

Natural Attenuation - Einführung.

Vom Naturphänomen zur Sanierungsmethode

Reinhard Wienberg

Umwelttechnisches Labor Dr. R. Wienberg, Hamburg

1 Einleitung

Lange Zeit schien es, als ob die in den USA bereits seit 1994 geführte Diskussion über natürlicherweise im Untergrund ablaufende Abbau- und Immobilisierungsprozesse und ihre Nutzbarkeit für kontaminierte Grundwässer in Deutschland nicht wahrgenommen oder ignoriert würde. In mehreren Artikeln mit z.T. provokativen Titeln wurde versucht, auch bei uns das Interesse zu wecken:

- Nichtstun und beobachten - eine neue Grundwasser-Sanierungstechnik? [WIENBERG, 1997],
- Natural attenuation oder natural attenuation ? [ROHNS, 1997],
- Zum Konzept des qualifizierten Nichtstun bei der Altlastensanierung [WIENBERG, 1998], und in ähnlichem Zusammenhang:
- Altlasten einfach wegrechnen ? [FÖRSTNER, 1997].

Dabei war der Ausgangspunkt die Besorgnis, " ...daß die Gefahr besteht, daß sich Sanierungspflichtige angesichts hoher Behandlungskosten und leerer Kassen unter Hinweis auf "Selbstreinigungsprozesse" ihrer Verpflichtung entziehen. Andererseits sollten natürlicherweise ablaufende Schadstoffabbau- bzw. immobilisierungsprozesse sachkundig eingeschätzt und bei der Beurteilung verschiedener Sanierungsvarianten berücksichtigt werden....Mein Wunsch wäre es, ... eine Fachdiskussion zu eröffnen, bevor "Natural Attenuation" so weit unkritisch adaptiert wird, daß die Altlasten allein den "Selbstreinigungskräften der Natur" überlassen werden" [WIENBERG, 1997].

2 Vom Naturphänomenen zur Sanierungsmethode

In der Zwischenzeit wird die Diskussion nun auch bei uns geführt. Insofern kann jetzt übergegangen werden zu einer nüchteren Bestandsaufnahme. Für die Implementierung der Natural Attenuation ist es vor allem erforderlich, daß der Schritt von der Erforschung und qualitativen wie quantitativen Beschreibung der natürlichen Abbau- und Rückhalteprozesse zu einer gezielt einsetzbaren Sanierungsmethode vollzogen wird. Dazu benötigen wir:

1. Naturwissenschaftliches und technisches Grundlagenwissen zu den Prozessen,
2. eine eindeutige Begrifflichkeit und Definition,
3. eine klare Abgrenzung zu den "Eingriffsmethoden", aber Kriterien für das Erforderniß additiver oder alternativer eingreifender Verfahren,
4. Konzepte für die sinnvolle Aufeinanderfolge der Planungsschritte,
5. ein Methodenpaket für alle Planungsschritte zum Erkennen, Beobachten und Bilanzieren der natürlichen Rückhalt- und Abbauvorgänge. Arbeitsinstrumente
 - zum sicheren, quantifizierenden Erfassen der Schadstoffquelle und der Fahne,
 - Bewertungsverfahren,
 - Berechnungsgrundlagen, Prognoseverfahren, Modelle für Transport und Rückhalt,
 - Methoden der Erfolgskontrolle,
6. Regelwerke mit Handreichungen, Anweisungen, Technische Regeln bis hin zu Normen für alle Schritte der Planung und Durchführung,
7. Qualitätsmanagement für das gesamte Verfahren.

2.1 Naturwissenschaftliche und technische Grundlagen

Das zugrundeliegende Konzept der Natural Attenuation ist durchaus nicht neu. Es hat zwei verschiedene Wurzeln.

- Im umwelttechnischen Bereich sind natürlicherweise ablaufende Abbau- und Immobilisierungsprozesse die Grundlage für die biologische Abwasserbehandlung, für die Beurteilung der Leistungsfähigkeit der Vorflut von Abwässern, für die Trinkwassergewinnung durch Uferfiltration, für die früher weit verbreitete Abwasserverrieselung. Die Abfallforschung hat sich intensiv mit den Abbau- und Immobilisierungsprozessen im Deponiekörper und -untergrund beschäftigt. Auch die biologische Bodensanierung versucht, natürlicherweise ablaufende Prozesse zu nutzen und durch verschiedene Techniken zu optimieren.
- In der ökotoxikologischen Grundlagenforschung werden natürliche Schadstoffabbauprozesse seit langem untersucht. Nachdem AUDUS, 1950, den ersten Nachweis eines biochemischen Chlorpestizidabbaus geführt hat und der abbauende Organismus isoliert werden konnte, wurden zahlreiche Studien mit Chemikalien aus verschiedensten Stoffgruppen durchgeführt und grundlegende Fragen zu Abbaumechanismen und zur Abbaukinetik geklärt. Auch die Bereiche Grundwasser- und Bodenschutz haben zur intensiven Bearbeitung natürlicherweise ablaufender Schadstoffabbau- bzw. -immobilisierungsprozesse beigetragen.

Schon seit Ende der sechziger Jahre wurde versucht, das Konzept der Reaktordeponie mit dem Deponieuntergrund als erweiterten *biogeochemischen Reaktor* für die Abfallbehandlung einzusetzen und so die beobachteten biologischen Abbauprozesse und mechanischen sowie geochemischen Immobilisierungerscheinungen (z.B. die Sulfidfällung bei Schwermetallen) nutzen zu können. GOLWER und MATTHES postulierten 1969

unter Deponien eine großräumige, geschlossene biochemische Zonierung mit einer sickerwasserbeeinflussten anaeroben, einer Übergangs- und einer durch neu zutretendes sauerstoffreiches Wasser aeroben Zone. Sie konnten zeigen, daß deponiebürtige Schadstoffe im Abstrom durch biologische Abbauprozesse eliminiert wurden und prägten den Begriff von der biochemischen Selbstreinigung des Untergrundes.

