PASSIV BIOLOGISCHE BEHANDLUNG VON SICKERWASSER DER WISMUT-HALDE 371/I

Dr. André Gerth, Anja Hebner, Dr. Christian Kunze, Annette Küchler, Anja Zellmer

1 Sickerwasser des Uranerzbergbaus

Neben Hinterlassenschaften des Stein- und Braunkohletagebaus sind Regionen in Sachsen durch den Uranerzbergbau geprägt. Einen wesentlichen Teil der Nachsorge im Uranerzbergbau betrifft die Behandlung und schadlose Ableitung von Gruben- und Sickerwasser. Durch die Pyritverwitterung von Gesteinsmaterial auf Halden werden Uran, Sulfat, Chlorid und Schwermetalle sowie Arsen in das Sickerwasser freigesetzt.
Durch die WISMUT GmbH wurden und werden verschiedene Technologien zur Reduzierung der Schadstoffbelastungen von Gruben- und Sickerwasser nach dem Stand der Technik untersucht bzw. angewendet. Aufgrund des langfristigen Erfordernisses einer Nachsorge sind kostengünstige passive Technologien, wie der Einsatz reaktiver Materialien und biologischer Verfahren (Constructed Wetlands), von besonderem Interesse.
Der Einsatz passiver Behandlungstechnologien ist auf Grund der geringen Betriebskosten (Schöner et al., 2004) insbesondere bei langfristigem Behandlungserfordernis von Vorteil. Zahlreiche Untersuchungen zur Nutzung natürlicher Prozesse, wie Monitored Natural Attenuattion, Constructed Wetlands und reaktive Barrieren, wurden für die Schadstoffabtrennung aus Sicker- und Flutungswasser aus dem Bergbau durchgeführt (Wolkersdorfer und Younger, 2002; Higgins und Whitford, 2003; Limpitlaw, 1996; Kuschk et al., 2006; Lloyd et al., 2004; Chang, 2001; Mkandawire und Dudel, 2005).

2 Ausgangssituation am Standort der Halde 371/I

Die Halde 371/I am östlichen Hang des Tales der Zwickauer Mulde zwischen Schlema und Hartenstein gelegen, ist der größte Haldenkomplex am Standort Aue. Die Halde wurde ab 1956 angelegt und bis zur Stilllegung des Uranbergbaus schrittweise erweitert. Sie diente in den vergangenen Jahren u. a. noch zur Einlagerung von Überschussmassen aus der Sanierung anderer Halden und Betriebsflächen von Material aus der untertägigen Sanierung sowie von Bodenaushub, Bauschutt und Schrott von Betriebsanlagen. Seit 1998 werden die konditionierten Rückstände der Wasserbehandlungsanlage Schlema/Alberoda an einem speziell errichteten Verwahrstandort auf der Halde eingelagert.

Volumen: ca. 10 Mio. m³
Aufstandsfläche: ca. 47 ha

Die Halde 371/I wird am Ort verwahrt. Mit der Vorbereitung zur Sanierung wurde 2003 begonnen. Dabei erfolgt als erstes die Profilierung. Ziel ist es, dieses Areal in das typische Landschaftsbild des Erzgebirges als Bergkuppenlandschaft mit Taleinschnitten und unterschiedlich steil geneigten Hängen harmonisch einzufügen. Die profilierten Flächen werden mit Mineralboden/Mutterboden abgedeckt und begrünt, die abgedeckten Flächen zur geordneten Ableitung unbelasteter Oberflächenwässer hydrotechnisch ausgebaut. Es wird davon ausgegangen, dass die Arbeiten 2014 abgeschlossen sein werden.

Die Halde 371/I liegt im Einzugsgebiet zweier Nebenbäche der Zwickauer Mulde. Das am westlichen Haldenfuß austretende Sickerwasser stellt ein Mischwasser dar. Der Sickerwasseranfall unterliegt jahreszeitlich witterungsbedingten Mengenschwankungen (ca. 10 m^3/h ... > 100 m^3/h).
Das Sickerwasser (Arsen: 60 - 175 µg/l, Uran: 0,8 – 3 mg/l, Nitrat: 70 mg/l und Radium: 90 mBq/l) weist jahreszeitbedingte Änderungen bergbautypischer der Stoffkonzentrationen mit typischerweise höheren Konzentrationen im Trockenzeiten und niedrigeren Konzentrationen in Nasszeiten auf.

