



Universität Stuttgart
Institut für Wasserbau

**Lehrstuhl für
Hydraulik und Grundwasser**
Prof. Dr. h.c. Helmut Kobus,
Ph.D.

Pfaffenwaldring 61
70569 Stuttgart
Telefon: (0711) 6 85 - 47 14/15
Telefax: (0711) 6 85 - 70 20

Wissenschaftlicher Bericht
Nr. 00/07 (HG 274)

**Abschlussbericht
„Parameteridentifikation
in Mehrphasensystemen“**

Förderung: Deutsche Forschungsgemeinschaft
Vorhaben: Ko 528/16-1
Bewilligung: 30.01.1997
Berichtszeitraum: 01.02.1997 - 31.12.1999
Antragsteller: Prof. Dr. h.c. H. Kobus, Ph.D.
J. Braun, Ph.D.
Sachbearbeiter: Jane Allan, Ph.D.

31. Mai 2000

Prof. Dr. h.c. H. Kobus, Ph.D.

J. Braun, Ph.D.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	
1.1	Gefahrenpotential für Grundwasser	4
1.2	Parametrisierung und Skaling	5
1.3	Untersuchung von Wasser-LNAPL-Luft-Systemen	6
1.4	Untersuchungen von Wasser-DNAPL-Luft-Systemen	7
1.5	Analytische Lösungen und numerische Modelle zur Beschreibung von DNAPL im Boden	8
1.6	Einfluss von Heterogenität und Instabilitäten auf die DNAPL-Ausbreitung	9
2	Experimentelle Methoden	
2.1	Versuchsaufbau	12
2.1.1	Verwendete Sande und heterogene Strukturen der Packungen	12
2.2	Sättigungsmessung mit dem Gamma-System	16
2.3	TCE- und Wasserdruckmessungen	16
2.4	Experimenteller Ablauf	18
2.5	Numerische Methoden	19
2.6	Momenten-Analyse der horizontalen Ausbreitung und der vertikalen TCE-Bewegung	20
3	Ergebnisse und Diskussion	
3.1	Homogene Packung	21
3.1.1	Visuelle Beschreibung der TCE-Verteilung: „Fingering“ und „Pooling“	21
3.1.2	Ergebnisse der Druckmessung	22
3.1.3	Numerische Simulationen	24
3.1.4	Momentenanalyse der horizontalen und vertikalen Ausbreitung	24
3.2	Heterogene Befüllung	26
3.2.1	Visuelle Beschreibung der TCE-Migration: „Fingering“ und „Channeling“	26
3.2.2	Sättigungsverteilung	29
3.2.3	Druckentwicklung in den heterogenen Befüllungen	33
3.2.4	Momentenanalyse der horizontalen und vertikalen TCE-Verteilung	38
3.3	Numerische Simulation unter Berücksichtigung einer „Finger“-Porosität	39
4	Zusammenfassung	45
	Literaturverzeichnis	48

Liste der Abbildungen

Abbildung 1:	Experimentelle Rinne	13
Abbildung 2:	Befüllstrukturen	15
Abbildung 3:	a) Tensiometer (Detailbild) b) Schnitt durch Rinne mit Tensiometern, Druckaufnehmern, etc.	18
Abbildung 4:	Gemessene Kapillardrücke als Funktion der Zeit im homogenen Aquifer	23
Abbildung 5:	Berechnete Kapillardrücke als Funktion der Zeit im homogenen Aquifer	25
Abbildung 6:	Gemessene Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit	27
Abbildung 7:	Berechnete Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit	30
Abbildung 8:	Sättigungsverteilung nach 10 Stunden	31
Abbildung 9:	Sättigungsprofil nach 10 Stunden durch die Mittelachse der Rinne	32
Abbildung 10:	Gemessene Kapillardrücke als Funktion der Zeit im heterogenen (10a) Aquifer	35
Abbildung 11:	Berechnete Kapillardrücke als Funktion der Zeit im heterogenen (10a) Aquifer	36
Abbildung 12:	a) Erstes Moment der nichtbenetzenden Phase b) Zweites Moment der nichtbenetzenden Phase	37
Abbildung 13:	Mit dem Fingerporositätsmodell berechnete Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit	40
Abbildung 14:	Erstes Moment der nichtbenetzenden Phase als Funktion des injizierten Volumens	41
Abbildung 15:	Zweites Moment der nichtbenetzenden Phase als Funktion des injizierten Volumens	42
Abbildung 16:	Mit dem Fingerporositätsmodell berechnete Sättigungsverteilung nach Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts	43
Abbildung 17:	Sättigungsprofil durch die Mittelachse der Rinne (10b-Befüllung) nach Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts	44

Liste der Tabellen

Tabelle 1:	Materialeigenschaften der Sande	14
Tabelle 2:	Brooks-Corey-Parameter für ein TCE-Wasser-System	14
Tabelle 3:	Eingabeparameter für die numerische Modellierung	18

1 Einleitung

1.1 Gefahrenpotential für Grundwasser

Viele Grundwasservorkommen in Deutschland und auch weltweit sind durch schlecht wasserlösliche Kohlenwasserstoffe (NAPL, engl. für non-aqueous phase liquid) verunreinigt. Diese anthropogen verursachten Grundwasserverunreinigungen werden hauptsächlich von industriellen organischen Verbindungen gebildet, die sich nach ihrer chemischen Struktur in unterschiedliche Schadstoffgruppen einteilen lassen: aliphate (AKW/MKW), aromatische (BTEX, PAK) und chlorierte (LHKW/CKW, AOX) Kohlenwasserstoffe.

Eine herausragende Bedeutung bei Grundwasserverunreinigungen besitzen aufgrund ihrer physikalischen und chemischen Eigenschaften die chlorierten Kohlenwasserstoffe (CKW). Diese Stoffe finden vor allem als Lösemittel in der metallverarbeitenden Industrie und in chemischen Reinigungen Verwendung. In den Untergrund, wo sie sowohl den Boden als auch das Grundwasser verunreinigen, sind sie durch unsachgemäßen Umgang sowie durch Versickerung aus undichten Kanalstrecken gelangt. Bereits Anfang der 80er Jahre wurden im Grundwasserabstrom von CKW-Schadensfällen kilometerlange CKW-Fahnen festgestellt, die in vielen Fällen stromabwärts liegende Wasserversorgungen beeinträchtigten (Kobus, 1988). Viele bereits vor Jahren begonnene Sanierungen sind bis heute nicht beendet.

Obwohl Großmann und Ruske (1997) zwar nur für 11% der Grundwasserschäden CKW als Verursacher ermitteln, identifiziert die LfU Baden-Württemberg (1997) für die im Bundesland laufenden Sanierungsfälle CKW als die wichtigste Schadstoffgruppe. Dies liegt vor allem daran, dass deren Benetzungseigenschaften und hohe Dichte (ca. 1,5-fache Dichte von Wasser) ihre Ausbreitung in den tieferen Untergrund und auch in schlechter durchlässige Bereiche als fluide Phase ermöglichen. Auf diese Weise bilden sich Schadensherde weit unterhalb des Grundwasserspiegels, und es entsteht eine Gefährdung tieferer, unbelasteter Aquifere, die normalerweise als hydraulisch getrennt betrachtet werden.