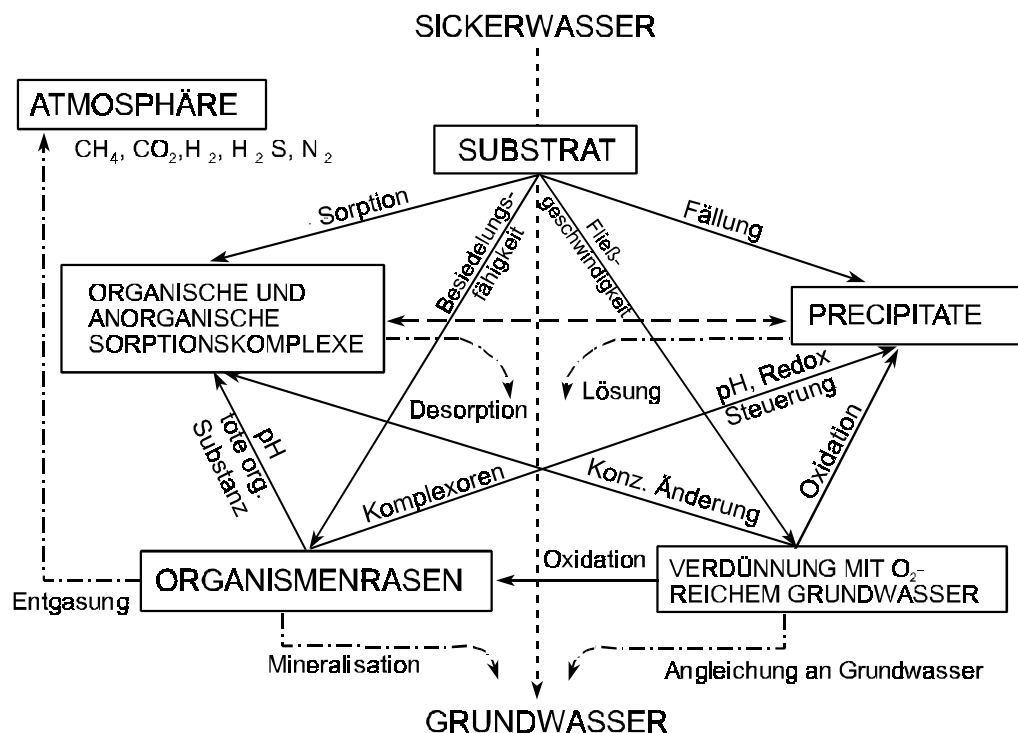


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Bildung und Umsetzung von Müllsickerwasser in der Deponie und im deponienahen Untergrund [GOETZ & WIENBERG, 1982]

Diese Ergebnisse konnten von GOETZ und WIENBERG, 1982, bestätigt werden; zur Deutung der im Untergrund ablaufenden Vorgänge bei der Bildung und Umsetzung von Sickerwasser legten sie das in Abbildung 1 wiedergegebene Schema vor. Maßgeblich für den Transport und Umsatz des Sickerwassers sind Aufbau und stoffliche Zusammensetzung des Deponiekörpers und des mineralischen Untergrundes. Der vorhandene Porenraum bestimmt

die Wasserkapazität und -bewegung sowie den Gasaustausch und stellt den Besiedlungsraum für Mikroorganismen dar. Die mineralische Zusammensetzung bewirkt die anorganische Austauschkapazität und eine gewisse Pufferwirkung gegenüber pH-Änderungen. Allerdings können hohe Salzfrachten oder starke organische Belastung die anorganische Austauschkapazität erheblich reduzieren. In einem solchen System stellen sich bezüglich Sorption/Desorption, Fällung/Lösung sowie Oxidation/Reduktion Gleichgewichte ein, die durch Nachlieferung von Sickerwasser, Verdünnung durch zufließendes Grundwasser und durch biologische Um- und Abbauvorgänge verschoben werden.

Die Tätigkeit der Mikroorganismen bewirkt in einem rückgekoppelten Prozeß Änderungen der pH-Werte und Redoxpotentiale. Organische Inhaltsstoffe werden z.T. bis zur Mineralisierung abgebaut, und Zwischenprodukte bzw. abgestorbene Organismen stellen wieder neue Komplexbildner bzw. Austauschkörper dar.

Die Beobachtungen von Golwer und Matthes haben bis heute Bestand. Insbesondere durch die Arbeiten von Christensen und seinen Mitarbeitern sind neben den qualitativen auch die quantitativen Zusammenhänge jedoch heute besser erkannt. Das Grundkonzept ist sehr einfach: demnach decken die Mikroorganismen ihren Energiebedarf durch Oxidations/Reduktionsvorgänge, oder, chemisch exakter ausgedrückt, durch Elektronentransferprozesse. Beim *oxidativen Abbau* organischer Schadstoffe werden diese aufoxidiert, sie sind Elektronendonatoren. Dabei werden als Elektronenakzeptoren räumlich bzw. zeitlich aufeinanderfolgend zunächst der Sauerstoff des Grundwassers veratmet, dann Nitrat zu elementarem Stickstoff oder weiter zu Ammonium reduziert, anschließend folgt neben der Manganreduktion die Freisetzung von gut löslichem zweiwertigen Eisen z.B. aus Eisen(III)-oxyhydroxiden. Schließlich wird Sulfat zu Sulfid reduziert und endlich wird Methan gebildet. Diese Sequenz ist bei Boden- und Grundwasserkontaminationen vielfach nachgewiesen und in Abbildung 2 schematisch dargestellt.

