorgelegen haben.

Insgesamt ist in Anbetracht der eingebauten Bodenmenge (2,3 Tonnen), der Lagerungsdichte und der Korngrößen- sowie Porenverteilung des Bodenmaterials 1.1 von einer weitgehend homogenen und realitätsnahen Bodenschüttung im Lysimeter auszugehen.

#### **5.1.4 Eingangskarakterisierung der Bodenprobe 6.2**

Zur Beurteilung der Homogenität der Bodenproben in der Lysimeterschüttung wurde die chemisch/analytische, mikrobiologische und bodenkundliche Charakterisierung mit Boden 6.2 an 3 Schichthöhen-abhängig gewonnenen Mischproben durchgeführt (siehe Kap. 5.1.2). Die Ergebnisse für die Mischproben 6.2u, 6.2m und 6.2o sind in Tab. 6 und 7 zusammengefasst.

Der gewachsene Boden 6.2 enthält 955 mg PAK<sub>EPA</sub>/kg (Mittelwert) mit Phenanthren als quantitativ dominierender Einzelkomponente (Tab. 6), wobei im Vergleich zum Anschüttungsmaterial 1.1 (Tab. 2) die hochsiedenden 5-6 Ring PAK in deutlich geringerer Konzentration vorliegen. Bei den analytisch erfassten Begleitkontaminationen wurden ausnahmslos unterhalb der Nachweisgrenze liegende oder geringe Gehalte ermittelt. Der für einen gewachsenen Unterboden deutlich erhöhte TOC-Gehalt (3,3 %) kann auf den Eintrag organischer Kontaminanten (Teer, Pech etc.) zurückzuführen sein, welche analytisch anhand der Einzelkomponenten (PAK n. EPA) nur zu einem geringen Anteil erfasst werden. Auch ist ein geringer Anteil an Kohle-/Koks-Partikeln als Erklärung denkbar.

**Tab. 6: Chemisch/analytische Charakterisierung der Bodenproben 6.2**

Parameter/Bodenprobe	Probe 6.2 o	Probe 6.2 m	Probe 6.2 u	Probe 6.2 (Mittelwert)
Naphthalin [mg/kg]	42	31	44	39
Acenaphthylen [mg/kg]	< 0,5	< 0,5	< 0,5	< 0,5
Acenaphthen [mg/kg]	93	83	99	92
Fluoren [mg/kg]	130	120	130	127
Phenanthren [mg/kg]	280	350	300	310
Anthracen [mg/kg]	46	100	46	64
Fluoranthen [mg/kg]	120	160	110	130
Pyren [mg/kg]	54	77	48	60
Benzo(a)anthracen [mg/kg]	27	50	26	34
Chrysen [mg/kg]	23	69	26	39
Benzo(b)fluoranthen [mg/kg]	20	15	18	18
Benzo(k)fluoranthen [mg/kg]	9,1	6,3	8,1	7,8
Benzo(a)pyren [mg/kg]	19	16	15	17
Dibenzo(a,h)anthracen [mg/kg]	2,3	1,7	1,8	1,9
Benzo(g,h,i)perylen [mg/kg]	9,3	5,2	8,0	7,5
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [mg/kg]	10	8,3	9,5	9,3
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>885</b>	<b>1092</b>	<b>889</b>	<b>955</b>
PAK nach TVO [mg/kg]	187	211	169	189
Kohlenwasserstoffe [mg/kg]	99	95	94	96
EOX [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Phenolindex [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Benzol [mg/kg]	0,78	0,61	0,70	0,70
Toluol [mg/kg]	1,0	1,0	1,1	1,0
Ethylbenzol [mg/kg]	< 0,05	< 0,05	0,07	0,06
Xylol [mg/kg]	0,79	0,87	0,83	0,83
TOC [ % ]	3,1	3,6	3,4	3,3

Der Boden 6.2 besitzt mit pH 7,5 einen pH-Wert im neutralen Bereich, einen geringen N-Gesamtgehalt und sehr geringe verfügbare N-haltige Nährstoffe (Ammonium, Nitrat). Die Ergebnisse zur Bestimmung der Kationenaustauschkapazität weisen Calcium als quantitativ dominierendes austauschbares Kation aus. Mit Bezug auf die Korngrößenverteilung ist Boden 6.2 als „reiner Schluff, schwach kiesig (Fein- und Mittelkies)“ anzusprechen. Die geringe mikrobiologische Besiedelung liegt mit  $2,4 \times 10^5$  Kolonie-bildenden Einheiten pro Gramm im für Unterböden zu erwarteten Bereich, wobei eine auf den Abbau von PAK (Naphthalin) spezialisierte Bakterienpopulation in geringer Zellzahl ( $1,7 \times 10^5$  KBE/g) vorliegt.

Wie schon für Boden 1.1 aufgezeigt (Kap. 5.1.3), belegt ein Vergleich der analytischen Parameter der Mischproben 6.2u, 6.2m und 6.2o mit dem Mittelwert eine weitgehend homogene Bodenschüttung im Lysimeter. Der Gehalt an PAK<sub>EPA</sub> zeigt bei einem Mittelwert von 955 mg/kg eine Schwankungsbreite

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

zwischen 885 mg/kg und 1092 mg/kg. Abweichungen vom Mittelwert von > Faktor 2 wurden bei Betrachtung aller Einzelparameter nicht gefunden.

**Tab. 7: Bodenkundliche und mikrobiologische Charakterisierung der Bodenproben 6.2**

Parameter/Bodenprobe	Probe 6.2 o	Probe 6.2 m	Probe 6.2 u	Probe 6.2 (Mittelwert)
pH-Wert	7,5	7,5	7,5	7,5
Wassergehalt [%]	12,5	12,6	12,6	12,6
Stickstoff gesamt [mg/kg]	500	500	500	500
Eisen gesamt [mg/kg]	19.000	18.000	19.000	18.700
verfügbare Nährstoffe				
Ammonium-N (CaCl <sub>2</sub> -Auszug) [mg/kg]	< 1,0	< 1,0	< 1,0	< 1,0
Nitrat-N (CaCl <sub>2</sub> -Auszug) [mg/kg]	< 2,0	< 2,0	< 2,0	< 2,0
Kalium (Lactat-Auszug) [mg/kg]	97	88	94	93
Phosphate (Lactat-Auszug) [mg/kg]	34	30	25	30
Kationenaustauschkapazität				
Calcium [mg/kg]	9.400	9.500	9.200	9.400
Kalium [mg/kg]	490	500	510	500
Magnesium [mg/kg]	390	390	380	390
Natrium [mg/kg]	26	22	18	22
Austauschkapazität gesamt (Ba)[mg/kg]	23.400	25.600	25.400	24.800
Korngrößenverteilung				
T [%]	0	0	0	0
fU [%]	1,5	5,1	0,5	2,4
mU [%]	8,3	15,3	9,6	11,0
gU [%]	77,0	67,6	77,7	74,1
fS [%]	4,6	6,8	5,8	5,7
mS [%]	5,2	3,2	2,7	3,7
gS [%]	3,4	2,0	3,7	3,1
G 2 – 20 mm [g/100 g]	3,2	6,6	6,6	5,5
Bodenart	Uu, fmG2	Uu, fmG2	Uu, fmG2	Uu, fmG2
mikrobiologische Besiedelung				
Gesamtzellzahl (1) [KBE/g]	2,5 x 10 <sup>5</sup>	2,7 x 10 <sup>5</sup>	2,1 x 10 <sup>5</sup>	2,4 x 10 <sup>5</sup>
Zellzahl PAK-Verwerter (1) [KBE/g]	1,6 x 10 <sup>5</sup>	1,6 x 10 <sup>5</sup>	2,0 x 10 <sup>5</sup>	1,7 x 10 <sup>5</sup>

(1) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

Weiterhin wurden zur Beurteilung der Homogenität der Bodenschüttung im Lysimeter die Durchlässigkeitsbeiwerte ( $K_f$ ) an 12 Stechzylinderproben bestimmt. Für die Untersuchungen wurden die aus Schichthöhen von 40 cm und 80 cm gezogenen Proben der Bezeichnung 6.2(40cm)/1-6 und 6.2(80cm)/1-6 eingesetzt (siehe Kap. 5.1.2). Die Ergebnisse sind Tab. 8 zu entnehmen.

Die Schüttung des Bodens 6.2 im Lysimeter weist bei einem durchschnittlichen  $K_f$ -Wert von  $5 \times 10^{-9}$  m/sec entsprechend 0,4 mm/d (geometrisches Mittel) eine sehr geringe Leitfähigkeit auf, wobei die bestimmten Werte zwischen  $7 \times 10^{-8}$  m/sec und  $5 \times 10^{-10}$  m/sec schwanken. Im Gegensatz zum Boden 1.1 ergibt sich hier eine gravierende Abweichung zwischen der gemessenen und der anhand der Korngrößenverteilung/Lagerungsdichte erwarteten Leitfähigkeit von mehr als 2 Zehnerpotenzen (16 cm/d erwartet nach Bodenkundlicher Kartieranleitung (4)). Die nach Beendigung der Lysimeterversuche an neu gewonnenen Bodenproben exemplarisch wiederholten  $K_f$ -Wert-Bestimmungen bestätigen jedoch den Bereich der zuvor bestimmten Werte.

Der ermittelte sehr niedrige  $K_f$ -Wert scheint im Widerspruch zu den bestimmten Sickerwassermengen und zum Tracerversuch (Kap. 5.4.2) des mit Boden 6.2 befüllten Lysimeters zu stehen, welche eine schnellere Durchsickerung (höheren  $K_f$ -Wert) erwarten lassen. Auch die recht lockere Lagerung mit hohem Anteil an Grobporen (21,5 Vol.-%, siehe Tab. 9) sollte eigentlich zu einer entsprechend hohen Leitfähigkeit führen. Somit erscheint es wahrscheinlich, dass das Porengefüge dieses Schluffbodens so labil ist, dass es bei massiven Wasserkontakt (Leitfähigkeitsmessung erfolgte im gesättigten Zustand!) zusammenbricht und eine vollständige Verschlammung und Verfüllung der Poren eintritt. Als Folge sind die extrem niedrigen  $K_f$ -Werte erklärbar.

Durch die Überdeckung mit Sand ist diese Verschlammung und Verspülung der Poren wahrscheinlich im Lysimeter zum Großteil vermieden worden. Hierüber lässt sich dann auch die zu den Laborversuchen im Widerspruch stehende offensichtlich gute Wasserleitfähigkeit des Bodens in den Tracerversuchen (siehe Kap. 5.4.2) erklären.

**Tab. 8: Charakterisierung der mittels Stechzylinder aus dem Lysimeter gewonnenen Bodenproben 6.2**

Bodenprobe/Parameter	$K_f$ -Wert [m/s]
1.1(40cm)/1	$9 \times 10^{-10}$
1.1(40cm)/2	$5 \times 10^{-10}$
1.1(40cm)/3	$6 \times 10^{-10}$
1.1(40cm)/4	$1 \times 10^{-9}$
1.1(40cm)/5	$7 \times 10^{-8}$
1.1(40cm)/6	$4 \times 10^{-8}$
1.1(80cm)/1	$2 \times 10^{-8}$
1.1(80cm)/2	$4 \times 10^{-9}$
1.1(80cm)/3	$5 \times 10^{-8}$
1.1(80cm)/4	$1 \times 10^{-8}$
1.1(80cm)/5	$5 \times 10^{-9}$
1.1(80cm)/6	$4 \times 10^{-9}$
geometrischer Mittelwert	$5 \times 10^{-9}$

Zusätzlich wurden beim Einbau des Bodens in das Lysimeter vom LUA-NRW Proben zur Bestimmung der Porenverteilung genommen (Kap. 5.1.2). Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Porenverteilung sind Tab. 9 zu entnehmen.

**Tab. 9: Porenverteilung der mittels Stechzylinder aus dem Lysimeter gewonnenen Bodenproben 6.2**

<b>Poren</b>	<b>gemessen [Vol.-%]</b>	<b>übliche Werte (1) [Vol.-%]</b>
GPV (Gesamt-Porenvolumen)	46,2	42-55
wGP (weite Grobporen > 50 µm)	16,3	0-10
eGP (enge Grobporen 50-10 µm)	5,2	5-25
MP (Mittelporen 10-0,2 µm)	14,9	7-20
FP (Feinporen < 0,2 µm)	9,9	5-20

(1) Werte für Schluffe nach Hartke und Horn, 1991

Das Gesamtporenvolumen des Boden 6.2 ist für Schluffe etwas gering, der Mittel- und Feinporenanteil liegt im Normalbereich. Der Anteil enger Grobporen ist zu gering, der Anteil der weiten Grobporen hingegen überhöht. Durch die Umlagerung ist der Schluffboden verschlammte und verdichtet, nachträglich hat eine Lockerung stattgefunden. Das bestehende Bodengefüge ist - für Schluffe typisch - sehr labil und hochgradig anfällig für Verschlammung und Verdichtung. Die gemessenen Werte gelten für den Zeitpunkt der Einfüllung. Inwiefern der Boden im Lysimeterbetrieb diese Porenverteilung durch die schützende Sanddecke beibehalten hat, muss offen bleiben.

Zusammenfassend ist in Anbetracht der eingebauten Bodenmenge (2,55 Tonnen), der Lagerungsdichte und der Korngrößenverteilung des Bodenmaterials 6.2 von einer weitgehend homogenen Bodenschüttung im Lysimeter auszugehen.

## 5.2 Voruntersuchungen zur Charakterisierung der Bodenmaterialien

### 5.2.1 Charakterisierung des TOC von Boden 1.1

Das Anschüttungsmaterial 1.1 ist durch einen hohen TOC-Gehalt charakterisiert (vergl. Tab. 2), welcher aufgrund von Erfahrungen aus vorherigen Untersuchungen einen erheblichen Einfluss auf das Mobilisierungsverhalten der PAK ausüben kann. Daher wurde der TOC des Bodenmaterials 1.1 einer eingehenden Charakterisierung unterzogen. Die Untersuchungen wurden mit der Mischprobe 1.1, zu gleichen Anteilen zusammengestellt aus den Bodenproben 1.1u, 1.1m und 1.1o, durchgeführt, welche zuvor bezüglich ihres PAK- und TOC-Gehaltes analysiert wurde (Tab. 10). Diese Mischprobe wurde auch für die Untersuchungen zur biologischen Abbaubarkeit der PAK (Kap. 5.2.2) und für die im Rahmen des LUA-NRW Projektes „Vergleich und Bewertung von Untersuchungsmethoden zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile von Gehalten ausgewählter organischer Schadstoffe (PAK) in der ungesättigten Bodenzone“ durchzuführenden Untersuchungen eingesetzt.

Für eine Charakterisierung des TOC wurden die Bodenmaterialien im Labormaßstab durch Sink-/Schwimmscheidung unter Verwendung einer Kaliumjodid-Lösung (Dichte = 1,6 g/ml) in eine Leichtgut- und eine Schwergutfraktion getrennt, welche jeweils bezüglich PAK- und TOC-Gehalt charakterisiert (Tab. 10) und nach Einbettung in Kunstharz im Auflichtmikroskop auf ihre qualitative und quantitative Zusammensetzung untersucht wurden (Tab. 11).

**Tab. 10: Chemisch/analytische Charakterisierung der Leichtgut- und Schwergutfractionen sowie des Ausgangsmaterials von Bodens 1.1**

Parameter/Probe		Boden 1.1 Ausgang	Boden 1.1 Leichtgut	Boden 1.1 Schwergut
Naphthalin	[mg/kg]	0,82	1,5	0,35
Acenaphthylen	[mg/kg]	< 0,50	< 0,50	< 0,50
Acenaphthen	[mg/kg]	4,6	6,0	9,7
Fluoren	[mg/kg]	22	120	2,3
Phenanthren	[mg/kg]	36	200	8,6
Anthracen	[mg/kg]	73	940	25
Fluoranthren	[mg/kg]	37	93	15
Pyren	[mg/kg]	28	77	25
Benzo(a)anthracen	[mg/kg]	38	140	15
Chrysen	[mg/kg]	48	160	16
Benzo(b)fluoranthren	[mg/kg]	48	120	19
Benzo(k)fluoranthren	[mg/kg]	18	52	9,8
Benzo(a)pyren	[mg/kg]	39	110	21
Dibenzo(a,h)anthracen	[mg/kg]	6,2	24	3,6
Benzo(g,h,i)perylene	[mg/kg]	31	140	20
Indeno(1,2,3-c,d)pyren	[mg/kg]	38	100	23
<b>PAK nach EPA</b>	[mg/kg]	<b>468</b>	<b>2.284</b>	<b>213</b>
PAK nach TVO	[mg/kg]	211	615	108
<b>TOC</b>	<b>[%]</b>	<b>29</b>	<b>75</b>	<b>15</b>

Durch diese sicherlich nicht vollständig wirkende Labortrennung wurden 14,6 Gew.-% des Bodenmaterials 1.1 als Leichtgutfraktion abgetrennt, welche bei einem TOC-Gehalt von 75,0 % (Tab. 10) zum überwiegenden Teil (88,4 %) aus Koks- und Steinkohlepartikeln zusammengesetzt ist (Tab. 11). In dieser Leichtgutfraktion liegen die PAK im Vergleich zu den Ausgangsmaterialien um den Faktor 4,9 angereichert vor. Daraus ist abzuleiten, dass unter Berücksichtigung der Wiederfindungsrate (PAK<sub>EPA</sub> Leicht- und Schwergutfraktion) bei Boden 1.1 ca. 65 % der PAK in der Leichtgutfraktion (14,6 Gew.-%) angereichert sind und vermutlich an der TOC-reichen Kohle-/Koksfraktion sorbiert vorliegen.

Der PAK-Gehalt der Schwergutfraktion ist hingegen mit Bezug auf das Ausgangsmaterial um den Faktor 2,2 verringert. Diese Schwergutfraktion weist neben Koks und Tonmineralien/Quarz vor allem Schlacke als mengenmäßig dominierenden Bestandteil auf (Tab. 11).

**Tab. 11: Quantitative Zusammensetzung der Leichtgut- und Schwergutfraktionen des Bodens 1.1** (Angaben in Vol. %)

Parameter/Probe	Boden 1.1 Leichtgut	Boden 1.1 Schwergut
Steinkohle	33,4	1,8
Koks, Pechkoks, Petrolkoks	56,6	13,8
Tonminerale/Quarz	3,8	15,0
Schlacke	5,2	55,4
Pech/Bitumen	0,6	3,2
Pflanzenreste	0,2	-
Rost	-	5,2
Ziegelreste/Mörtel	0,2	5,6

### 5.2.2 Untersuchung des biologischen Abbauverhaltens

Bei der Auswertung und Interpretation von Lysimeterversuchen mit Materialien, welche organische Schadstoffe beinhalten, können mikrobielle Abbauprozesse in der Lysimeterschüttung von Bedeutung sein. Dabei können der Austrag mobilisierter Schadstoffe mit dem Sickerwasser und der biologische Schadstoffabbau bei der Sickerwasserpassage durch die Bodenschüttung konkurrierende Prozesse darstellen.