Einerseits führen ihre für organische Verbindungen relativ hohen Löslichkeiten von teilweise über 1000 mg/l nicht selten zu Konzentrationen im Grundwasser, die um viele Größenordnungen (10000-fache) über dem für Trinkwasser gültigen Grenzwert liegen können. Andererseits dauert es trotz der hohen Löslichkeit Jahrzehnte bis Jahrhunderte, um den Schadstoff hydraulisch zu lösen und zu entfernen. Sorption an das Korngerüst oder mikrobieller Abbau werden nur in Bereichen angetroffen, in denen der Boden einen hohen Gehalt an

organischem Kohlenstoff aufweist. Darüber hinaus ist selbst ihr mikrobieller Abbau kritisch zu werten, da als Endprodukt hochgiftiges Vinylchlorid gebildet werden kann.

Diese Eigenschaften machen die chlorierten Kohlenwasserstoffe zu einer der mobilsten Schadstoffgruppen mit einer hohen Toxizität des Effluents und einer potentiellen Verweildauer von Jahrzehnten bis Jahrhunderten.

Voraussetzung für die Reinigung des Aquifers nach einem Ölunfall oder nach Leckagen z.B. aus Tanks, Leitungen oder Deponien, ist die Kenntnis der physikalischen Beziehungen, die die Verteilung und Bewegung von hydrophoben Fluiden im Untergrund bestimmen. Da die NAPL nur sehr begrenzt in Wasser löslich sind, bewegen sie sich als separate Phase. Sie werden generell in zwei Klassen eingeteilt. Stoffe, die leichter sind als Wasser, wie zum Beispiel Benzin oder Diesel, werden als LNAPL (light NAPL) bezeichnet. Stoffe, deren Dichte größer als die des Wassers ist, wie zum Beispiel CKW, werden als DNAPL (dense NAPL) bezeichnet. Während die Vertikalbewegung von LNAPL im Boden durch den Grundwasserspiegel limitiert ist, dringen DNAPL aufgrund ihrer großen Dichte und ihrer oft sehr geringen Viskosität bis tief in die gesättigte Zone ein. Abhängig von der Dauer und Menge der Infiltration können sich DNAPL bis zum Erreichen von sehr geringdurchlässigen Schichten (Aquitarden) im Boden verteilen.

Wenn ein NAPL durch den Untergrund fließt, bleibt ein Teil davon als Residualsättigung, das heißt als kapillar gebundene Phase, zurück. Ein weiterer Teil verbreitet sich als zusammenhängende Phase (pooling) im Untergrund bis Heterogenitäten, Grundwassergradienten oder -spiegel die Bewegung stoppen. Die Residualsättigung ebenso wie die zusammenhängende Phase löst sich sehr langsam in das umgebende Porenwasser und wird so zu einem langanhaltenden Kontaminationsherd.

1.2 Parametrisierung und Skaling

Ein Hauptproblem bei der Untersuchung von NAPL und Wasser in porösen Medien ist, dass mit makroskopischen (repräsentatives Elementarvolumen, REV) Parametern Vorgänge beschrieben werden, die auf mikroskaligen (Porenmaßstab) physikalischen Wechselwirkungen beruhen. Während einerseits die Beschreibung der Vorgänge im Boden durch diese Parametrisierung erst möglich wird, verlieren die angewandten Gleichungen andererseits (durch dieses "up-scaling") ihre physikalische Grundlage. Detailinformation geht verloren, bzw. wird überhaupt nicht gesammelt, und effektive Parameter (lumped parameters) werden verwendet, um Vorgänge zu beschreiben. Ein sehr gutes Beispiel dafür ist der Wasserdurchlässigkeitsbeiwert (k_f), der sich aus Eigenschaften der Flüssigkeit (Viskosität) und Eigenschaften des porösen Mediums (Permeabilität) zusammensetzt.

Aufbauend auf die Parameterbestimmungen werden empirische Gleichungen (konstitutive Beziehungen) entwickelt, die die gemessenen Parameter in Relation zueinander setzen. Die Entwicklung dieser Gleichungen setzt jedoch eine Interpretation der gesammelten Daten voraus, was wiederum zu einem Verlust von Detailinformationen führt.

Es wird versucht, Strömungsvorgänge mittels mikroskaliger Parameter zu erklären (Dullien, 1992; Wilson, 1996). Diese Mikromodelle, die Strömungsvorgänge in genau definierten Poren beschreiben, sind durch die natürliche Heterogenität des Untergrundes sehr limitiert. Die Beschreibung von Strömungsvorgängen in natürlichen Aquiferen ist daher weiterhin auf die Entwicklung neuer und auf die Anpassung bestehender konstitutiver Beziehungen angewiesen.

1.3 Untersuchung von Wasser-LNAPL-Luft-Systemen

Die Untersuchung des Verhaltens von NAPL im Untergrund war in den zurückliegenden Jahren Thema zahlreicher theoretischer, experimenteller und numerischer Arbeiten. Während das Mehrphasenströmungsverhalten (z.B. von Luft und Wasser) Boden hauptsächlich von Bodenphysikern beschrieben wurde, befaßten sich die Erdölingenieure mit dem Strömungsverhalten von Öl in wassergesättigten, porösen Medien. Untersuchungen über das Strömungsverhalten von DNAPL finden erst seit Ende der siebziger Jahre statt.

Die Bestimmung von Parametern und die mathematische Beschreibung des Strömungsverhaltens von NAPL im Untergrund wurden bis zur Mitte dieses Jahrhunderts hauptsächlich von Erdölingenieuren und Bodenphysikern betrieben. Leverett (1941) erkannte die Wichtigkeit der Kapillarität bei der Beschreibung von Mehrphasenströmungen (Öl in einer wassergesättigten Formation). Aufbauend auf seine Arbeit wurden von Brooks und Corey (1964) und von van Genuchten (1980) Beziehungen zwischen der Sättigung und dem Kapillardruck aufgestellt. Obwohl diese Gleichungen ursprünglich zur Beschreibung von Wasser und Luft im Boden hergeleitet wurden, werden sie immer öfter zur Beschreibung von Wasser-NAPL, NAPL-Luft und sogar Wasser-NAPL-Luft Systemen verwendet.

Experimentelle und theoretische Arbeiten der letzten Jahre haben viel zum Verständnis von Mehrphasenströmungen in homogenen Medien beigetragen. Parametrisierte Ansätze zur Beschreibung der relativen Permeabilität als Funktion der Wassersättigung wurden z.B. von Burdine (1953), Rogers und Klute (1971), Mualem (1976), und van Genuchten (1980) entwickelt. Lenhard und Parker (1987) benutzten Leverett's (1941) Skalierungsquotienten, um aus den Gleichungen von Brooks und Corey (1964) und van Genuchten (1980) Kapillardrucksättigungsbeziehungen für drei Phasen (Wasser-LNAPL-Luft) herzuleiten. In Laborexperimenten gelang es ihnen, Lenhard, et al, (1988), und Host-Madsen und Jensen (1992), diese Beziehungen für Drainagebedingungen zu verifizieren.