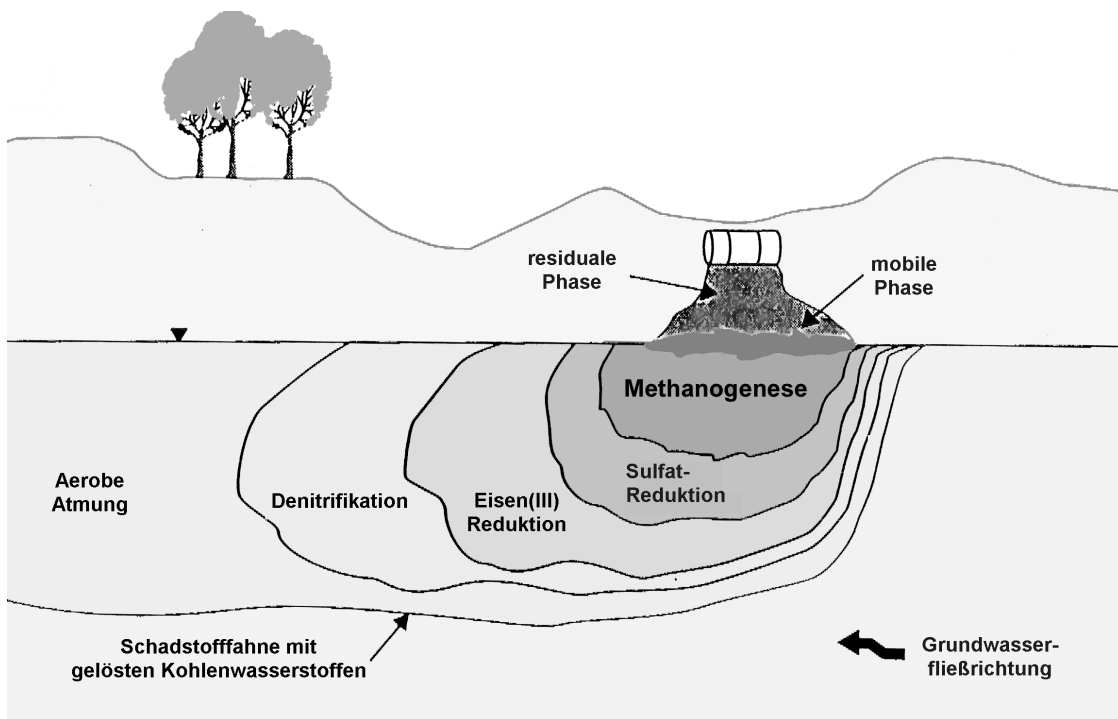


Abbildung 2: Zonierung im Untergrund bezüglich der Elektronenakzeptoren beim oxidativen Abbau einer organischen Belastung. Nach LOVLEY et al., 1994

Die Reduktionssequenz der Elektronenakzeptoren beschreibt aber nicht nur die qualitative Abfolge, sondern sie lässt sich auch als quantifizierende Bilanzrechnung stöchiometrisch umsetzen. In Tabelle 1 findet sich die einfachen stöchiometrischen Reaktionsgleichungen, in Tabelle 2 die massenmäßigen Umsetzungen an den Beispielen Benzol und Toluol. Diese einfachen Bilanzgrundlagen werden auch für komplexe mathematische, den Abbau berücksichtigende Transportmodelle verwandt.

Tabelle 1: Stöchiometrische Bilanz des oxidativen Abbaus von Kohlenwasserstoffen, hier Toluol, unter Verbrauch verschiedener Elektronenakzeptoren

Bilanzgrundlage: einfache Stöchiometrie	
Beispiel: Toluol, C ₇ H ₈	
<i>Sauerstoffreduktion</i> Toluol + 9 O ₂	• 7 CO ₂ + 4 H ₂ O
<i>Nitratreduktion</i> 5 Toluol + 36 NO ₃ ⁻ + 36 H ⁺	• 18 N ₂ + 35 CO ₂ + 38 H ₂ O
<i>Manganreduktion</i> Toluol + 18 MnO ₂ + 36 H ⁺	• 18 Mn ²⁺ + 7 CO ₂ + 22 H ₂ O
<i>Eisenreduktion</i> Toluol + 36 Fe(OH) ₃ + 72 H ⁺	• 36 Fe ²⁺ + 7 CO ₂ + 32 H ₂ O
<i>Sulfatreduktion</i> 8 Toluol + 36 SO ₄ ²⁻ + 72 H ⁺	• 36 H ₂ S + 56 CO ₂ + 32 H ₂ O
<i>Methanogenese</i> 8 Toluol + 40 H ₂ O	• 36 CH ₄ + 20 CO ₂

Tabelle 2: Massenbilanz des oxidativen Abbaus von Kohlenwasserstoffen, hier Benzol, unter Verbrauch verschiedener Elektronenakzeptoren

Bilanzgrundlage: Massenumsatz	
Beispiel: Benzol, C ₆ H ₆	
<i>Sauerstoffreduktion</i>	1 mg/l = ca. 0,3 mg/l KW
<i>Nitratreduktion</i>	1 mg/l = ca. 0,2 mg/l KW
<i>Manganreduktion</i>	11 mg/l = ca. 1,0 mg/l KW
<i>Eisenreduktion</i>	22 mg/l = ca. 1,0 mg/l KW
<i>Sulfatreduktion</i>	1 mg/l = ca. 0,2 mg/l KW
<i>Methanogenese</i>	0,8 mg/l = ca. 1,0 mg/l KW

So einfach diese Bilanzgrundlagen auch sind, so sehr muß vor einer schematischen Behandlung gewarnt werden:

1. Die Umsetzungsprozesse erfolgen nicht immer offenkundig stöchiometrisch. So findet bei einer "jungen" Kontamination zunächst ein Aufbau von Biomasse statt. Auch können Schadstoffe lediglich oxidiert und anschließend ununterscheidbar in Huminstoffe eingebunden werden. In beiden Fällen verläuft der Schadstoffabbau scheinbar unterstöchiometrisch.
2. Der Untergrund ist oft bezüglich der geochemischen Zonierung kleinräumig außerordentlich heterogen, so daß scheinbar gleichzeitig am selben Ort z.B. nitratreduzierende bis hin zu methanbildenden Bedingungen zu finden sind und die "typische" Zonierung überdeckt wird.
3. Hinzu kommen methodische Probleme. Außerordentlich schwierig kann die Bilanzierung werden, wenn Mischkontaminationen vorliegen, bei denen analytisch im Rahmen einer Zielanalyse auf "Schadstoffe" nur ein Teil der oxidierbaren Stoffe erfaßt wurde.
4. Ebenso problematisch ist die für Bilanzrechnungen ausreichend zuverlässige, repräsentative Beprobung, insbesondere angesichts heterogener Untergrundverhältnisse.

Für eine Prognose und Optimierung des Abbaus bzw. der Immobilisierung im Untergrund müßten die Milieubedingungen wie z. B. pH, Redoxpotential, Nährstoffangebot sowie die Mikroorganismenpopulation gut erfaßbar und vor allem auch regelbar sein. Die Milieubedingungen ergeben sich jedoch erst in der Rückkoppelung auf Grund der Abbauprozesse. Steuernde Eingriffe - etwa wie bei einer Kläranlage - sind im Untergrund höchstens kleinräumig und eingeschränkt möglich.

Bei hochoxidierten organischen Verbindungen, wie z.B. den hochchlorierten Lösemitteln, findet ein *reduktiver Abbau* statt, d.h. sie sind nicht wie oben Elektronendonatoren sondern -akzeptoren. Sie benötigen zusätzliche

Elektronendonatoren. Sie werden reduziert, indem sukzessive ein Chloratom nach dem anderen entfernt und durch Wasserstoff ersetzt wird. Dadurch ergibt sich z.B. für Tetrachlorethen die bekannte Abbausequenz:

Tetrachlorethen • Trichlorethen • cis-1,2-Dichlorethen • Vinylchlorid • Ethen.