Um das Ausmaß und die Geschwindigkeit möglicher biologischer Abbauprozesse im Vorfeld der Lysimeteruntersuchungen einschätzen zu können, wurden die Bodenproben 1.1 und 6.2 einem Abbautest unterzogen. Dazu wurden die Böden zunächst in einer ersten Versuchsvariante als 10%ige Suspension unter für mikrobielle Abbauprozesse optimalen Bedingungen (25 g<sub>TS</sub> Boden, 200 ml Mineralsalzmedium pH 7,2, Beimpfung mit einer PAK-abbauenden Spezialkultur) für 7 Wochen (Boden 6.2) bzw. 16 Wochen (Boden 1.1) im Sapromaten bei 20 °C inkubiert (zwei Testansätze und eine sterile Kontrolle, vergiftet mit HgCl<sub>2</sub>). Während des Abbautests wurde die Sauerstoffzehrung in

den Ansätzen kontinuierlich erfasst. Nach der Inkubation wurde der PAK<sub>EPA</sub>-Gehalt in den durch Zentrifugation aus den Testansätzen und sterilen Kontrollen gewonnenen Bodenproben bestimmt. Dabei wurden die PAK für die Auswertung zu Gruppen entsprechend ihrer Ringzahl zusammengefasst. Zusätzlich wurde zur möglichst realitätsnahen Simulation der Verhältnisse im Lysimeter eine zweite Versuchsreihe (Versuchsvariante 2) durchgeführt, bei welcher die Bodenproben als manuell verdichtete Bodenschüttung ohne Zugabe von Nährstoffen und PAK-abbauenden Spezialkulturen unter ansonsten identischen Bedingungen im Saprodaten für 19 Wochen inkubiert wurden.

Die Ergebnisse der PAK-Bestimmungen und die daraus für Boden 1.1 errechneten Abbaugrade sind in Tab. 12 für beide Versuchsvarianten zusammengefasst. Der zeitliche Verlauf der Sauerstoffzehrung ist Abb. 2 und 3 zu entnehmen.

**Tab. 12: Chemisch/analytische Charakterisierung von Boden 1.1 vor und nach biologischer Behandlung für Versuchsvariante 1 (Suspension, optimierte Bedingungen) und Versuchsvariante 2 (Bodenschüttung, realitätsnahe Bedingungen)**

Parameter/Probe	Boden 1.1 Ausgang	Boden 1.1 Sterilkontr.	Boden 1.1 Sanierung A	Boden 1.1 Sanierung B	Abbau [ % ]
<b>Versuchsvariante 1 (optimale Bedingungen)</b>					
Naphthalin [mg/kg]	0,82	2,6	0,72	< 0,1	56
3-Ring PAK [mg/kg]	136	121	9,9	17	90
4-Ring PAK [mg/kg]	151	212	98	106	32
5-6 Ring PAK [mg/kg]	180	344	234	179	0
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>468</b>	<b>680</b>	<b>343</b>	<b>302</b>	<b>31</b>
<b>Versuchsvariante 2 (realitätsnahe Bedingungen)</b>					
Naphthalin [mg/kg]	0,82	0,78	0	0	100
3-Ring PAK [mg/kg]	136	127	120	114	14
4-Ring PAK [mg/kg]	151	146	149	186	0
5-6 Ring PAK [mg/kg]	180	219	198	161	0
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>468</b>	<b>493</b>	<b>467</b>	<b>461</b>	<b>1</b>

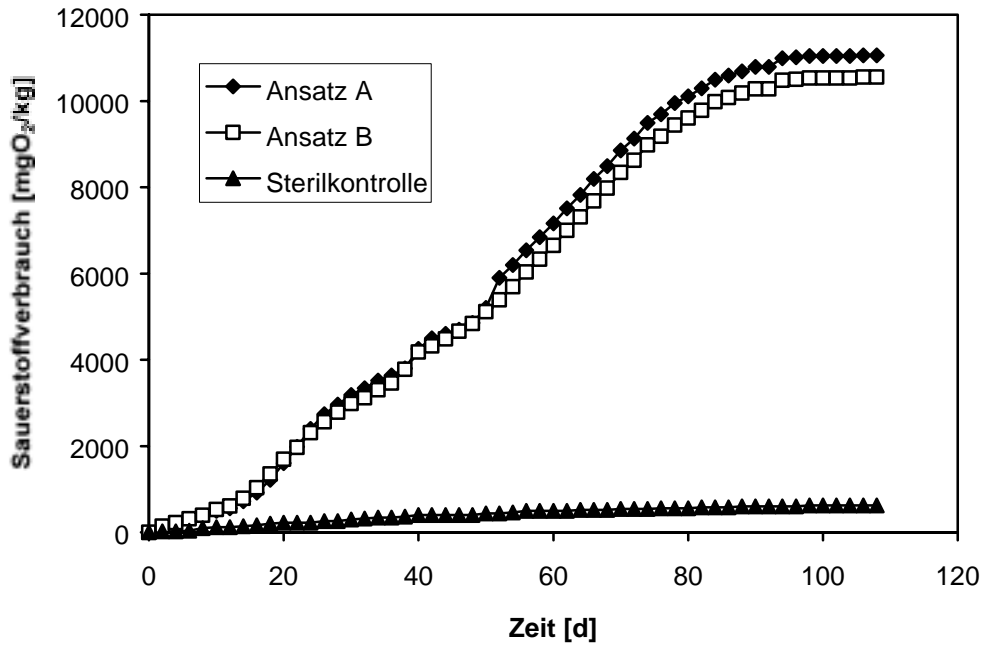


Abb. 2: Verlauf der Sauerstoffzehrung im Zuge der biologischen Behandlung der Bodenprobe 1.1 für die Versuchsvariante 1 (Suspension, optimierte Bedingungen)

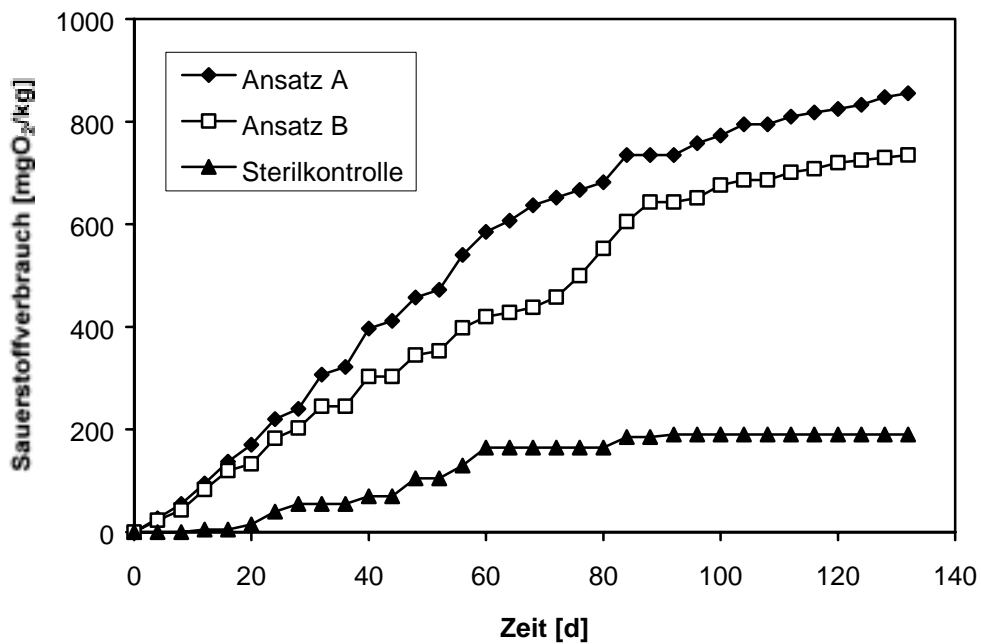


Abb. 3: Verlauf der Sauerstoffzehrung im Zuge der biologischen Behandlung der Bodenprobe 1.1 für die Versuchsvariante 2 (Bodenschüttung, realitätsnahe Bedingungen)

Zunächst ist festzustellen, dass in der sterilen Kontrolle bei Versuchsvariante 1 im Vergleich zum Ausgangsmaterial mit 680 mg/kg deutlich höhere PAK-Gesamtgehalte bestimmt wurden. Dieses bei Anschüttungsmaterialien häufig beobachtete Phänomen ist durch Aufmahlung und Abrieb der Bodenpartikel im Zuge der Suspendierung zu erklären, wodurch eine Erhöhung der Verfügbarkeit der PAK für die chemische Extraktion bedingt sein kann. Mit Bezug auf das Ausgangsmaterial waren die PAK in der Bodenprobe 1.1 zu 31 % für einen biologischen Abbau verfügbar, wobei erwartungsgemäß neben dem quantitativ unbedeutenden Naphthalin für die 3-Ring PAK der höchste Abbaugrad (90 %) bestimmt wurde. Der annähernd lineare Verlauf der biologischen Umsetzungen (Sauerstoffverbrauch) und die mit ca. 14 Wochen relativ lange Inkubationszeit bis zum Erliegen des biologischen Sauerstoffverbrauchs (Abb. 2) deuten auf eine Limitierung der biologischen Umsetzungen, z. B. durch Sorption der PAK an  $C_{org}$ -reiche Bodenfraktionen (Kap. 5.2.1), hin. Weiterhin lässt der mit Bezug auf die umgesetzte  $PAK_{EPA}$ -Menge von ca. 140 mg/kg Boden hohe spezifische  $O_2$ -Verbrauch von über 10.000 mg/kg auf zusätzliche biologische Prozesse schließen, wobei im Falle von Anschüttungsmaterialien des Kohlewertstoffbereichs die Oxidation von anorganischen Schwefelverbindungen (Pyrit) zu vermuten ist.

Bei der Versuchsvariante 2 ohne Nährstoffgabe konnte mit Bezug auf das Ausgangsmaterial kein signifikanter PAK-Abbau festgestellt werden (Tab. 12). Da auch der Sauerstoffverbrauch im Vergleich zur Versuchsvariante 1, welche für einen biologischen Abbau optimale Bedingungen liefert, um deutlich über 90 % verringert ist (Abb. 3), lassen die Ergebnisse den Schluss zu, dass die biologischen Umsetzungen in Boden 1.1 und damit auch der mikrobielle Schadstoffabbau unter realitätsnahen Bedingungen neben der sorptiven Festlegung der PAK an  $C_{org}$ -reiche Bodenfraktionen überwiegend durch das Nährstoffangebot limitiert sind. Diese Vermutung wird durch die sehr geringen verfügbaren Gehalte an N-haltigen Nährstoffen in Boden 1.1 unterstützt (Tab. 3).

Tab. 13 fasst die Ergebnisse der PAK-Bestimmungen für die Abbauersuche mit Bodenprobe 6.2 zusammen. In der sterilen Kontrolle traten während der Inkubation bei beiden Versuchsvarianten deutliche PAK-Verluste von 760 mg/kg (Ausgangsmaterial) auf 610 mg/kg bzw. 616 mg/kg auf, welche überwiegend auf die 2-3 Ring PAK beschränkt und durch einen Stoffaustrag über die Gasphase zu erklären sind. Mit Bezug auf das Ausgangsmaterial war bei Versuchsvariante 1 im Zuge der biologischen Behandlung ein weitgehender Abbau der PAK um ca. 80 % zu verzeichnen, wobei wiederum eine mit zunehmendem Kondensationsgrad (abnehmender Löslichkeit) abnehmende Abbaurrate zu verzeichnen ist. Die in Abb. 4 dargestellte Sauerstoffverbrauchskurve zeigt für den Boden 6.2 einen typischen Verlauf, wie er häufig für Böden mit überwiegend bioverfügbaren PAK zu beobachten ist. Bei der Versuchsvariante 2 mit limitierten Bedingungen bezüglich der Sauerstoff- und Nährstoffversorgung wurde im zeitlichen Verlauf ein deutlich geringerer  $O_2$ -Verbrauch bestimmt, welcher in Übereinstimmung mit den Daten zum PAK-Abbau (Tab. 13) unter realitätsnahen Bedingungen deutlich geringere biologische Stoffumsetzungen erwarten lässt. Allerdings wurde auch bei Versuchsvariante 2 im Zuge der 19-wöchigen Inkubation ein Reduktion der  $PAK_{EPA}$ -Konzentration um ca. 56 % erzielt.

**Tab. 13: Chemisch/analytische Charakterisierung von Boden 6.2 vor und nach biologischer Behandlung für Versuchsvariante 1 (Suspension, optimierte Bedingungen) und Versuchsvariante 2 (Bodenschüttung, realitätsnahe Bedingungen)**

Parameter/Probe	Boden 6.2 Ausgang	Boden 6.2 Sterilkontr.	Boden 6.2 Sanierung A	Boden 6.2 Sanierung B	Abbau [ % ]
<b>Versuchsvariante 1 (optimale Bedingungen)</b>					
Naphthalin [mg/kg]	19	3,7	1,6	< 0,1	96
3-Ring PAK [mg/kg]	494	367	26	21	95
4-Ring PAK [mg/kg]	195	176	68	76	63
5-6 Ring PAK [mg/kg]	52	63	53	61	0
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>760</b>	<b>610</b>	<b>148</b>	<b>158</b>	<b>80</b>
<b>Versuchsvariante 2 (realitätsnahe Bedingungen)</b>					
Naphthalin [mg/kg]	19	1,8	2,1	1,3	91
3-Ring PAK [mg/kg]	494	349	155	206	63
4-Ring PAK [mg/kg]	195	196	117	107	43
5-6 Ring PAK [mg/kg]	52	70	50	39	13
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>760</b>	<b>616</b>	<b>323</b>	<b>353</b>	<b>56</b>

Die Ergebnisse zum biologischen Abbau zeigen zusammenfassend, dass unter optimalen Bedingungen (Sauerstoffversorgung, pH-Wert, Nährstoffe, PAK-abbauende Mikroorganismen, schnelle Stoffübergänge durch Suspendierung der Bodenpartikel) bei beiden untersuchten Bodenmaterialien mit einem Bioabbau der PAK zu rechnen ist, welcher bei dem Anschüttungsmaterial 1.1 im Vergleich zum gewachsenen, bindigen Boden 6.2 sehr viel langsamer und weniger vollständig erfolgt. Unter weitgehend realitätsnahen Bedingungen wird der PAK-Abbau in Boden 1.1 jedoch nahezu vollständig unterbunden, was als starkes Indiz für eine Nährstofflimitierung zu werten ist. Bei Boden 6.2 ist hingegen auch unter realitätsnäheren Bedingungen mit einem verlangsamten, aber signifikanten Schadstoffabbau zu rechnen. Diese Erkenntnisse geben Anhaltspunkte über die Verhältnisse in den Lysimeter-schüttungen bezüglich eines möglichen mikrobiellen PAK-Abbaus und werden bei der Interpretation der Lysimeterergebnisse berücksichtigt.

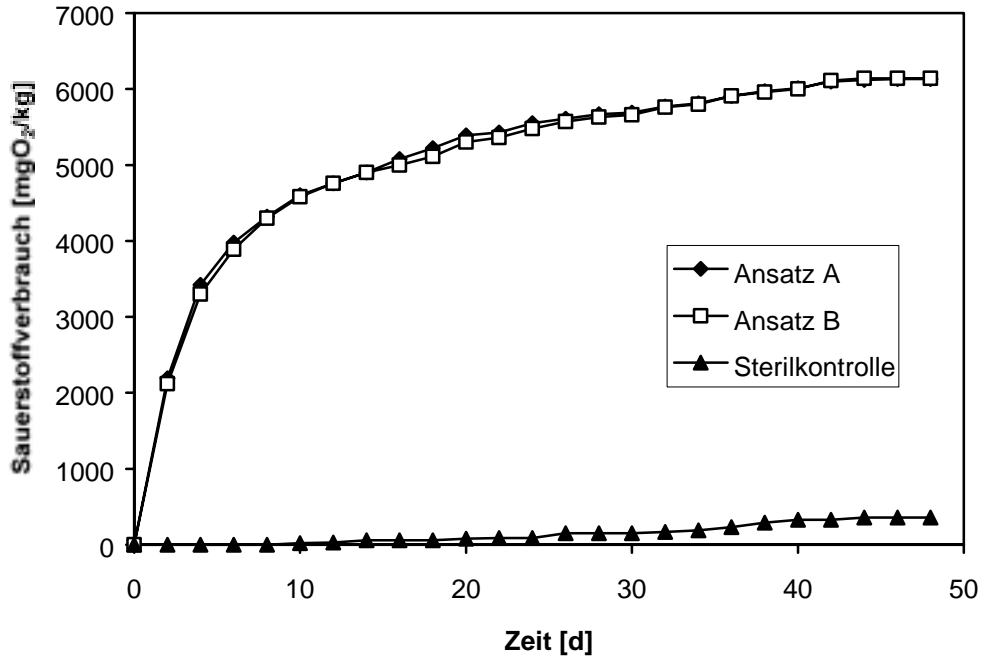


Abb. 4: Verlauf der Sauerstoffzehrung im Zuge der biologischen Behandlung der Bodenprobe 6.2 für die Versuchsvariante 1

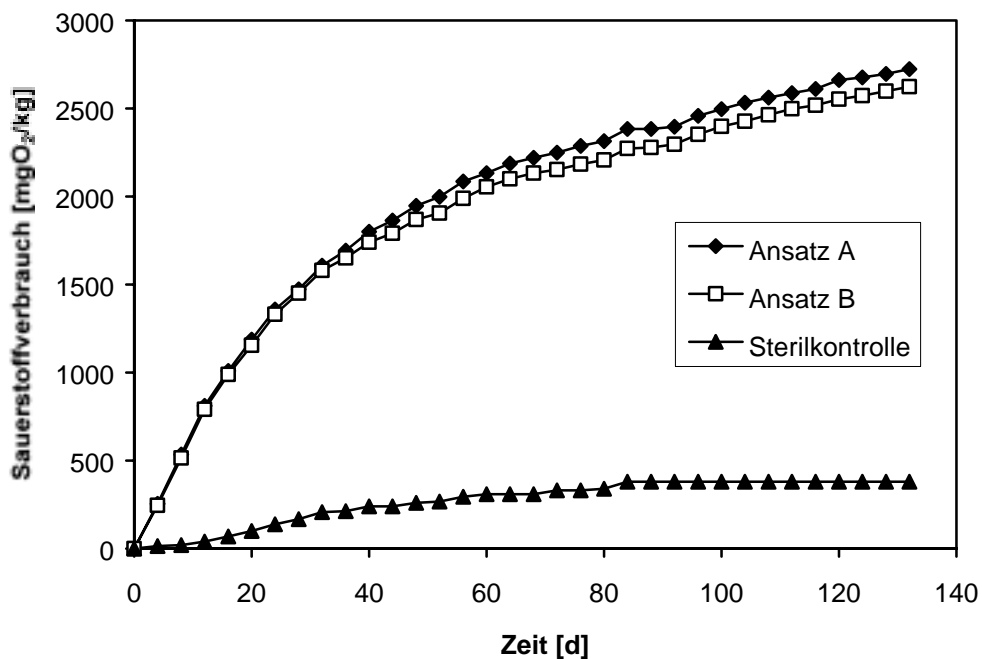


Abb. 5: Verlauf der Sauerstoffzehrung im Zuge der biologischen Behandlung der Bodenprobe 6.2 für die Versuchsvariante 2

### 5.3 Versuchsplan für den Betrieb der Lysimeter

Die Lysimeter wurden den natürlichen Niederschlagsereignissen über einen Zeitraum von 22 Monaten ausgesetzt. Der Beginn der Beregnung erfolgte für beide Lysimeter zeitgleich ab Anfang Januar 1999. In den Sommermonaten wurden die Lysimeter bei Bedarf künstlich beregnet, damit ein Sickerwasseranfall gewährleistet blieb.