3 Pilotanlage zur Sickerwasserbehandlung

3.1 Herangehensweise und Zielstellung

Die primäre Zielstellung des Projektes war es, den Nachweis der Machbarkeit für die passiv biologische Abtrennung der standortspezifischen Schadkomponenten Uran und Arsen zu erbringen und Bedingungen für die Langzeitstabilität der Behandlungseffizienz aufzuzeigen.
In Rahmen eines vom BMBF geförderten Verbundprojektes wurden zwei voneinander unabhängige passiv biologische Behandlungssysteme geplant, errichtet, betrieben und intensiv überwacht.
Das erste System basierte auf mikrobiologischen Prozessen durch die Biofilmbildung auf einem Kiesfilter (G.E.O.S. GmbH), das zweite auf der Kombination von Pflanzen und Mikroorganismen in einem Kiesfilter (BioPlanta GmbH). Die aus den Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse wurden für Modellierungen des Verhaltens der Systeme (B.P.S. Engineering GmbH) herangezogen.
Es wurden umfangreiche Untersuchungen zur Robustheit der für die Schadstoffabtrennung maßgeblichen biotischen Prozesse realisiert. Um belastbare Aussagen darüber zu erhalten, wurden äußere Störeinflüsse, wie kurzfristige Erhöhung und Verminderung des Sickerwasserdurchsatzes, erzeugt und die damit verbundenen Auswirkungen auf die

Sickerwasserbehandlung ermittelt. Darauf aufbauend wurden Maßnahmen zur Erhöhung der Robustheit sowie zu Änderungen im Aufbau und Betrieb der Systeme abgeleitet.
Die Untersuchungen zur Erhöhung der Robustheit und Langzeitstabilität passiv biologischer Technologien zur Behandlung von durch den Uranerzbergbau beeinflusster Sickerwässer zielten auch auf eine Verbesserung der Genehmigungsfähigkeit dieser Technologien ab. Die genehmigten Ablaufwerte im Zeitraum des Probebetriebes der Pilotanlage bzw. das Behandlungsziel für Uran sind wie folgt anzugeben: Uran 0,3 mg/l, Arsen 150 µg/l, Chemischer Sauerstoffbedarf 150 mg/l und N_{ges} 30 mg/l.

1.1 Aufbau des Pflanzen-Mikroorganismen-Systems (Constructed Wetland)

Die Konzeption, die Dimensionierung und der Betrieb des Constructed Wetland erfolgten aufbauend auf den Ergebnissen vorangegangener Säulenversuche und Untersuchungen an einer kleintechnischen Versuchsanlage am Standort der Halde 371/I.
Die Säulenversuche, welche im Technikum der BioPlanta durchgeführt wurden, haben gezeigt, dass die Effizienz der Uranabtrennung von der Verfügbarkeit einer Kohlenstoffquelle abhängig ist. In weiterführenden Untersuchungen zur Optimierung der Abtrennprozesse, zur Begünstigung der biotischen Prozesse und zu anaeroben Milieubedingungen wurden u. a. der Einfluss der Verweilzeit, der Pflanzenart, der Zugabemenge an Melasse, der Einstauhöhen und der Einfluss einer Auflage aus Rindenmulch oberhalb des Kiesfilters auf die Behandlungseffizienz ermittelt.
Die Pilotanlage wurde als zweistufige Anlage mit einem surface flow und einem subsurface flow Constructed Wetland (Abb. 1) konzipiert, um die unterschiedlichen Milieubedingungen für die Abtrennung von Uran (anaerob) und Arsen (aerob) zu erreichen.
Das surface flow Constructed Wetland (1. Stufe) wurde für die Abtrennung des Urans ausgelegt. Zur Initiierung der für Uranabtrennung verfolgten Prozesse wurden die anaeroben Milieubedingungen durch die Zugabe von Melasse und der Einstellung eines Wasserstandes oberhalb der bepflanzten Kiesoberfläche optimiert. Die Melassezugabe erfolgte direkt in den Zulauf der ersten Behandlungsstufe. Die Zugabemenge wurde in Abhängigkeit vom Sickerwasserdurchsatz manuell über die Förderleistung der Pumpe eingestellt. Bei planmäßigen und registrierten Änderungen im Sickerwasserdurchsatz wurde die Melassedosierung entsprechend angepasst.
Das subsurface flow Wetland (2. Stufe) war, im Gegensatz zum surface flow Wetland, mit *Phragmites spec*. anstelle von *Carex spec*. bepflanzt. Des Weiteren wurden in der zweiten Behandlungsstufe durch einen zeitgesteuerten Auslass wechselnde Wasserstände (Abb. 2) und damit ein Eintrag von Luftsauerstoff in das Sickerwasser realisiert.
Auf Grund der örtlichen Standortgegebenheiten wurden beide Behandlungsstufen in jeweils zwei Modulen errichtet. Die Auslegung der Pilotanlage erfolgte für einen Durchsatz von

5 m³/h. Der Ablauf des Constructed Wetland wurde einem Schönungsteich zugeführt, welcher zur abschließenden Qualitätssicherung und -kontrolle diente.