Als Elektronendonatoren werden zusätzliche organische Primärsubstrate, (z.B. Essigsäure oder Ethanol, aber auch geeignete Cokontaminanten wie z.B. bei einer Mischkontamination die BTEX-Aromaten), erforderlich. Dabei haben neuere Befunde gezeigt, daß nicht diese selbst, sondern nur der von ihnen beim fermentativen Abbau freigesetzte Wasserstoff zur reduktiven Dehalogenierung als Elektronendonator beiträgt.

Eine zuverlässige Prognose oder gar eine Bilanzierung ist für den reduktiven dehalogenierenden Abbau ungleich schwieriger als für den oxidativen Abbau. Der Wasserstoff wird von den Mikroorganismen-Gesellschaften sofort weiter verbraucht und tritt trotz relativ hoher Bildungsraten nur in extrem geringen, aber für die spezifischen Redoxverhältnisse typischen Konzentrationen (im ng-Bereich) auf. Außerdem steht die reduktive Dehalogenierung in Konkurrenz zur Reaktion des Wasserstoffs mit anderen Elektronenakzeptoren wie z.B. Nitrat oder dreiwertigem Eisen. Daher ist in der Regel auch von weit unterstöchiometrischen Umsetzungen zwischen den Primärsubstraten und den hochchlorierten organischen Lösemitteln auszugehen. In der Modellierungspraxis behilft man sich daher mit empirisch ermittelten Abbaukoeffizienten.

Je höher die Substanzen chloriert sind, desto leichter lassen sie sich reduktiv dechlorieren. Vinylchlorid wird schließlich nur noch unter stark reduzierten, methanogenen Bedingungen dechloriert, oder aber es wird oxidativ abgebaut. Von den Stoffen dieser Abbauketten ist Vinylchlorid wegen seines hohen krebserzeugenden Potentials die problematischste Substanz.

Tabelle 3: Typen des mikrobiellen Abbaus von chlorierten Ethenen im Untergrund. Nach: US EPA, 1998

<i>Typ 1</i>	<i>Typ 2</i>	<i>Typ 3</i>	<i>Mischtypen</i>
Primärsubstrat ist <i>anthropogene</i> organische Substanz (z.B. BTEX oder Karbonsäuren aus Deponiesickerwasser)	dominiert in Bereichen mit relativ <i>hohen natürlichen</i> Konzentrationen biologisch verfügbarer organischer Substanz	dominiert in Bereichen mit <i>niedrigen</i> natürlichen oder anthropogenen Konzentrationen biologisch verfügbarer organischer Substanz	Eine einzelne Fahne kann mehrere Typen repräsentieren
<p>1. Reicht die Versorgung mit Elektronendonatoren aus, um eine mikrobielle Reduktion der LCKW zu erreichen? Liegen die Elektronendonatoren im Überschuß vor?</p> <p>2. Welche Rolle spielen konkurrierende Elektronenakzeptoren (z.B. Nitrat, Eisen(II), Sulfat)?</p> <p>3. Wird Vinylchlorid oxidiert oder reduziert?</p>	Die Fragen sind die gleichen wie bei Typ 1	Unter diesen Bedingungen geringer bis kein Abbau. Ausgangsprodukte (PER, TRI) dominieren, Abbauprodukte wie 1,2-cis-Dichlorethen und Vinylchlorid treten nicht oder kaum auf	<p><i>Günstig:</i> Nahe der Quelle führt Typ 1 oder Typ 2 zu einer raschen Dehalogenierung. Anschließend erfolgt bei Typ 3 ein vollständiger Abbau des verbliebenen Vinylchlorids</p> <p><i>Ungünstig:</i> Nahe der Quelle führt Typ 2 zu einer unvollständigen Dehalogenierung, so daß u.a. PER oder TRI übrigbleiben. Anschließend erfolgt bei Typ 3 kein weiterer Abbau der hochchlorierten LCKW</p>
Bei Typ 1 werden die hochchlorierten LCKW rasch und vollständig abgebaut.	In der Regel langsamerer Abbau als bei Typ 1; unter günstigen Bedingungen auch rascher Abbau	NRA-Mechanismen: Advektion, Dispersion, Sorption. Vinylchlorid kann allerdings rasch oxidiert werden.	

Im Abstrom von LCKW-Quellbereichen reichen die Redoxverhältnisse oft nicht mehr zur Dechlorierung von cis-1,2-Dichlorethen und Vinylchlorid aus, andererseits sind im weiteren Abstrom oft noch nicht wieder oxidierende

Verhältnisse eingetreten. Unter diesen Bedingungen bilden sich langausgedehnte LCKW-Fahnen. Die verschiedenen Abbautypen der LCKW sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

Die bisherigen Ausführungen sollen für zwei praktische Fragestellungen verwandt werden:

1. Woran erkennt man natürliche Abbau- und Rückhaltprozesse? Die einfachsten und grundlegenden Hinweise ergeben sich aus:

- Konzentrationsänderungen gegenüber einem internen, nicht reaktiven Standard,
- Verringerung der Konzentration von Oxidationsmitteln (Elektronenakzeptoren) in der Belastungszone,
- Erhöhung der Konzentration von Produktphasen in der Belastungszone,
- Nachweis von Zwischenabbauprodukten in der Belastungszone,
- Nachweis auf Isotopenfraktionierungseffekte in der Belastungszone.

2. Welche Basisdaten für die Chemie des Grundwassers werden benötigt?

- Die Messung der Konzentration von gelösten Oxidationsmitteln (O_2 , NO_3^- , SO_4^{2-}),
- Die Messung der Konzentration der Abbau- und Umsetzungsprodukte (CO_2 -Species, Mn^{2+} , N_2 , NH_4^+ , Fe^{2+} , S^{2-} , CH_4 , DOC und Metaboliten),
- Zuverlässige (!) Messung der Geländeparameter (pH, Eh, elektrische Leitfähigkeit, Temperatur),
- weitere Ionenkonzentrationen für die hydrogeochemischen Berechnungen (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , Cl⁻).

Es zeigt sich, daß die erforderlichen Daten im wesentlichen klassische Parameter der Grundwassergüteuntersuchung darstellen. Dennoch finden sich selten Datensätze, die vollständig genug sind, um eine Erstbeurteilung

zu ermöglichen. Erschwerend kommt hinzu, daß die Qualitätssicherung bei der Datenerhebung - insbesondere hinsichtlich der vor-Ort-Parameter - oft unzureichend ist, so daß völlig unplausible Datenkombinationen koexistieren.

