

Literatur:

Krauskopf, K.B. (1956), Dissolution and Precipitation of Silica at Low Temperatures, *Geochim. Cosmochim. Acta* 10, pp.1-27.

Madsen, F.T. and Mitchell, J.K. (1989), Chemical Effects on Clay Hydraulic Conductivity and their Determination, *Mitteilungen des Institutes für Grundbau und Bodenmechanik*, Hrsg. Lang, H.J., Eidgenössische Technische Hochschule Zürich, Nr.135.

Nutting, P.G. (1943), The Action of Some Aqueous Solutions on Clays of the Montmorillonite Group, *U.S. Geol. Surv., Profess. Paper* 197F, pp.219-235.

Van Olphen, H. (1963), An Introduction to Clay Colloid Chemistry, *Interscience Publishers*.

Osthaus, B. (1956), Kinetic Studies on Montmorillonites and Nontronite by the Acid Dissolution Technique, *Natl. Acad. Sci., Publ.* 456, pp.301-321.

**Dichtungs- und Adsorptionseigenschaften
toniger Sedimente der niederösterreichischen Molassezone
und des Wiener Beckens**

Von F. OTTNER, B. SCHWAIGHOFER und H.W. MÜLLER

Abteilung Baugeologie des Institutes für Bodenforschung und Baugeologie,
Univ. für Bodenkultur, A-1180 Wien, Gregor Mendel-Straße 33.

Kurzfassung

Vier unterschiedlich zusammengesetzte Tone der niederösterreichischen Molassezone und des Wiener Beckens wurden auf ihre Eignung als Barrieregesteine für Mülldeponien untersucht. Nach Erfassung der mineralogisch-geochemischen Parameter wurden die Tone in Schüttel- und Perkolationsversuchen mit folgenden Prüfflüssigkeiten behandelt: Wasser, Salzsäure, Natronlauge, Sickerwasser synthetisch und Bleichloridlösung. Die dabei aufgetretenen Wechselwirkungen zwischen Tonen und Prüfflüssigkeiten wurden durch chemische Analysen der flüssigen Phase bzw. durch mineralogische und geochemische Analysen der Feststoffe erfaßt. Besonderes Augenmerk wurde auf die Analytik der Tone nach Abschluß der Perkolationsversuche gelegt. Die Minerale Chlorit, Kalzit und Dolomit erwiesen sich als chemisch wenig stabil. Durch ihr unterschiedliches Lösungsverhalten konnten sie Lösungsfronten der Prüfflüssigkeiten in den Tonen anzeigen. Das selektive Lösen von Mineralen führte zu signifikanten Dichte- und Porenvolumensänderungen. Die lange Versuchsdauer von über 1,5 Jahren und die z.T. 10 Meter betragende Einstauhöhe reichten aber nicht aus, um die zu erwartenden Durchlässigkeitsänderungen eintreten zu lassen. Diese Fakten, sowie eine äußerst geringe Durchlässigkeit (k-Werte der Tone von Göllersdorf und Mannersdorf : 10^{-12} m/s) sprechen für eine gute Eignung als natürliche geologische Barriere.

Summary

Four variously composed clays from the Lower Austrian Molassezone and the Vienna Basin were examined for their suitability as barrier rocks for waste disposal sites. After recording the mineralogical-geochemical parameters the clays were treated in batch- and percolation-tests with the following test liquids: water, hydrochloride acid, sodium hydroxide, waste water synth., and lead chloride solution. The resulting interactions between the clays and the liquids were analyzed chemically for the fluid phase, resp. mineralogically and geochemically for the solids. Special attention was directed to the analysis of the clays after the percolation tests. The minerals chlorite, calcite, and dolomite turned out to be rather unstable. Due to their different dissolving reactions they could be listed as marks for solution fronts of the test liquids in the clays. The selective dissolving for minerals resulted in significant changes of density and pore volume. The long duration of the tests (more than 1 1/2 years) and the damming up height of up to 10m were not enough to get the expected changes of permeability. These facts, plus a very low permeability (coefficient of permeability of the clays around Göllersdorf and Mannersdorf: 10^{-12} m/s) speak for a suitability as natural geological barrier.

1.0 Einleitung

Das Grundproblem auch der österreichischen Abfallwirtschaft läßt sich mit einem Satz umreißen: "Jeder produziert den Müll, den dann keiner will." Riesige, z.T. leichtsinnig, z.T. aber auch vorsätzlich produzierte Müllberge müssen entsorgt werden. Die Entwicklung neuer Konzepte wird immer dringender, denn die Effektivität des sehr beliebten "Floriani-Prinzips" ist verkehrt proportional zu dessen Anwendungshäufigkeit.

Jeder Österreicher produziert pro Jahr etwa 500 kg Müll, der grobteils deponiert werden muß. Es ergibt sich somit ein berechenbarer Bedarf an Deponieflächen, der für die Ablagerung zukünftig anfallender Abfallmengen bereitgestellt werden muß. Ein gesteigertes Umweltbewußtsein einerseits; katastrophale Folgen unsachgemäßer Mülldeponierung andererseits, bewirkten eine extreme Sensibilisierung der Bevölkerung zu diesem Problembereich. Die Behörden sind daher gezwungen, durch entsprechende Vorschriften dafür zu sorgen, daß in Zukunft keine Kontaminationen der Biosphäre durch undichte Deponien mehr eintreten.

In Österreich wird die Abfalldeponierung durch die Richtlinien für Mülldeponien (1988) und die Richtlinie für die Ablagerung von Abfällen (1990) - herausgegeben von den Ministerien für Land- und Forstwirtschaft bzw. Umwelt, Jugend und Familie - geregelt. Weiters steht dem Erbauer von Deponien und Abfallagern auf Zeit seit kurzem das Normenpaket ÖNORM S 2070 bis S 2075 zur Verfügung. Im weltweit zum Standard gewordenen Multibarriersystem für Mülldeponien werden Tone als wichtige Dichtelemente an zwei Stellen eingesetzt:

- 1.) Als natürliche geologische Barriere = Deponiestandort, der bei Versagen aller technischen und künstlichen Barrieren eine Katastrophe verhindern muß.
- 2.) Als mineralische Dichtschicht, bei der Tone mehr oder weniger aufbereitet und veredelt als künstliche Abdichtung neben Kunststoff-Folien eingesetzt werden.

Die Anforderungen an Barrieregesteine sind bekannt und wurden unter anderem von M. MÜLLER-VONMOOS et al. (1986), K. CZURDA (1987a, 1987b), und K. FINSTERWALDER (1989) aufgezeigt.

Um dem verstärkten Bedarf an Tonen für Dichtschichten bei Mülldeponien, sowie der regionalgeologischen Situation Österreichs Rechnung tragen zu können, wurden in der vorliegenden Studie ausgewählte, z.T. sehr unterschiedliche Tone auf ihre prinzipielle Verwendbarkeit als Barrieregesteine untersucht.

2.0 Untersuchungsmethodik

Für die Untersuchungen wurden aus den Tonlagerstätten ungestörte bergfeuchte Proben entnommen. Für die Perkolationsversuche erfolgte die Probenahme mittels einer zylindrischen Stechvorrichtung. Vor der weiteren Behandlung der Tone wurden die Gesteinsparameter des Ausgangsmaterials erfaßt.

Für die Untersuchung der Wechselwirkungen zwischen Tonen und Prüfflüssigkeiten wurden in erster Linie zwei Methoden angewendet: Schüttel- und Perkolationsversuche (siehe auch Ablaufschema, Abb. 1).