Die Parameter Niederschlagsmenge, mittlere Tagestemperatur und Sickerwassermenge wurden wochentäglich von Mitarbeitern des LUA-NRW vor Ort bestimmt. Weiterhin wurden in einem Betriebstagebuch besondere Ereignisse, insbesondere Niederschlagsereignisse (Starkregen, Dauerregen etc.), dokumentiert. Die Lysimeter wurden regelmäßig von etwaigem pflanzlichen Bewuchs befreit.

Die Sickerwässer wurden in den dafür vorgesehenen Edelstahlbehältern (ca. 40 l Fassungsvermögen) aufgefangen und für den Probentransport in 2,5 l Braunglasflaschen mit Schliffverschluss abgefüllt. Die Konservierung der Sickerwasserproben für die chemisch/analytischen Bestimmungen zur Unterdrückung mikrobieller Abbauprozesse erfolgt durch  $\text{HgCl}_2$ , wobei mindestens 20 mg/l  $\text{HgCl}_2$  in den Sammelbehältern vorgelegt wurde. Die Proben für die Bestimmung der mikrobiellen Parameter wurden nicht konserviert und in getrennten Gefäßen aufgefangen.

Die analytischen Bestimmungen wurden an 22 Sickerwasser-Mischproben pro Lysimeter durchgeführt, wobei eine repräsentative Mischprobe pro Lysimeter und Monat vorgesehen war. Die Parameter  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$ , DOC, pH-Wert und Trübung wurden an allen Sickerwassermischproben bestimmt. Für die Bestimmung der mikrobiologischen Parameter und der Begleitkontaminationen wurde die in der Tab. 14 zusammengefasste Vorgehensweise festgelegt. Dabei wurden entsprechend vorliegenden Erfahrungen die mikrobiologischen Parameter zu Versuchsbeginn monatlich bestimmt, um eine etwaige durch den Probeneinbau bedingte Stimulation zu erfassen. Für die Begleitkontaminationen (MKW, Phenole, BTEX) wurde aufgrund der geringen Gehalte im Feststoff eine einmalige Analyse zu Versuchsbeginn als ausreichend erachtet.

Zur Charakterisierung der Durchströmungsverhältnisse in den Lysimetern wurden weiterhin Tracerexperimente durchgeführt. Ziel der Tracer-Ausbringung ist es, Rückschlüsse auf die Porenverhältnisse in den Bodenschüttungen zu erhalten (z. B. Vorliegen bevorzugter Fließwege / Makroporen) und somit die Art des PAK-Transportes besser zu verstehen. Die Konzeptionierung, Durchführung und Auswertung der Experiments erfolgte durch das LUA-NRW. Es wurden am 01.04.1999 auf die beiden Lysimeter jeweils  $1,2 \text{ mol/m}^2$  Chlorid und Bromid (als Kaliumsalz) aufgebracht. Je Lysimeter ( $1,5 \text{ m}^2$  Oberfläche) wurden 134,2 g KCl und 214,2 g KBr (entspricht 143,8 g Bromid) in ca. 10 l Wasser gelöst und mittels Gießkanne gleichmäßig über die Lysimeteroberfläche verteilt. Ab dem Monat 04/1999 wurden die Sickerwässer monatlich auf die Parameter Bromid und Chlorid, ab dem Monat 07/1999 in Absprache mit dem Auftraggeber bei häufigerer Probenahme nur noch auf Bromid untersucht.

Bei der Bezeichnung der Sickerwasserproben wurde grundsätzlich neben dem Kürzel für den Boden (1.1 o. 6.2) die Art der Probe (MP=Mischprobe, EP=Einzelprobe) und die Datierung (laufender Monat/Jahr) kombiniert. Die Probe 1.1/MP/05/99 bezeichnet somit z. B. die Sickerwassermischprobe

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

des Monats Mai 1999 aus dem mit Boden 1.1 befüllten Lysimeter, die Probe 6.2/EP/10/2/99 die zweite Sickerwassereinzelprobe des Monats Oktober 1999 aus dem mit Boden 6.2 befüllten Lysimeter. Einzelproben wurden nur für die Bromid-Bestimmungen im Rahmen der Tracer-Versuche herangezogen.

**Tab. 14: Probenahmeterminde und Parameter zur Analytik der Sickerwässer**

Betriebszeit (Monate)	Boden 1.1		Boden 6.2	
	chem. Parameter	mikrob. Parameter (1)	chem. Parameter	mikrob. Parameter (1)
1 (Jan. 99)	PAK, DOC, pH, FNU MKW, Phenole, BTEX	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU MKW, Phenole, BTEX	GKZ, PAK-Verw.
2 (Feb. 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
3 (Mär. 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
4 (Apr. 99)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
5 (Mai 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
6 (Jun. 99)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
7 (Jul. 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
8 (Aug. 99)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
9 (Sep. 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
10 (Okt. 99)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
11 (Nov. 99)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
12 (Dez. 99)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
1 (Jan. 00)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
2 (Feb. 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
3 (Mär. 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
4 (Apr. 00)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
5 (Mai 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
6 (Jun. 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
7 (Jul. 00)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.
8 (Aug. 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
9 (Sep. 00)	PAK, DOC, pH, FNU		PAK, DOC, pH, FNU	
10 (Okt. 00)	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.	PAK, DOC, pH, FNU	GKZ, PAK-Verw.

(1) GKZ = Gesamtkeimzahl

## 5.4 Ergebnisse der Lysimeterversuche

In den folgenden Abschnitten werden die im Rahmen der Lysimeteruntersuchungen erzielten wesentlichen Ergebnisse für die Bodenmaterialien 1.1 und 6.2 dargestellt.

### 5.4.1 Klimatische Gegebenheiten und Sickerwasseranfall

Nach Abschluss des Einbaus der 2 kontaminierten Böden (Kap. 5.1.2) wurden die Lysimeter planmäßig ab Anfang Januar 1999 den natürlichen Niederschlagsereignissen ausgesetzt. Die mittleren Tagestemperaturen wurden dabei im Betriebszeitraum wie folgt bestimmt:

Januar 1999:	-2,0 °C bis 12,5 °C	Januar 2000:	-2,7 °C bis 10,1 °C
Februar 1999:	-3,5 °C bis 8,9 °C	Februar 2000:	2,2 °C bis 9,8 °C
März 1999:	3,3 °C bis 11,4 °C	März 2000:	1,8 °C bis 11,3 °C
April 1999:	3,6 °C bis 15,7 °C	April 2000:	4,6 °C bis 17,6 °C
Mai 1999:	9,4 °C bis 21,1 °C	Mai 2000:	10,3 °C bis 21,4 °C
Juni 1999:	11,4 °C bis 20,2 °C	Juni 2000:	12,0 °C bis 25,9 °C
Juli 1999:	14,5 °C bis 23,5 °C	Juli 2000:	12,4 °C bis 20,0 °C
August 1999:	12,3 °C bis 23,6 °C	August 2000:	14,4 °C bis 22,2 °C
September 1999:	14,2 °C bis 21,7 °C	September 2000:	13,6 °C bis 20,2 °C
Oktober 1999:	5,9 °C bis 15,0 °C	Oktober 2000:	8,6 °C bis 15,3 °C
November 1999:	-1,2 °C bis 13,0 °C		
Dezember 1999:	-0,1 °C bis 9,2 °C		

Dauerfrostperioden waren über den gesamten Betriebszeitraum nicht zu verzeichnen.

Die Niederschlagsmengen und die pro Betriebsmonat im Zeitraum 1/1999 bis 10/2000 erhaltenen Sickerwassermengen sind für die Böden 1.1 und 6.2 in Tab. 15 bzw. Tab. 16 zusammengefasst.

Im Zuge der 22-monatigen Betriebszeit waren insgesamt 1.263 mm Niederschlag (691 mm im Zeitraum 1-12/99 und 572 mm im Zeitraum 1-10/00) zu verzeichnen, wobei in den Monaten Mai bis August 1999 sowie April und Juni 2000 zusätzlich künstlich beregnet wurde, so dass sich im Betrachtungszeitraum eine kumulierte Niederschlagsmenge von 1.428 mm ergibt. Im mit Boden 1.1 befüllten Lysimeter ergab sich im Betrachtungszeitraum eine kumulierte Sickerwassermenge von 1.834 l entsprechend 1.223 mm (Tab. 15). Die daraus resultierende Differenz zwischen Niederschlags- und Sickerwassermenge (205 mm) wurde zum überwiegenden Teil in den warmen Sommermonaten (6-9/99 und 6-8/99) beobachtet, wo eine Verdunstung des Regenwassers begünstigt wurde. Andererseits ergab sich in den ersten 5 Betriebsmonaten (1-5/99) nur eine sehr geringe Differenz zwischen Niederschlags- und Sickerwassermenge von ca. 5 mm, was darauf hindeutet, dass der Boden beim Einbau in das Lysimeter mit 17 % (Tab. 3) einen durchschnittlichen Wassergehalt nahe seiner maximalen Wasserhaltekapazität besaß. In Abb. 6 sind die kumulierten Niederschlags- und Sickerwassermengen als Funktion der Betriebszeit für den Boden 1.1 grafisch dargestellt.

**Tab. 15: Niederschlag und Sickerwassermengen des mit Boden 1.1 befüllten Lysimeter**

Probe	Betriebs- zeitraum	Niederschlag [mm]	Niederschlag kumuliert [mm]	Sickerwasser		Sickerwasser kumuliert	
				[ l ]	[mm]	[ l ]	[mm]
MP 1/1999	Jan. 1999	54,6	54,6	58,0	38,7	58,0	38,7
MP 2/1999	Feb. 1999	40,9	95,5	89,2	59,5	147,2	98,1
MP 3/1999	Mär. 1999	57,2	152,7	107,7	71,8	254,9	169,9
MP 4/1999	Apr. 1999	44,9	197,6	76,5	51,0	331,4	220,9
MP 5/1999	Mai 1999	69,4 (2)	267,0	61,8	41,2	393,2	262,1
MP 6/1999	Jun. 1999	88,6 (1)	355,6	80,7	53,8	473,9	315,9
MP 7/1999	Jul. 1999	105,2 (3)	460,8	108,0	72,0	581,9	387,9
MP 8/1999	Aug. 1999	109,3 (1)	570,1	99,1	66,1	681,0	454,0
MP 9/1999	Sep. 1999	51,4	621,5	35,9	23,9	716,9	477,9
MP 10/1999	Oct. 1999	34,2	655,7	87,2	58,1	804,1	536,1
MP 11/1999	Nov. 1999	30,3	686,0	38,1	25,4	842,2	561,5
MP 12/1999	Dez. 1999	99,9	785,9	149,3	99,5	991,5	661,0
MP 1/2000	Jan. 2000	28,2	814,1	77,2	51,5	1068,7	712,5
MP 2/2000	Feb. 2000	64,5	878,6	82,3	54,9	1151,0	767,3
MP 3/2000	Mär. 2000	51,0	929,6	100,5	67,0	1251,5	834,3
MP 4/2000	Apr. 2000	72,5 (4)	1002,1	64,7	43,1	1316,2	877,5
MP 5/2000	Mai 2000	59,3	1061,4	102,7	68,5	1418,9	945,9
MP 6/2000	Jun. 2000	82,8 (4)	1144,2	76,4	50,9	1495,3	996,9
MP 7/2000	Jul. 2000	104,6	1248,8	114,7	76,5	1610,0	1073,3
MP 8/2000	Aug. 2000	48,8	1297,6	89,9	59,9	1699,9	1133,3
MP 9/2000	Sep. 2000	63,7	1361,3	66,3	44,2	1766,2	1177,5
MP 10/2000	Okt. 2000	66,2	1427,5	68,1	45,4	1834,3	1222,9

- (1) davon 20 mm künstlich beregnet
- (2) davon 25 mm künstlich beregnet
- (3) davon 30 mm künstlich beregnet,
- (4) davon 35 mm künstlich beregnet

Die kumulierte Sickerwassermenge aus dem mit Boden 6.2 befüllten Lysimeter liegt im 22-monatigen Betriebszeitraum mit 1.937 l bzw. 1.292 mm (Tab. 16) nur geringfügig höher als die für Boden 1.1. Auch hier ist die verdunstungsbedingte Differenz zwischen Beregnungs- und Sickerwassermenge in den Sommermonaten am höchsten (Abb. 7). Auffällig ist hingegen, dass die Differenz zwischen Beregnungs- und Sickerwassermenge in den ersten 5 Betriebsmonaten bei Boden 6.2 deutlich höher (29 mm) ist, was auf einen höheren Wasserbedarf zur Einstellung der maximalen Wasserhaltekapazität des Bodens 6.2 in den ersten Betriebswochen hindeuten könnte.

Zusammenfassend bleibt bei Betrachtung der Abb. 6 und 7 festzustellen, dass die beiden Bodenschüttungen in den Lysimetern ein weitgehend vergleichbares Durchströmungsverhalten im Hinblick auf den zeitlichen Verlauf des Sickerwasseranfalls aufweisen.

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

**Tab. 16: Niederschlag und Sickerwassermengen des mit Boden 6.2 befüllten Lysimeter**

Probe	Betriebs- zeitraum	Niederschlag [mm]	Niederschlag kumuliert [mm]	Sickerwasser		Sickerwasser kumuliert	
				[ l ]	[mm]	[ l ]	[mm]
MP 1/1999	Jan. 1999	54,6	54,6	6,4	4,3	6,4	4,3
MP 2/1999	Feb. 1999	40,9	95,5	86,0	57,6	92,4	61,9
MP 3/1999	Mär. 1999	57,2	152,7	95,2	63,8	187,6	125,7
MP 4/1999	Apr. 1999	44,9	197,6	70,2	47,0	257,8	172,7
MP 5/1999	Mai 1999	69,4 (2)	267,0	60,6	40,6	318,4	213,3
MP 6/1999	Jun. 1999	88,6 (1)	355,6	89,1	59,4	407,5	271,7
MP 7/1999	Jul. 1999	105,2 (3)	460,8	111,5	66,7	507,6	338,4
MP 8/1999	Aug. 1999	109,3 (1)	570,1	143,5	95,7	651,1	434,1
MP 9/1999	Sep. 1999	51,4	621,5	35,8	23,9	686,9	458,0
MP10/1999	Okt. 1999	34,2	655,7	87,8	58,5	774,7	516,5
MP 11/1999	Nov. 1999	30,3	686,0	53,6	35,7	839,7	559,8
MP 12/1999	Dez. 1999	99,9	785,9	162,2	108,1	1001,9	667,9
MP 1/2000	Jan. 2000	28,2	814,1	63,8	42,5	1065,7	710,5
MP 2/2000	Feb. 2000	64,5	878,6	105,8	70,5	1171,5	781,0
MP 3/2000	Mär. 2000	51,0	929,6	95,1	63,4	1266,6	844,4
MP 4/2000	Apr. 2000	72,5 (4)	1002,1	80,4	53,6	1347	898,0
MP 5/2000	Mai 2000	59,3	1061,4	127,4	84,9	1474,4	982,9
MP 6/2000	Jun. 2000	82,8 (4)	1144,2	85,0	56,7	1559,4	1039,6
MP 7/2000	Jul. 2000	104,6	1248,8	127,7	85,1	1687,1	1124,7
MP 8/2000	Aug. 2000	48,8	1297,6	101,7	67,8	1788,8	1192,5
MP 9/2000	Sep. 2000	63,7	1361,3	73,0	48,7	1861,8	1241,2
MP 10/2000	Okt. 2000	66,2	1427,5	75,5	50,3	1937,3	1291,5

- (1) davon 20 mm künstlich beregnet
- (2) davon 25 mm künstlich beregnet
- (3) davon 30 mm künstlich beregnet
- (4) davon 35 mm künstlich beregnet

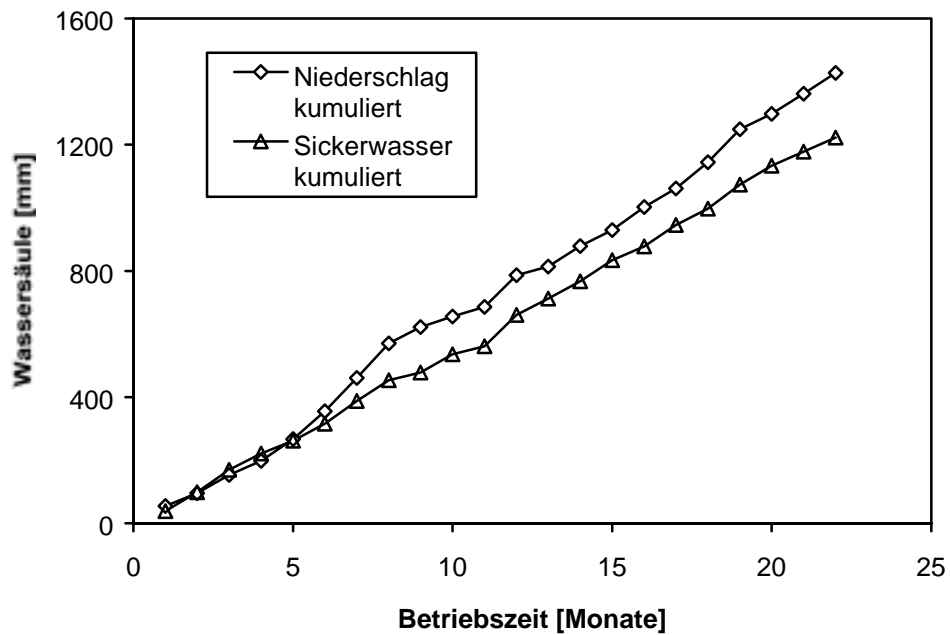


Abb. 6: Kumulierte Niederschlags- und Sickerwassermengen für das mit Boden 1.1 befüllte Lysimeter (Betriebsmonat 1 = Januar 1999)

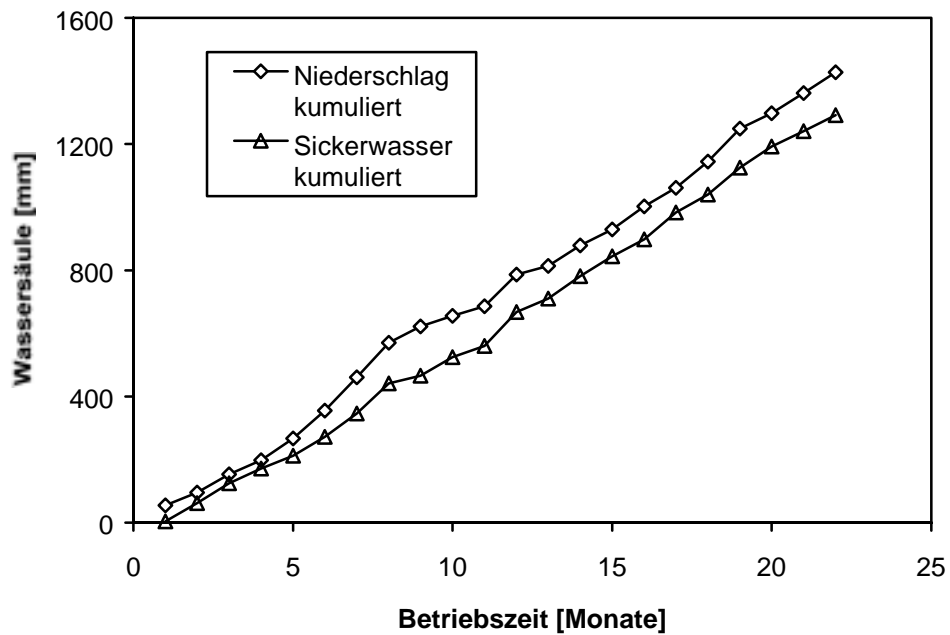


Abb. 7: Kumulierte Niederschlags- und Sickerwassermengen für das mit Boden 6.2 befüllte Lysimeter (Betriebsmonat 1 = Januar 1999)

## 5.4.2 Tracereperimente

Zur Charakterisierung der Durchströmungsverhältnisse in den Lysimetern wurden Tracereperimente durchgeführt. Ziel der Tracer-Ausbringung war es, Rückschlüsse auf die Porenverhältnisse in den Bodenschüttungen zu erhalten (z. B. Vorliegen bevorzugter Fließwege / Makroporen) und somit die Art des PAK-Transportes besser zu verstehen. Die Konzeptionierung, Durchführung und Auswertung des Experiments erfolgte durch das LUA-NRW.