Ungebräuchlich, aber von den Handelslaboren leistbar, ist die Messung des Methans. Dieser Parameter ist besonders wichtig und sollte in entsprechende Meßreihen mit einbezogen werden. Zusätzlich wünschenswert ist die Bestimmung des Wasserstoffes. Allerdings sind z.Zt. nur wenige Institute in der Lage, diesen Parameter zu beproben und zu analysieren.

2.2 Begrifflichkeit und Definition,

In der amerikanischen Diskussion werden zwei weitgehend synonym benutzte Begriffe verwandt, *Intrinsic Bioremediation* und *Natural Attenuation*. Die US EPA ergänzte letzteren zu: *Monitored Natural Attenuation*, um damit der besonderen Bedeutung des Monitorings Rechnung zu tragen. Die umfassendste Definition wurde im Rahmen der OSWER-Direktive 9200.4-17 der US EPA von 1999 gegeben:

“ Der Begriff “ Monitired Natural Attenuation” bezieht sich auf das Vertrauen auf natürliche Rückhalteprozesse (innerhalb des Zusammenhangs mit sorgfältig geplanten und überwachten Sanierungskonzepten), um standortspezifische Sanierungsziele innerhalb eines Zeitrahmens zu erreichen, der im Vergleich zu anderen, aktiveren, Methoden vertretbar ist.

Die Mechanismen umfassen eine Reihe von physikalischen, chemischen und biologischen Einzelprozesse, welche unter günstigen Bedingungen ohne menschliche Eingriffe vonstatten gehen. Es sollen Masse, Giftigkeit, Mobilität, Volumen oder Konzentrationen der Schadstoffe im Boden oder Grundwasser reduziert werden.

Diese In-Situ-Prozesse umfassen biologischen Abbau, Dispersion, Verdünnung, Sorption, Verflüchtigung und chemische oder biochemische Stabilisierung, Umwandlung und Zerstörung von Schadstoffen.“

In der bisherigen deutschen Diskussion findet die Definition der OSWER weitgehende Zustimmung - mit Ausnahme der Nennung der *Verdünnung* als NA-Mechanismus. Das Ziel der Umwelttechnik sollte es sein, Schadstoffe zu konzentrieren und einzuschließen und nicht zu verdünnen und zu verstreuen. Mit Verdünnungseffekten ist aber im Grundwasser immer zu rechnen, sei es durch zutretendes unkontaminiertes Grundwasser oder durch die Grundwasserneubildung. Insbesondere in flachen, oberflächennahen und wenig abgedeckten Grundwasserleitern kann dies bei entsprechenden Zusickerungsraten mehr oder weniger rasch zur Ausbildung stationärer Konzentrationsverhältnisse führen. Betrachtet man ausschließlich Konzentrationen an den Rändern der Schadstofffahne und nicht die Frachten, so werden Sanierungszielwerte möglicherweise allein durch Verdünnung unterschritten und eine weitergehende Sanierung würde sich in vielen Fällen erübrigen.

Die Begriffe *Intrinsic Bioremediation* und *Natural Attenuation* lassen sich nicht direkt übersetzen; dementsprechend gibt es bisher auch keine griffigen deutschen Entsprechungen sondern eine Reihe von Umschreibungen. Demnach heißt ersterer in etwa " dem System selbst innewohnende Fähigkeit der biologischen Sanierung" und letzterer " (kontrollierte) natürliche Schadstoffrückhaltung bzw. -minderung" . Eine der amerikanischen Begrifflichkeit am ehesten entsprechende Übersetzung wurde von FÖRSTNER, 1998, folgendermaßen gegeben: " Natürlicher Rückhalt und Abbau von Schadstoffen (NRA)" . Dieser Begriff

- * umfaßt sowohl *destruktive* als auch *nichtdestruktive* Prozesse,
- * läßt *Folgeprozesse* bzw. *-belastungen* zu (z.B. Sekundärbelastung durch Aufhärtung und Aufsalzung),

- * Vermeidet den euphemistischen (schönfärbenden) Begriff "Selbstreinigung".

In der Regel gehen Abbau- und Immobilisierungsprozesse nicht ohne Spuren an einem Grundwasserkörper vorbei. Selbst wenn z.B. Perchloroethen bis zu seinen Endprodukten CO_2 und Chlorid abgebaut wird, kann es in mehr oder weniger starkem Maße zu einer Aufhärtung, Aufsalzung und bei pH-sensiblen Grundwassersystemen zu einer Versauerung kommen. Weil aber diese Abbauprozesse meist nicht spurlos ablaufen, lehne ich den Begriff "Selbstreinigung" des Bodens ab. Das "Selbstreinigungsvermögen" ist eine Eigenschaft, die ein guter Grundwasserleiter zunächst kaum hat; hochqualitatives Grundwasser ist nährstoff- und keimarm, außer bei Mineralwässern gering salzhaltig und wenig hart. Ebenso ist die Besiedlungsdichte mit Mikroorganismen nur gering. Erst auf Grund der Belastung mit organischem, abbaubarem Material und mit Nährstoffen baut sich eine zahlenmäßig und leistungsmäßig erhebliche Mikroorganismenbesiedlung auf. Somit ergibt sich ein hohes "Selbstreinigungsvermögen" erst als Rückkopplungsergebnis aus der Schadstoffbelastung. Ein hohes "Selbstreinigungsvermögen" ist also durchaus keine wünschenswerte Eigenschaft eines Grundwasserleiters; wäre dies anders, so wäre, polemisch zugespitzt, der Tropfkörper eines Klärwerks das Ideal für einen Grundwasserleiter.

2.3 Abgrenzung zu den "Eingriffsmethoden" und Kriterien für das Erforderniß additiver oder alternativer eingreifender Verfahren

Bei den Mechanismen der Natural Attenuation nennt die EPA "...Einzelprozesse, welche unter günstigen Bedingungen *ohne menschliche Eingriffe* vonstatten gehen". Noch deutlicher wird dies bei einer älteren Definition des US National Research Council, 1994, ausgedrückt: "Das Konzept der Intrinsic Bioremediation als Sanierungsstrategie fußt darauf,

daß natürlicherweise ablaufende Schadstoffabbauprozesse vonstatten gehen, *ohne daß weitergehende menschliche Eingriffe vorgenommen werden* außer einer sorgfältigen Beobachtung". Damit grenzt sich Natural Attenuation eindeutig von eingreifenden Verfahren ab.