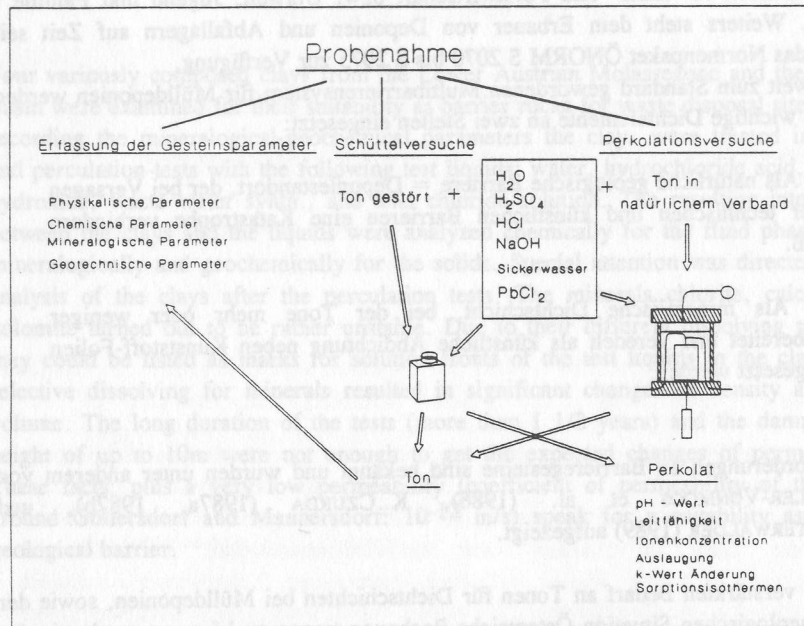


Abbildung 1: Ablaufschema der Untersuchungen

Physikalische Parameter

Wassergehalt, Dichte (Autopyknometer der Firma Micromeritics), Porenvolumen, Korngrößenverteilung mittels Naßsiebung und Sedigraph 5000 ET (Firma Micromeritics), Schwelldruck (B.SCHWAIGHOFER et al., 1988), spezifische Oberfläche mittels Methylenblau-Adsorption.

Mineralogische Parameter

Gesamtmineralbestand, Tonmineralverteilung der Fraktionen kleiner 2µm bzw. kleiner 0,2µm an Texturpräparaten.

Die mineralogischen Untersuchungen wurden mit einer Philips Diffraktometeranlage PW 1710 mit PC-APD Software for Automated Powder Diffraction PW1877 durchgeführt.

Das Grundproblem nach der geotechnischen Abschätzung läßt sich mit einem Satz

Chemische Parameter

pH-Wert, Leitfähigkeit, chemische Zusammensetzung, Spurenelemente, Austauschkapazität.

Die Messung der chemischen Elemente nach verschiedenen Aufschlüssen erfolgte mittels DCP (Fa.EMS) bzw. Flammen-AAS (Perkin Elmer) in der Abteilung für Bodenkunde der Universität für Bodenkultur Wien.

Geotechnische Parameter

Durchlässigkeit, Proctorverdichtung, Rahmenscherversuch, Atterberg'sche Zustandsgrenzen (R.KNAAK, 1990, und R.ROHRHOFER, 1990).

Schüttelversuche

Schüttelversuche werden an gestörten Proben durchgeführt, wobei es zu einem äußerst intensiven Kontakt zwischen Ton und Prüfflüssigkeit kommt. Der Vorteil dieser Methode besteht in der raschen Durchführbarkeit; man erhält sehr rasch Ergebnisse, es sind auch immer maximale Reaktionen zu erwarten. Ein großer Nachteil jedoch ist die extrem starke Abhängigkeit der Ergebnisse von den Versuchsbedingungen, wie z.B. Verhältnis von Ton zu Flüssigkeit, Verweilzeit, Schüttelrhythmus usw. Bei Standardisierung der Versuchsbedingungen sind aber verschiedene Materialien gut miteinander vergleichbar.

Perkolationsversuche

Ungestört entnommene Tonproben von 100mm Durchmesser und ca. 40mm Höhe werden für die folgenden Untersuchungen in die mittlerweile zum geotechnischen Standard gewordenen Triaxialzellen eingebaut. Die Tonprobe ist von einer Gummihülle umgeben, ein höherer Umgebungsdruck preßt die Hülle an den Ton und verhindert Randwegigkeiten bei der Durchströmung. Über Manometer können beliebige Druckwerte eingestellt und somit verschiedene Einstauhöhen von Prüfflüssigkeiten simuliert werden (Abb. 2 und 2a).

Durch Messen der ausgetretenen Ionen in den Perkolaten und Abziehen von der Gesamtkonzentration im Ton, erhält man für einzelne Ionen die Auslaugungsraten (E.REUTER, 1988). Diese sind ein Hinweis für die chemische Stabilität eines Tones gegenüber einer Prüfflüssigkeit.

Der große Nachteil der Perkolationsmethode ist die sehr lange Versuchszeit (z.T. schon über zwei Jahre).

Zur Auswahl der Prüf Flüssigkeiten

- Es sollte das gesamte pH-Spektrum abgedeckt sein, von stark sauer über neutral bis stark alkalisch; HCl, H₂SO₄, NaOH.
- Mit einer Lösung sollte die Zusammensetzung eines Sickerwassers - als Abbauprodukt von organischen Abfällen - repräsentiert werden; Sickerwasser synthetisch (HAM, R. et al., 1979).
- Mit einer Lösung sollte stark schwermetallbelastetes Sickerwasser simuliert werden; PbCl₂
- Als Vergleichsflüssigkeit wurde bei jedem Ton demineralisiertes Wasser verwendet.

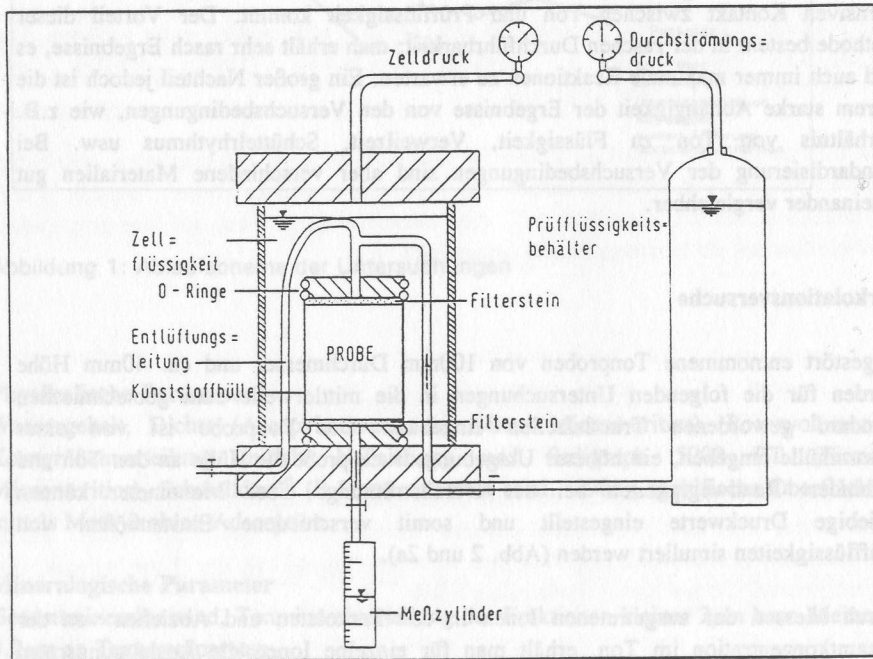


Abbildung 2: Schema einer Dreiaxial-Durchlässigkeitszelle

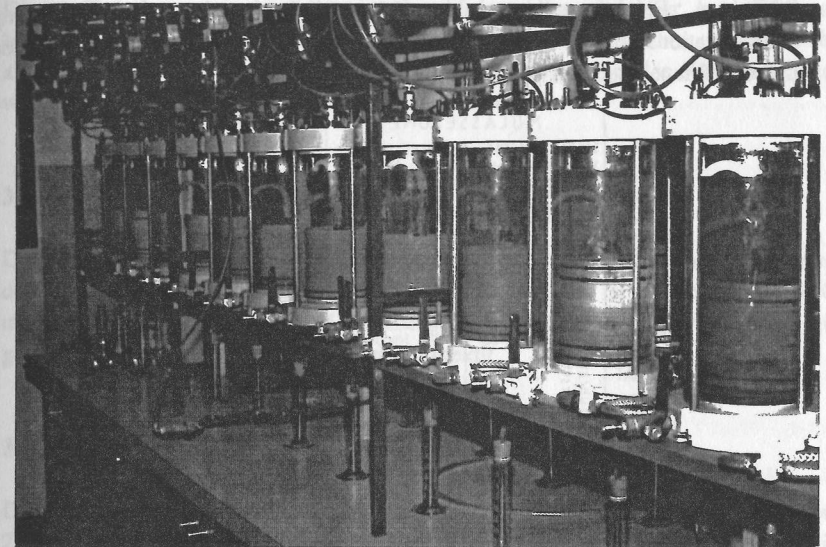


Abbildung 2a: Ansicht der Dreiaxialzellen Versuchsanlage

3.0 Untersuchungsmaterial

3.1 Geologischer Rahmen

Die sedimentologischen Voraussetzungen zur Ablagerung von Feinkornsedimenten größerer Mächtigkeit sind in Österreich vor allem in zwei geologischen Einheiten gegeben:

- 1.) In der **Molassezone** kam es nördlich der aufsteigenden Kalkalpen zur Ablagerung von deren Abtragungsschutt. Die Sedimentation begann im Alttertiär und setzte sich bis zur Aussüßung des Molassemeeres im Jungtertiär fort. Mehrere hundert Meter mächtige Schichtpakete von Tonen und Tonmergeln (Schlier) wurden in den tieferen Meeresteilen sedimentiert. Die Molassezone erstreckt sich W-E streichend, im sogenannten Alpenvorland, von Vorarlberg bis Niederösterreich.