Der Einfluß der Hysterese auf die Bewegung von NAPL oder Luft im wassergesättigten Boden wurde von mehreren Forschern sowohl experimentell als auch numerisch untersucht (Kaluarachchi und Parker, 1987; Cary, et al, 1989; Lenhard, et al, 1993; White und Lenhard, 1993, Schiegg, 1980). Ihre Ergebnisse belegten den immensen Einfluß der Hysterese auf das Verhalten von dynamischen Mehrphasenströmungen im Boden. Effekte von residualer Luft- und NAPL-Sättigung auf Schwankungen des Grundwasserspiegels wurden von Lenhard, et al, (1993), beschrieben. Den Einfluß von residualer Luft auf die Bewegung von NAPL untersuchten van Geel und Sykes (1994) mittels physikalischer und numerischer Modelle.

1.4 Untersuchungen von Wasser-DNAPL-Lust-Systemen

Alle bisher beschriebenen Untersuchungen wurden zur Beschreibung der Fluide Wasser, Luft und LNAPL durchgeführt. Bahnbrechende Arbeiten zur qualitativen Untersuchung der Bewegung von DNAPL im Untergrund wurden Ende der siebziger Jahre (Schwille, 1984, 1988) in Deutschland durchgeführt. Obwohl die meisten CKW auch in geringen Dosierungen hochgiftig sind, war die Untersuchung ihres Strömungsverhaltens im Untergrund lange vernachlässigt worden. DNAPL sind schwerer als Wasser und meist sehr mobil. Dadurch besteht ein hohes Kontaminationspotential für ungesättigte und auch gesättigte Aquiferbereiche. Ein gutes Verständnis des Strömungsverhaltens von DNAPL im Boden ist besonders zur Schadensbegrenzung nach einem Unfall und zur Entwicklung von In-Situ- Sanierungsmethoden dringend notwendig. Experimentell wurde gezeigt, dass die Verteilung von DNAPL im Boden sehr vom Aufbau des Untergrundes (Heterogenität) abhängig ist.

Kueper et al. (1989) untersuchten die Infiltration von DNAPL in einem zweidimensionalen Versuchsstand, in den eine heterogene Blockstruktur eingebaut war. Sie zeigten, dass sich DNAPL im Boden vertikal nach unten bewegt. Beim Erreichen von Schichten mit geringerer Durchlässigkeit bewegt sich der DNAPL lateral weiter, solange der Kapillardruck an der Schichtgrenze kleiner als der Eindringdruck des DNAPL in die wenigerdurchlässige Schicht ist, das heißt, solange der Kapillardruck nicht ausreicht, den DNAPL in die weniger durchlässigen Schichten einzudringen zu lassen. Sie zeigten somit, dass die Bewegung von DNAPL im Boden sehr stark von Heterogenitäten abhängig ist. Trotz der rein qualitativen Betrachtung gelang es Kueper und Frind (1991) die DNAPL-Sättigung dieses Experimentes zu modellieren.

Illangesakare et al (1995) infiltrierten DNAPL in einen zweidimensionalen Versuchsstand, der mit Sand heterogen gefüllt war. Ziel von Illangesakare's Gruppe war es, Information zur Validierung von numerischen Modellen zu erhalten und weniger das Verhalten von DNAPL im Boden zu untersuchen. In ihrer Untersuchung wurde die Verteilung der DNAPL-Front visuell verfolgt und die DNAPL-Sättigung mittels Gammamessung bestimmt. Kapillardrücke wurden nicht ermittelt und deshalb können, basierend auf diese Daten, keine konstitutiven Beziehungen hergeleitet werden.

Großskalige DNAPL-Experimente wurden im Borden Aquifer in Canada vom Waterloo Centre for Groundwater Research durchgeführt. Es wurde gezeigt, dass das Strömungsverhalten und die Verteilung von DNAPL im Boden von Heterogenitäten im Mikromaßstab, von der Versickerungsdauer und vom infiltrierten Volumen abhängt (Poulsen und Kueper, 1992; Kueper, et al, 1993; Brewster et al, 1995). Da es nicht möglich ist, die heterogene Struktur eines natürlichen Aquifers zu bestimmen oder Druck- und Sättigungsverteilungen im natürlichen Grundwasserleiter während der Infiltration zu messen, ist die Auswertung von Feldexperimenten auf die Messung der DNAPL-Verteilung nach Beendigung des Experiments und die Bestimmung des gelösten NAPL in der Fahne angewiesen. Feldexperimente werden daher weniger zur genauen Beschreibung von Infiltrationsprozessen, sondern mehr zur Modellierung und Beschreibung von Transportvorgängen durchgeführt.

Trotz intensiver Literaturstudien ist den Antragstellern keine Untersuchung von DNAPL-Infiltration in einen heterogenen Aquifer bekannt, bei der sämtliche zur Beschreibung der DNAPL-Verteilung notwendigen Parameter (Druck von Wasser und DNAPL, Sättigung von Wasser und DNAPL) gemessen und beschrieben wurden.

1.5 Analytische Lösungen und numerische Modelle zur Beschreibung von DNAPL im Boden

Analytische Lösungen (McWhorter und Sunada, 1990) sowie numerische Modelle (Abriola und Pinder, 1985; Faust et al., 1989; Kaluarachchi und Parker, 1989; Helmig, 1993) zur Beschreibung von Mehrphasenvorgängen im Boden beruhen auf diesen Parametern und konstitutiven Beziehungen. Die Qualität einer Voraussage hängt somit sehr stark von der Qualität der angenommenen konstitutiven Beziehungen ab. Wie in den vorhergehenden Abschnitten ausgeführt, wurden diese Beziehungen für ganz bestimmte Anwendungszwecke (Infiltration von Wasser in trockene Böden, Strömungsvorgänge von Öl im Untergrund) hergeleitet. In vielen Arbeiten wird jedoch angenommen, dass diese Beziehungen Allgemeingültigkeit haben. Das Verhalten von DNAPL in porösen Medien wird somit mit Gleichungen simuliert, die eigentlich für die Modellierung von Luft oder LNAPL im Boden konzipiert wurden.