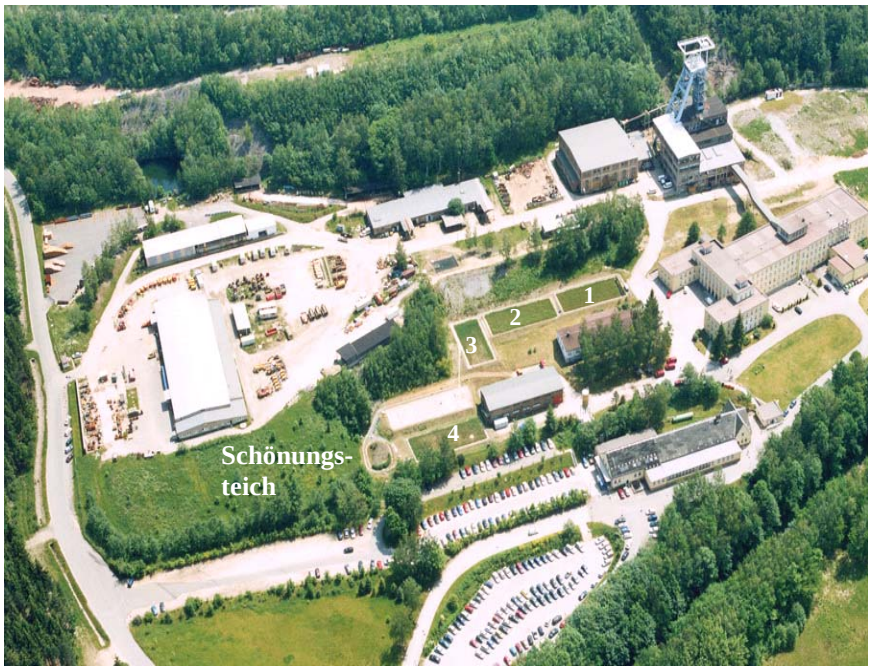

Abb. 1: Luftbild vom Standort der Pilotanlage; Kennzeichnung der insgesamt 4 Module des Pflanzen-Mikroorganismen-Systems in der Reihenfolge der Beschickung (Quelle: WISMUT GmbH)