2.) Ebenfalls im Tertiär kam es an tektonischen Schwächezonen zur Ausbildung von intramontanen Zerrungsbecken, die vom Meer überflutet und mit z. T. sehr mächtigen Feinkornsedimenten verfüllt wurden. Der größte derartige Sedimentationsraum ist das **Wiener Becken**. Die Schichtfolgen der Molassezone und des Wiener Beckens sind in Abbildung 3 zusammengestellt.

	MOLASSEZONE		INNERALPINES WIENER BECKEN
	SALZBG., OBERÖST. u. WESTL. NÖ (Amstetten)	NIEDERÖSTERREICH ÖSTLICHER ABSCHNITT	
QUARTÄR	Deckenlehme		
PLIOZÄN			Rohrbacher Kngl.
PONT			Süßwasserkalk Lignit
PANNON	Hausruck	Nördlich der Donau: Hollabrunner Schallerkegel	Cangerienschichten (Sande, Inzersd., Tegell)
SARMAT			Sande und Tegell
BADEN	Trimmelkam	Lithothamnienk.	Leithakalk u. Konglomerate u. Sande
KARPAT			Laaer Sch.
OTTNANG	Invertierter Serie: Pieschinger Schlier Phosphoritsd.	Uncophorasch. Schlier (Nördl. d. Donau)	Schlier nur nördl. d. Donau
EGGENBURG	Haller Serie	Eggenburger Serie: Eggenba. Schlier u. kongl. Sch.	
EGER	Puchkirchener Serie: Linzer Sande u. Schlier	Melker Serie: Melker Sande u. Schlier	
RUPEL	Tonmergelstufe (Schlier) Bändermergel Heller Mergelkalk	Tonmergelstufe	
EOZÄN	Fischschiefer Sandsteine Lithothamnienkalke	Moosbierbaumer Kngl.	

Abbildung 3: Schichtfolgen der Molassezone und des Wiener Beckens. (Aus P. Faupl, 1984)

3.2 Herkunft und Zusammensetzung der Tone

3.2.1 Ton aus Göllersdorf

Dabei handelt es sich um karbonatreiche, feinkörnige Molassesedimente aus den Laaer Schichten; sie stammen aus dem Karpat und werden als Ziegelrohstoffe verwendet. Diese "Tonspezies" wurde als Vertreter für stärker karbonathaltige Tonmergel ausgewählt.

3.2.2 Ton aus Freydegg

Dieser Ton kommt ebenfalls aus der Molassezone, ist aber kein Sediment des Molassemeeres, sondern ein karbonatfreier quartärer Deckenlehm; er findet ebenfalls als Ziegelrohstoff Verwendung. Das Material wurde wegen der Karbonatfreiheit und wegen des Vorhandenseins von Vermikult ausgewählt.

3.2.3 Ton aus Mannersdorf

Dieses Gestein ist ein typischer Vertreter der Wiener Becken-Sedimente; es stammt aus dem Pannon und wird als Zementrohstoff verwendet. Es ist das feinkörnigste Gestein unter den vier untersuchten Materialien (67% Tonfraktion). Der Karbonatgehalt ist gering. Bei den Tonmineralen dominiert Smektit.

3.2.4 Ton aus Hennersdorf

Dieser Ton ist ebenfalls ein Sediment des Wiener Beckens aus dem Pannon. Er wird als Ziegelrohstoff verwendet, sein Karbonatgehalt ist ebenfalls gering, dominierende Tonminerale sind Smektit, er zeigt jedoch etwas höheren Gehalt an Chlorit.

Die Lage der einzelnen Lagerstätten und deren geologischer Rahmen ist aus Abbildung 4 ersichtlich.

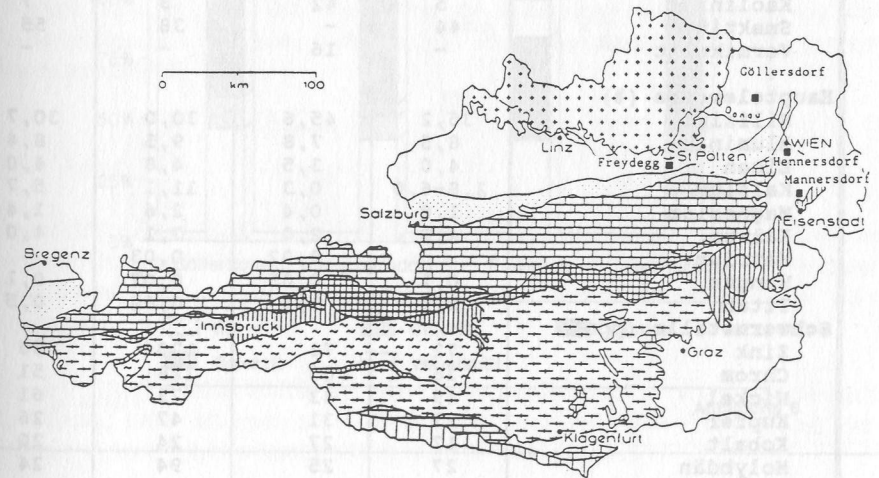


Abbildung 4: Lage der Tonlagerstätten

Die wichtigsten Kenngrößen der vier Tone sind in Tabelle 1 zusammengefaßt, sowie in den Abbildungen 5 bis 8 graphisch dargestellt.

Tabelle 1 : Physikalische, chemische und mineralogische Parameter

Parameter	Mannersd.	Freydegg	Göllersd.	Hennersd.
Wassergehalt (%)	20,9	17,5	12,7	20,3
Feststoffdichte (g/cm³)	2,76	2,73	2,78	2,77
Porenvolumen (%)	34,6	34,6	25,2	36,6
Kornverteilung (%)				
Kies	-	-	-	-
Sand	2,4	4,2	2	0,6
Schluff	30,8	63,8	60	61,7
Ton	66,8	32	38	37,7
Schwelldruck (N/cm²)	78,3	15,0	82,7	33,0
Spez. Oberfläche (m²/g)	178	74	128	128
Mineralbestand (%)				
Quarz	24	56	21	25
Kalzit	1-6	-	19	7
Dolomit	5	-	6	7
Feldspat	1	3	2	3
Schichtsilikate Rest	40	41	37	39
Smektit	26	-	15	19
Tonminerale < 2µm (%)				
Illit	42	42	46	20
Chlorit	9	-	13	18
Kaolinit	5	42	3	7
Smektit	44	-	38	55
Vermikulit	-	16	-	-
Hauptelemente (%)				
Silizium	35,2	45,6	30,0	30,7
Aluminium	8,5	7,8	9,5	8,4
Eisen	4,0	3,5	4,8	4,0
Kalzium	2,8-6,0	0,3	11,1	5,7
Magnesium	1,0	0,4	2,6	1,4
Kalium	4,0	2,0	3,1	4,0
Natrium		0,02	0,03	
Mangan	0,1	0,05	0,07	0,1
Titan	0,6	1,3	0,94	0,5
Schwermetalle (ppm)				
Zink	72	73	120	80
Chrom	36	85	128	51
Nickel	49	43	73	61
Kupfer	21	31	47	26
Kobalt	17	27	24	20
Molybdän	27	25	94	24
pH-Wert	7,8	5,7	8,0	7,5