Croisé, et al (1995) führten numerische Simulationen von DNAPL-Infiltrationsvorgängen in wassergesättigten, heterogenen Grundwasserleitern durch. Zur Beschreibung der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung wurde einerseits Brooks-Corey's (1964) Ansatz und andererseits der von van Genuchten (1980) verwendet. Des weiteren verwendeten sie verschiedene numerische Techniken, um die DNAPL-Bewegung im Bereich der Schichtgrenzen zu simulieren. Die numerisch vorhergesagte Verteilung des DNAPL im Boden zeigte eine starke Abhängigkeit von den verwendeten konstitutiven Beziehungen. Aussagen, welche Kapillardrucksättigungsbeziehung, bzw. welcher numerische Ansatz das Strömungsverhalten

von NAPL in porösen Medien am besten beschreibt, konnten jedoch mangels zuverlässiger experimenteller Daten nicht gemacht werden.

1.6 Einfluss von Heterogenität und Instabilitäten auf die DNAPL-Ausbreitung

Natürliche Aquifere sind heterogen mit räumlichen Korrelationsskalen, die in allen drei Richtungen variieren. Die räumliche Variabilität der Durchflusseigenschaften kann an verschiedenen Skalen untersucht werden: Großskalige Heterogenitäten oder Schichten mit unterschiedlicher Durchlässigkeit (macroscalige Heterogenitäten) können relativ einfach durch Entnahme und Ansprache von Bodenproben definiert werden. Kleinskaligere Heterogenitäten (microscalige Heterogenitäten) haben feinere Durchlässigkeitsunterschiede. Feldexperimente im sehr gut charakterisierten Bordenaquifer haben gezeigt, dass Heterogenitäten auf beiden Skalen einen starken Einfluss auf die Bewegung und Verteilung eines nicht mit Wasser mischbaren Fluids (NAPL) im Untergrund haben (Poulsen und Kueper, 1992, Kueper et al., 1993).

Da eine detaillierte Beschreibung der Aquifer-Heterogenität auf den Skalen nicht möglich ist, werden Daten aus Bodenproben oder Abschätzungen von Regionaldaten verwendet, um die heterogene Struktur eines Aquifer statistisch zu charakterisieren. Diese Parameter können dann dafür verwendet werden, ein repräsentatives heterogenes Permeabilitätsfeld zu generieren. Sie werden auch eingesetzt, um mittels numerischer Modelle die Fluidverteilung im Aquifer zu berechnen oder ein Sanierungskonzept zu planen oder zu evaluieren. Aufgrund der limitierenden Rechnerleistungen und der fehlenden Datenlage ist es derzeit nicht möglich, die Feldskala in einem Detail aufzulösen, in dem die mikroskaligen (REV)- Heterogenitäten ersichtlich sind.

Numerische Simulationen wurden in einem räumlich korrelierten Permeabilitätsfeld, das ähnlich wie das Permeabilitätsfeld des Bordenaquifers beschaffen war, durchgeführt. Die Ergebnisse zeigten, dass die Verteilung des DNAPLs in der gesättigten Zone stark durch feine Veränderungen der Kapillareigenschaften des porösen Materials und durch die genaue Reihenfolge, in der die verschiedenen Lagen in Kontakt mit dem DNAPL kamen, kontrolliert war (Kueper und Gerhard, 1995). Numerische und mathematische Methoden werden entwickelt, um die Effekte der mikroskaligen Heterogenitäten über grössere Volumen zu integrieren und damit makroskalige Modellierungen durchzuführen. Dieser Vorgang wird als „Upscaling“ bezeichnet. Einen Überblick über diese Methoden und Algorithmen zur Beschreibung durchschnittlicher Fließeigenschaften geben Fayers und Hewitts (1992). Diese Upscaling-Methoden wurden in großem Umfang für Einphasenströmungen angewandt, jedoch ist die Gültigkeit dieser Ansätze für Mehrphasenströmung nicht nachgewiesen. Der Einfluss des Eindringdrucks und die Tatsache, dass an den heterogenen Grenzflächen kontinuierliche Drücke, aber Diskontinuitäten in der Sättigung vorliegen, resultiert in einer Verstärkung der räumlichen Variabilität der

absoluten Permeabilität. Butts et al. (1996) untersuchten den Gebrauch von effektiven Parametern für Mehrphasenströmungen und stellten viele Einschränkungen fest.

Während makroskalige Heterogenitäten explizit in jedem REV-Block im Modell eingegeben werden können, haben auch anscheinend zufällige NAPL-Bewegungen im Untergrund, die durch Heterogenitäten auf der Porenskala bedingt sind, einen grossen Einfluss auf die NAPL-Bewegung und die endgültige NAPL-Verteilung. Durch eine Untersuchung der stabilisierenden und destabilisierenden Kräfte kann ein Ausdruck für Bedingungen (z.B. Geschwindigkeit, Durchlässigkeiten und Fluideigenschaften), unter welchen instabile Bewegung, z.B. „Fingering“, in einem homogenen Modell erwartet werden kann, entwickelt werden (Hill, 1952).

Basierend auf dieser Herleitung ist eine Abwärtsbewegung eines niedrig viskosen DNAPL (z.B. PCE, TCE) unter die Wasseroberfläche in einem heterogenen Medium immer instabil. „Short circuiting“ oder „Channeling“ ist das Ergebnis von verschiedenen Durchflusspotentialen in einem porösen Medium und resultiert aus sehr feinen Variationen in der Verteilung der Porengrößen. „Channeling“ wurde in zweidimensionalen Mikromodellstudien (Wilson und Conrad, 1990) untersucht und konnte auch mittels Filtrationsmodell-Simulationen basierend auf der Messung von Kapillardrucksättigungsbeziehungen in heterogener Matrix nachgewiesen werden (Ferrand und Celia, 1992).

Im allgemeinen kann gesagt werden, dass nicht-ideales Verhalten wie z.B. „Short circuiting“ oder „Fingering“ zu einer weniger gleichförmigen Verteilung und daher niedrigeren durchschnittlichen residualen Sättigung des DNAPLs führt. Dies führt andererseits zu einem höheren Grad an horizontaler Verteilung oder zu einer größeren abwärts gerichteten Bewegung des DNAPLs, als in einer uniformen Verteilung zu erwarten wäre. Von Lui und Dane (1997) wurden Methoden wie z.B. „Random artificial perturbations“ vorgeschlagen, die schwerkraftbedingte Instabilitäten auslösen sollten. Berechnungen sind zur Zeit jedoch aufgrund der Möglichkeiten der Rechner noch nicht möglich.

Bisher gab es wenige Laborstudien zur Untersuchung der Mehrphasenströmung in heterogenem porösem Material (Butts und Jensen, 1996; Illangesakare et al., 1995). Diese Untersuchungen berücksichtigten jedoch normalerweise nur eine oder zwei Linsen, und die Front kam nur mit makroskaligen Heterogenitäten, die eine ähnliche Längenskala wie die Front selbst hatten, in Berührung. Diese Studien sind für Untersuchungen der Prozesse an der heterogenen Grenzfläche geeignet (Hofstee et al. 1998), sie liefern jedoch nicht den Grad an Heterogenität, der benötigt wird, um herauszufinden, inwieweit kleinskalige Heterogenitätsfelder die Bewegung der nicht löslichen Phase beeinflussen.