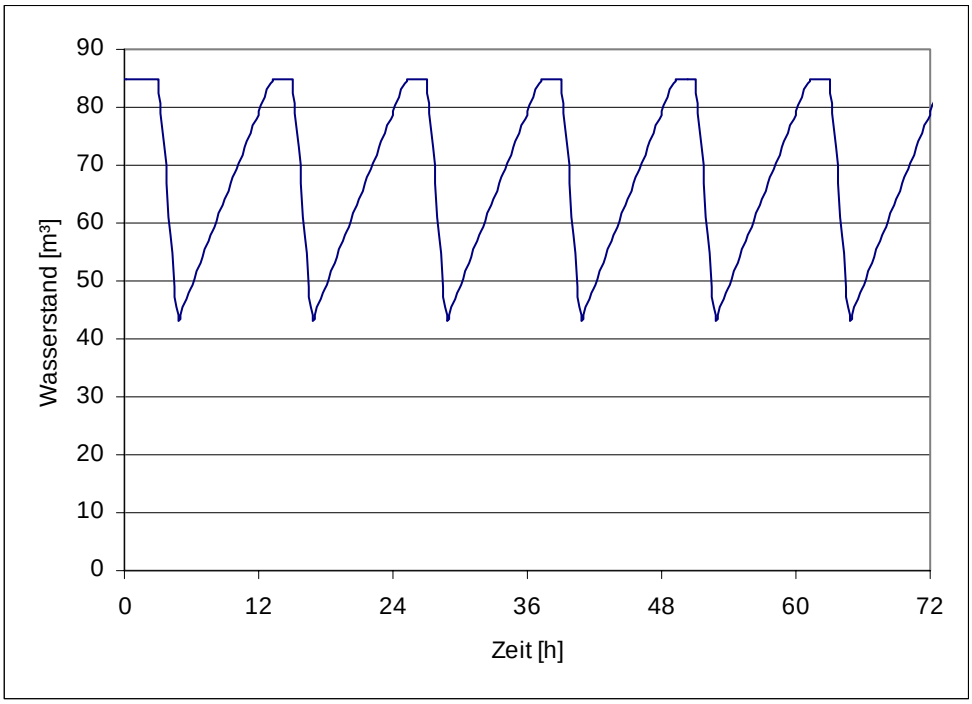

Abb. 2: Darstellung des sich in Intervallen ändernden Wasserstandes im Kiesfilter der zweiten Behandlungsstufe

3.2 Betrieb der Pilotanlage

Die Inbetriebnahme der Pilotanlage erfolgte im September 2002. Während des Betriebes wurde durch die WISMUT GmbH und die WISUTEC GmbH ein umfangreiches Überwachungs- und Monitoringprogramm umgesetzt. Der Sickerwasserdurchsatz und die Sickerwasserbeschaffenheit wurden regelmäßig an definierten Probenahmestellen ermittelt. Des Weiteren wurden jährlich Feststoffuntersuchungen von Proben des Pflanzenmaterials (oberirdisch, unterirdisch) und des Kiesmaterials durchgeführt.
Nach einer Einfahrphase der Anlage wurden Untersuchungen zur hydraulischen Verweilzeit und damit zum Durchströmungsverhalten beider Behandlungsstufen mittels Tracerversuches durchgeführt. Als Tracer kam Kochsalz zum Einsatz. Die kontinuierliche Erfassung des Tracers erfolgte über einen Zeitraum von insgesamt 168 Stunden durch die Messung der Leitfähigkeit im Sickerwasser. In Auswertung des Versuches konnte die berechnete hydraulische Retentionszeit bestätigt werden. Bei einem Durchsatz von 3 m³/h betrug die Retentionszeit 40 Stunden (Abb. 3).

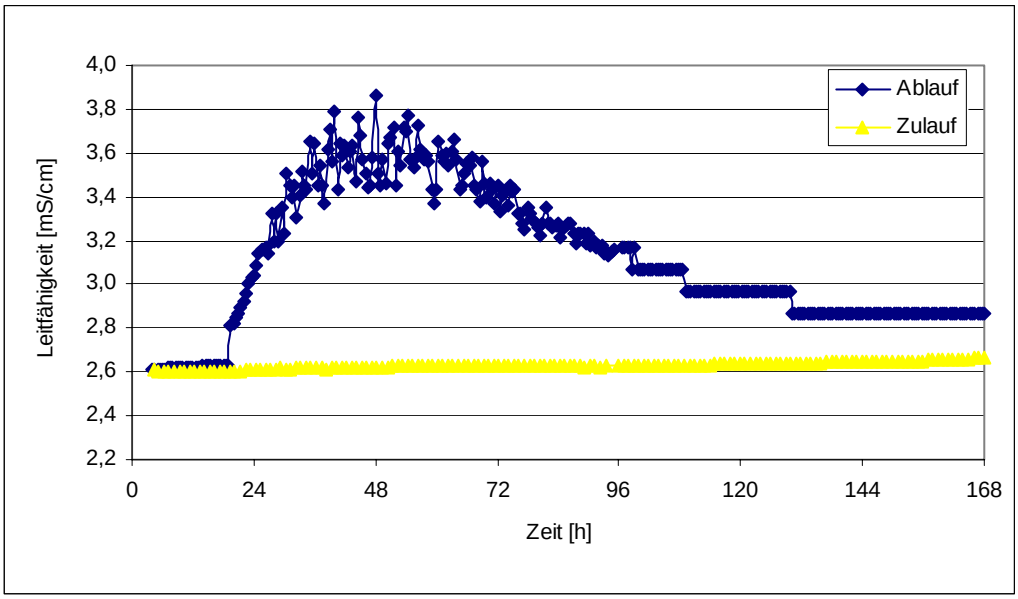

Abb. 3: Ergebnisse der Leitfähigkeitsmessungen im Zuge des Tracerversuches

Aus genehmigungsrechtlichen Gründen wurde die Pilotanlage anfänglich ohne die Zugabe von Melasse betrieben. In diesem Zeitraum konnte keine effiziente Abtrennung von Uran und Nitrat erreicht werden. Mit zunehmender Verweilzeit des Sickerwassers in der Anlage wurde eine geringfügige Verminderung der Uran- und Nitratkonzentration im Sickerwasser nachgewiesen.
Die für die Uran- und Nitratabtrennung erforderlichen reduzierenden Bedingungen wurden erst nach Zugabe von Melasse etabliert. Mit der Erreichung reduzierender Verhältnisse in der

ersten Behandlungsstufe konnte die Urankonzentration deutlich bis auf 0,3 mg/l vermindert werden.