Gesamtmineralbestand der untersuchten Tone

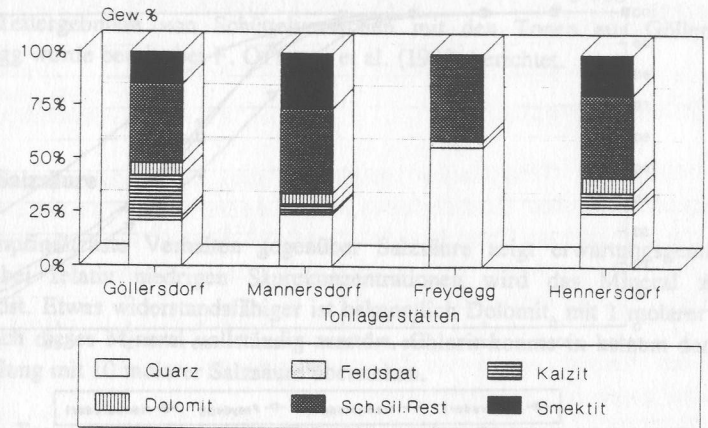


Abbildung 5

Tonmineralverteilung Fraktion < 2µm

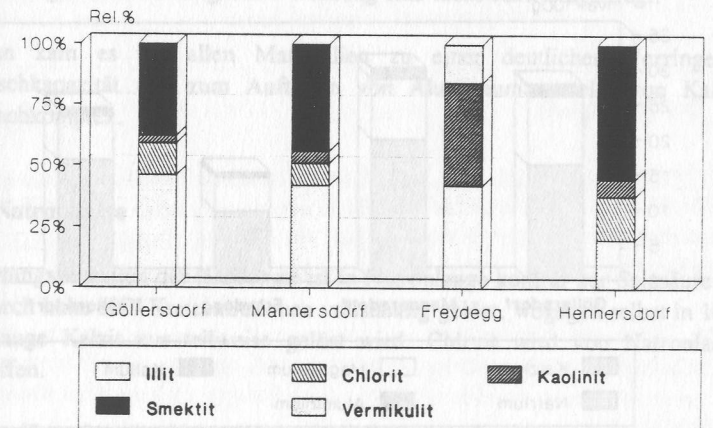


Abbildung 6

Korngrößenverteilung Summenkurven

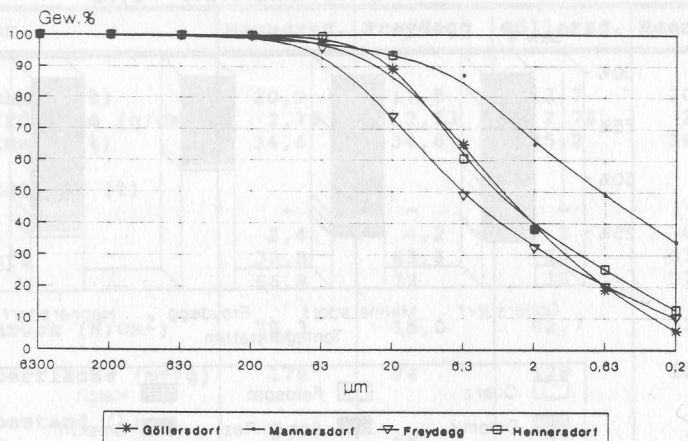


Abbildung 7

Primäre Kationenbelegung der untersuchten Tone

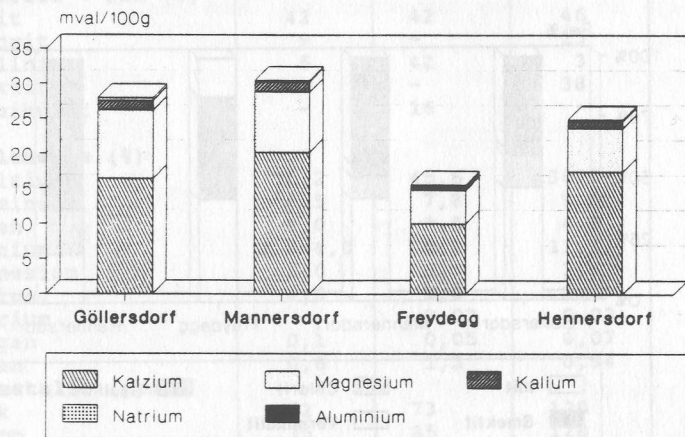


Abbildung 8

5.0 Ergebnisse

5.1 Schüttelversuche

Über Teilergebnisse von Schüttelversuchen mit den Tönen aus Göllersdorf und Freydegg wurde bereits bei F. OTTNER, et al. (1990) berichtet.

5.1.1 Salzsäure

Das empfindlichste Verhalten gegenüber Salzsäure zeigt erwartungsgemäß Kalzit: schon bei relativ niedrigen Säurekonzentrationen wird das Mineral zur Gänze weggelöst. Etwas widerstandsfähiger ist bekanntlich Dolomit, mit 1 molarer HCl wird aber auch dieses Mineral vollständig zerstört. Chlorit konnte in keinem der Tone die Behandlung mit 10 molarer Salzsäure überstehen.

Bei den Tonmineralen kommt es allgemein zu einer Verringerung von Smektit bzw. Vermikulit und der schon erwähnten Zerstörung von Chlorit bei stärkeren Konzentrationen. Die chemisch stabilen Tonminerale Illit und vor allem Kaolinit werden relativ angereichert.

Veränderungen in der Korngrößenverteilung sind nicht stark ausgeprägt.

Dagegen kam es bei allen Materialien zu einer deutlichen Verringerung der Austauschkapazität und zum Auftreten von Aluminium anstelle von Kalzium am Austauschkomplex.

5.1.2 Natronlauge

Das Lösungsverhalten der Karbonate ist in Natronlauge konträr zur Salzsäure: Dolomit wird durch hohe HCl Konzentrationen vollständig gelöst, wogegen selbst in 10 molarer Natronlauge Kalzit nur teilweise gelöst wird. Chlorit wird von Natronlauge nicht angegriffen.

Bei den Tonmineralen kommt es beim Göllersdorfer Ton zu einer vollständigen Zerstörung, beim Mannersdorfer Material zu einer deutlichen Verringerung von Smektit. Chlorit, Illit und Kaolinit werden relativ angereichert.

Deutlich ausgeprägt sind nach Behandlung mit 10 molarer Natronlauge die Korngrößenveränderungen: durch das Weglösen des feinkörnigen Smektites kommt es zu einer relativen Kornvergrößerung.

Die primäre Kationenbelegung wird überraschenderweise weder qualitativ noch quantitativ verändert.

5.2 Perkolationsversuche

Das Prinzip der Triaxialzellen ermöglicht die Aufbringung von sehr hohen Druckgradienten, ohne Umläufigkeiten befürchten zu müssen. Dadurch können auch Tone von sehr geringer Durchlässigkeit bearbeitet werden. Für die Göllersdorfer und Mannersdorfer Tone waren Überlagerungshöhen von 10 m notwendig, um wöchentlich zumindest 10-20 ml Perkolat zu erhalten.

Für jeden Versuch wurde ein "Stammdatenblatt" angelegt; darin sind folgende Parameter gegen die Zeit aufgetragen:

- Durchflußmenge pro Woche
- k-Wert
- pH-Wert des Perkolates
- elektrische Leitfähigkeit des Perkolates
- Ionenkonzentration
- Auslaugungsraten einzelner Ionen

5.2.1 Durchlässigkeit

Wider Erwarten sind trotz sehr langer Versuchsdauer (bis 2 Jahre) nur geringfügige oder überhaupt keine Durchlässigkeitsänderungen eingetreten. Ebenfalls gering sind die Unterschiede zu den k-Werten mit Wasser. In Tabelle 2 sind die Werte zusammengefaßt und den k-Werten mit Wasser gegenübergestellt.

Bei den Tönen aus Mannersdorf und Göllersdorf wurden mit den Prüfflüssigkeiten Wasser, Salzsäure und Natronlauge Parallelversuche durchgeführt.