Dazu wurden am 01.04.1999 auf die beiden Lysimeter jeweils 1,2 mol/m<sup>2</sup> Bromid (als Kaliumsalz) aufgebracht. Je Lysimeter (1,5 m<sup>2</sup> Oberfläche) wurden 214,2 g KBr (entspricht 143,8 g Bromid) in ca. 10 l Wasser gelöst und mittels Gießkanne gleichmäßig über die Lysimeteroberfläche verteilt. Ab dem Monat 04/1999 wurden die Sickerwässer monatlich und ab dem Monat 07/1999 in Absprache mit dem Auftraggeber häufiger auf den Parameter Bromid untersucht, um ein dichteres Probenraster für die Auswertung der Tracerversuche zu erhalten. Die Ergebnisse zur Bestimmung der Bromid-Gehalte in den Sickerwässern sind in Tab. 17 für Boden 1.1 und in Tab. 18 für Boden 6.2 zusammengefasst.

**Tab. 17: Bromid-Gehalte der Sickerwässer von Boden 1.1**

Probe	Betriebszeitraum	Sickerwasser [l]	Bromid		Bromid (kumuliert) [mg]
			[mg/l]	[mg]	
MP 3/1999	Mär. 1999	107,7	< 1	-	-
MP 4/1999	Apr. 1999	76,5	< 1	-	-
MP 5/1999	Mai 1999	61,8	< 1	-	-
MP 6/1999	Jun. 1999	80,7	7	565	565
EP 7/1/1999	01.-07. Jul. 1999	41,0	55	2.255	2.820
EP 7/2/1999	08.-14. Jul. 1999	36,3	76	2.759	5.579
EP 7/3/1999	15.-31. Jul. 1999	30,7	100	3.070	8.649
EP 8/1/1999	01.-16. Aug. 1999	43,1	190	8.189	16.838
EP 8/2/1999	17.-26. Aug. 1999	41,6	410	17.056	33.894
EP 8/3/1999	27.-31. Aug. 1999	14,4	660	9.504	43.398
EP 9/1/1999	01.-14. Sep. 1999	18,9	670	12.663	56.061
EP 9/2/1999	15.-30. Sep. 1999	17,9	620	11.098	67.159
EP 10/1/1999	01.-08. Okt. 1999	42,0	640	26.880	94.039
EP 10/2/1999	09.-24. Okt. 1999	41,4	480	19.872	113.911
EP 10/3/1999	25.-31. Okt. 1999	3,9	480	1.872	115.783
EP 11/1/1999	01.-30. Nov. 1999	38,1	340	12.954	128.737
EP 12/1/1999	01.-14. Dez. 1999	43,0	180	7.740	136.477
EP 12/2/1999	15.-20. Dez. 1999	40,0	82	3.280	139.757
EP 12/3/1999	21.-28. Dez. 1999	42,9	44	1.888	141.645
EP 12/4/1999	29.-31. Dez. 1999	23,4	27	632	142.277
EP 1/1/2000	01.-11. Jan. 2000	41,8	22	920	143.197
EP 1/2/2000	12.-31. Jan. 2000	35,4	14	496	143.693
EP 2/1/2000	01.-21. Feb. 2000	42,1	7	295	143.988
EP 2/2/2000	22.-29. Feb. 2000	40,2	4	161	144.149
MP 3/2000	März 2000	100,5	2	201	144.350

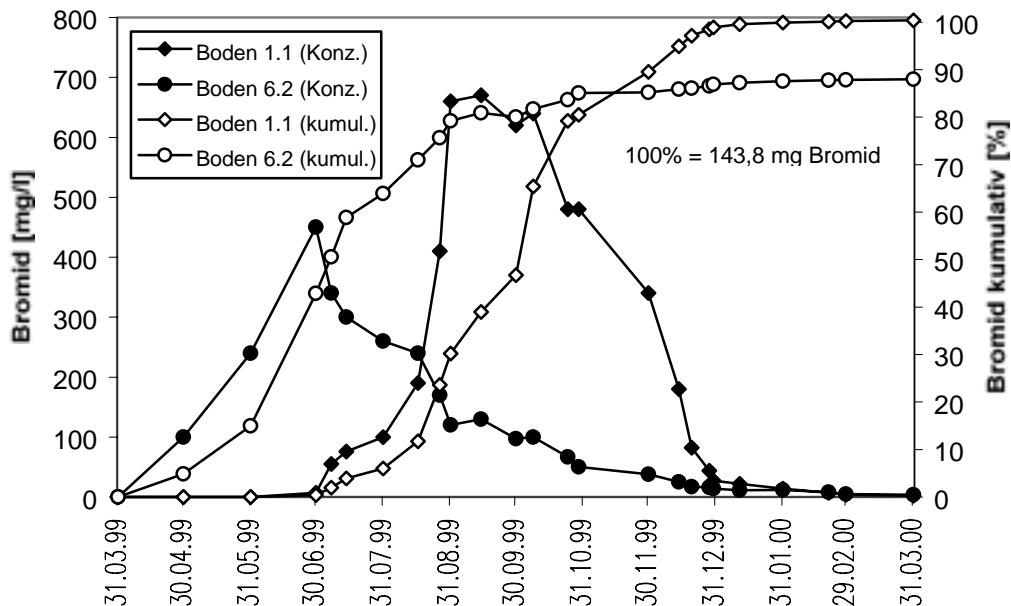
Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

**Tab. 18: Bromid-Gehalte der Sickerwässer von Boden 6.2**

Probe	Betriebszeitraum	Sickerwasser [ l ]	Bromid		Bromid (kumuliert) [mg]
			[mg/l]	[mg]	
MP 3/1999	Mär. 1999	95,2	< 1	-	-
MP 4/1999	Apr. 1999	70,2	100	7.020	7.020
MP 5/1999	Mai 1999	60,6	240	14.544	21.564
MP 6/1999	Jun. 1999	89,1	450	40.095	61.659
EP 7/1/1999	01.-05. Jul. 1999	32,5	340	11.050	72.709
EP 7/2/1999	06.-13. Jul. 1999	39,7	300	11.910	84.619
EP 7/3/1999	14.-31. Jul. 1999	27,9	260	7.254	91.873
EP 8/1/1999	01.-10. Aug. 1999	42,6	240	10.224	102.097
EP 8/2/1999	11.-16. Aug. 1999	39,3	170	6.681	108.778
EP 8/3/1999	17.-23. Aug. 1999	43,0	120	5.160	113.938
EP 8/4/1999	24.-31. Aug. 1999	18,7	130	2.431	116.369
EP 9/1/1999	01.-14. Sep. 1999	11,9	97	1.154	115.092
EP 9/2/1999	15.-30. Sep. 1999	23,9	100	2.390	117.482
EP 10/1/1999	01.-04. Okt. 1999	43,0	67	2.881	120.363
EP 10/2/1999	05.-22. Okt. 1999	40,3	50	2.015	122.378
EP 10/3/1999	23.-31. Okt. 1999	4,5	38	171	122.549
EP 11/1/1999	01.-23. Nov. 1999	40,0	25	1.000	123.549
EP 11/2/1999	24.-30. Nov. 1999	13,6	17	231	123.780
EP 12/1/1999	01.-13. Dez. 1999	42,0	16	672	124.452
EP 12/2/1999	14.-17. Dez. 1999	40,4	14	566	125.018
EP 12/3/1999	18.-27. Dez. 1999	42,6	11	469	125.487
EP 12/4/1999	28.-31. Dez. 1999	37,2	12	446	125.933
EP 1/1/2000	01.-12. Jan. 2000	40,0	8	320	126.253
EP 1/2/2000	13.-31. Jan. 2000	23,8	5	119	126.372
EP 2/1/2000	01.-16. Feb. 2000	42,0	4	168	126.540
EP 2/2/2000	17.-25. Feb. 2000	41,5	2	83	126.623
EP 2/3/2000	26.-29. Feb. 2000	22,3	3	67	126.690
MP 3/2000	März 2000	95,1	4	380	127.070

Die Grundlage für die weitere Auswertung der durchgeführten Tracerversuche bildet die Aufzeichnung der Konzentrationsdurchgänge (Bromid) im Sickerwasser in den beiden Lysimetern in Abhängigkeit von der Zeit (Abb. 8). Auffällig ist zunächst, dass bei der Wiederfindungskontrolle des Bromidtracers (kumulative Bromidmenge im Sickerwasser) im Boden 6.2 nur 88 % des Bromids wiedergefunden werden konnten. Aufgrund der sehr geringen Br-Konzentration zum Versuchsende ist dennoch davon auszugehen, dass der Tracer die Bodensäule bereits vollständig passiert hat, wie dies auch für den Boden 1.1 mit Erreichen der 100 % - Marke dokumentiert werden kann. Die Ursache für diesen Fehlbefund konnte nicht ermittelt werden, offensichtliche Fehlerquellen (falsch abgewogene

Tracermenge, Fehler bei der Ausbringung, Verschütten, Verluste bei der Sickerwassersammlung) können allerdings weitestgehend ausgeschlossen werden.



**Abb. 8: Bromid-Durchgangskurven und kumulative Bromidmengen im Sickerwasser der Böden 1.1 und 6.2 im Lysimeterversuch (Applikation am 01.04.1999)**

Aus den resultierenden Durchgangskurven können indirekt geohydraulische Parameter abgeleitet werden (Tab. 19). Die Abstandsgeschwindigkeit  $v_a$  ist definiert als der Quotient aus Entfernung  $x$  zwischen Eingabe- und Messstelle (Schütthöhe Lysimeter) und dem zeitlichen Abstand  $t$  des Durchganges des Markierungsstoffes vom Eingabetermin: Es wird dabei zwischen der maximalen, dominierenden und mittleren Abstandsgeschwindigkeit unterschieden. Zur Bestimmung der maximalen Abstandsgeschwindigkeit  $v_a(t_{max})$  wird die Zeit bis zum ersten Nachweis des Markierungsstoffes ( $t_{max}$ ) eingesetzt. Die dominierende Abstandsgeschwindigkeit berechnet sich durch die Zeit bis zum Auftreten der Maximalkonzentration ( $t_{dom}$ ). Ein häufig angewendetes Verfahren errechnet die mittlere Abstandsgeschwindigkeit aus der Zeit  $t_{med}$ , die aus der kumulativen Konzentrations-Zeit-Kurve bei 50 % der wiedergefundenen Menge an Markierungsstoff abgeleitet wird.

**Tab. 19: Abgeleitete Kenngrößen aus dem Tracerversuch für die Böden 1.1 und 6.2**

Größe	Boden 1.1	Boden 6.2
$t_{\max}$	91 d	< 30 d
$t_{\text{dom}}$	167 d	91 d
$t_{\text{med}}$	185 d	93 d
$V_a(t_{\max})$	1,2 cm/d	> 3,3 cm/d
$V_a(t_{\text{dom}})$	0,66 cm/d	1,10 cm/d
$V_a(t_{\text{med}})$	0,59 cm/d	1,04 cm/d
Sickerwassermenge bis $t_{\max}$	146 mm	< 47 mm
Sickerwassermenge bis $t_{\text{med}}$	307 mm	167 mm
Zeit bis zur vollständigen Tracerpassage (1)	305 d ( $t_{\text{med}} + 120$ d)	275 d ( $t_{\text{med}} + 182$ d)
Sickerwassermenge bis zur vollständigen Tracerpassage (1)	542 mm	536 mm
maximales Porenvolumen für die Versickerung (GPV-FP)	463 mm	364 mm
realistisches Porenvolumen für die ungesättigte Wasserbewegung (eGP+MP)	205 mm	201 mm

(1) für Boden 1.1 99,9 % und für Boden 6.2 87,9 % (88% Maximum) Wiederfindung

### Boden 1.1:

Im Sickerwasser unter natürlichen Niederschlagsbedingungen war nach Passage des Bodens 1.1 nach 91 Tagen Bromid nachweisbar, 50 % des Bromids hatten die Bodensäule nach 185 Tagen verlassen, nach weiteren 120 Tagen hatte praktisch sämtliches appliziertes Bromid den Boden im Lysimeter passiert. Unter den Bedingungen im Lysimeter erfolgte die schnellste Verlagerung demnach mit 1,2 cm/d, die mediane Geschwindigkeit lag bei 0,59 cm/d, die langsamste Tracerbewegung konnte mit 0,36 cm/d bestimmt werden (Tab. 19). Die tatsächliche ungesättigte Leitfähigkeit des Bodens 1.1 lag damit deutlich (im Median um den Faktor 73) unter der im Labor bestimmten gesättigten Leitfähigkeit von 43 cm/d (Kap. 5.1.3), da unter natürlichen Bedingungen nicht alle Poren am Wassertransport beteiligt sind. So unterliegt das Haftwasser in den Feinporen praktisch keiner Versickerung, und große Teile der weiten Grobporen sind nahezu ständig luftgefüllt. Das realistisch einzuschätzende Porenvolumen, in dem die Wasserbewegung stattfindet (enge Grobporen und Mittelporen), entspricht einer Wassermenge von 205 mm in der Bodensäule des Lysimeters (vergl. Tab. 5). Bis zum ersten Auftreten des Bromids wurde dieses Volumen vom Sickerwasser etwa 0,7 mal durchströmt. Demnach kann bei diesem Boden auf einen gewissen (eher geringen) Transportanteil auf präferentiellen Fließwegen (schneller Makroporenfluss) geschlossen werden. Zum Transport von 50% des Tracers wurde das an der Wasserbewegung teilnehmende Porenvolumen 1,5 mal, bis zur vollständigen Passage des Tracers 2,6 mal ausgetauscht. Demnach hat ein Großteil der Wasserbewegung langsam

unter Durchströmung der Bodenmatrix stattgefunden, nur ein kleiner Teil hat den Boden rasch und ohne großen Kontakt auf präferentiellen Fließwegen passiert. Für einen eher gleichmäßigen Transport in der Bodensäule spricht auch die fast gleichseitige Verteilung der Bromidkonzentration beiderseits der Spitzenkonzentration (Abb. 8). Auch die benötigte Zeit und Sickerwassermenge für die ersten bzw. zweiten ausgewaschenen 50% des Bromids sprechen für eine der Korngrößenverteilung angemessene gleichmäßige Durchströmung mit gleichen Transportprozessen für beide Hälften der verlagerten Bromidmengen.

### **Boden 6.2:**

Der Boden 6.2 zeigt bezüglich der Wasserbewegung ein anderes Verhalten als der Boden 1.1. Hier war bereits in der 1. Sickerwasserprobe nach 30 Tagen etwa 5 % des applizierten Bromids wiederzufinden, 50% des Bromids hatten den Boden bereits nach 93 Tagen verlassen, die übrigen 50% benötigten im Anschluss noch weitere 182 Tage zur Passage. Unter den Bedingungen im Lysimeter erfolgte die schnellste Verlagerung demnach mit einer Geschwindigkeit von mehr als 3,3 cm/d. Im Median lag die Geschwindigkeit bei 1,1 cm/d, und die langsamste Verlagerung des Tracers wurde - wie im Boden 1.1- mit 0,36 cm/d bestimmt (Tab. 19). Die im Labor bestimmte sehr geringe gesättigte Leitfähigkeit von 0,4 mm/d (Kap. 5.1.4) war vermutlich auf die Zerstörung der Poren bei der Messung zurückzuführen, da aufgrund der Korngrößenverteilung/Lagerungsdichte Werte um 16 cm/d zu erwarten gewesen wären. Damit lag die Leitfähigkeit im Lysimeter zwar über den gemessenen  $K_f$ -Werten, aber (im Median um den Faktor 14) unter der zu erwartenden gesättigten Leitfähigkeit. Ähnlich wie im Boden 1.1 liegt das für die Wasserbewegung zur Verfügung stehende Porenvolumen im Lysimeter bei 201 mm. Bis zum ersten Auftreten des Bromids wurde die Bodensäule demnach weniger als 0,23 mal durchströmt. Dies deutet zusammen mit dem sehr raschen Auftreten des Tracer auf einen sehr großen Anteil der Wasserbewegung auf präferentiellen Fließwegen unter Umgehung der Bodenmatrix hin. Zum Transport von 50% des aufgegebenen Bromids wurde der Boden nur 0,83 mal, bis zur vollständigen Passage hingegen 2,7 mal durchströmt. Demnach hat ein Großteil der Wasserbewegung rasch und ohne großen Bodenkontakt auf präferentiellen Fließbahnen stattgefunden, weniger als die Hälfte der Sickerwassermenge ist über intensiven Bodenkontakt versickert. Hierfür spricht auch die ausgesprochene Schiefe der Bromidkonzentrationsverteilung vor und nach der Spitzenkonzentration. Während die erste Hälfte der Bromidmenge in 93 Tagen und mit 167 mm Sickerwasser verlagert wird, benötigt die zweite Hälfte etwa doppelt soviel Zeit (182 Tage) und Sickerwasser (369 mm). Dies spricht dafür, dass das applizierte Bromid zu einem großen Teil in konzentrierter Form zu Beginn auf präferentiellen Fließwegen verlagert wurde. Der in die Bodenmatrix eingesickerte Teil wird im Anschluss deutlich langsamer verlagert, da immer ein Teil des Sickerwassers unter Umgehung der Bodenmatrix versickert und nicht bzw. kaum an der Tiefenverlagerung des im Boden vorhandenen Bromids beteiligt ist. Daher benötigt dieser Teil des Bromid ungleich mehr Zeit und Wassermenge um aus dem Boden ausgespült zu werden.