Der Schwerpunkt der nachfolgend dargestellten Arbeit war eine Reihe von kontrollierten DNAPL-Infiltrationen in genau definiertem, makroskopisch homogenem bzw. heterogenem

Sand auf der Laborskala. Ziel war es, sowohl ein qualitatives (Photos) als auch ein quantitatives Datenset (Drücke, Sättigungen) zu erhalten, das Informationen über Prozesse wie „Fingering“, vertikale Ausbreitung und „Pooling“ in einem pseudo-zweidimensionalen Strömungsfeld liefert. Durch Vergleiche der experimentellen Daten mit den Ergebnissen von numerischen Modellierungen konnten Bedingungen identifiziert werden, unter denen die numerischen Ergebnisse akzeptabel waren, sowie Bedingungen, unter welchen diese Ergebnisse starken Limitationen ausgesetzt waren. Basierend auf den Unterschieden zwischen den beobachteten und den simulierten Daten wurde das numerische Modell verändert und getestet. Zusätzlich können die experimentellen Daten für andere Forscher, die ähnliche Ideen und Technologien entwickeln wollen, zur Verfügung gestellt werden.

2 Experimentelle Methoden

Als Schadstoff wurde in den Experimenten Trichlorethylen (TCE) verwendet. TCE hat eine sehr hohe Henry-Konstante und verdunstet sehr schnell. Dieser chlorierte Kohlenwasserstoff wurde erstmals 1923 produziert und bis 1970 oft eingesetzt. Nach 1970 wurde der Verbrauch von TCE aus Umwelt- und gesundheitlichen Gründen eingeschränkt.

Die TCE-Infiltrationen erfolgten in einer wassergesättigten, zweidimensionalen Rinne, die mit vier verschiedenen Sandpackungen gefüllt war: eine homogene Packung und drei heterogene Packungen. Die Wasser- und TCE-Drücke wurden mit Tensiometern gemessen. Die Bewegung des mit Sudan IV gefärbten TCEs während der Infiltration wurde qualitativ mit Fotos dokumentiert; die TCE-Sättigung nach Abschluß der Infiltration wurde mittels Gamma-Messung bestimmt.

2.1 Versuchsaufbau

Die Experimente wurden in einer 140 cm langen, 60 cm hohen und 8,5 cm breiten Rinne ausgeführt (Abb. 1). Die Breite der Rinne war durch die geplante Gamma-Messung vorgegeben. Wegen der Aggressivität des verwendeten TCE wurden alle Oberflächen, die mit dem porösen Material und dem Schadstoff in Kontakt kamen, in Edelstahl bzw. in Glas ausgeführt. Durch die Glasscheibe der Frontseite war es möglich, die Bewegung des TCE im Untergrund visuell zu verfolgen. Sowohl die Stahl- als auch die Glaswände mussten verstärkt ausgeführt werden, um eine Verformung der Rinne während der Sättigung mit Wasser und eine daraus resultierende Setzung des Sandes zu verhindern. Die Glasfront und der abnehmbare Deckel der Zelle wurden durch Vitondichtungen abgedichtet. Auf der Rückseite der Zelle wurden 12 Gewindehülsen angeschweißt, die später zum Einbau der Tensiometer verwendet werden sollten. An beiden Seiten der Rinne, im Abstand von 8 cm vom jeweiligen Ende, wurden feine Edelstahlgewebe eingebaut, die die mit Kies gefüllten Endbrunnen vom Sand trennten.

2.1.1 Verwendete Sande und heterogene Strukturen der Packungen

Die Infiltrationen wurden in vier verschiedenen Packungen durchgeführt, einer homogenen, zwei, die aus 10 cm langen und 1 cm hohen Linsen bestanden, und einer, die aus 20 cm langen und 1 cm hohen Linsen bestand (Abb. 2). In allen Packungen wurde 39 cm unter der Infiltrationsquelle eine 40 cm lange Feinstsandlinse eingebaut, die eine sehr geringe Permeabilität aufwies (makroskopische Heterogenität). Der Feinstsand (Nr.4 Sand) war so gewählt worden, dass unter den erwarteten experimentellen Bedingungen zu keinem Zeitpunkt der Kapillardruck in der Rinne ausreichte, den DNAPL in den Feinstsand eindringen zu lassen.

Jede der Befüllungen bestand aus dem gleichen Anteil von drei Sanden, 10 % grob, 10 % fein und 80 % Mittelsand. Diese Sande wurden entweder als Linsen oder als makroskopisch homogene Mischung eingebaut. Der grobe, mittlere und feine Sand waren gut sortierte Quarz-Silika-Sande, deren Permeabilität sich durchschnittlich um einen Faktor 2 unterschied (Tabelle 1). Ein Feinsand (Nr. 4) wurde als Kapillargrenze entlang der oberen und unteren Ränder der Rinne verwendet. Dieser Sand wurde auch zum Einbau der makroskopischen Heterogenität eingesetzt. Der feine und der grobe Sand waren mit einem anorganischen Silika-Farbstoff eingefärbt worden (Dorfner GRANUCOL SIG) und hatten somit eine blaue bzw. grüne Farbe. Durch vorgeschaltete Experimente war nachgewiesen worden, dass dieser Farbstoff durch das TCE nicht entfernt wurde und dass die Eigenschaften des TCE, vor allem die Grenzflächenspannung zu Wasser, durch den Kontakt mit dem Farbstoff nicht verändert wurden. Die Messungen der Sandeigenschaften (Permeabilität, Kapillardrucksättigungsbeziehung) wurden mit dem eingefärbten Sand durchgeführt. Das TCE, das zur Messung der Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen und bei den späteren Experimenten verwendet wurde, war mit Sudan IV eingefärbt.

Abbildung 1: Experimentelle Rinne

Tabelle 1: Materialeigenschaften der Sande

Sandart (Nr.)	Permeabilität (m ²)	Porosität	D ₅₀ (mm)
grob (Nr. 1)	2.55 x 10 ⁻¹⁰	0,38	0,8
mittel (Nr. 2)	1.22 x 10 ⁻¹⁰	0,388	0,6
gemischt *	1.03 x 10 ⁻¹⁰	0,383	0,6
fein (Nr. 3)	6.38 x 10 ⁻¹¹	0,386	0,3
sehr fein (Nr. 4)	1.02 x 10 ⁻¹¹	0,4	0,15

* homogene Mischung aus 80% Mittel-, 10% Fein- und 10% Grobsand

Die Kapillardrucksättigungsbeziehungen des TCE-Wassersystems wurden mit der „Controlled Outflow Method“ (Lorentz et al., 1992) durchgeführt. Aufgrund von Erfahrungswerten wurde davon ausgegangen, dass die ersten Kapillardruckdaten, die bei sehr geringen Kapillardrücken aufgenommen wurden, eine kontinuierliche nichtbenetzende Phase nicht richtig repräsentierten (Brooks und Corey, 1964). Aus diesem Grund wurde der Kapillardruck durch Extrapolation des Plateaus dieser Kurve zu der rechten Achse ermittelt (Kueper et al., 1989). Die Brooks/Corey-Parameter sind in Tabelle 2 aufgelistet. Der niedrige Wert für Lambda (λ) bestätigte die Tatsache, dass alle drei Sande sehr gut sortiert und homogen in der Rinne gepackt waren. Erstaunlich war, dass die Kapillaritätseigenschaften der homogenen Mischung beinahe dieselben waren wie die des Mittelsandes. Dieses kann als Anzeichen dafür genommen werden, dass die Porengrößenverteilung durch den Fein- und Mittelsand kaum verändert wurde.