Beim Ton aus Mannersdorf wurde auch die Durchlässigkeit gegenüber Wasser parallel zur sedimentären Schichtung ermittelt; sie ist etwa doppelt so hoch wie normal zur Schichtung.

Tabelle 2: Zusammenstellung aller k-Werte

Prüfflüssigk.	Tonlagerstätten			
	Mannersdorf	Freydegg	Göllersdorf	Hennersdorf
Wasser (normal zur Schichtung)	2,1.10 ⁻¹¹	1,6.10 ⁻⁹	1,6.10 ⁻¹¹	9,1.10 ⁻¹¹
	2,1.10 ⁻¹¹		1,8.10 ⁻¹¹	
Wasser (parallel zur Schichtung)	5,9.10 ⁻¹¹	8,5.10 ⁻¹¹	2,8.10 ⁻¹¹	3,0.10 ⁻¹¹
	8,5.10 ⁻¹¹			
Salzsäure 1 molar	1,9.10 ⁻¹¹	8,2.10 ⁻¹⁰	1,9.10 ⁻¹¹	3,8.10 ⁻¹¹
	1,9.10 ⁻¹¹		1,8.10 ⁻¹¹	
Natronlauge 1 molar	5,3.10 ⁻¹²	9,9.10 ⁻¹²	2,8.10 ⁻¹¹	3,0.10 ⁻¹¹
	9,9.10 ⁻¹²			
Sickerwasser synthetisch	1,2.10 ⁻¹¹	2,4.10 ⁻⁹	8,2.10 ⁻¹²	7,1.10 ⁻¹¹
Bleichlorid 0,005 mol	3,9.10 ⁻¹¹	2,9.10 ⁻⁹	6,6.10 ⁻¹¹	2,1.10 ⁻¹⁰

5.2.2 Auslaugungsverhalten

Stellvertretend für die anderen Tone soll am Beispiel des Materials aus Göllersdorf das unterschiedliche Verhalten gegenüber vier Prüfflüssigkeiten gezeigt werden.

5.2.2.1 Wasser

Demineralisiertes Wasser wird als Vergleichsflüssigkeit verwendet. Der pH-Wert der Perkolate wird auf pH 8 gepuffert, die Leitfähigkeit ist etwas erhöht. Die Konzentration der gelösten Ionen ist gering, nur Kalzium und Magnesium erreichen kurzfristig Werte über 100 mg/l. In einem halben Jahr werden etwa 1% Magnesium, 0,1% Kalzium bzw. Kalium ausgelaugt (siehe Abb.9).

5.2.2.2 Salzsäure 1 molar

Salzsäure 1 molar hat einen pH-Wert von 0,7. Selbst dieser sehr saure pH-Wert wird vom Ton aus Göllersdorf schon über ein Jahr auf etwa pH 7 gepuffert. Die Leitfähigkeit der Perkolate ist stark erhöht, erreicht aber noch lange nicht die Ausgangswerte. Der sprunghafte Verlauf der beiden Kurven deutet auf Durchbruchversuche der Prüfflüssigkeit, die aber durch das Selbstheilungsvermögen des Tones verhindert wurden. Die Konzentration von Kalzium erreicht Werte von 15000 mg/l, die Konzentration von Magnesium erreicht Maximalwerte von 4000 mg/l. Die Auslaugung dieser beiden Ionen liegt nach einem Jahr bei etwa 20 % (siehe Abb.10).

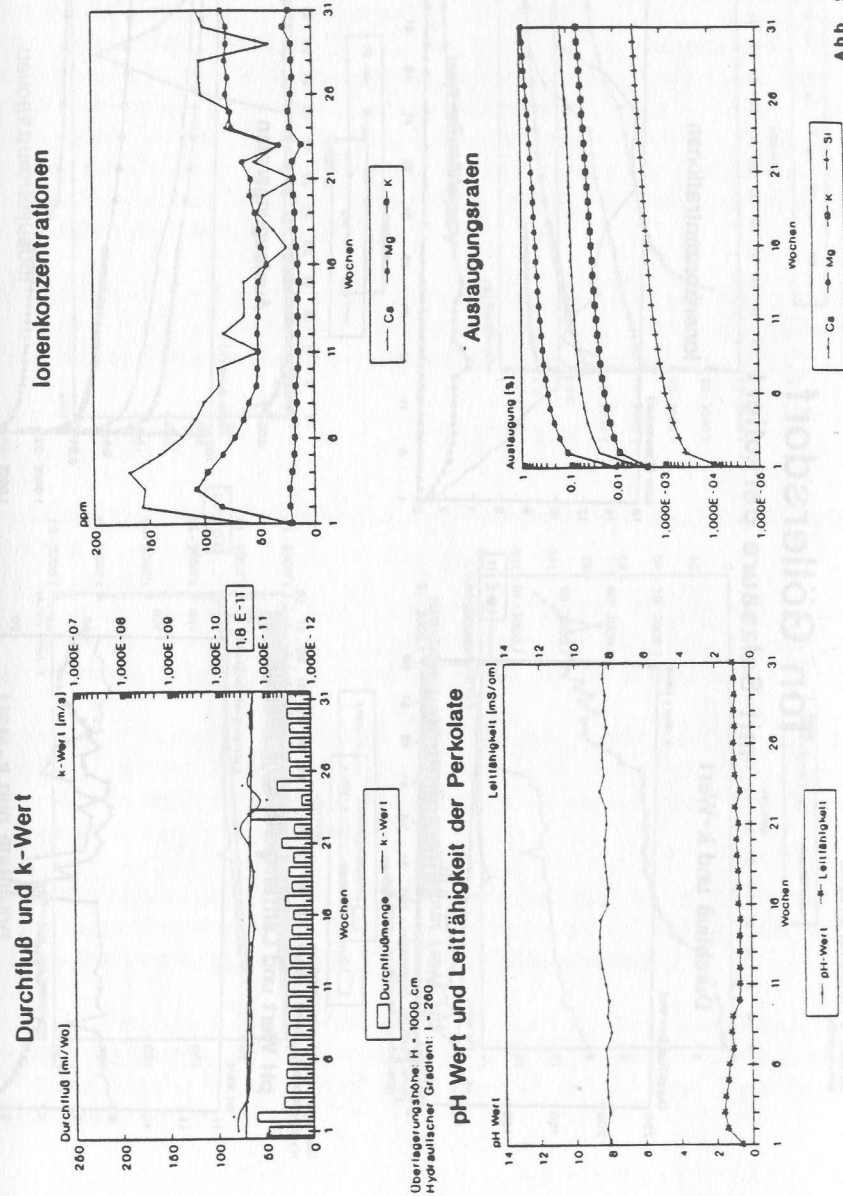
5.2.2.3 Natronlauge 1 molar

Ein kontinuierlicher Anstieg von pH-Wert und Leitfähigkeit auf die Ausgangswerte läßt eine absehbare Gleichgewichtseinstellung erwarten. Die Konzentrationen aller Ionen sind verschwindend gering mit Ausnahme von Silizium. Nach etwa einem Jahr erreicht es plötzlich Werte von über 1000 mg/l. Der Angriff auf die Tetraederzentren durch die Natronlauge hat begonnen. Die Auslaugungsraten aller Ionen sind unter 1 %. Von Silizium wurden bisher etwa 0,2 % ausgelaugt, der Anstieg der Kurve ist jedoch sehr steil und läßt wesentlich höhere Werte erwarten (Abb.11).

5.2.2.4 Sickerwasser synthetisch

Die Zusammensetzung dieser Prüfflüssigkeit kommt natürlich auftretenden Sickerwässern sehr nahe. Der pH-Wert von 4,6 wird konstant auf pH 8 abgepuffert. Der Anstieg der Leitfähigkeit der Perkolate über den Ausgangswert hat seine Ursache im Lösungsvermögen des Sickerwassers. Die Konzentration von Kalzium liegt mit etwa 1400 mg/l zwischen Wasser und Salzsäure. Während Kalzium bis jetzt nur zu etwa 1 % gelöst wurde, sind von Magnesium schon 5 % ausgelaugt (Abb 12).