Wo diese präferentiellen Fließbahnen (Makroporen) verlaufen, kann nur vermutet werden. In Betracht kommen hierfür die Kontaktflächen zwischen Boden und Gefäßwand oder Bodenrisse und -spalten,

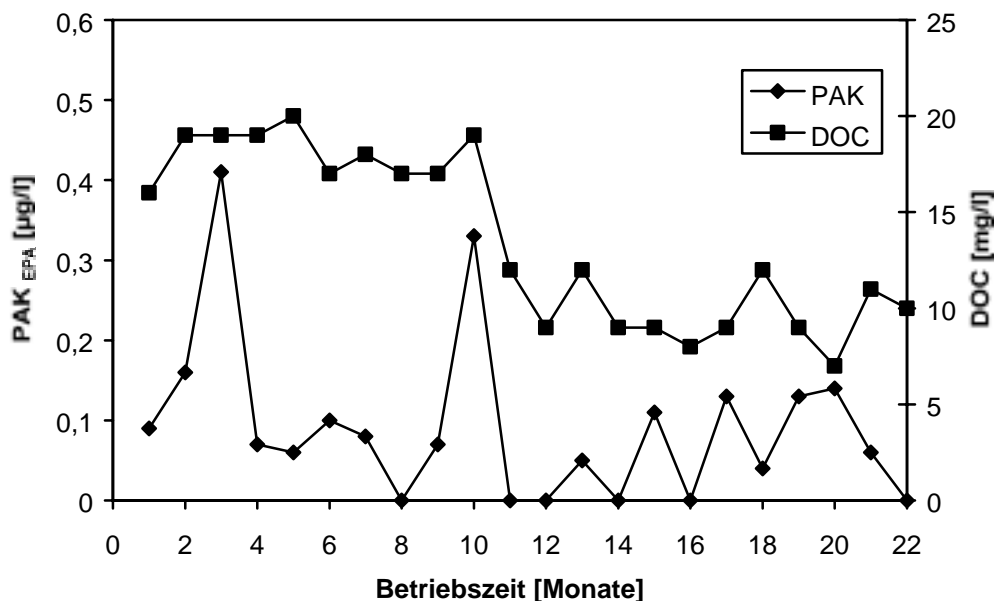
die sich aufgrund der Korngrößenstruktur und des labilen Aggregatgefüges des Bodens durch Quellungs- und Schrumpfungsprozesse im Zuge des Lysimeterbetriebs durchaus aufweiten können.

### 5.4.3 Zeitlicher Verlauf des Schadstoffaustrages

Zur Charakterisierung des Schadstoffaustrages wurden monatliche Sickerwassermischproben auf die in Tab. 14 (Kap. 5.3) aufgeführten Parameter untersucht.

#### Boden 1.1:

Die Ergebnisse sind in Tab. 20 für den Boden 1.1 zusammengefasst. Die Sickerwässer waren über die gesamte betrachtete Betriebszeit klar, farb- und geruchlos, enthielten nur sehr geringe Mengen an Schwebstoffen (Trübung durchgehend < 5 FNU) und besaßen einen pH-Wert zwischen 7,7 und 8,1 (Tab. 20). Bei den DOC-Gehalten der Sickerwässer wurden in den ersten 10 Betriebsmonaten zunächst ebenfalls konstante Werte zwischen 16 mg/l und 20 mg/l, gefolgt von einer leichten Abnahme mit anschließender Stabilisierung bei ca. 10 mg/l, bestimmt. Daraus ist abzuleiten, dass der Boden 1.1 nur geringe Anteile an mobilisierbarer organischer Substanz aufweist. Der in Abb. 9 zusammen mit den DOC-Gehalten dargestellte zeitliche Verlauf des PAK<sub>EPA</sub>-Austrages zeigt über den gesamten Betriebszeitraum nur sehr geringe Schadstoffgehalte von durchweg deutlich < 0,5 µg/l mit einer leichten Erhöhung der Konzentration im 3. und 10. Betriebsmonat. Die Konzentrationen der in der Mischprobe 01/99 zusätzlich erfassten potenziellen Begleitkontaminationen liegen ausnahmslos unterhalb der analytischen Nachweisgrenze, so dass auf eine weitere Untersuchung dieser Parameter verzichtet wurde.



**Abb. 9:** Zeitlicher Verlauf der PAK<sub>EPA</sub>-Gehalte und der DOC-Gehalte in den Sickerwässern des mit Boden 1.1 befüllten Lysimeters

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

Sowohl die Gesamtkeimzahl als auch insbesondere die Zellzahl an PAK-verwertenden Bakterien nimmt, ausgehend von geringen Zellzahlen zu Betriebsbeginn, im Verlauf des Lysimeterbetriebes tendenziell noch weiter ab. Für die PAK-Verwerter wurden ab dem 3. Betriebsmonat durchweg Zellzahlen von deutlich  $< 10^3$  KBE/ml bestimmt. Somit erscheint es auch im Zusammenhang mit den in Kap. 5.2.2 dargestellten Ergebnissen zum biologischen Schadstoffabbau unwahrscheinlich, dass die extrem niedrigen PAK-Gehalte in den Sickerwässern des mit Boden 1.1 befüllten Lysimeters ursächlich auf einen biologischen PAK-Abbau im Sickerwasser zurückzuführen sind.

**Tab. 20: Chemisch/analytische Charakterisierung der Sickerwässer des Bodens 1.1**

Parameter/Probe	MP 01/99	MP 02/99	MP 03/99	MP 04/99	MP 05/99	MP 06/99	MP 07/99	MP 08/99	MP 09/99	MP 10/99	MP 11/99
Naphthalin [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,03	0,10	0,15	< 0,02	0,02	< 0,02	0,05	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Acenaphthylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Acenaphthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,03	0,05	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,14	< 0,02
Fluoren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	0,07	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,06	< 0,02
Phenanthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,03	0,05	0,04	0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02	0,02	0,03	< 0,02	< 0,02	0,02	0,03	< 0,02
Fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,06	< 0,02	0,07	< 0,02	< 0,02	0,07	0,03	< 0,02	0,05	0,08	< 0,02
Pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02
Benzo(a)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Chrysen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(b)fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(k)fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Dibenzo(a,h)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(g,h,i)perylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
<b>PAK nach EPA</b> [ $\mu\text{g/l}$ ]	<b>0,09</b>	<b>0,16</b>	<b>0,41</b>	<b>0,07</b>	<b>0,06</b>	<b>0,10</b>	<b>0,08</b>	-	<b>0,07</b>	<b>0,33</b>	-
PAK nach TVO [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,06	-	0,07	-	-	0,07	0,03	-	0,05	0,08	-
Kohlenwasserstoffe [ $\text{mg/l}$ ]	< 0,1	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Phenolindex [ $\text{mg/l}$ ]	< 0,005	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Benzol [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Toluol [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Ethylbenzol [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Xylole [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
DOC [ $\text{mg/l}$ ]	16	19	19	19	20	17	18	17	17	19	12
pH-Wert	7,8	7,8	7,9	7,8	7,9	7,9	8,0	8,0	7,7	8,1	7,8
Trübung [FNU]	2,0	2,1	4,2	2,5	2,6	1,6	1,1	1,3	3,7	2,0	2,1
Gesamtzellzahl [KBE/ml]	1,9E4	2,0E2	2,0E1	n.b.	< 10	n.b.	1,2E2	n.b.	8,9E2	n.b.	4,8E2
Zellzahl PAK-Verw.[KBE/ml]	1,6E4	1,0E2	< 10	n.b.	< 10	n.b.	4,8E1	n.b.	< 10	n.b.	1,1E2

n.b. = nicht bestimmt

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

**Tab. 20: (Fortsetzung)**

Parameter/Probe	MP 12/99	MP 01/00	MP 02/00	MP 03/00	MP 04/00	MP 05/00	MP 06/00	MP 07/00	MP 08/00	MP 09/00	MP 10/00
Naphthalin [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,11	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,10	0,03	< 0,02	< 0,02
Acenaphthylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Acenaphthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Fluoren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Phenanthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,04	0,04	< 0,02	0,03	< 0,02	< 0,02
Anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02	< 0,02	0,03	0,02	< 0,02
Fluoranthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,05	< 0,02	0,03	0,05	0,04	< 0,02
Pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Chrysen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(b)fluoranthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(k)fluoranthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Dibenzo(a,h)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(g,h,i)perylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
<b>PAK nach EPA</b> [ $\mu\text{g/l}$ ]	-	<b>0,05</b>	-	<b>0,11</b>	-	<b>0,13</b>	<b>0,04</b>	<b>0,13</b>	<b>0,14</b>	<b>0,06</b>	-
PAK nach TVO [ $\mu\text{g/l}$ ]	-	-	-	-	-	0,05	-	0,03	0,05	0,04	-
DOC [mg/l]	9	12	9	9	8	9	12	9	7	11	10
pH-Wert	8,0	8,0	8,0	8,0	7,9	8,0	8,0	8,0	8,0	7,8	7,9
Trübung [FNU]	3,9	4,2	3,8	2,3	2,2	3,4	2,9	7,6	2,8	1,4	1,5
Gesamtzellzahl [KBE/ml]	n.b.	6,1E2	n.b.	n.b.	1,2E2	n.b.	n.b.	2,2E2	n.b.	n.b.	2,1E2
Zellzahl PAK-Verw.[KBE/ml]	n.b.	2,2E2	n.b.	n.b.	5,0E1	n.b.	n.b.	1,8E2	n.b.	n.b.	2,0E1

n.b. = nicht bestimmt

## Boden 6.2:

Die Sickerwässer des mit Boden 6.2 befüllten Lysimeters waren ausnahmslos klar und leicht gelblich gefärbt, geruchlos, enthielten nur geringe Schwebstoffanteile (FNU durchweg  $< 10$ ) und waren durch einen konstanten pH-Wert zwischen 7,7 und 8,0 charakterisiert (Tab. 21). Beim DOC-Gehalt sind über die gesamte Betriebszeit erhöhte Werte von anfänglich deutlich über 100 mg/l zu verzeichnen, wobei sich im Verlauf des Betriebs eine kontinuierliche, leichte Abnahme der Konzentration bis auf Werte um ca. 30 mg/l zum Ende der Betriebszeit vollzog (Abb. 10). Im Vergleich zum Bodenmaterial 1.1 besitzt der Boden 6.2 somit deutlich höhere Anteile an mobilisierbarer organischer Substanz.

Der  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$ -Austrag mit den Sickerwässern ist für Boden 6.2 in Abb. 10 im zeitlichen Verlauf graphisch dargestellt. Deutlich zu erkennen ist das Maximum im 2. Betriebsmonat (8,77  $\mu\text{g/l}$ , überwiegend durch Acenaphthen und Fluoren bedingt), gefolgt von einer raschen Abnahme der PAK-Konzentration bis auf Werte  $< 1 \mu\text{g/l}$  ab dem 5. Betriebsmonat. Im Betriebszeitraum 10/1999 bis 2/2000 ist, korreliert mit der kühleren Witterung, eine leichte Erhöhung der mit dem Sickerwasser ausgetragenen PAK-Fracht zu erkennen, welche ab 03/2000 wieder auf Konzentrationen von konstant  $< 1 \mu\text{g/l}$  abfällt. Bei Betrachtung der Einzelparameter dominieren Acenaphthen, Fluoren und Naphthalin, gefolgt von Fluoranthren, Pyren und Phenanthren. Ein Vergleich des  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$ -Austrages und des DOC-Austrages zeigt einen tendenziell ähnlichen zeitlichen Verlauf, wobei jedoch die Abnahme der PAK-Gehalte in den Sickerwässern nach anfänglich erhöhten Werten gegenüber dem DOC deutlicher schneller und ausgeprägter erfolgt (Abb. 10).

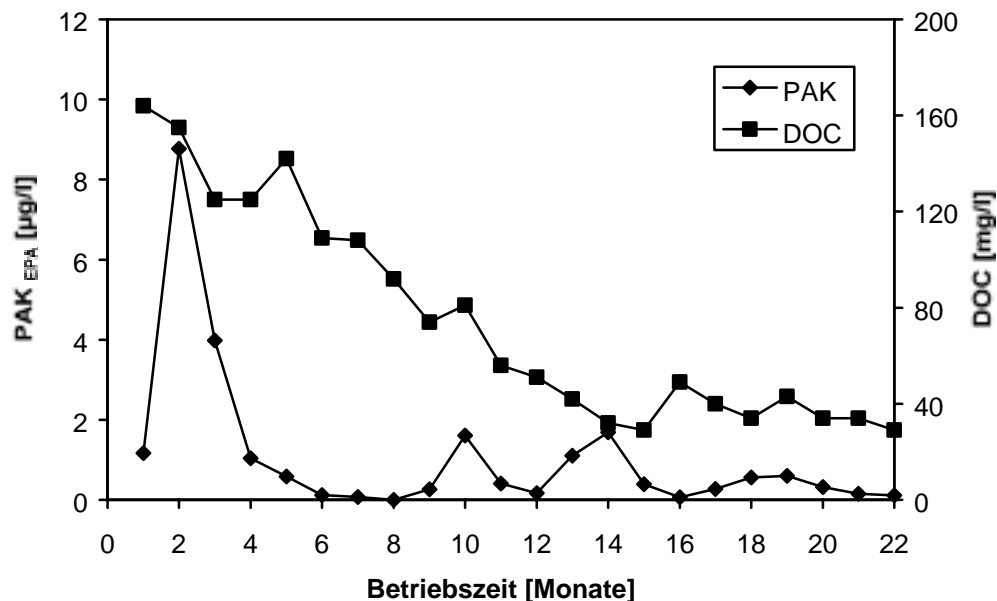


Abb. 10: Zeitlicher Verlauf der  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$ -Gehalte und der DOC-Gehalte in den Sickerwässern des mit Boden 6.2 befüllten Lysimeters

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

Von den analytisch erfassten Begleitkontaminationen wurde im ersten Betriebsmonat nur für die Phenole eine geringfügig über der Nachweisgrenze liegende Konzentration bestimmt.

Die Gesamtkeimzahl und die Zellzahl an PAK-verwertenden Bakterien ist bei einem Maximum im ersten Betriebsmonats (5,1E4 KBE/ml bei MP 01/99) als gering bis moderat zu bezeichnen, liegt jedoch im Durchschnitt um mindestens eine Zehnerpotenz höher als bei dem Bodenmaterial 1.1.

**Tab. 21: Chemisch/analytische Charakterisierung der Sickerwässer des Bodens 6.2**

Parameter/Probe	MP 01/99	MP 02/99	MP 03/99	MP 04/99	MP 05/99	MP 06/99	MP 07/99	MP 08/99	MP 09/99	MP 10/99	MP 11/99
Naphthalin [µg/l]	0,18	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	1,0	0,06
Acenaphthylen [µg/l]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Acenaphthen [µg/l]	< 0,02	5,2	2,3	0,13	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,14	0,14
Fluoren [µg/l]	< 0,02	2,0	0,30	0,06	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,02	0,08	0,07
Phenanthren [µg/l]	< 0,02	0,10	0,16	0,06	0,07	< 0,02	0,03	< 0,02	< 0,02	0,26	0,08
Anthracen [µg/l]	0,08	0,27	0,04	0,10	0,04	0,05	< 0,02	< 0,02	0,06	0,04	< 0,02
Fluoranthren [µg/l]	0,44	0,86	0,75	0,46	0,21	0,07	0,04	< 0,02	0,12	0,06	0,06
Pyren [µg/l]	0,25	0,33	0,43	0,23	0,18	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,06	0,03	< 0,02
Benzo(a)anthracen [µg/l]	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Chrysen [µg/l]	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(b)fluoranthren [µg/l]	0,05	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(k)fluoranthren [µg/l]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)pyren [µg/l]	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,05	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Dibenzo(a,h)anthracen [µg/l]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(g,h,i)perylene [µg/l]	0,05	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [µg/l]	0,03	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>1,17</b>	<b>8,77</b>	<b>3,98</b>	<b>1,04</b>	<b>0,58</b>	<b>0,12</b>	<b>0,07</b>	<b>-</b>	<b>0,26</b>	<b>1,61</b>	<b>0,41</b>
PAK nach TVO [µg/l]	0,60	0,86	0,75	0,46	0,29	0,07	0,04	-	0,12	0,06	0,06
Kohlenwasserstoffe [mg/l]	< 0,1	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Phenolindex [mg/l]	0,031	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Benzol [µg/l]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Toluol [µg/l]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Ethylbenzol [µg/l]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
Xylole [µg/l]	< 0,5	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
DOC [mg/l]	164	155	125	125	142	109	108	92	74	81	56
pH-Wert	7,9	7,9	8,0	7,7	7,8	7,8	7,8	7,9	7,8	7,9	8,1
Trübung [FNU]	4,7	6,5	3,1	3,0	3,9	3,2	3,3	3,4	2,9	1,7	2,7
Gesamtzellzahl [KBE/ml]	5,1E4	9,0E2	1,6E2	n.b.	7,9E2	n.b.	1,5E3	n.b.	9,4E2	n.b.	5,9E3
Zellzahl PAK-Verw.[KBE/ml]	1,6E4	8,0E2	< 10	n.b.	1,0E2	n.b.	1,0E2	n.b.	< 10	n.b.	1,5E2

n.b. = nicht bestimmt

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
 "Durchführung und Auswertung von Versuchen mit 2 Lysimetern in der Anlage  
 des LUA-NRW in Waldfeucht zur Beurteilung der mobilen und mobilisierbaren Anteile  
 von PAK in der ungesättigten Bodenzone"