Allerdings bedeutet dies keineswegs, daß nicht ggf. additive oder alternative eingreifende Verfahren möglich oder vorzusehen sind. Dies betrifft *zum einen* die Frage der Quellensanierung. Für die US EPA, 1999, besitzt die Quellensanierung einen besonders hohen Stellenwert:

- * Die US EPA erwartet, daß eine Quellensanierung in allen Fällen geprüft wird und in den meisten - soweit sinnvoll - mit in die Sanierung einbezogen wird.
- * Dies umfaßt Entfernung, Behandlung oder Einschließung der Schadstoffquelle.
- * Die Quellenerfassung ist besonders wichtig, wenn NRA-Maßnahmen Teil des Gesamt-Sanierungskonzeptes sind.
- * Eine geeignete Quellenerfassung ist von hoher Priorität und sollte so früh wie möglich erfolgen.

In der bisherigen deutschen Diskussion wurden dazu unterschiedliche Positionen eingenommen. So wurde bei nachgewiesenermaßen stationären oder quasistationären Verhältnissen - letzteres z.B. bei hochsorptionen und extrem gering beweglichen Kontaminanten - auch die Meinung vertreten, daß in solchen Fällen eine Quellensanierung nicht erforderlich sei.

Zum zweiten sind additive oder alternative eingreifende Verfahren vorzusehen, wenn es sich zeigt, daß Natural Attenuation (allein) offensichtlich nicht dazu führen kann, daß die vorgesehenen Sanierungszielwerte einzuhalten sind. Das Vorgehen wird in Abbildung 3 aus einer Anweisung der US EPA, 1998, zum Vorgehen bei der Sanierung LCKW-kontaminierter Standorte deutlich, auf welches im Rahmen des folgenden Kapitels näher eingegangen wird.

2.4 Aufeinanderfolge der Planungsschritte

Neben dem Zusammenhang zwischen Natural Attenuation und alternativen oder additiven eingreifenden Sanierungsmethoden zeigt das Fließdiagramm der US EPA, Abbildung 3, die Aufeinanderfolge der verschiedenen Planungsschritte. Demnach wird ein folgendermaßen geordnetes Vorgehen erwartet:

1. *Vorplanung*. In diesem Schritt sind grundsätzliche Entscheidungen zu treffen, ob die Planung einer Natural-Attenuation-Maßnahme allein oder zusammen mit additiven konventionellen Verfahren in Betracht kommt.
 - 1.1 Zunächst sind die vorhandenen Daten zu sichten und es ist ein erstes vorläufiges konzeptionelles Modell zu erstellen. Gibt es überhaupt Hinweise auf biochemische Abbauprozesse? Reicht die Datenlage für plausible Hinweise aus oder können zusätzlich die erforderlichen Daten erhoben werden?
Stellt es sich heraus, daß auch bei ausreichender Datenlage bereits jetzt kein plausibler Hinweis auf biochemische Abbauprozesse zu finden ist, muß zu alternativen, eingreifenden Verfahren übergegangen werden.
 - 1.2 Anderenfalls wird das vorhandene Material geordnet und bewertet. Wo findet sich die Schadstoffquelle? Welche möglichen Expositionspfade sind zu beachten? Findet sich bei organischen Fluiden eine freie, fließfähige oder residuale Phase?
 - 1.3 Anschließend findet die erste rechnerische Modellierung statt. Das Ziel dieser Modellierung ist es, lediglich *Hinweise* zu geben und eine erste *Plausibilitätsprüfung* zu leisten. Dementsprechend wird mit einfachen, analytischen Modellen wie z.B. dem Modell BIOSCREEN, gearbeitet. Benötigt werden z.B. Daten zum generellen Aufbau des Untergrundes, zum Grundwassergefälle und zur Abstandsgeschwindigkeit, Schätzdaten zur Porosität des Gesteins und zur Disper-

sivität sowie (Literatur)-Daten zu den wahrscheinlichen Abbauraten unter den zu erwartenden geochemischen Bedingungen.

- 1.4 Den Abschluß des Vorscreenings bilden zwei Entscheidungsblöcke. Im ersten sind zwei Hauptfragen zu stellen: Hat sich die Schadstoff-fahne in der Zeit seit der Emission der Schadstoffe wesentlich weniger ausgebreitet, als es allein auf Grund der bekannten hydraulischer Daten zu erwarten wäre? Und: Ist es wahrscheinlich, daß die Schadstoffe derart abgebaut und/oder zurückgehalten werden, daß die Sanierungszielwerte in Zeiten, die im Vergleich zu anderen Methoden vertretbar sind, erreicht werden? Werden beide Fragen bejaht, kann unter 1.5 fortgefahren werden. Ergibt das Vorscreening andererseits keine genügende Wahrscheinlichkeit für eine erfolgreiche Natural Attenuation-Maßnahme, muß zu *alternativen*, eingreifenden Verfahren übergegangen werden.
 - 1.5 Im zweiten Entscheidungsblock wird abgefragt, ob eine NA-Maßnahme *allein* oder nur unter Zuhilfenahme *additiver* eingreifender Methoden erfolgreich sein kann. Ist letzteres der Fall, ist nach oder während der Umsetzung dieser zusätzlichen Maßnahmen zu prüfen, wie weit nunmehr als Ergänzung des gewählten konventionellen Verfahrens Natural Attenuation in Frage kommt. Durch dieses Vorgehen wird das Fließbild symmetrisch, wobei die eingreifenden Verfahren im Zentrum stehen und von den NA-Anteilen eingerahmt werden.
2. Die eigentliche *Planungsphase*. In diesem Schritt wird die Datendichte und Planungstiefe so weit verdichtet, daß belastbare Prognosen - nicht nur Plausibilitätsangaben - zum Abbauverhalten der Schadstoffe vorgelegt werden können und das Monitoring als eigentliches Herzstück der Methode geplant werden kann.