Ton Göllersdorf mit Wasser perkoliert

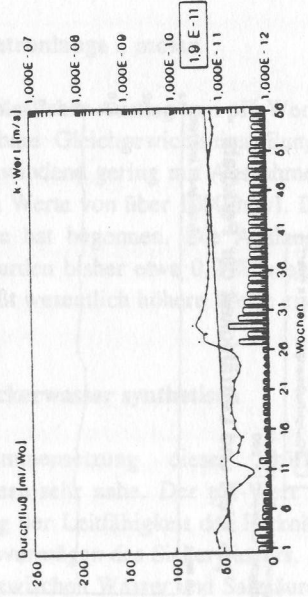


Wasser: pH-Wert 7, Leitfähigkeit 0,01 mS/cm

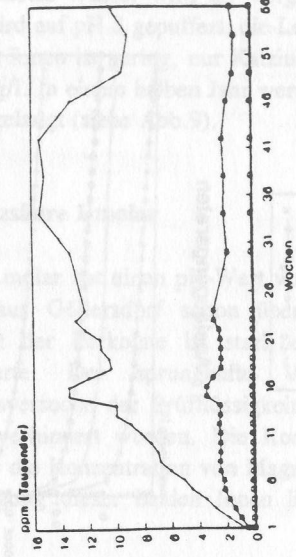
Abb. 9

Ton Göllersdorf mit Salzsäure perkoliert

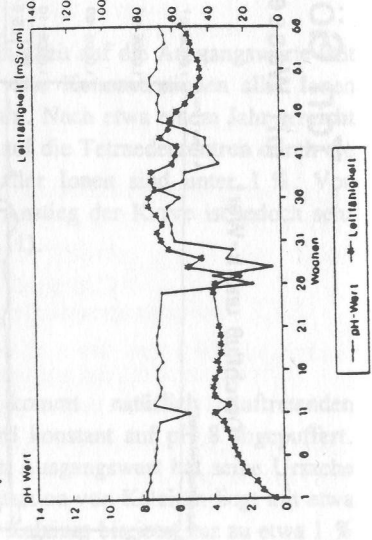
Durchfluß und k-Wert



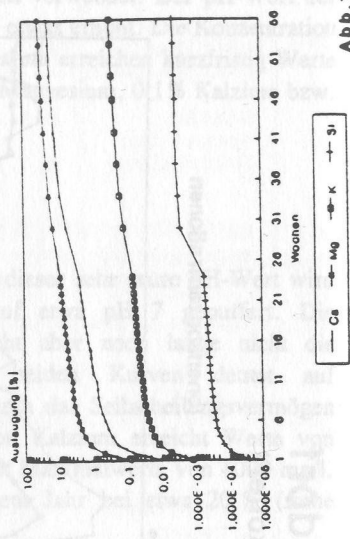
Ionenkonzentrationen



pH Wert und Leitfähigkeit der Perkolate



Auslaugungsraten

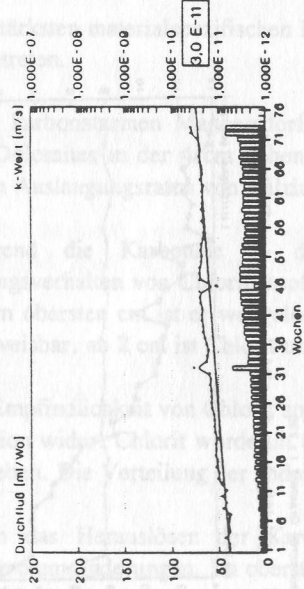


Salzsäure:
pH-Wert 0,7, Leitfähigkeit 360 mS/cm

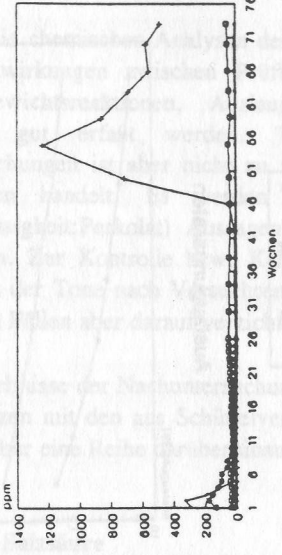
Abb. 10

Ton Göllersdorf mit Natronlaug perkoliert

Durchfluß und k-Wert

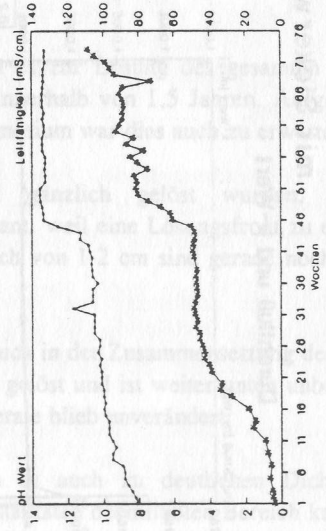


Ionenkonzentrationen

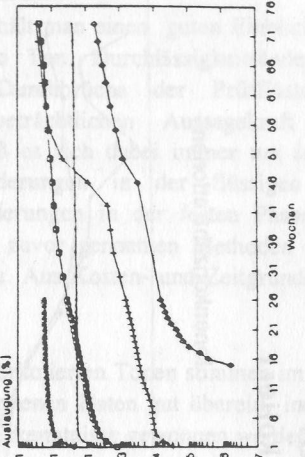


Überlagerungshöhe: H = 1000 cm
Hydraulischer Gradient: i = 230

pH Wert und Leitfähigkeit der Perkolate



Auslaugungsrate

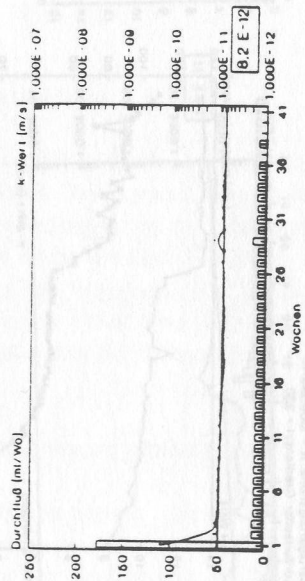


Natronlaug:
pH-Wert 14, Leitfähigkeit 193 mS/cm

Abb. 11

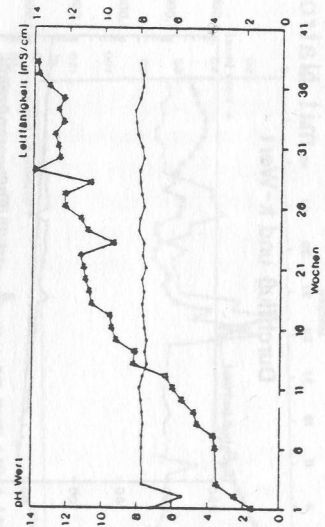
Ton Göllersdorf mit Sickerwasser perkoliert

Durchfluß und k-Wert



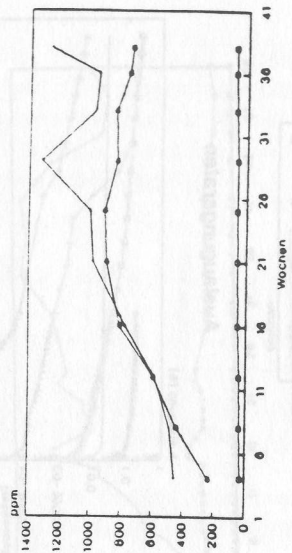
Übersättigungshöhe H = 1000 cm
Hydraulischer Gradient I = 236

pH Wert und Leitfähigkeit der Perkolate



Sickerwasser:
pH-Wert 4,6, Leitfähigkeit 10 mS/cm

Ionenkonzentrationen



Auslaugungsraten

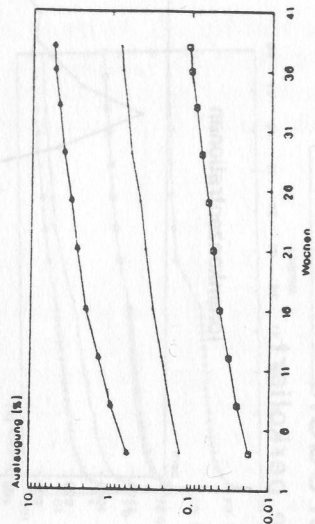


Abb. 12

5.2.3 Veränderungen der Tone durch Perkolation

Durch die chemischen Analysen der Perkolate erhält man einen guten Einblick in die Wechselwirkungen zwischen Prüfflüssigkeit und Ton. Durchlässigkeitsänderungen, Gleichgewichtsreaktionen, Auslaugungsraten, Durchbrüche der Prüfflüssigkeiten können gut erfaßt werden. Trotz der beträchtlichen Aussagekraft dieser Untersuchungen ist aber nicht zu vergessen, daß es sich dabei immer um indirekte Methoden handelt. Es werden über Veränderungen in der flüssigen Phase (Prüfflüssigkeit:Perkolat) Aussagen über Veränderungen in der festen Phase (Ton) getroffen. Zur Kontrolle bzw. Kalibrierung der zuvor genannten Methoden ist eine Analytik der Tone nach Versuchsende unerlässlich. Aus Kosten- und Zeitgründen wird in vielen Fällen aber darauf verzichtet.