**Tab. 21: (Fortsetzung)**

Parameter/Probe	MP 12/99	MP 01/00	MP 02/00	MP 03/00	MP 04/00	MP 05/00	MP 06/00	MP 07/00	MP 08/00	MP 09/00	MP 10/00
Naphthalin [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,38	0,64	0,29	< 0,02	0,03	0,06	0,05	0,09	< 0,02	< 0,02
Acenaphthylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Acenaphthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	0,47	0,73	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,40	0,50	0,04	< 0,02	< 0,02
Fluoren [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,07	0,25	0,16	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,10	0,03	0,03	< 0,02	< 0,02
Phenanthren [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,05	< 0,02	0,04	0,02	0,02	0,07	< 0,02	0,02	0,07	0,03	0,03
Anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,02	< 0,02	0,04	0,08	0,02	0,02	< 0,02	< 0,02	0,02	0,03	0,02
Fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,03	< 0,02	0,06	< 0,02	0,02	0,10	< 0,02	< 0,02	0,05	0,09	0,06
Pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02	< 0,02	0,05	< 0,02	< 0,02	0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Chrysen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(b)fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(k)fluoranthen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(a)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Dibenzo(a,h)anthracen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Benzo(g,h,i)perylen [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [ $\mu\text{g/l}$ ]	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
<b>PAK nach EPA</b> [ $\mu\text{g/l}$ ]	<b>0,17</b>	<b>1,10</b>	<b>1,69</b>	<b>0,39</b>	<b>0,06</b>	<b>0,27</b>	<b>0,56</b>	<b>0,60</b>	<b>0,32</b>	<b>0,15</b>	<b>0,11</b>
PAK nach TVO [ $\mu\text{g/l}$ ]	0,03	-	0,06	-	-	0,10	-	-	0,05	0,09	0,06
DOC [ $\text{mg/l}$ ]	51	42	32	29	49	40	34	43	34	34	29
pH-Wert	8,1	8,2	8,1	8,2	8,2	8,0	8,1	8,1	8,1	8,0	8,0
Trübung [FNU]	1,8	3,8	2,1	1,8	1,5	2,5	2,2	6,4	2,1	0,7	0,9
Gesamtzellzahl [KBE/ml]		6,5E2			1,0E2			3,7E3			9,1E2
Zellzahl PAK-Verw.[KBE/ml]		3,3E2			6,0E1			1,4E2			3,3E2

n.b. = nicht bestimmt

Zusammenfassend ist anhand der vorliegenden Ergebnisse zum 22-monatigen Betrieb der Lysimeter festzuhalten, dass bei Boden 1.1 nur eine sehr geringe PAK- und DOC-Fracht mit dem Sickerwasser ausgetragen wurde. Diese sehr geringe Mobilität kann durch sorptive Festlegung der Schadstoffe an  $C_{\text{org}}$ -reiche Bodenfraktionen bedingt sein, wie sie für das untersuchte Anschüttungsmaterial in Form von Kohle-/Kokspartikeln (Kap. 5.2.1) nachgewiesen wurden. Für den gewachsenen, bindigen Unterboden 6.2 wurden hingegen zumindest zu Beginn des Lysimeterbetriebes bei einem Maximum im 2. Betriebsmonat deutlich höhere PAK-Gehalte im Sickerwasser bestimmt. Bei der Interpretation der Ergebnisse für Boden 6.2 ist auch der mögliche mikrobielle Abbau als konzentrationsmindernder Prozess im Sickerwasser (vergl. Kap. 5.4.4) und der teilweisen Versickerung über präferentielle Fließwege zu berücksichtigen. Weiterhin sind für diesen Boden die erhöhten DOC-Gehalte im Sickerwasser bemerkenswert, welche auf einen erheblichen Anteil an mobilisierbarer organischer Substanz hindeuten. Beim Boden 6.2 ist eine tendenzielle Korrelation zwischen PAK- und DOC-Austrag mit dem Sickerwasser erkennbar.

#### **5.4.4 Schadstoffverteilung und mikrobielle Besiedelung im Bodenmaterial nach Versuchsbeendigung**

Nach Abschluss der vorgesehenen Betriebszeit für die Lysimeter wurde die Schadstoffverteilung und die mikrobielle Besiedelung (Gesamtzellzahl an aeroben Keimen und Zellzahl an Naphthalin-verwertenden Bakterien) in der Bodenschüttungen in Abhängigkeit von der Schichthöhe bestimmt. Dazu wurden mittels Handbohrgerät und analog zu der Vorgehensweise bei der Befüllung der Lysimeter (Kap. 5.1.2) pro ca. 35 cm Schütthöhe jeweils 9 Einzelproben entnommen, welche zu 3 Mischproben für die analytischen Bestimmungen mit der Bezeichnung 1.1u (ca. 0-35 cm Schütthöhe kontaminierter Boden), 1.1m (36-70 cm Schütthöhe) und 1.1o (71-100 cm Schütthöhe) vereinigt wurden. Zusätzlich wurde eine Probe als Mischprobe über die gesamte Schütthöhe (Probe 1.1 o/m/u) gewonnen. Eine analoge Probenbezeichnung wurde für das Bodenmaterial 6.2 gewählt.

In Tab. 22 sind die PAK-Gehalte und die Keimzahlen des Bodenmaterials 1.1 nach Versuchsende im Vergleich zum Ausgangsmaterial zusammengefasst. Sowohl bei Betrachtung der Summe  $PAK_{EPA}$ , als auch bei den Einzelparametern ist keine signifikante Abnahme im Vergleich zum Ausgangsmaterial zu verzeichnen. Die geringfügigen Abweichungen liegen im Bereich der analytischen Schwankungsbreite. Weiterhin ist keine Abhängigkeit der PAK-Gehalte von der Schichthöhe erkennbar, so dass keine Hinweise auf eine nennenswerte Verlagerung der Schadstoffe mit dem Sickerwasser vorliegen. Vielmehr belegt ein Vergleich der analytischen Parameter der Mischproben mit dem Mittelwert auch nach der 22-monatigen Betriebszeit der Lysimeter eine mit Bezug auf das Ausgangsmaterial weitgehend unveränderte, homogene Bodenschüttung.

Die mikrobielle Besiedelung im Bodenmaterial 1.1 nach Beendigung des Lysimeterversuchs ist mit durchschnittlich  $6,2 \times 10^4$  aeroben Keimen bzw.  $2,5 \times 10^2$  PAK-Verwertern als sehr gering einzustufen, wobei im Vergleich zum Ausgangsmaterial (Tab. 22) besonders bei den PAK-verwertenden Bakterien eine deutliche Abnahme um 3 Zehnerpotenzen zu verzeichnen ist. Diese Befunde stehen im Einklang mit den Ergebnissen zum PAK-Gehalt in der Bodenschüttung nach Versuchsende (weitgehend unveränderten im Vergleich zum Material bei Versuchsbeginn) und belegen, dass im Zuge des 22-monatigen Betriebs in dem mit Boden 1.1 befüllten Lysimeter kein signifikanter mikrobieller PAK-Abbau zu verzeichnen ist.

**Tab. 22: PAK-Gehalte und mikrobielle Besiedelung des Bodenmaterials 1.1 nach Versuchsende in Abhängigkeit von der Entnahmetiefe und im Vergleich zum Material bei Versuchsbeginn**

Parameter/Bodenprobe	Probe 1.1 o	Probe 1.1 m	Probe 1.1 u	Probe 1.1 o/m/u	Probe 1.1 (Mittelwert Versuchsende)	Probe 1.1 (Mittelwert Versuchsbeginn)
Naphthalin [mg/kg]	0,96	1,0	1,2	3,4	1,6	0,42
Acenaphthylen [mg/kg]	< 0,50	< 0,50	< 0,50	< 0,50	< 0,50	< 0,50
Acenaphthen [mg/kg]	3,9	2,1	3,2	< 0,05	2,3	5,0
Fluoren [mg/kg]	13	14	23	37	22	6,5
Phenanthren [mg/kg]	15	18	23	61	29	18
Anthracen [mg/kg]	37	56	50	180	81	98
Fluoranthen [mg/kg]	31	30	35	39	34	27
Pyren [mg/kg]	35	30	36	34	34	29
Benzo(a)anthracen [mg/kg]	30	24	31	20	26	45
Chrysen [mg/kg]	56	47	72	31	51	47
Benzo(b)fluoranthen [mg/kg]	74	59	71	40	61	50
Benzo(k)fluoranthen [mg/kg]	29	23	51	23	32	22
Benzo(a)pyren [mg/kg]	61	56	67	38	55	47
Dibenzo(a,h)anthracen [mg/kg]	9,5	7,5	9,7	5,2	8,0	8,6
Benzo(g,h,i)perylene [mg/kg]	50	40	47	23	40	49
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [mg/kg]	51	37	51	27	42	46
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>496</b>	<b>445</b>	<b>571</b>	<b>562</b>	<b>519</b>	<b>498</b>
PAK nach TVO [mg/kg]	296	245	322	190	263	241
Gesamtzellzahl (1) [KBE/g]	$5,4 \times 10^4$	$6,9 \times 10^4$	$5,3 \times 10^4$	$7,1 \times 10^4$	$6,2 \times 10^4$	$1,3 \times 10^6$
Zellzahl PAK-Verwerter [KBE/g]	$2,7 \times 10^2$	$1,5 \times 10^2$	$3,1 \times 10^2$	$2,7 \times 10^2$	$2,5 \times 10^2$	$3,1 \times 10^5$

(1) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

Die Ergebnisse der PAK-Bestimmungen und der Zellzahlbestimmungen für den gewachsenen Boden 6.2 sind in Tab. 23 zusammengefasst. Nach Abschluss der 22-monatigen Betriebszeit wurde im Vergleich zum Ausgangsmaterial eine durchschnittliche Reduzierung der PAK<sub>EPA</sub>-Gehalte von 955 mg/kg auf 349 mg/kg ermittelt, was einer Abnahme um ca. 63 % entspricht. Diese Abnahme ist besonders drastisch bei Naphthalin (93 %) und der Summe der 3-Ring PAK (78 %) und etwas geringer ausgeprägt bei den 4-Ring PAK (47 %) (siehe auch Tab. 25). Weiterhin ist bei den PAK-Gehalten eine Abhängigkeit von der Schichthöhe der Bodenschüttung erkennbar, wobei die oberflächennahe Mischprobe die geringsten Gehalte besonders bzgl. der als biologisch gut abbaubar einzustufenden 3-Ring PAK aufweist. Diese Befunde weisen insgesamt auf erhebliche mikrobielle Abbauprozesse und (sicherlich zu einem geringeren Anteil) auf eine mögliche Verflüchtigung der niedrigkondensierten PAK im Zuge des Lysimeterbetriebes hin. Auf die Möglichkeiten einer Bilanzierung der Schadstoffgehalte im Boden und Sickerwasser wird im folgenden Kapitel 5.4.5 eingegangen.

Die für den Boden 6.2 nach Beendigung des Lysimeterbetriebs im Durchschnitt ermittelten Gesamtkeimzahlen liegen im selben Bereich wie für das Bodenmaterial 1.1 und weisen den Boden als insgesamt gering besiedelt aus. Bei den PAK-verwertenden Bakterien wurde jedoch verglichen mit Boden 1.1 ein um eine Zehnerpotenz höherer Wert bestimmt, was im Einklang mit einem mikrobiellen Schadstoffabbau in der Bodenschüttung steht. Allerdings sind die hier ermittelten Zellzahlen, z. B. im Vergleich zu mikrobiell aktiven Böden aus der biologischen Mietensanierung, insgesamt sehr gering, wobei für eine weitergehende Bewertung und Interpretation der Korrelation zwischen PAK-Abbau und Anzahl der Schadstoffverwerter in der Bodenschüttung Vergleichsdaten aus dem Bereich langsam ablaufender Selbstreinigungsprozesse (natural attenuation) weitgehend fehlen.

**Tab. 23: PAK-Gehalte und mikrobielle Besiedelung des Bodenmaterials 6.2 nach Versuchsende in Abhängigkeit von der Entnahmetiefe und im Vergleich zum Material bei Versuchsbeginn**

Parameter/Bodenprobe	Probe 6.2 o	Probe 6.2 m	Probe 6.2 u	Probe 6.2 o/m/u	Probe 6.2 (Mittelwert Versuchsende)	Probe 6.2 (Mittelwert Versuchsbeginn)
Naphthalin [mg/kg]	3,3	2,9	2,8	2,2	2,8	39
Acenaphthylen [mg/kg]	< 0,05	< 0,05	< 0,05	< 0,05	< 0,05	< 0,5
Acenaphthen [mg/kg]	6,0	9,5	11	4,2	7,7	92
Fluoren [mg/kg]	11	19	24	34	22	127
Phenanthren [mg/kg]	40	51	75	74	60	310
Anthracen [mg/kg]	12	27	50	78	42	64
Fluoranthen [mg/kg]	56	67	77	48	62	130
Pyren [mg/kg]	24	33	53	32	35	60
Benzo(a)anthracen [mg/kg]	22	17	25	15	20	34
Chrysen [mg/kg]	25	22	28	17	23	39
Benzo(b)fluoranthen [mg/kg]	21	16	23	15	19	18
Benzo(k)fluoranthen [mg/kg]	12	8,3	10	12	11	7,8
Benzo(a)pyren [mg/kg]	26	17	27	17	22	17
Dibenzo(a,h)anthracen [mg/kg]	2,4	1,6	2,5	1,7	2,1	1,9
Benzo(g,h,i)perylene [mg/kg]	12	7,8	12	8,7	10	7,5
Indeno(1,2,3-c,d)pyren [mg/kg]	16	8,4	12	7,9	11	9,3
<b>PAK nach EPA [mg/kg]</b>	<b>289</b>	<b>308</b>	<b>432</b>	<b>367</b>	<b>349</b>	<b>955</b>
PAK nach TVO [mg/kg]	143	125	161	109	135	189
Gesamtzellzahl (1) [KBE/g]	5,5 x 10 <sup>4</sup>	4,5 x 10 <sup>4</sup>	9,8 x 10 <sup>4</sup>	6,8 x 10 <sup>4</sup>	6,7 x 10 <sup>4</sup>	2,4 x 10 <sup>5</sup>
Zellzahl PAK-Verwerter [KBE/g]	1,3 x 10 <sup>3</sup>	1,4 x 10 <sup>3</sup>	2,1 x 10 <sup>3</sup>	2,9 x 10 <sup>3</sup>	1,9 x 10 <sup>3</sup>	1,7 x 10 <sup>5</sup>

(1) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

## 5.4.5 Schadstoffbilanzierung

### 5.4.5.1 Boden 1.1

Im Zuge der 22-monatigen Betriebszeit des mit Boden 1.1 befüllten Lysimeters (1.930 kg<sub>TS</sub> Bodenmaterial) fielen insgesamt 1.834 l Sickerwasser an. Zur Berechnung der mit dem Sickerwasser ausgetragenen PAK-Frachten wurden die Analysendaten der monatlichen Mischproben mit der jeweiligen Gesamtmenge an Sickerwasser in Beziehung gesetzt. Die eluierte Gesamtmenge an PAK, der mit Bezug auf das kontaminierte Ausgangsmaterial eluierte PAK-Anteil sowie die daraus berechneten PAK-Emissionsraten sind in Tab. 24 zusammengefasst. Dabei wurde neben den Gesamtgehalten eine Differenzierung nach PAK-Gruppen entsprechend ihrer Ringzahl vorgenommen.

**Tab. 24: PAK-Gehalte im Feststoff, PAK-Austrag mit dem Sickerwasser, eluierte PAK-Anteile und PAK-Emissionsraten des mit Boden 1.1 befüllten Lysimeters**

Parameter	Naphthalin	3-Ring PAK	4-Ring PAK	5-6 Ring PAK	PAK <sub>EPA</sub>
Feststoff (Versuchsbeginn) [mg PAK / kg Feststoff]	0,42	127	148	223	498
Feststoff (Versuchsbeginn) (1) [g PAK gesamt]	0,81	245	286	430	961
Feststoff (Versuchsende) [mg PAK / kg Feststoff]	1,6	134	145	238	519
Feststoff (Versuchsende) (2) [g PAK gesamt]	3,1	259	280	459	1.002
eluierte Gesamtmenge (3) [µg PAK]	58,7	76,6	48,2	-	184
eluiertes Anteil (4) [µg PAK / kg Feststoff]	0,030	0,040	0,025	-	0,095
eluiertes Anteil (5) [Promille]	0,072	0,0003	0,00017	-	0,00019
Emissionsrate (Durchschnitt) [ng PAK / kg Feststoff x Tag]	0,045	0,061	0,038	-	0,144
Emissionsrate (Maximum) [ng PAK / kg Feststoff x Tag]	0,270	0,343	0,126	-	0,739

(1) Summe PAK in gesamter Lysimeterschüttung zu Versuchsbeginn

[mg PAK / kg Feststoff x kg Feststoff / 1000]

(2) Summe PAK in gesamter Lysimeterschüttung bei Versuchsende

[mg PAK / kg Feststoff x kg Feststoff / 1000]

(3) Summe der im Zuge der 22-monatigen Betriebszeit mit den Sickerwässern ausgetragenen PAK-Mengen

(4) Summe PAK eluiert / kg Feststoff in Lysimeter

(5) Summe PAK eluiert / g PAK in gesamter Lysimeterschüttung zu Versuchsbeginn

[µg PAK<sub>(Sickerwasser gesamt)</sub> / (g PAK<sub>(Lysimeterschüttung Versuchsbeginn gesamt)</sub> x 1000)]

Im Verlauf der 22-monatigen Betriebszeit wurden bei einem summarischen Verhältnis von Sickerwasser zu kontaminiertem Boden von 0,95 : 1 eine PAK-Gesamtmenge von nur 0,184 mg entsprechend einem eluierten Anteil von nur 0,00019 Promille ausgetragen. Dies entspricht einer durchschnittlichen PAK-Emissionsrate von unbedeutenden 0,144 ng pro kg Boden und Tag und einer im Betriebsmonat 3/1999 bestimmten maximalen PAK-Emissionsrate von 0,739 ng pro kg Boden und Tag. Bei den Einzelkomponenten dominieren bei insgesamt sehr niedrigen Werten neben Naphthalin die 3-Ring PAK sowie Fluoranthen.

Für den Boden 1.1 wurden weder anhand der mikrobiologischen Parameter im Sickerwasser (Kap. 5.4.3) und im Boden (Kap. 5.4.4), noch anhand der Untersuchungen zum biologischen Schadstoffabbau unter realitätsnahen Bedingungen (Kap. 5.2.2) oder anhand der PAK-Verteilung in der Bodenschüttung nach Versuchsbeendigung (Tab. 24, Kap. 5.4.4) Hinweise auf einen nennenswerten mikrobiellen PAK-Abbau erhalten. Daraus ist zusammen mit den Ergebnissen des Tracerversuchs (Kap. 5.4.2) abzuleiten, dass die für den Boden 1.1 ermittelten sehr niedrigen PAK-Emissionsraten als durch den gestörten Probeneinbau in das Lysimeter und durch mikrobielle Prozesse weitgehend unbeeinflusst anzusehen sind. Vielmehr besitzen die PAK nur eine sehr geringe Verfügbarkeit für den Wasserpfad und damit eine sehr geringe Mobilität, was ursächlich auf ihre sorptive Festlegung an die TOC-reiche Leichtgutfraktion (überwiegend bestehend aus Kohle-/Kokspartikeln, Kap. 5.2.1) des Boden 1.1 zurückzuführen ist.