Unter konstanten Betriebsbedingungen, d.h. bei einem kontinuierlichen und gleich bleibenden Sickerwasserdurchsatz und adäquater Zugabe an Melasse, konnten temporär reduzierende Bedingungen in der ersten Behandlungsstufe und ein oxidierendes Milieu in der zweiten Stufe eingestellt werden. Damit konnte, neben der effektiven Verminderung der Uran- und Nitratkonzentration, die Konzentration an Arsen im Sickerwasser bis auf kleiner 50 µg/l verringert werden (Abb. 4).

Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb der Anlage, insbesondere eine Verminderung des Durchsatzes ohne gleichzeitige manuelle Anpassung der Zugabemenge an Melasse, führten zu Veränderungen der Redoxverhältnisse in den Behandlungsmodulen. Daraus resultierten z. T. Überschreitungen des Überwachungswertes für Arsen (Abb. 5) und den Chemischen Sauerstoffbedarf als Folge der Ausbildung anoxischer Bedingungen im gesamten System.

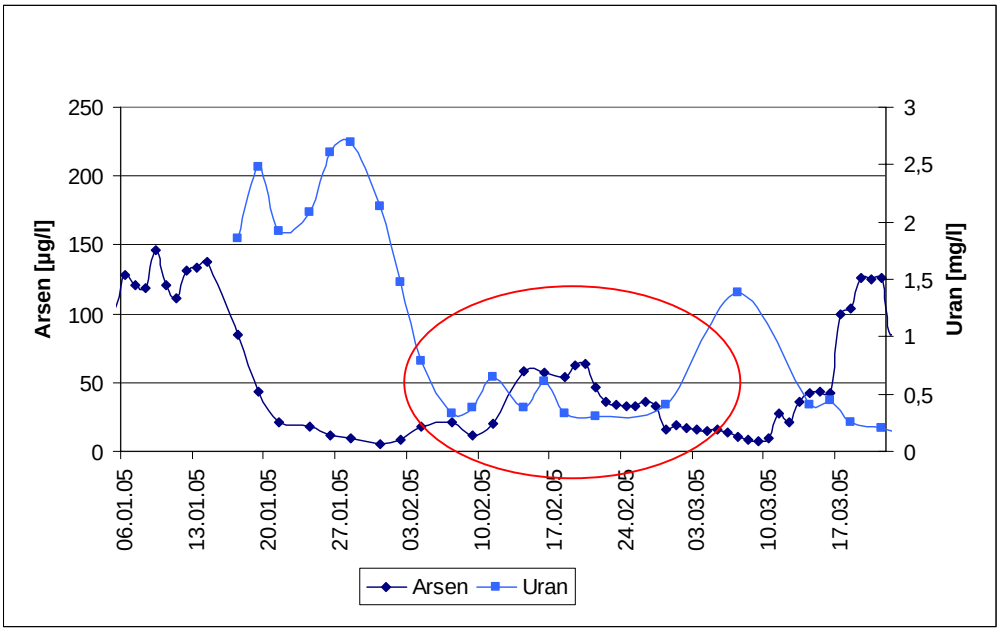

Abb. 4: Darstellung der Konzentration im Ablauf mit partieller und effektiver Abtrennung von Uran und Arsen