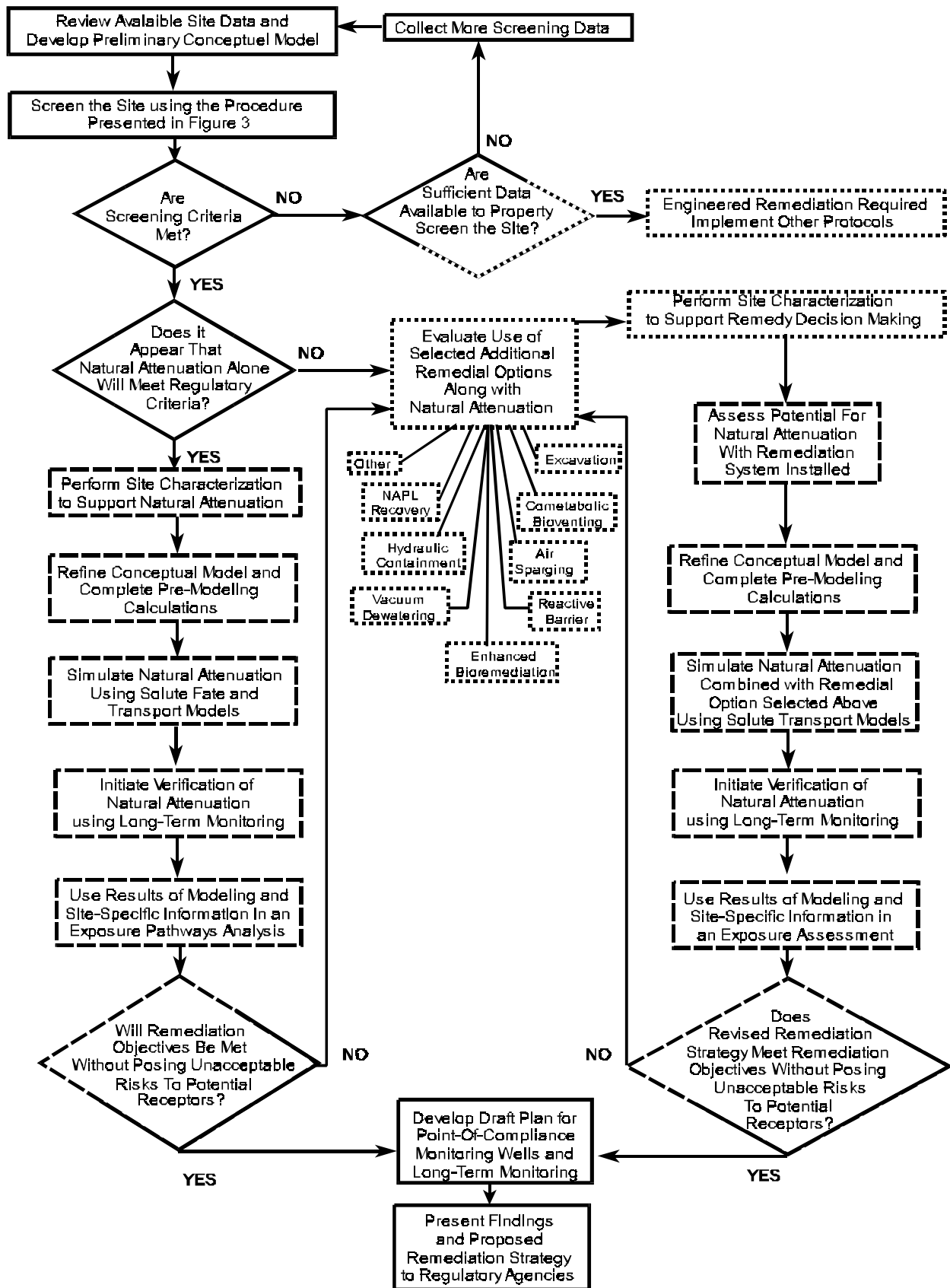


Abbildung 3: Fließbild der US EPA zum planerischen Vorgehen bei Monitored Natural Attenuation Verfahren.

- 2.1 Der Standort wird im Sinne einer Sanierungsuntersuchung vertieft erkundet. Bisher als Schätzdaten eingesetzte Parameter wie z.B. zur Durchlässigkeit, Porosität, Dispersivität, werden nacherhoben. Boden und Aquifermatrix werden insbesondere auf ihre Retardationseigenschaften wie z.B. den organischen Kohlenstoffgehalt untersucht. Die geochemischen Grundwasserdaten werden mit dem Ziel einer Bilanzierung, zumindest aber einer qualitativen Prozeßbeschreibung vervollständigt. In diesem Zusammenhang werden u.a. auch Daten zum Methangehalt und zum Wasserstoffgehalt des Grundwassers im Belastungsgebiet benötigt.
- 2.2 Im Folgeschritt werden die Daten für eine Modellierung aufbereitet. Zunächst erfolgt eine Berechnung der einzelnen Parameter (Sorption, Retardation, Verteilung organische Phase/Wasser, Grundwasserfließgeschwindigkeiten, biologische Abbauraten). Anschließend erfolgt eine rechnerische Modellierung des reaktiven Schadstofftransportes, wobei die Schadstoffverteilung im Raum und in der Zeit prognostiziert wird. Beispiele für derartige Modelle sind BIOPLUME III, BIOREDOX, das Visualisierungsinstrument SEQUENCE oder das auf MODFLOW aufgesetzte RT3D¹. Außer der Schadstofftransportmodellierung wird eine Expositionsabschätzung für potentiell betroffene Rezeptoren erforderlich.
- 2.3 Das Langzeit-Monitoring wird einerseits auf der Basis dieser Untersuchungen und Berechnungen konzipiert, andererseits werden die Prognosen und insbesondere die Expositionsabschätzungen mit (Teilen) des installierten Langzeitmonitorings verifiziert.
- 2.4 Ähnlich wie das Vorscreening wird auch die Planung mit einem Entscheidungsblock abgeschlossen. Werden die Sanierungsziele erreicht, ohne daß unakzeptierbare Risiken für potentielle Rezeptoren entstehen? Ist die nicht zu erreichen, werden - wie oben - *additive* konventionelle eingreifende Verfahren erforderlich.

¹ Links zum kostenlosen Bezug der genannten Programme finden sich unter <http://i.am/wienberg>

3. *Durchführung.* Abschließend werden die bisherigen Ergebnisse der Planung mit den zuständigen Behörden abgestimmt, die Überwachungsmeßstellen außerhalb des Belastungsgebietes eingerichtet, ggf. die Überwachungsmeßstellen im Kontaminationsbereich vervollständigt und das eigentliche Langzeitmonitoring durchgeführt.