#### **5.4.5.2 Boden 6.2**

Im Verlauf der 22-monatigen Betriebszeit des mit 2.229 kg<sub>TS</sub> Boden 6.2 befüllten Lysimeters fielen insgesamt 1.937 l Sickerwasser an. Die im Betriebszeitraum mit dem Sickerwasser eluierte PAK-Menge, der mit Bezug auf das kontaminierte Ausgangsmaterial eluierte PAK-Anteil sowie die berechneten PAK-Emissionsraten sind Tab. 25 zu entnehmen.

**Tab. 25: PAK-Gehalte im Feststoff, PAK-Austrag mit dem Sickerwasser, eluierte PAK-Anteile und PAK-Emissionsraten des mit Boden 6.2 befüllten Lysimeters**

Parameter	Naphthalin	3-Ring PAK	4-Ring PAK	5-6 Ring PAK	PAK <sub>EPA</sub>
Feststoff (Versuchsbeginn) [mg PAK / kg Feststoff]	39	592	262	62	955
Feststoff (Versuchsbeginn) (1) [g PAK gesamt]	87	1.320	584	138	2.129
Feststoff (Versuchsende) [mg PAK / kg Feststoff]	2,8	132	140	75	349
Feststoff (Versuchsende) (2) [g PAK gesamt]	6,2	294	312	166	778
eluierte Gesamtmenge (3) [µg PAK]	236	1.354	372	4,1	1.966
eluiertes Anteil (4) [µg PAK / kg Feststoff]	0,106	0,607	0,167	0,002	0,882
eluiertes Anteil (5) [Promille]	0,00272	0,00102	0,00063	0,00003	0,00092
Emissionsrate (Durchschnitt) [ng PAK / kg Feststoff x Tag]	0,161	0,920	0,253	0,003	1,336
Emissionsrate (Maximum) [ng PAK / kg Feststoff x Tag]	1,31	10,1	1,58	0,045	12,9

(1) Summe PAK in gesamter Lysimeterschüttung zu Versuchsbeginn

[mg PAK / kg Feststoff x kg Feststoff / 1000]

(2) Summe PAK in gesamter Lysimeterschüttung bei Versuchsende

[mg PAK / kg Feststoff x kg Feststoff / 1000]

(3) Summe der im Zuge der 22-monatigen Betriebszeit mit den Sickerwässern ausgetragenen PAK-Mengen

(4) Summe PAK eluiert / kg Feststoff in Lysimeter

(5) Summe PAK eluiert / g PAK in gesamter Lysimeterschüttung zu Versuchsbeginn

[µg PAK<sub>(Sickerwasser gesamt)</sub> / (g PAK<sub>(Lysimeterschüttung Versuchsbeginn gesamt)</sub> x 1000)]

Bei einem summarischen Verhältnis von Sickerwasser zu belastetem Boden von 0,87 : 1 wurden im Zuge der 22-monatigen Betriebszeit 1,97 mg PAK mit dem Sickerwasser eluiert. Dies entspricht einem eluierten Anteil von 0,882 µg pro kg Boden entsprechend 0,00092 Promille und einer durchschnittlichen PAK-Emissionsrate von 1,336 ng pro kg Boden und Tag. Bei den Einzelkomponenten dominieren Acenaphthen und Fluoren. Somit wurde auch für Boden 6.2 nur geringe durchschnittliche PAK-Emissionsraten und PAK-Sickerwasserkonzentrationen bestimmt, welche allerdings noch um einen Faktor von ca. 10 höher liegen als bei dem Anschüttungsmaterial 1.1 (Kap. 5.4.5.1).

Eine Betrachtung des zeitlichen Verlaufs der PAK-Gehalte im Sickerwasser (Abb. 9, Tab. 25) verdeutlicht, dass zu Versuchsbeginn (2. Betriebsmonat) im Vergleich zum Durchschnittswert eine deutlich höhere PAK-Emissionsrate von 12,9 µg pro kg Boden und Tag zu verzeichnen ist. Dabei ist nicht auszuschließen, dass der erhöhte Wert zu Versuchsbeginn auf den gestörten Einbau des Bodens in das

Lysimeter zurückzuführen ist, wobei hier z. B. aerobe mikrobielle Prozesse zu der beobachteten DOC-Mobilisierung und somit zur Co-Elution von PAK geführt haben können.

Andererseits ist bei Boden 6.2 ein erheblicher Einfluss von mikrobiellen Abbauvorgängen auf die PAK-Sickerwasserkonzentration zu vermuten. Dafür sprechen neben den im Vergleich zu Boden 1.1 erhöhten mikrobiologischen Parameter im Sickerwasser (Kap. 5.4.3) und im Boden (Kap. 5.4.4) insbesondere die PAK-Verteilung in der Bodenschüttung nach Versuchsbeendigung (Tab. 23, Kap. 5.4.4), welche eine erhebliche Abnahme der 2-4 Ring PAK im Zuge des Lysimeterbetriebes belegt. Bemerkenswert ist dabei, dass diese PAK-Abnahme in der Lysimeterschüttung quantitativ und qualitativ den Untersuchungen zum biologischen Schadstoffabbau unter realitätsnahen Bedingungen (Kap. 5.2.2) recht gut entspricht, so dass sicher davon auszugehen ist, dass mikrobielle Prozesse für die beobachtete Schadstoffabnahme verantwortlich sind.

Zusammenfassend wird die Schadstoffbilanz im mit Boden 6.2 befüllten Lysimeter im Betrachtungszeitraum überwiegend durch einen mikrobiellen PAK-Abbau in der wässrigen Phase der Bodenschüttung dominiert, während ein PAK-Austrag mit dem Sickerwasser von untergeordneter Bedeutung ist. Ob diese Erkenntnisse jedoch im Hinblick auf eine mögliche Grundwassergefährdung des Bodenmaterials unter Feldbedingungen eins zu eins übertragen werden können, kann aus den vorliegenden Ergebnissen nicht abgeleitet werden. Hier ist entscheidend, ob das im Bodenmaterial 6.2 offensichtlich vorhandene Potential zur natürlichen Selbstreinigung (natural attenuation) unter in situ Bedingungen zum Tragen kommt. Als wesentlicher den mikrobiellen PAK-Abbau beeinflussender Faktor sind hier mögliche Unterschiede in der Sauerstoffversorgung des Bodenkörpers im Lysimeter und unter Feldbedingungen zu nennen. Hier könnten die durch den Tracerversuch aufgezeigten präferentiellen Fließbahnen (überwiegend luftgefüllte Makroporen, Kap. 5.4.2) im Lysimeter zu einer im Vergleich zu Feldbedingungen besseren Sauerstoffversorgung beigetragen haben.

## **5.5 Ergebnisse der Labor-Elutionsversuche**

Als weitere Aufgabe sollte im Rahmen des Projektes ein Ergebnisvergleich der Lysimeteruntersuchungen mit praxisrelevanten Kurzzeit-Elutionsmethoden vorgenommen werden. Um mögliche Veränderungen der Böden im Zuge des 22-monatigen Lysimeterbetriebs erfassen und bewerten zu können, wurden in Ergänzung zu den bereits vorliegenden Ergebnissen mit den Ausgangsmaterialien 1.1 und 6.2 (Abschlussbericht zum LUA-NRW Projekt „Vergleich von Elutionsmethoden“) Säulenversuche nach Merkblatt Nr. 20 des LUA-NRW und Schüttelversuche in Anlehnung an DIN 38414-4 (Zugabe von  $\text{HgCl}_2$  während der Elution) mit den im Rahmen der Abschlussbeprobung der Lysimeter gewonnenen Bodenmischproben (vergl. Kap. 5.4.4) durchgeführt. Neben dem Standard-Versuchsprotokoll nach Merkblatt Nr. 20 mit  $\text{HgCl}_2$  (250 mg/l) als Biostatikum im Eluat-Sammelgefäß wurde eine zweite Versuchsvariante gefahren, bei welcher zur Unterdrückung möglicher mikrobieller Abbauvorgänge in der Bodenschüttung zusätzlich  $\text{HgCl}_2$  im Elutionsmittel-Vorlagegefäß (500 mg/l) enthalten war. Die Ergebnisse der Elutionsversuche sind in Tab. 26 bis 27 für die Böden 1.1 und 6.2 zusammengefasst.

**Tab. 26: Chemisch/analytische und mikrobielle Charakterisierung der Eluate der Bodenproben 1.1 aus der Abschlussbeprobung des Lysimeters**

Parameter/Bodenprobe	Probe 1.1 o	Probe 1.1 m	Probe 1.1 u	Probe 1.1 o/m/u	Mittelwert (1)
<b>Säuleneluat</b>					
<b>(HgCl<sub>2</sub> in Eluat-Sammelgefäß)</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,03	0,02	0,03	0,04	0,02
3-Ring PAK [µg/l]	0,19	0,88	0,35	0,64	0,52
4-Ring PAK [µg/l]	0,18	0,70	0,24	0,23	0,34
5-6 Ring PAK [µg/l]	0,04	0,17	0,22	0,06	0,12
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>0,44</b>	<b>1,77</b>	<b>0,84</b>	<b>0,97</b>	<b>1,0</b>
DOC [mg/l]	6	6	5	6	6
Trübung [FNU]	5,4	3,0	9,2	6,5	6,0
Gesamtzellzahl (2) [KBE/ml]	2,0 x 10 <sup>3</sup>	1,5 x 10 <sup>3</sup>	3,5 x 10 <sup>2</sup>	3,0 x 10 <sup>3</sup>	1,7 x 10 <sup>3</sup>
Zellzahl PAK-Verwerter (2)[KBE/ml]	1,2 x 10 <sup>2</sup>	1,3 x 10 <sup>2</sup>	1,6 x 10 <sup>2</sup>	1,8 x 10 <sup>2</sup>	1,5 x 10 <sup>2</sup>
<b>Säuleneluat (HgCl<sub>2</sub> in Sammelgefäß und Vorlage)</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,04	0,02	0,03	0,03	0,03
3-Ring PAK [µg/l]	0,28	1,53	0,12	0,32	0,56
4-Ring PAK [µg/l]	0,26	0,20	0,54	0,25	0,31
5-6 Ring PAK [µg/l]	0,28	0,10	1,18	0,08	0,41
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>0,86</b>	<b>1,85</b>	<b>1,87</b>	<b>0,68</b>	<b>1,31</b>
Trübung [FNU]	1,6	2,7	1,4	1,2	1,7
DOC [mg/l]	5	7	6	5	6
Gesamtzellzahl (2) [KBE/ml]	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10
<b>Eluat nach DIN 38414-4</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,14	0,32	0,06	0,15	0,17
3-Ring PAK [µg/l]	6,83	10,4	2,26	5,31	6,20
4-Ring PAK [µg/l]	1,16	0,70	0,76	0,92	0,86
5-6 Ring PAK [µg/l]	1,74	0,60	1,18	1,43	1,24
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>9,87</b>	<b>12,0</b>	<b>4,26</b>	<b>7,81</b>	<b>8,47</b>
Trübung [FNU]	0,9	0,5	1,4	1,3	1,0
DOC [mg/l]	3	2	2	2	2

(1) Mittelwert bezogen auf die Proben 1.1o, 1.1m, 1.1u, 1.1o/m/u

(2) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

Die mit den Bodenproben 1.1 im Säulenversuch erzielten Ergebnisse (Tab. 26) zeigen bei allen Eluaten geringe PAK<sub>EPA</sub>-Konzentrationen von < 2 µg/l, wobei kein wesentlicher Unterschied bei den Versuchsvarianten ohne und mit HgCl<sub>2</sub> im Elutionsmittel-Vorlagegefäß festzustellen war. In Übereinstimmung mit den geringen Gesamtzellzahlen und Zellzahlen an PAK-verwertenden Mikroorganismen im Eluat ist somit festzuhalten, dass im Zuge der 7-tägigen Säulenelution bei Bodenmaterial 1.1 kein relevanter mikrobieller Schadstoffabbau nachzuweisen ist. Dieses Ergebnis steht in Übereinstimmung zu den Langzeit-Elutionsuntersuchungen im Lysimeter (Kap. 5.4.4).

**Tab. 27: Chemisch/analytische und mikrobielle Charakterisierung der Eluate der Bodenproben 6.2 aus der Abschlussbeprobung des Lysimeters**

Parameter/Bodenprobe	Probe 6.2 o	Probe 6.2 m	Probe 6.2 u	Probe 6.2 o/m/u	Mittelwert (1)
<b>Säuleneluat (HgCl<sub>2</sub> in Eluat-Sammelgefäß)</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,02	0,03	-	-	0,01
3-Ring PAK [µg/l]	0,26	0,27	1,59	0,06	0,55
4-Ring PAK [µg/l]	0,14	0,25	0,40	0,09	0,22
5-6 Ring PAK [µg/l]	-	-	0,04	-	0,01
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>0,42</b>	<b>0,55</b>	<b>2,03</b>	<b>0,15</b>	<b>0,79</b>
DOC [mg/l]	14	10	10	12	11
Trübung [FNU]	1,6	1,3	1,4	1,0	1,3
Gesamtzellzahl (2) [KBE/ml]	4,0 x 10 <sup>3</sup>	2,1 x 10 <sup>4</sup>	1,8 x 10 <sup>4</sup>	1,7 x 10 <sup>3</sup>	1,1 x 10 <sup>4</sup>
Zellzahl PAK-Verwerter (2) [KBE/ml]	2,0 x 10 <sup>3</sup>	5,0 x 10 <sup>3</sup>	5,0 x 10 <sup>3</sup>	2,0 x 10 <sup>3</sup>	3,5 x 10 <sup>3</sup>
<b>Säuleneluat (HgCl<sub>2</sub> in Sammelgefäß und Vorlage)</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,08	0,06	0,07	0,03	0,06
3-Ring PAK [µg/l]	2,66	1,89	8,60	2,13	3,82
4-Ring PAK [µg/l]	1,13	0,67	2,97	0,60	1,34
5-6 Ring PAK [µg/l]	-	-	-	-	-
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>3,87</b>	<b>2,62</b>	<b>11,6</b>	<b>2,76</b>	<b>5,22</b>
Trübung [FNU]	5,3	6,4	9,1	8,7	7,4
DOC [mg/l]	11	11	11	12	11
Gesamtzellzahl (2) [KBE/ml]	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10
<b>Eluat nach DEV S4</b>					
Naphthalin [µg/l]	0,70	1,60	2,70	3,0	2,0
3-Ring PAK [µg/l]	12,1	19,8	38,0	27,2	24,3
4-Ring PAK [µg/l]	1,96	3,49	7,31	3,41	4,04
5-6 Ring PAK [µg/l]	0,31	0,38	0,53	0,24	0,37
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>15,1</b>	<b>25,3</b>	<b>48,5</b>	<b>33,9</b>	<b>30,7</b>
Trübung [FNU]	1,4	2,1	3,0	2,1	2,2
DOC [mg/l]	5	5	7	6	6

(1) Mittelwert bezogen auf die Proben 6.2o, 6.2m, 6.2u, 6.2o/m/u

(2) KBE = Kolonie-bildende Einheiten

Bei den in Tab. 27 zusammengefassten Ergebnissen für den Boden 6.2 ist zunächst auffällig, dass sich im Säulenversuch bei der Variante mit HgCl<sub>2</sub> im Elutionsmittel-Vorlagegefäß im Mittel um den Faktor 6,6 höhere PAK<sub>EPA</sub>-Konzentrationen (5,22 µg/l) verglichen mit der Standard-Versuchsvariante (0,79 µg/l) einstellen. Daraus ist zu abzuleiten, dass bei Boden 6.2 im Zuge der Elution in der Bodenschüttung relevante mikrobielle PAK-Abbauprozesse stattfinden, welche zu einer deutlichen Verminderung der PAK-Gehalte im Eluat führen. Dies korreliert mit den im Eluat bestimmten Gesamtzellzahlen und Zellzahlen an PAK-Verwertern, welche um einen Faktor von ca. 10 höher liegen als bei

dem biologisch weitgehend inaktiven Bodenmaterial 1.1. Im Boden 6.2 liegt somit nach Abschluss der Lysimeterversuchen eine aktive Population Schadstoff-abbauender Mikroorganismen vor, so dass hier ein PAK-Austrag mit dem Sickerwasser und ein mikrobieller PAK-Abbau in der wässrigen Phase als parallel ablaufende Prozesse zu betrachten sind. Eine vergleichbare Situation wurde im Zuge des Lysimeterbetriebs aufgezeigt (Kap. 5.4.4 und 5.4.5.2).

Eine vergleichende Betrachtung der Ergebnisse der Lysimeterversuche und der Labor-Elutionsversuche wird für beide Böden im folgenden Kapitel 6 vorgenommen.

## **6. Zusammenfassung und vergleichende Bewertung der Untersuchungsergebnisse**

Im Rahmen des Vorhabens wurden Lysimeteruntersuchungen an 2 PAK-kontaminierten Böden über einen Zeitraum von 22 Monaten im Hinblick auf den Wirkungspfad „ungesättigte Bodenzone → Grundwasser“ durchgeführt. Ziel war es zum einen, das Auslaugverhalten der Schadstoffe im Boden bei unterschiedlichen Bodenarten unter realitätsnahen Bedingungen zu bestimmen. Zum anderen sollten realitätsnahe Bezugsgrößen (reale PAK-Sickerwasserkonzentration) für einen Ergebnisabgleich mit Labor-Elutionsmethoden erarbeitet werden. Dabei sollten insbesondere der im Merkblatt Nr. 20 des LUA-NRW bezüglich der Versuchsdurchführung und –auswertung vereinfachte und konkretisierte Säulenversuch (welcher gemäß BBodSchV vom 17.07.1999 als Methode für die Beurteilung organischer Schadstoffe vorgesehen ist) und der Schüttelversuch nach der S4-Methode betrachtet werden.

Für die Untersuchungen wurde jeweils ein PAK-belasteter, anthropogen beeinflusster Boden (Anschüttungsmaterial) und ein gewachsener, schluffiger Boden eingesetzt, welche von einem ehemaligen Zechen und Kokereigelände im Ruhrgebiet stammen. Die Bodenproben für die Lysimeteruntersuchungen wurden im Rahmen des ebenfalls vom LUA-NRW durchgeführten Vorhabens „Vergleich von Elutionsmethoden“ parallel für die o. g. Elutionsversuche eingesetzt, auf deren Ergebnisse im Folgenden zurückgegriffen wird. Nach Beendigung der Lysimeterversuche erfolgte mit den Bodenmaterialien die Durchführung weiterer Elutionsversuche. Insgesamt werden die Ergebnisse folgender Untersuchungsmethoden und –varianten bezüglich der PAK-Gehalte im Eluat bzw. Sickerwasser vergleichend diskutiert:

- Schüttelversuch nach DIN 38414-4 an den Ausgangsmaterialien für die Lysimeterversuche und an den Bodenmischproben aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter.
- Säulenversuche nach Merkblatt Nr. 20 des LUA-NRW an den Ausgangsmaterialien für die Lysimeterversuche und an den Bodenmischproben aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter; bei letzteren als zusätzliche Versuchsvariante vergiftete Ansätze ( $\text{HgCl}_2$ ) zur Unterdrückung mikrobieller Abbauprozesse.
- Durchschnittswerte der Lysimetersickerwässer über den gesamten 22-monatigen Betriebszeitraum.