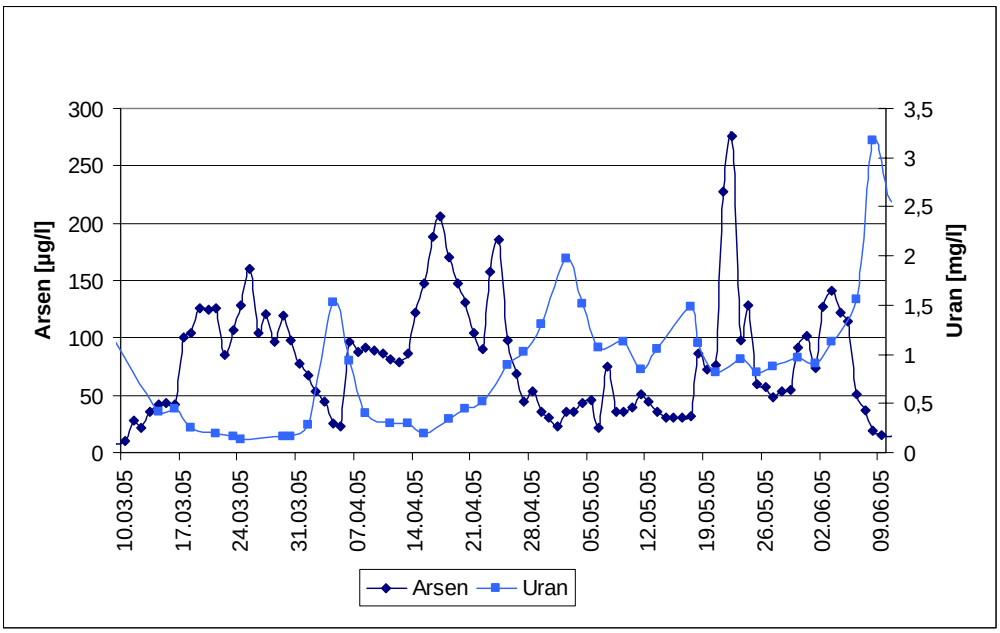

Abb. 5: Darstellung der Konzentrationen im Ablauf mit stark variierender Behandlungseffizienz

Die Feststoffuntersuchungen des Kiesmaterials ergaben keine nennenswerte Anreicherung der standortrelevanten Schadstoffe (Tabelle 3). In den Sprossen der Pflanzen war insbesondere eine Erhöhung der Konzentration an Uran festzustellen. Die höchsten Urankonzentrationen wurden in den Pflanzen der ersten Behandlungsstufe (Modul 1 und 2) ermittelt (Tabelle 1). Arsen wurde dagegen bevorzugt in den Wurzeln der Pflanzen akkumuliert (Tabelle 2). Der Eisengehalt in den Wurzeln von Phragmites spec. (Modul 3 und 4) war doppelt so hoch wie bei denen von Carex spec. (Modul 1 und 2). In den sich in 2,5 Jahren gebildeten organischen Ablagerungen (Pflanzen- und Mikroorganismenbiomasse) im Kiesfilter wurden im Vergleich zum Kiesmaterial deutlich höhere Konzentrationen an Uran, Arsen und vor allem Eisen nachgewiesen (Tabelle 4).

Tabelle 1: Schadstoffkonzentration in den Pflanzensprossen (µg/g TM nach 2,5 Jahren)

Parameter	Modul 1	Modul 2	Modul 3	Modul 4
Uran	386	247	56	55
Arsen	8	2	<2	<2
Eisen $_{gesamt}$	331	225	169	158

Tabelle 2: Schadstoffkonzentration in den Pflanzenwurzeln (µg/g TM nach 2,5 Jahren)

Parameter	Modul 1	Modul 2	Modul 3	Modul 4
Uran	139	169	47	37
Arsen	143	79	144	195
Eisen $_{gesamt}$	569	533	1.310	2.820

Tabelle 3: Schadstoffkonzentrationen im Kiesmaterial (µg/g TM)

Parameter	Ausgangs-material	Modul 1	Modul 2	Modul 3	Modul 4
Uran	<4	4	8	3	3
Arsen	4–14	3	5	3	2
Eisen $_{gesamt}$	1.162–1.393	1.350	1.260	997	737

Tabelle 4: Schadstoffkonzentration organischer Ablagerungen im Kiesfilter (µg/g TM nach 2,5 Jahren)

Parameter	Modul 1	Modul 2	Modul 3	Modul 4
Uran	30	45	36	24
Arsen	72	78	37	27
Eisen $_{gesamt}$	-	22.380	48.960	15.387

3.3 Robustheit und Langzeitstabilität des Pflanzen-Mikroorganismen-Systems

Sowohl die Quantität der Kohlenstoffressource als auch die Wirksamkeit des Luft- bzw. Sauerstoffeintrages in das Sickerwasser sind wesentlich für die effiziente Abtrennung beider Schadstoffe in einer Anlage und bedurften einer gezielten Optimierung.
Folgende Szenarien führen zu abweichenden Betriebszuständen bzw. Ablaufwerten des Sickerwassers:

1) zeitweiliger bzw. dauerhafter Betrieb der Anlage ohne Zugabe von Melasse

Eine ausbleibende Zugabe von Melasse führt zu einem Wechsel von reduzierenden zu oxidierenden Bedingungen und damit zur Ausfällung von Eisen, an welches Arsen gebunden wird. Bei Wiedereinstellung reduzierender Bedingungen, durch Zugabe und mikrobiologischer Transformation von Melasse, erfolgt die Freisetzung des akkumulierten Arsens.