Die Ergebnisse der Nachuntersuchungen an den perkolierten Tönen stimmen im großen und ganzen mit den aus Schüttelversuchen gewonnenen Daten gut überein, im Detail konnte aber eine Reihe darüberhinaus reichender Erkenntnisse gewonnen werden.

5.2.3.1 Salzsäure

Die stärksten materialspezifischen Mineralveränderungen sind mit dieser Prüfflüssigkeit aufgetreten.

Beim karbonatarmen Mannersdorfer Ton kam es zur Lösung des gesamten Kalzites und Dolomites in der 4 cm hohen Tonprobe innerhalb von 1,5 Jahren. Aufgrund der hohen Auslaugungsraten von Kalzium und Magnesium war dies auch zu erwarten.

Während die Karbonate in diesem Fall gänzlich gelöst wurden, ist das Lösungsverhalten von Chlorit insofern interessant, weil eine Lösungsfront zu erkennen ist. Im obersten cm ist er weggelöst, im Bereich von 1-2 cm sind gerade noch Spuren nachweisbar, ab 2 cm ist Chlorit unverändert.

Die Empfindlichkeit von Chlorit spiegelt sich auch in der Zusammensetzung der <math>< 2\mu\text{m}</math> Fraktion wider. Chlorit wurde im obersten cm gelöst und ist weiter unten unbeeinflusst geblieben. Die Verteilung der anderen Tonminerale blieb unverändert.

Durch das Herauslösen der Karbonate kam es auch zu deutlichen Dichte- und Porenvolumsänderungen. Im obersten und am stärksten beeinflussten Bereich kam es zu einer Dichteabnahme von $2,73\text{g/cm}^3$ auf $2,66\text{g/cm}^3$ und zu einer Zunahme des Porenvolumens von 33% auf 40%.

Die auffälligste Veränderung trat jedoch am Austauschkomplex auf: Quantitativ nahm die Austauschkapazität auf etwa die Hälfte des Ausgangswertes ab, qualitativ traten die im Ausgangsmaterial dominierenden Kalziumionen sehr stark zurück, es kam zur Dominanz von Aluminiumionen.

Der karbonatreiche Göllersdorfer Ton zeigte infolge der starken Pufferung der Salzsäure durch die Karbonate weniger stark ausgeprägte Wechselwirkungen.

Kalzit und Dolomit wurden nur im obersten cm gelöst; Kalzit beinahe vollständig, Dolomit zu 75 %. Im Bereich von 1 - 4 cm blieben die Karbonate unverändert. Chlorit wurde - in der Gesamtfraktion - selbst im obersten cm nicht verändert.

In der Tonfraktion dagegen kam es sowohl zu qualitativen als auch quantitativen Veränderungen von Chlorit. Im obersten cm des perkolierten Tonzylinders war eine Halbierung der Chloritmenge festzustellen. Qualitativ kam es zu einer Veränderung dieses Minerals, die sich durch Fehlen des - für primäre Chlorite nach dem Tempem üblichen - 14 Å Reflexes äußert.

Die 1cm tiefe Lösungsfront ist auch durch signifikante Porenvolumszunahme (von 25 % auf etwa 40 %) und Abnahme der Dichte charakterisiert.

Im Gegensatz zur starken Beeinflussung des Sorptionskomplexes beim Ton aus Mannersdorf, treten beim Ton aus Göllersdorf keine signifikanten Änderungen auf. Die Freisetzung von Aluminium-Ionen wurde durch die Karbonatpufferung bisher verhindert.

Der Mineralbestand des Tones aus Freydegg ließ geringe Wechselwirkungen mit Salzsäure erwarten. Visuell war die Verfärbung von ocker nach hellgrau (wegen Abfuhr der Eisenoxide) die auffälligste Veränderung.

Neben der Zerstörung von Vermikulit gibt es Hinweise auf eine Neubildung von sekundärem Chlorit durch Einlagerung von Al-Hydroxidschichten zwischen den Tetraederschichten des Vermikulites.

Die Eisenoxidlösung führte zu einer deutlichen Dichtereduzierung der gesamten Probe von etwa 2,70 g/cm³ auf 2,62 g/cm³, sowie zu einer geringfügigen Porenvolumszunahme.

Am Sorptionskomplex dominiert Aluminium, Kalzium und Magnesium treten stark zurück.

5.2.3.2 Natronlauge

Die in Schüttelversuchen festgestellte Empfindlichkeit von Dolomit gegenüber Natronlauge wurde durch die Perkulationsversuche bestätigt. Beim Göllersdorfer Ton kam es - als einzige Änderung des Mineralbestandes - zu einer Verringerung des Dolomitgehaltes von 6 % auf 2 %. Beim Ton aus Mannersdorf erschwerten sedimentologisch bedingte Inhomogenitäten (Muschelschalenlage) eine eindeutige Interpretation der Mineralbestandsänderungen. Veränderungen der Tonmineralverteilung sind nicht aufgetreten. Eine Verringerung der Dichte und eine z.T. beträchtliche Erhöhung des Porenvolumens sind Begleiterscheinungen der oben erwähnten Lösungsvorgänge (darunter auch Siliziumfreisetzung aus den Tetraederpositionen).

5.2.3.3 Sickerwasser

Proben der Tone aus Freydegg und Hennersdorf wurden nach Beendigung der Perkulation untersucht. Die Perkulation der Tone aus Göllersdorf und Mannersdorf ist noch nicht abgeschlossen.

Durch Einwirken von Sickerwasser kam es zu keinen meßbaren Veränderungen des Gesamtmineralbestandes, der Tonmineralverteilung, Dichte und Porenvolumens. Lediglich am Austauschkomplex kam es zu Veränderungen. Beim Ton aus Hennersdorf kam es zu einer geringfügigen, beim Ton aus Freydegg zu einer stärkeren Reduzierung von Kalzium und Magnesium. Das schon im unbehandelten Zustand beim Ton aus Freydegg auftretende Aluminium wurde geringfügig erhöht.

5.2.4 Sorption von Blei

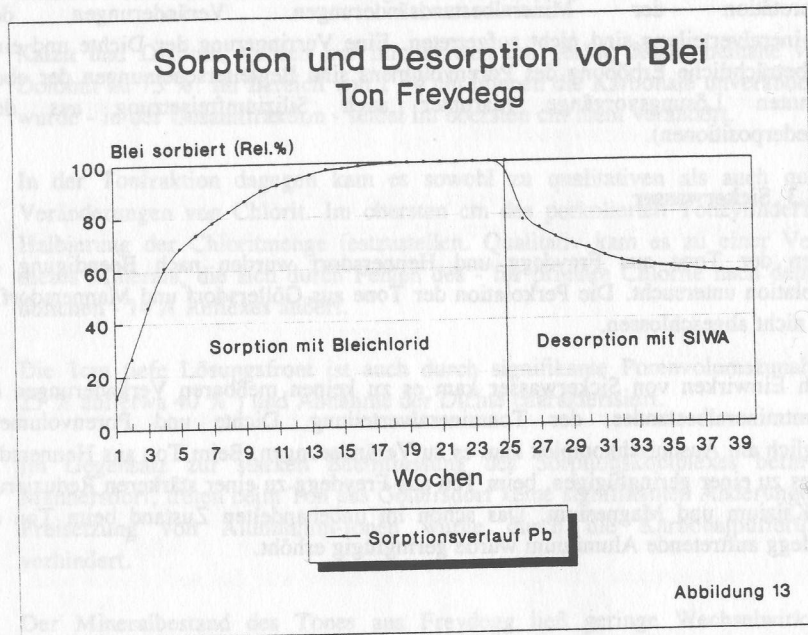
Die sehr hohe Sorptionskapazität der Tone wurde schon durch Schüttelversuche festgestellt. Vom Ton Göllersdorf wurden extrem hohe Konzentrationen von 10.000 ppm Blei zur Gänze sorbiert. Die geringste Sorptionsleistung wurde bei dem Ton aus Freydegg festgestellt.