Tabelle 2: Brooks-Corey-Parameter für ein TCE-Wasser-System

Sandart (Nr.)	P _d (cm H ₂ O)	λ	S _{rw}	S _{TCE}
grob (Nr. 1)	3,6	3,2	0,06	0,1
mittel (Nr. 2)	5,5	3,0	0,06	0,15
gemischt *	5,5	3,0	0,06	0,1
fein (Nr. 3)	9,0	3,0	0,06	0,1
sehr fein (Nr. 4)	20 **	3,0 **	0,06 *	0,1 **

* homogene Mischung aus 80% Mittel-, 10% Fein- und 10%

** geschätzt

Abbildung 2: Befüllstrukturen:

- a) *Homogene Befüllung* (homogenes Gemisch mit Linse aus sehr feinem Sand)
- b) *10a-Befüllung* (10 cm -Linsen mit zusätzlich einer Linse aus sehr feinem Sand)
- c) *20a-Befüllung* (20 cm -Linsen mit zusätzlich einer Linse aus sehr feinem Sand)
- d) *10b-Befüllung* (10 cm -Linsen mit zusätzlich einer Linse aus sehr feinem Sand)

Die homogene Befüllung wurde mittels eines „Pluvial Compaction“-Systems (Rad und Tumay, 1985) eingebaut. Dazu wurde ein Befüllungsapparat konstruiert, der den Dimensionen der Rinne angepasst war. Die Packungen 10 a, 10 b und 20 a wurden trocken in 1 cm starken Schichten eingebracht. Für jede Schicht wurden die Linsen durch dünne Aluminiumbleche, die ca. 5 mm in den darunter liegenden Sand gedrückt wurden, abgegrenzt. Jede Linse wurde mit einer vorher abgewogenen Menge von feinem bzw. grobem Sand gefüllt. Die verbleibenden Sandvolumen ohne Linsen wurden mit Hilfe eines kleinen „Sandrainers“ bis zu 1 cm Höhe befüllt. Danach wurden die Aluminiumbleche vorsichtig entfernt, und die gesamte Lage wurde verdichtet. Wie im vorhergehenden Abschnitt erwähnt, waren die feinen und groben Sande mit einem anorganischen Farbstoff eingefärbt worden, so dass sie eine blaue bzw. grüne Farbe hatten. Dadurch war es möglich, diese Linsen visuell zu identifizieren. Um nachzuweisen, inwiefern kleine Ungenauigkeiten durch die Befüllung eine Rolle spielten, wurde ein identisches Infiltrationsexperiment für die 20a-Befüllung durchgeführt. Der Vergleich der beiden Infiltrationsexperimente zeigte, dass die Experimente reproduzierbar und kaum durch Packungsfehler beeinflusst waren.

2.2 Sättigungsmessung mit dem Gamma-System

Quantitative, zerstörungsfreie Sättigungsmessungen wurden aufgrund des Prinzips, dass verschiedene Materialien Gamma-Energie in unterschiedlichem Maße absorbieren, durchgeführt (Ferrand et al., 1986). Eine Reihe von Voruntersuchungen (leere Rinne, Rinne gefüllt mit Wasser, Rinne gefüllt mit trockenem und wassergesättigtem Sand) wurden durchgeführt, um die Tiefe der Rinne, die Packungsdichte und die Dichte der gesättigten Befüllung an jeder Messstelle zu bestimmen. Dadurch konnte folgendes bestätigt werden:

- 1) Die Rinne verformte sich bei der Befüllung mit Wasser nicht (keine Änderung der Weglängen).
- 2) Es war sehr wenig oder keine Luft in der gesättigten Zone eingeschlossen.
- 3) Die Packungsdichte war über die gesamte Rinne konstant.

Für die Messungen waren genaue und reproduzierbare Positionierungen der Gammaquelle und des Detektors sehr wichtig, da alle Berechnungen auf Änderungen der vorab gemessenen Daten basierten. Aus diesem Grund wurde ein PC-gesteuerter Roboter eingesetzt, der die Positionierung von Quelle und Detektor exakt steuerte und erfaßte.

2.3 TCE- und Wasserdruckmessungen

Zu Messungen von TCE- und Wasserdrücken am selben Ort in der zweidimensionalen Rinne wurden spezielle Tensiometer hergestellt mit separaten, hydraulisch isolierten wasserbenetzenden und TCE-benetzenden Sektionen (Abb.3). Die wasserbenetzenden

Sektionen wurden aus Keramik (Soil Moisture, 1 bar, high flow), und die TCE-benetzenden Sektionen wurden aus porösem Teflon (Berghof, 1.56g/cm^3 Dichte PTFE) hergestellt. Der Eindringdruck für Wasser im TCE-gesättigten porösen Teflon war > 140 cm Wassersäule und somit weit über den Anforderungen für dieses Experiment. Alle anderen Teile der Tensiometer wurden aus Edelstahl hergestellt. Der wasserbenetzende Keramikring wurde mit dem Metallkörper des Tensiometers mittels eines chemisch resistenten Klebstoffs (Keramchemie, KCH-VE-8 und KCH-UP-1) verbunden. Das poröse Teflon wurde mit dem Tensiometerkörper verschraubt.

Die verwendeten Druckaufnehmer (Keller, PR-10-0,2) mit eingebauten Verstärkern hatten einen Meßbereich von 2 m Wassersäule. Alle Teile der Druckaufnehmer, die in Kontakt mit der Flüssigkeit kamen, waren aus Edelstahl. Die Tensiometer waren so angeordnet, dass sie auch während des Experimentes bei Bedarf nachkalibriert werden konnten. Die Messzeit der Tensiometer, Druckaufnehmer und des Datensystems war kombiniert geringer als 5 Sekunden.

Vor dem Befüllen mit Wasser wurde die Rinne für 3 Stunden mit CO_2 durchspült, um Luft einschließen zu verhindern. Danach wurde Wasser vom Boden der Rinne injiziert, bis ein Wasserspiegel von 2-3 cm unter der untersten Tensiometerreihe erreicht war. Dadurch wurde erreicht, dass der Sand um die Tensiometer feucht und kohäsiv war. Vorsichtig wurde ein bestimmtes Volumen des feuchten Sandes entfernt, und danach wurden an diesen Stellen die Tensiometer eingebaut. Sofort nach Einbau der Tensiometer wurde der Wasserspiegel weiter angehoben, um eine Evaporation des TCEs aus den Tensiometern zu verhindern. Diese Prozedur wurde für jede Tensiometerreihe wiederholt. Anschliessend wurden mehrere Porenvolumen entgastes Wasser durch das System gespült, um sicherzustellen, dass alles CO_2 gelöst wurde und das CO_2 -gesättigte Wasser aus dem System entfernt war.