2) kurz- und langfristig nicht dem Sickerwasserdurchsatz angepasste Zugabemengen an Melasse

Diese führen zur Ausbildung von reduzierenden Bedingungen in beiden Behandlungsstufen. Damit verbunden sind eine unzureichende Arsenabtrennung bis hin zur Arsenfreisetzung und erhöhten CSB-Konzentrationen im Ablauf der Anlage.

Lang anhaltender Frost führte zu keiner Beeinträchtigung des Anlagenbetriebes. In Frostperioden bildete sich auf der Wasseroberfläche, der im Überstau betriebenen ersten Behandlungsstufe, eine geschlossene Eisdecke aus. Dies wirkte sich nicht negativ auf die Sickerwasserbehandlung aus.

3.4 Ableitung von Maßnahmen zur Erhöhung der Robustheit und Langzeitstabilität

Bei unzureichend anoxischen Bedingungen wurden Uran und Nitrat nicht abgetrennt und unter stark reduzierenden Bedingungen erfolgte eine Remobilisierung von Arsen. Es traten zudem Geruchsbelastungen am Betriebsstandort auf.
Um Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb frühzeitig zu erkennen und damit schnellstmöglich Maßnahmen zur Anpassung der Betriebsweise treffen zu können, ist eine kontinuierliche Messung von Parametern an ausgewählten Messpunkten, gekoppelt mit einer Online-Übertragung der Messwerte erforderlich. Weiterhin ist eine automatische Störungsmeldung bei Eintritt unplanmäßiger Zustände vorzusehen.
Zu den Messparametern, welche Auskunft über den Betriebszustand der Anlage geben und Ableitungen hinsichtlich der Abtrennung der relevanten Parameter erlauben, gehören Nitrat- und Sauerstoffkonzentration im Sickerwasser.
Um langfristig stabile Ablaufwerte zu erreichen, ist eine Regelung der Melassedosierung in Abhängigkeit vom Volumenstrom des zufließenden Sickerwassers vorzusehen. Für eine dem Durchsatz angepasste Melassezugabe ist eine geeignete MSR-Technik einzuplanen.
Um Schwankungen bzw. Spitzen in den Ablaufwerten bei Bedarf zu vergleichmäßigen, kommt dem Schönungsteich eine Bedeutung zu. Das Volumen des Schönungsteichs ist zur Erhöhung der Effektivität entsprechend zu dimensionieren.
Um den Sauerstoffgehalt im Sickerwasser nach der Passage der ersten Behandlungsstufe zusätzlich zu der bisher getroffenen Technologieänderung (zeitgesteuerter Auslass) zu verbessern, ist eine Kaskade für den passiven Eintrag von Luftsauerstoff in das Sickerwasser in das Anlagenkonzept zu integrieren.

4 Zusammenfassung

An einer Pilotanlage zur passiv biologischen Behandlung von mit Uran und Arsen belastetem Haldensickerwasser wurden umfangreiche Untersuchungen zur Effizienz, Robustheit und Langzeitstabilisation durchgeführt.
Die prinzipielle Machbarkeit einer Behandlung des Sickerwassers der Halde 371/I in einem zweistufigen bepflanzten Kiesfilter konnte nachgewiesen werden. Die Erfahrungen mit dem Betrieb der Anlage zeigten aber, dass die Steuerung der für die effiziente Abtrennung von Uran und Arsen erforderlichen Milieubedingungen sehr komplex ist. Eine stabile Balance der gegensätzlichen Milieubedingungen (anaerob, aerob) als Voraussetzung eine effiziente Sickerwasserbehandlung war nicht durchgängig gewährleistet.
Davon abgesehen wurden gezielt Abweichungen vom planmäßigen Betrieb durch Realisierung von möglichen Störszenarien erzeugt und die sich damit einstellenden Betriebszustände aufgezeichnet und bewertet. Es konnte festgestellt werden, dass bei