Bei den Perkulationsversuchen konnte bislang nur vom Ton aus Freydegg der Retardationsfaktor R_f (Verhältnis der mittleren Abstandsgeschwindigkeit von Wasser zur Transportgeschwindigkeit des Schwermetalls) ermittelt werden.

R_f für Ton aus Freydegg: 15

Nach Beendigung der Sorption wurde mit Sickerwasser (synthetisch) ein Desorptionsversuch durchgeführt. Etwa 50 % der ursprünglich sorbierten Bleimenge wurde dabei wieder mobilisiert (Abb.13).

Bei den anderen drei Tonen konnte noch kein Blei in den Perkolaten nachgewiesen werden.



6.0 Schlußbetrachtung

Die vorliegenden Untersuchungen an Tonen aus vier Lagerstätten in der weiteren Umgebung von Wien zeigen die große Abhängigkeit der Ton/Sickerwasser-Wechselwirkungen vom Mineralbestand des Dichtungsmaterials.

Die beiden Karbonatminerale Kalzit und Dolomit kann man in den untersuchten Tonen einerseits als Schwachstellen bezeichnen, da sie sowohl im sauren als auch im basischen Milieu leicht gelöst werden, andererseits bewirken sie aber eine sehr hohe

Sorptionskapazität durch Ausfällung hoher Schwermetallmengen bei der pH-Wert - Anhebung.

Chlorit erwies sich vor allem im sauren Bereich als sehr empfindlich. Im Gegensatz zu den Karbonaten ist aber auch keine Pufferwirkung bzw. Sorptionsleistung vorhanden. Somit ist die Mineralgruppe der Chlorite in Deponiedichtschichten wertlos.

Wie die Nachuntersuchungen der Tone gezeigt haben, konnten die drei oben erwähnten Minerale aber als Marker für Lösungsfronten in verschiedenen Stadien gute Dienste leisten. Bei Umlegung dieser Erkenntnisse auf Basisschichten von Altlasten könnte mit einfachen Mitteln die Beeinträchtigung eventuell vorhandener Dichtschichten ermittelt werden und so das Gefährdungspotential für die Umwelt abgeschätzt werden.

Dank

Die vorliegende Arbeit wurde dankenswerterweise vom Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung in Österreich (Projekt Nr. 6596 E) sowie vom Amt der Niederösterreichischen Landesregierung, Abteilung B/9, und dem Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Abteilung IV/1, finanziell unterstützt.

7.0 Literatur

CZURDA, K., 1987a: Anforderungen an tonige Barrieregesteine und diesbezügliche Möglichkeiten in Österreich. - Österr. Wasserwirtschaft 39, H. 11/12, S.282-289, Wien.

CZURDA, K., 1987b: Tone als geologische Barriere. - Symposium Deponiebauwerke Frankfurt 1987, S.135-154, Frankfurt.

FAUPL, P., 1984: Einführung in die Historische Geologie.- 184 S., 67 Abb., 11 Tab., Prugg Verlag Eisenstadt.

FINSTERWALDER, K., 1989: Beurteilungskriterien für mineralische Dichtungssysteme - Berücksichtigung von Konvektion, Diffusion und Sorption. - In: Fehrlau/Stief (Hrsg.): Fortschritte der Deponietechnik 1989, Nr.30, E.Schmidt-Verl., S. 103-116, Berlin.

HAM, R. et al., 1979: Background Study on the Development of a Standard Leaching Test. - United States Environmental Protection Agency (EPA)- 600/2-79-109, Ohio.

KNAAK, R., 1990: Geotechnische Untersuchungen an Tonen hinsichtlich deren Eignung als Barrieregesteine für Mülldeponien, Tone aus Göllersdorf und Hennersdorf. - Unveröff.Diplomarbeit, Inst.f.Geotechnik, Univ.f.Bodenkultur, Wien.

LECHNER, P., PAWLIK, R., 1988: Richtlinien für Mülldeponien einschließlich Erläuterungen. - Hrsg.: Bundesministerium für Land- u.Forstwirtschaft, Wasserwirtschaftskataster, Wien.

LECHNER, P., MOSTBAUER, P., 1990: Richtlinie für die Ablagerung von Abfällen. - Hrsg.: Bundesministerium für Umwelt, Jugend und Familie, Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Wien.

MÜLLER-VONMOOS, et al., 1986: Einige grundsätzliche Überlegungen zur Abdichtung von Deponien durch Ton. - Mitt. der SGBF 114, S.15-17, Bern.

ÖNORM S 2070, 1990: Deponien und Abfallager auf Zeit; Hydrogeologische und geotechnische Klassifizierung von Standorten.

" S 2071, 1990: Deponien und Abfallager auf Zeit; Deponiebauklassen.

TRANSPORT UND FESTLEGUNG VON SCHWERMETALLEN IN TONEN

" S 2072, 1990: Gefährdungspotential (Eluatklassen) von Abfällen.

" S 2074, Teil 1, 1990: Geotechnik im Deponiebau; Standortserkundung.

" S 2075, 1990: Deponien und Abfallager auf Zeit; Zuordnung von Abfällen.

OTTNER, F., SCHWAIGHOFER, B., MÜLLER, H.W., 1990: Tone der niederösterreichischen Molassezone als Barrieregesteine. Mitt. österr. geol. Ges., 83, Wien.

REUTER, E., 1988: Durchlässigkeitsverhalten von Tonen gegenüber anorganischen und organischen Säuren. - Mitt.d.Instituts f.Grundbau u.Bodenmechanik, TU Braunschweig, H.26., Braunschweig.

ROHRHOFER, R., 1990: Geotechnische Untersuchungen an Tonen hinsichtlich deren Eignung als Barrieregesteine für Mülldeponien; Tone aus Mannersdorf und Freydegg. - Unveröff.Diplomarbeit, Inst.f.Geotechnik, Univ.f.Bodenkultur, Wien.

SCHWAIGHOFER, B., MÜLLER, H.W., 1988: Swelling Behaviour of Pelitic Rocks - Experimental Investigations for Assessing the Influence of Mineralogical and Sedimentological Factors. - Applied Clay Science, 3, S.85-98, Wien.

Die Transportmechanismen sind hinsichtlich der Stofftransport mit der flüssigen Phase als Folge eines hydraulischen Gradienten (Konvektion), andererseits der Stofftransport als Folge eines Konzentrationsgradienten (Diffusion). Beide Transportmechanismen werden von chemisch-physikalischen Rückhalteprozessen überlagert. Zur Beschreibung der Bewegung von Schadstoffen in feinkörnigen Medien bzw. wässrige Abwässer bedarf es Transportmodelle, welche eine wasser Vorhersage der Schadstoffkonzentration erlauben. Ein sehr einfaches Modell läßt sich mit der advektiv-dispersiven Transportgleichung (1) beschreiben:

$$\frac{dc}{dt} = (D/R) \frac{d^2c}{dx^2} - v_x \frac{dc}{dx} \quad (1)$$

wobei c = Stoffkonzentration in der flüssigen Phase, t = Zeit, D = Diffusions-Dispersivitätskoeffizient, R = Retardationsfaktor, x = Transportweg und v_x = Abfließgeschwindigkeit.

Anschritt des Verfassers: Dr. Ingrid-Frank Wagner, Lehrstuhl für Angewandte Geologie, Universität (TU) Wien, Karlsplatz 13, D-1040 Wien, A-1, Österreich