Abbildung 3: a) Tensiometer (Detailbild)
b) Schnitt durch Rinne mit Tensiometern, Druckaufnehmern, etc.

2.4 Experimenteller Ablauf

Für jedes Experiment wurden 1500 ml TCE mit einer konstanten Rate injiziert. Die dazu verwendete Quelle war 3 cm breit und bestand aus feinem Kies, der in den oberen 2 cm der Befüllung eingebaut war (Abb. 1). TCE wurde durch einen gelochten Schlauch in diese Quellzone eingeführt. Dadurch wurde sichergestellt, dass sich der Durchfluss und der Druck im Bereich der Kieszone ausglich und eine Quelle entstand, die über die Dicke der Rinne gleichförmig war. Obwohl die Pumpe bei jedem Versuch gleich eingestellt war, ergaben sich leichte Differenzen aufgrund der Infiltrationszone und der Packungsdichte. Beide Brunnen am

Ende der Rinne waren über einen Schwerkraftabscheider mit einem Festpotential-Tank verbunden.

Während der Infiltration und Verteilung des TCE in der Rinne wurden Fotos gemacht, um die Verteilung und die horizontale Ausbreitung des TCE in Phase zu dokumentieren. Gleichzeitig wurden Wasser und TCE-Drücke kontinuierlich aufgenommen. Die Änderung der Sättigungsverteilung im Modell fand viel schneller statt, als mit dem Gammasytem aufgenommen werden könnte. So würden z.B. für eine Messung von 50 Reihen und 18 Spalten ca. 2,5 Stunden benötigt. Außerdem hätte die Gammamessung die Möglichkeit, Fotos aufzunehmen, stark behindert. Aus diesem Grunde wurde die Entwicklung der Front qualitativ mit Fotos und quantitativ durch die Tensiometer dokumentiert. Die Gammamessungen zur Bestimmung der Sättigung wurden durchgeführt, nachdem die Infiltration beendet war und keine weitere DNAPL-Bewegung mehr zu beobachten war.

2.5 Numerische Methoden

Die Modellierung von Zweiphasenströmungen auf der makroskopischen Skala basiert normalerweise auf dem Kontinuumsansatz (Bear und Bachmat, 1986). Dieser Ansatz wurde auch bei dem hier verwendeten Modell MUFTE (Helmig, 1997) verwendet. Die mathematische Formulierung dieses Modells basiert auf einer Drucksättigungsformulierung (P_w und S_{nw} als Primärvariablen), und die Diskretisierung wurde mit der „Fully upwinded Galerkin-Methode“ im Raum und mit einer impliziten Methode in der Zeit durchgeführt. Als Kapillardrucksättigungsbeziehung wurde die von Brooks-Corey definierte und für die Ermittlung der relativen Permeabilität wurde das Brooks-Corey-Burdine-Modell verwendet. Mit dieser Formulierung und diesen konstitutiven Beziehungen konnten die Effekte der heterogenen Grenzflächen berücksichtigt werden (Helmig, 1997).

Tabelle 3: Eingabeparameter für die numerische Modellierung

Dichte der benetzenden Phase (Wasser)	1000 kg / m ³
Dichte der nicht benetzenden Phase (TCE)	1460 kg / m ³
Viskosität der benetzenden Phase	0,001 Pa.s
Viskosität der nicht benetzenden Phase	0,00057 Pa.s
Knotenabstand horizontal	0,025 m
Knotenabstand vertikal	0,005 m

Die Simulationen wurden basierend auf den gemessenen Kapillardrucksättigungsbeziehungen und Durchlässigkeiten durchgeführt. Das Strömungsfeld war in 4949 Knoten diskretisiert. Somit

entfielen auf jede 10 cm breite und 1 cm hohe Linse 4 Knoten in der horizontalen und 2 Knoten in der vertikalen Richtung (Tabelle 3). Das verwendete Modell war bereits mit experimentellen Beobachtungen in einem zweidimensionalen (ungefähr 5 mm dicken) heterogenen physikalischen Modell verifiziert worden (Kueper et al., 1989) und zeigte dort eine gute Übereinstimmung (Helmig, 1997). Es muss jedoch angemerkt werden, dass ein Vergleich der numerischen Ergebnisse mit den Ergebnissen der hier durchgeführten (quasi-zweidimensionalen) Experimente weniger Übereinstimmung zeigte. Das lag vor allem an den im quasi-zweidimensionalen System festzustellenden Mikro-Heterogenitäten.

2.6 Momenten-Analyse der horizontalen Ausbreitung und der vertikalen TCE-Bewegung

Eine Momenten-Analyse wurde verwendet, um die numerischen Vorhersagen der TCE-Verteilung nach 50 % und 100 % des gesamten Infiltrationsvolumens mit den experimentellen Daten zu vergleichen. Die Position des Schwerpunktes wurde aus dem ersten und zweiten Moment berechnet, wobei V_{NW} das Volumen der nicht-benetzenden Phase ist. Der Grad der horizontalen Verteilung (F_{xx}) um eine Achse durch den Massenschwerpunkt wurde mit Gleichung 3 berechnet.

$$M_{ij} = \sum \sum x^i z^j V_{NW} \quad (1)$$

$$X_C = M_{10} / M_{00} ; Z_C = M_{01} / M_{00} \quad (2)$$

$$F_{xx} = M_{20} / M_{00} - X_C^2 \quad (3)$$

Diese Analyse ist nur halb-quantitativ, da die experimentelle Verteilung des TCE von den Fotos der Front bei 50 und 100 % abgeschätzt war. Dem Volumen (V_{NW}) wurde der Wert „1“ zugemessen, wenn die Linse als gleichmässig mit TCE gefüllt erschien, und „0“, wenn kein TCE sichtbar war. Wenn eine Linse nur teilweise gefüllt war, wurde entsprechend zwischen „0“ und „1“ interpoliert. Diese Methode ist nur anwendbar, wenn die folgenden zwei Annahmen gültig sind:

- Die Sättigung innerhalb einer gefüllten Linse (V_{NW} gleich 1) muss für alle gefüllten Linsen gleich sein (wahrscheinlich richtig).
- Die TCE-Masse in den „Fingers“ im Mittelsand, die bei diesen Abschätzungen nicht berücksichtigt wurde, muss in gleicher Weise verteilt sein wie das TCE in den Grobsandlinsen (vielleicht nicht richtig)
- Die Masse des TCE in den „Fingers“ muss klein sein verglichen mit der Masse in den Grobsandlinsen (wahrscheinlich richtig).