optimaler Melassedosierung eine Verminderung und Steigerung des Durchsatzes um 50 % bei gleichzeitiger Anpassung der Melassemengen unproblematisch ist.
Die im Pilotvorhaben aufgetretenen Schwankungen im Sickerwasserdurchsatz in Verbindung mit einer zeitversetzten manuellen Nachregelung der Zugabemengen an Melasse erlaubten es, die Reaktion des Systems unter realen Einsatzbedingungen zu bewerten..
Für die Sicherstellung einer stabilen Schadstoffabtrennung ist eine durchflussabhängige Melassezugabe erforderlich. Durch die Vorschaltung eines Rückhaltebeckens kann der Durchsatz vergleichmäßigt und jahreszeitbedingte Schwankungen im Sickerwasseranfall ausgeglichen werden.
Die Pilotanlage wurde als Behandlungsanlage zur Erprobung passiv-biologischer Verfahren zur Behandlung der Sickerwässer der Halde 371/I konzipiert. Die Befristung des zugelassenen Betriebes dieser Pilotanlage endete am 31.12.2007.
In der Auswertung der Pilotierung stellte die nur temporär realisierbare zielgemäße Behandlung einer maximalen Sickerwasser-Durchsatzmenge von maximal 5 m^3/h keine dauerhafte langzeitstabile Behandlungslösung für das in seiner Menge und Beschaffenheit schwankende Sickerwasser der in Sanierung befindlichen Halde 371/I dar.
Die passiv-biologische Behandlungsanlage wurde mittlerweile zurückgebaut. Gemäß der Forderung des zuständigen Sächsischen Oberbergamtes wird ab Herbst 2008 eine konventionelle Behandlungsanlage zur Uranabtrennung gebaut, die 2009 in Betrieb geht.

Literaturverzeichnis

CHANG, Y.-J., PEACOCK, A.D., LONG, P.E., STEPHEN, J.R., MCKINLEY, J.P., MACNAUGHTIN, S.J., ANWAR HUSSAIN, A.K.M., SAXTON, A.M. & WHITE, D.C. (2001): Diversity and Characterization of Sulfate-Reducing Bacteria in Groundwater at a Uranium Mill Tailings Site. Applied and Environmental Microbiology, Vol. 67, No. 7, pp. 3149-3160.

HIGGINS, J. and WHITFORD, J. (2003): The use of engineered wetlands to treat mine drainage. The rehabilitation of industrial wasteland and post-mining landscapes, Görlitz 2003, Germany, 12 April.

KUSCHK, P., WIESNER, A., BUDDHAWONG, S., STOTTMEISTER, U. & KÄSTNER, M. (2006): Effectiveness of differently designed small-scale constructed wetlands to decrease the acidity of acid mine drainage under field conditions. Engineering Life Science, 6 (4), pp. 394-398.

LIMPITLAW, D. (1996): Sediments as indicators of wetland efficacy in ameliorating acid mine drainage. Journal of the South African Institute of Mining and Metallurgy, December.

LLOYD, J.R., KLESSA, D.A., PARRY, D.L. & BROWN, N.L. (2004): Stimulation of microbial sulphate reduction in a constructed wetland: microbial and geochemical analysis. Water Research 38, pp. 1822-1830.

MKANDAWIRE, M. & DUDEL, E.G. (2005): Accumulation of arsenic in Lemna gibba L. (duckweed) in tailing waters of two abandoned uranium mining sites in Saxony, Germany. Science of the Total Environment, 336, pp. 81-89.

SCHÖNER, A., SAUTER, M. & BÜCHEL, G. (2004): Untersuchungen zur Rückhaltung von Uran in Wetlands. Treatment Technologies for Mining Impacted Water, Berg- und Hüttenmännischer Tag, 55, Freiberg 2004, Germany.

WOLKERSDORFER, C. & YOUNGER, P.L. (2002): Passive Grubenwasserreinigung als Alternative zu aktiven Systemen. Grundwasser – Zeitschrift der Fachsektion Hydrologie 2/2002.

Anschriften der Autoren

Dr. André Gerth, Anja Hebner
BioPlanta GmbH
Deutscher Platz 5, 04103 Leipzig
Tel.: 0341/224 58-30, Fax: -31
Email: info@bioplanta-leipzig.de
Internet: www.bioplanta-leipzig.de

Dr. Christian Kunze, Annette Küchler, Anja Zellmer
WISUTEC GmbH
Jagdschänkenstr. 33, 09117 Chemnitz
Tel.: 0371/81 20-180, Fax: -175
Email: info@wisutec.de
Internet: www.wisutec.de