2.5 Methodenpaket für alle Planungsschritte

Das Ablaufschema der US EPA zeigt ein hohes Maß an durchdachter und organisierter Planung; es läßt sich in Einzelbereiche zergliedern, die dem planenden Ingenieur bzw. Naturwissenschaftler vertraut sind. Es scheint mir gerechtfertigt, auf dieser Grundlage Monitored Natural Attenuation als eine *Sanierungsmethode*, also nicht nur als Naturphänomen oder allenfalls als vertieftes Monitoring zu betrachten. Allerdings müssen dazu auch die entsprechenden Werkzeuge bereit stehen bzw. entwickelt werden. Dies betrifft vor allem ein Methodenpaket für alle Planungsschritte zum Erkennen, Beobachten und Bilanzieren der natürlichen Rückhalt- und Abbauvorgänge.

Arbeitsinstrumente werden erforderlich zum sicheren, quantifizierenden Erfassen der Schadstoffquelle und der Fahne. Für die Befunde brauchen wir Bewertungsverfahren, Berechnungsgrundlagen, Prognoseverfahren, Modelle für Transport und Rückhalt und Methoden der Erfolgskontrolle.

Die wichtigsten nächsten Ziele sind die Entwicklung von Regelwerke mit Handreichungen, Anweisungen, Technische Regeln bis hin zu Normen für alle Schritte der Planung und Durchführung und ein Qualitätsmanagement für das gesamte Verfahren.

3 Konsequenzen und Fazit

Im folgenden will ich die Konsequenzen mit Hilfe einiger Merksätze zusammenfassen:

- 1 Es sollte nicht zulässig sein, reine Verdünnungsprozesse zur Handlungsgrundlage von Intrinsic Remediation-Maßnahmen zu machen.
- 2 Soweit Immobilisierung als Einzelprozeß bestimmend ist, muß die Langzeitwirkung sicher bewiesen sein.
- 3 Bei biochemischen Abbauprozessen muß die Wirksamkeit unter allen vorherrschenden Bedingungen, insbesondere den jeweiligen Redoxverhältnissen, belegt sein.
- 4 Die Übertragbarkeit von Labordaten auf die Natur ist mit scale-up-Versuchen zu belegen.
- 5 Es ist ein so umfassendes Monitoring-Programm zu installieren, daß ein unerkanntes Versagen dieses Konzeptes ausgeschlossen ist.
- 6 Geologische und hydrogeologische Bedingungen im Sanierungsbereich müssen gut bekannt sein und ein effektives Monitoring erlauben.
- 7 Durch entsprechende Analytik ist sicher zu stellen, daß möglicherweise entstehende Reaktionsprodukte zuverlässig erkannt und quantifiziert werden.
- 8 Die Wirksamkeit ist mit Hilfe vollständiger Bilanzen zu belegen.
- 9 Es sollten Handlungskonzepte auch für konventionelle Maßnahmen für den Fall bereit stehen und vereinbart werden, daß die Ziele einer Intrinsic Remediation-Maßnahme *nicht* erreicht werden.
- 10 So lange die Abbauprozesse nicht so weit abgeschlossen sind, daß die Ziele erreicht werden, darf ein Monitoring Programm nicht beendet werden.

Intrinsic Remediation-Maßnahmen sollten nicht erfolgen bei besonders sensiblen Nutzungen insbesondere in Kombination mit besonders toxischen

Kontaminanten. Sie schließen sich auch aus, wenn schwierige Untergrundverhältnisse eine zuverlässige Kontrolle verhindern.

Als *Fazit* kann festgehalten werden: Schadstoffabbau- und Rückhalteprozesse laufen im Untergrund ab und können genutzt werden, aber zu ihrer Einschätzung ist ein sehr hohes Maß an Spezialkenntnissen erforderlich. Der Aufwand und die Zeitdauer für das erforderliche Monitoring kann unter ungünstigen Fällen dabei sehr hoch werden, was auch bei Kostenabwägungen berücksichtigt werden muß. Je weniger wir an aktiver Sanierungstechnik einsetzen wollen, desto mehr müssen wir in der Lage sein, zuverlässige Prognosen über die ablaufenden Prozesse abzugeben. Und schließlich: Je mehr wir diese Konzepte anwenden wollen desto mehr müssen wir unsere Kenntnisse über natürlicherweise im Untergrund ablaufende Abbau- und Immobilisierungsprozesse vertiefen. Hier sind im besonderen Maße die Institutionen der Umweltforschung und der Forschungsförderung gefragt.

4 Literatur

- AUDUS, L.J.: Biological detoxification in soil: isolation of an efficient organism. *Nature* (London) 166, 356 (1950)
- FÖRSTNER, U., THÖMING, J.: Altlasten einfach wegrechnen? *Bodenschutz* 2(3), 72-73 (1997)
- GOLWER, A., MATTHES, G.: Qualitative Beeinträchtigung des Grundwasserdargebotes durch Abfallstoffe. *Deutsche Gewässerkundliche Mitteilungen, Sonderheft 1969: 51-55* (1969)
- GOETZ, D., WIENBERG, R.: Biologische Steuerung des Abbaus von Müllsickerwasser. *Mitteilgn. Dtsch. Bodenkdl. Gesellsch.*, 33, 137-148 (1982)
- LOVLEY, D.R., WOODWARD, J.C., CHAPPELLE, F.H.: Use of dissolved H₂ concentrations to determine distribution of microbially catalyzed redox reactions in anoxic groundwater. *Environ. Sci. Technol.* 28, 1205-1210 (1994)

- NYER, E.K., DUFFIN, M.E.: The state of the art of bioremediation. *Groundwater Monitoring and Remediation* 17(2), 64-69 (1997)
- ROHNS, H.P.: Natural attenuation oder natural attenuation? *TerraTech* 4/97, 21-22 (1997)
- US EPA: Technical protocol for evaluating Natural Attenuation of chlorinated solvents in ground water. EPA/600/R-98/128, 52 S. (1998)
- US EPA: Use of monitored natural attenuation at superfund RCRA corrective action, and underground storage tank sites.- OSWER-Direktive 9200.4-17, 32 S. (1999)
- US National Research Council (NRC): Alternatives for ground water cleanup. Nat. Acad. Press, Washington, 315 S. (1994)
- WIENBERG, R.: Nichtstun und beobachten - eine alternative Grundwasser-Sanierungstechnik? Editorial, *Altlasten-Spektrum* 6 (2), 55-56 (1997)
- WIENBERG, R.: Zum Konzept des qualifizierten Nichtstun bei der Altlastensanierung. *UTECH* 1998, Sanierung kontaminierter Standorte und Bodenschutz, 173-180 (1998).

Adresse des Autors

Reinhard Wienberg

Umwelttechnisches Büro und Labor Dr. R. Wienberg

Gotenstraße 4

20097 Hamburg