Für das Anschüttungsmaterial 1.1 sind die Ergebnisse in Tab. 28 zusammengefasst, wobei neben den  $\text{PAK}_{\text{EPA}}$ -Gesamtgehalten eine Differenzierung nach PAK-Gruppen entsprechend ihrer Ringzahl vorgenommen wurde.

**Tab. 28: Vergleich der Ergebnisse der Lysimeteruntersuchungen und der Elutionsversuche (Material bei Versuchsbeginn und Material aus Abschlussbeprobung Lysimeter) für Boden 1.1 (Anschüttungsmaterial)**

Parameter	DIN 38414-4 (Versuchs- beginn) (1)	DIN 38414-4 (Versuchs- ende) (2)	Säule (Versuchs- beginn) (1)	Säule (Versuchs- ende) (2)	Säule HgCl <sub>2</sub> (Versuchs- ende) (2)	Lysimeter (3)
Naphthalin [µg/l]	0,03	0,17	0,03	0,02	0,03	0,03
3-Ring PAK [µg/l]	11,3	6,20	0,12	0,52	0,56	0,04
4-Ring PAK [µg/l]	0,79	0,86	0,70	0,34	0,31	0,03
5-6 Ring PAK [µg/l]	0,04	1,24	1,05	0,12	0,41	-
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>12,2</b>	<b>8,47</b>	<b>1,90</b>	<b>1,00</b>	<b>1,31</b>	<b>0,10</b>
DOC [mg/l]	4	2	4	6	6	14

- (1) Ergebnisse aus Abschlussbericht zum Vorhaben des LUA-NRW „Vergleich von Elutionsmethoden“
- (2) Mittelwerte der 4 Bodenmischproben aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter (Kap. 5.4.4)
- (3) Durchschnittswerte über die 22-monatige Betriebszeit

Zunächst ist für Boden 1.1 festzustellen, dass sowohl beim Schüttelversuch als auch beim Säulenversuch nur relativ geringfügige Unterschiede bei den PAK<sub>EPA</sub>-Eluatgehalten und somit beim Mobilisierungsverhalten zwischen Ausgangsmaterial und Material aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter bestehen. Daraus ist abzuleiten, dass das Bodenmaterial 1.1 bezüglich der Mobilisierbarkeit für PAK im Zuge des Lysimeterbetriebs keine wesentlichen Veränderungen erfahren hat. Weiterhin sind insgesamt nur geringe bis sehr geringe PAK-Gehalte in den Eluaten bzw. im Sickerwasser festzustellen. Dabei wurde jedoch in den S4-Eluaten im Vergleich zum Durchschnittswert der Lysimetersickerwasser eine um den Faktor von ca. 100 und bei den Säuleneluaten eine 10- bis 19-fach höhere PAK-Konzentration bestimmt.

Die vergiftete Säulenversuchsvariante liefert keine Hinweise auf einen mikrobiellen PAK-Abbau im Zuge der 7-tägigen Säulenelution. Weiterhin wurden für den Boden 1.1 weder anhand der mikrobiologischen Parameter im Lysimetersickerwasser (Kap. 5.4.3) und im Boden (Kap. 5.4.4), noch anhand der Untersuchungen zum biologischen Schadstoffabbau unter realitätsnahen Bedingungen (Kap. 5.2.2) oder anhand der PAK-Verteilung in der Bodenschüttung nach Versuchsbeendigung (Tab. 22, Kap. 5.4.4) Hinweise auf einen nennenswerten mikrobiellen PAK-Abbau erhalten. Weiterhin belegen die Ergebnisse des Tracerversuchs (Kap. 5.4.2) eine der Korngrößenverteilung von Boden 1.1 angemessene gleichmäßige Durchströmung des Bodenkörpers. Aus diesen Ergebnissen ist abzuleiten, dass die für den Boden 1.1 ermittelten sehr niedrigen PAK-Eluatgehalte weitgehend unbeeinflusst durch den gestörten Probeneinbau in das Lysimeter und durch mikrobielle Abbauprozesse sind. Vielmehr besitzen die PAK im Anschüttungsmaterial 1.1 nur eine sehr geringe Verfügbarkeit für den Wasserpfad und damit eine sehr geringe Mobilität, was ursächlich auf ihre sorptive Festlegung an die TOC-reiche Leichtgutfraktion (überwiegend bestehend aus Kohle-/Kokspartikeln, Kap. 5.2.1) des Bodens 1.1 zurückzuführen ist. Daraus resultiert eine durchschnittliche Emissionsrate im Lysimeterbetrieb von unbedeutenden 0,144 ng PAK<sub>EPA</sub> pro kg Boden und Tag entsprechend einem

eluierten Anteil von nur 0,095 µg PAK<sub>EPA</sub> pro kg Boden während des 22-monatigen Betrachtungszeitraumes.

**Tab. 29: Vergleich der Ergebnisse der Lysimeteruntersuchungen und der Elutionsversuche (Ausgangsmaterial und Material aus Abschlussbeprobung Lysimeter) für Boden 6.2 (gewachsener schluffiger Boden)**

Parameter	DIN 38414-4 (Versuchs- beginn) (1)	DIN 38414-4 (Versuchs- ende) (2)	Säule (Versuchs- beginn) (1)	Säule (Versuchs- ende) (2)	Säule HgCl <sub>2</sub> (Versuchs- ende) (2)	Lysimeter (3)
Naphthalin [µg/l]	13,0	2,00	1,60	0,01	0,06	0,12
3-Ring PAK [µg/l]	689	24,3	321	0,55	3,82	0,70
4-Ring PAK [µg/l]	30,8	4,04	19,2	0,22	1,34	0,19
5-6 Ring PAK [µg/l]	0,32	0,37	-	0,01	-	0,002
<b>PAK nach EPA [µg/l]</b>	<b>733</b>	<b>30,7</b>	<b>342</b>	<b>0,79</b>	<b>5,22</b>	<b>1,01</b>
DOC [mg/l]	21	6	18	11	11	75

- (1) Ergebnisse aus Abschlussbericht zum Vorhaben des LUA-NRW „Vergleich von Elutionsmethoden“
- (2) Mittelwerte der 4 Bodenmischproben aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter (Kap. 5.4.4)
- (3) Durchschnittswerte über die 22-monatige Betriebszeit

Im Gegensatz zu den mit Boden 1.1 erzielten Ergebnisse zeigen die in Tab. 29 zusammengefassten Untersuchungen zum Mobilisierungsverhalten der PAK in Boden 6.2, dass hier sehr deutliche Unterschiede bei den PAK-Eluatgehalten im Schüttel- und Säulenversuch zwischen Ausgangsmaterial (733 µg/l bzw. 342 µg/l) und Material aus der Abschlussbeprobung der Lysimeter (30,7 µg/l bzw. 0,79 µg/l) bestehen. Weiterhin ist auffällig, dass sich im Säulenversuch bei der Variante mit HgCl<sub>2</sub> im Elutionsmittel-Vorlagegefäß deutlich höhere PAK<sub>EPA</sub>-Konzentrationen (5,22 µg/l) verglichen mit der Standard-Versuchsvariante (0,79 µg/l) einstellen. Daraus ist abzuleiten, dass bei Boden 6.2 im Zuge der 7-tägigen Elution in der Bodenschüttung relevante mikrobielle PAK-Abbauprozesse stattfinden, welche zu einer deutlichen Verminderung der PAK-Gehalte im Eluat führen.

Auch bei den Lysimeteruntersuchungen mit Boden 6.2 ist ein erheblicher Einfluss von mikrobiellen Abbauprozessen auf die PAK-Sickerwasserkonzentration zu vermuten. Dafür sprechen neben den im Vergleich zu Boden 1.1 erhöhten mikrobiologischen Parametern im Sickerwasser (Kap. 5.4.3) und im Boden (Kap. 5.4.4) insbesondere die PAK-Verteilung in der Bodenschüttung nach Versuchsbeendigung (Tab. 23, Kap. 5.4.4), welche eine erhebliche Abnahme der 2-4 Ring PAK im Zuge des Lysimeterbetriebs belegt. Da diese PAK-Abnahme in der Lysimeterschüttung quantitativ und qualitativ den Untersuchungen zum biologischen Schadstoffabbau unter realitätsnahen Bedingungen (Kap. 5.2.2) recht gut entspricht, ist sicher davon auszugehen, dass überwiegend mikrobielle Prozesse für die beobachtete Schadstoffabnahme im Zuge des Lysimeterbetriebs verantwortlich sind. Die oben dargelegten sehr deutlichen Unterschiede bei den PAK-Eluatgehalten im Schüttel- und Säulenversuch zwischen Ausgangsmaterial 6.2 und dem Material aus der Abschlussbeprobung des Lysimeters werden anhand der nachgewiesenen mikrobiellen Abbauprozesse erklärbar, da der für den Wasserpfad und den mikrobiellen Umsatz verfügbare PAK-Anteil im Zuge des 22-monatigen Lysimeter-

betriebs weitgehend abgebaut wurde. Andererseits ergibt sich für Boden 6.2 somit die Schwierigkeit des Vergleichs der Ergebnisse von Säulenversuch und Lysimeteruntersuchung, da eine Quantifizierung des mikrobiellen PAK-Umsatzes im zeitlichen Verlauf insbesondere im Lysimeter bei gegebener Versuchsanordnung nicht möglich ist. Ein Vergleich der durchschnittlichen PAK-Gehalte im Lysimetersickerwasser mit dem Gehalt des Säuleneluates (nicht vergiftete Bodenprobe Abschlussbeprobung) liefert im gleichen Bereich liegende Werte (1,01 µg/l bzw. 0,79 µg/l), was auf vergleichbare mikrobiologische Verhältnisse und das Sorptions-/Desorptionsverhalten der PAK beeinflussende Faktoren hindeuten kann. Andererseits zeigt der mit dem Ausgangsmaterial durchgeführte Säulenversuch auch im Vergleich zu den maximal im Lysimetersickerwasser bestimmten PAK-Gehalten (8,77 µg/l) mit 340 µg/l deutlich höhere Werte. Dies deutet darauf hin, dass sich in der Lysimeterschüttung innerhalb kurzer Zeit (wenige Wochen) eine adaptierte, PAK-abbauende Mikroorganismenpopulation etabliert haben kann, welche beim auf 7 Tage begrenzten Säulenversuch mit dem Ausgangsmaterial aufgrund der hohen PAK-Eluatgehalte und der geringen Zeitspanne jedoch vermutlich keine wesentliche Rolle gespielt haben dürfte.

Die Schadstoffbilanz für das mit Boden 6.2 befüllte Lysimeter wird im 22-monatigen Betrachtungszeitraum somit zusammenfassend überwiegend durch einen mikrobiellen PAK-Abbau in der wässrigen Phase der Bodenschüttung dominiert, während ein PAK-Austrag mit dem Sickerwasser von untergeordneter Bedeutung ist. Ob diese Erkenntnisse jedoch im Hinblick auf eine mögliche Grundwassergefährdung des Bodenmaterials unter Feldbedingungen eins zu eins zu übertragen sind, kann aus den vorliegenden Ergebnissen nicht abgeleitet werden. Hier ist entscheidend, ob das im Bodenmaterial 6.2 offensichtlich vorhandene Potenzial zur natürlichen Selbstreinigung (natural attenuation) unter in situ Bedingungen im beobachteten Ausmaß zum tragen kommt. Dabei erscheint es als sehr unwahrscheinlich, dass sich der unter den Bedingungen der Lysimeterschüttung rein rechnerisch ermittelte, durchschnittliche mikrobielle PAK-Abbau von 0,91 mg pro kg Boden und Tag unter in situ Bedingungen (Unterboden) einstellen kann, da hierfür eine Sauerstoffeintrag in gelöster Form über das Sickerwasser bei weitem nicht ausreicht. Als grobe Beispielrechnung sei hierfür eine Bodensäule von 1 m Höhe angenommen, welche 700 mm O<sub>2</sub>-gesättigten Niederschlag (8 mg/l) pro Jahr erhält und somit über das Sickerwasser bei einem angenommenen Wasser-/Feststoffverhältnis von 0,5 : 1 mit durchschnittlich ca. 4 mg O<sub>2</sub> pro kg Boden und Jahr versorgt wird. Nach der Reaktionsgleichung für die Oxidation von Benzol ( $7,5 \text{ O}_2 + \text{C}_6\text{H}_6 \rightarrow 6 \text{ CO}_2 + 3 \text{ H}_2\text{O}$ ) und einer angenommenen 50 %igen Nutzung des Kohlenstoffs zur Biomassebildung können bei obigen Annahmen mit dem über das Sickerwasser angelieferten Sauerstoff maximal 2,6 mg PAK/kg Boden und Jahr (0,007 mg/kg und Tag) aerob mikrobiell verstoffwechselt werden. In wieweit und in welchem Ausmaß unter Feldbedingungen ein Sauerstofftransport über die Gasphase (z.B. über Makroporen) relevant ist, hängt entscheidend von den Gegebenheiten im Einzelfall (z.B. Tiefe unter GOK) ab.

Als wesentlicher, den mikrobiellen PAK-Abbau beeinflussender Faktor ist somit zumindest für Unterböden eine Limitierung der Sauerstoffversorgung unter Feldbedingungen zu nennen, welche in der Bodenschüttung des Lysimeters aufgrund des gestörten Einbaus nicht oder in deutlich geringerem Maße zum Tragen kommt. Als Unterstützung dieser These kann der im Tracerversuch nachgewiesene überhöhte Anteil an überwiegend luftgefüllten Makroporen (Kap. 5.4.2) angeführt werden, über welche eine Sauerstoffversorgung des Bodenkörpers erleichtert wurde. Somit ist unter O<sub>2</sub>-limitierten

Feldbedingungen damit zu rechnen, dass sich im Vergleich zu den vorliegenden Ergebnissen der Lysimeteruntersuchungen ein stark verlangsamter PAK-Abbau im Boden und damit vermutlich auch eine erhöhte PAK-Konzentration im Sickerwasser einstellt.

Die anhand der Untersuchung von 2 PAK-belasteten Bodenproben erhaltenen Ergebnisse zeigen zusammenfassend auf, dass unter natürlichen Bedingungen ablaufende langsame mikrobielle Abbauprozesse in Abhängigkeit vom Bodenmaterial erheblichen Einfluss auf die Schadstoffgehalte im Sickerwasser und damit auf die Beurteilung des Wirkungspfades „ungesättigte Bodenzone → Grundwasser“ haben können. Es wurden 2 extrem anmutende Beispiele aufgezeigt, wo bei einem Boden mikrobielle Abbauprozesse im Zuge der Untersuchungen zum Elutionsverhalten keine signifikante Rolle (Anschüttungsmaterial 1.1) spielen bzw. wo beim anderen mikrobielle Abbau den Schadstoffaustrag mit dem Sickerwasser/Eluat weitgehend überlagert (gewachsener Boden 6.2). Im Hinblick auf die Sickerwasserprognose und die Bewertung natürlicher Abbauprozesse (natural attenuation) in der ungesättigten Bodenzone bleibt festzuhalten, dass bezüglich einer Quantifizierung von langsam ablaufenden mikrobiellen Schadstoffumsetzungen im Boden bei Variation der entsprechenden Einflussgrößen erheblicher Forschungsbedarf besteht.

Bezüglich des Vergleichs der Ergebnisse der Elutionsmethoden bleibt zusammenfassend festzuhalten, dass bei den hier untersuchten 2 PAK-belasteten Böden die S4-Elution im Vergleich zur Säulenelution deutlich höhere Werte liefert. In Übereinstimmung mit vorherigen Untersuchungen (z. B. Projekt „Vergleich von Elutionmethoden“) und anhand theoretischer Überlegungen ist die Schlussfolgerung zu ziehen, dass Säulenversuche bezüglich der realen Sickerwasserkonzentration gegenüber der S4-Elution realitätsnähere Ergebnisse liefern. Unter Berücksichtigung möglicher mikrobieller Abbauprozesse liefert der Säulenversuch bei den durchgeführten Untersuchungen Eluatkonzentrationen  $\geq$  jener der Lysimetersickerwässern.

In der im Merkblatt Nr. 20 des LUA-NRW beschriebenen Versuchsvorschrift für die Durchführung von Säulenversuchen ist neben der Entgasung des Elutionsmittels zur Reduzierung des Sauerstoffgehaltes als Präventivmaßnahme zur Unterdrückung von mikrobiellen Abbauprozessen empfohlen, bei Bedarf ein Biostatikum im Eluat-Auffanggefäß vorzugeben, wodurch ein Schadstoffabbau während der Standzeit der Eluate unterbunden wird.

Aus den hier vorliegenden Ergebnissen kann abgeleitet werden, dass als weitere Maßnahme zur Hemmung unerwünschter mikrobieller Abbauprozesse im Boden/Eluat während der Säulenelution auch die Dotierung des Elutionsmittels mit einem Biostatikum (z. B.  $\text{HgCl}_2$ , Azid) notwendig sein kann. Dies gilt insbesondere für die Untersuchung von Bodenproben mit einer aktiven Schadstoffabbauenden Mikroorganismenpopulation (z. B. aus der biologischen Sanierung) und für Proben mit relativ geringen Eluatkonzentrationen im Bereich der Prüfwerte. Bei Zugrundelegung der Daten aus obiger Beispielrechnung ist abzuleiten, dass selbst bei einer Rest-Sauerstoffkonzentration von 0,1 mg/l im Elutionsmittel theoretisch 65  $\mu\text{g}$  PAK/l im Zuge der Säulenelution mikrobiell verstoffwechselt werden können. Aus dieser sicherlich nur groben Abschätzung wird jedoch deutlich, dass mikrobielle Abbauvorgänge insbesondere bei geringen Schadstoffkonzentrationen im Säuleneluat auch unter  $\text{O}_2$  -limitierten Bedingungen (entgastes Elutionsmittel) deutlichen Einfluss auf die zu bewertenden

Eluatgehalte haben können (im Gegensatz zum Feststoff, wo die Schadstoffkonzentrationen i.d.R. um mehrere Zehnerpotenzen höher liegen). Bei der Durchführung der Säulenversuche mit Dotierung eines Biostatikums im Elutionsmittel kann davon ausgegangen werden, dass die im Säuleneluat ermittelten Ergebnisse auf der sicheren Seite liegen (worst case Betrachtung).

Andererseits ist zu überlegen, ob zusätzliche Säulenversuche bei entsprechender Modifikation des Versuchsprotokolls wertvolle Informationen zur Abschätzung von mikrobiellen Abbauprozessen im Rahmen der Sickerwasserprognose oder bei natural attenuation-Prozessen in der ungesättigten Bodenzone liefern können.

Insgesamt besteht zu diesem aktuellen Themenkomplex, wie bereits oben dargelegt, erheblicher Forschungsbedarf.