3 Ergebnisse und Diskussion

3.1 Homogene Packung

3.1.1 Visuelle Beschreibung der TCE-Verteilung: „Fingering“ und „Pooling“

Schon zu Beginn der TCE-Migration durch den homogenen Sand war diese durch abwärtsgerichtete Finger dominiert, die durch viskose oder durch Schwerkraft hervorgerufene Instabilitäten verursacht waren. Beinahe sofort, nachdem die Kiesquelle mit TCE befüllt war, wurde das TCE fast gleichzeitig an zwei Stellen entdeckt: einmal ca. 10 cm horizontal verschoben und 8 cm über der Feinsandmakroheterogenität und zum zweiten als kleiner Fleck am rechten Ende der feinen Sandlinse. Danach „poolte“ das TCE auf der Linse und verteilte sich lateral bis zum Ende der Linse, wo es über beide Seiten der Linse sich nach unten weiter fortbewegte und sich auf der Kapillarbarriere am Boden des Experiments aufstaute. Obwohl die Injektion 44 Minuten dauerte, hatte sich ein bevorzugter Fließweg innerhalb von 16 Minuten bis zum Boden des Experimentes eingestellt, und eine sehr geringe Anreicherung des TCE über der Feinsandlinse konnte festgestellt werden. Der größte Teil der injizierten TCE-Masse sammelte sich auf dem Boden der Rinne auf der Kapillarschicht an.

Basierend auf den Arbeiten hinsichtlich stabilisierenden und destabilisierenden Kräften von Kueper und Friend (1988) war erwartet worden, dass sich Finger ausbilden würden. Das numerische Modell war basierend auf die Annahmen von Schuille (1988) konzipiert, nach denen sich das DNAPL bei der Infiltration in ein homogenes poröses Material zwiebel förmig ausbreitet. Dieses konzeptionelle Modell basierte auf der Kontinuitätsannahme, in der „Fingering“ und instabile Durchflüsse, wie im vorgehenden Abschnitt diskutiert, nicht berücksichtigt werden.

Es zeigte sich, dass durch die Instabilitäten die Front sich viel schneller als erwartet nach unten ausbreitete. Obwohl die horizontale Ausbreitung der Front vor dem Erreichen der horizontalen Makroheterogenität nicht genau gezeigt werden konnte, wurde deutlich, dass die laterale Ausbreitung und somit das mit DNAPL gefüllte Volumen vor dem Erreichen der Linse weit geringer als erwartet war. Das Fließverhalten des TCE war von Anfang an durch Instabilitäten dominiert, und nur nach Erreichen der makroskopischen Linse wurde die Vertikalbewegung verlangsamt. Die Ausbreitung nach dem Erreichen der Linse („Pooling“ und laterale Verteilung auf der Linse) entsprachen wieder dem konzeptionellen Modell.

3.1.2 Ergebnisse der Druckmessung

Die Kapillardrücke wurden aufgrund der Differenz der gemessenen TCE- und Wasserdrücke in jedem der zweiteiligen Tensiometer bestimmt. Sobald TCE die Tensiometer erreicht hatte, wurde eine starke Zunahme der Kapillardrücke gemessen. Obwohl an der Glasscheibe oder durch die Gammamessungen kaum TCE in der homogenen Verteilung nachgewiesen werden konnte, wurde das TCE doch von allen Tensiometern detektiert, was auf ein relativ feines Netz von "Fingern" hindeutet. Der zeitliche Nachweis des TCE an den Tensiometern fand mit zunehmender Entfernung von der Schadstoffquelle statt, und alle Druckaufnehmer zeigten plausible Ergebnisse. In Abb. 4 a, b und c werden die Ergebnisse der Tensiometer entlang der Mittelachse und entlang der untersten und obersten Reihe aufgezeigt (Die genaue Position der Tensiometer wird ebenfalls in den jeweiligen Abbildungen gezeigt). Obwohl die Kapillardrücke bei allen Tensiometern nach dem Erscheinen des TCE scharf anstiegen, variierten die späteren Werte als Funktionen der Position. Dies ist am auffälligsten bei den Tensiometern entlang der Mittelachse. Die Tensiometer in Nähe der Schadstoffquelle (PT 5 und PT 6) waren durch „Pooling“ auf einer Linse nicht beeinflusst. Bei ihnen stieg der aufgenommene Kapillardruck zu einem Maximum von ca. 9 cm und nahm dann langsam bis zum Ende des Experiments (44 Minuten) auf 6,5 cm ab. Bei Tensiometern, die über einer Linse angeordnet waren (PT 8 und PT 7) nahm der Kapillardruck zu Anfang schnell zu und stieg dann langsam weiter, bis ein Maximaldruck erreicht wurde, als das TCE sich auf der Linse aufstaute. Kurz vor dem Abschalten der Injektion nahm der Druck an diesen Tensiometern wieder leicht ab.

44 Minuten nach dem Beginn des Experiments wurde die Injektion gestoppt, und der Kapillardruck an allen Tensiometern nahm in einer ähnlichen Weise ab. 80 Minuten nach Beginn des Experiments hatten sich gleichmäßige Drücke bei allen Tensiometern eingestellt, die die Distanz der Tensiometer von der sehr feinen makroskopischen Linse widerspiegelten. So wurde z.B. in der untersten Reihe ein Kapillardruck von 6 cm, in der zweiten Reihe ein Kapillardruck von 4 cm und in der dritten Reihe (PT 6) ein Druck von 2 cm gemessen. Der Kapillardruck bei PT 5 (4. Reihe) nahm ebenso gleichmäßig ab, bis nach 58 Minuten eine Druckzunahme auf 3,3 cm zu verzeichnen war. Da es keine physikalischen Gründe für dieses Verhalten gibt, ist davon auszugehen, dass es sich dabei um einen Datenfehler oder ein Problem mit dem Druckaufnehmer gehandelt hat.

Abbildung 4: Gemessene Kapillardrücke als Funktion der Zeit im homogenen Aquifer
a) entlang der Mittelachse, b) unterste Reihe, c) oberste Reihe

3.1.3 Numerische Simulationen

Aufgrund der mathematischen Formulierungen (Brooks-Corey) sagte das Modell eine sofortige Zunahme von 0 bis auf den Wert des Eindringdrucks des porösen Materials voraus, sobald die Sättigung der nicht benetzenden Phase größer als 0 wurde (dahingegen stiegen die gemessenen Daten schnell, aber nicht sofort auf den Wert des Eindringdrucks an und begannen dann langsam wieder abzunehmen). Die vom Modell vorausgesagten Ankunftszeiten des TCE an verschiedenen Tensiometern im homogenen porösen Material (Abb. 5) fanden sehr viel später statt als die wirklich im Experiment gemessenen Zeiten (Abb. 4). Ebenso waren die vorhergesagten Kapillardrücke geringer als die maximal gemessenen Kapillardrücke während des Experiments.

Da das Modell auf einem nicht hysteretischen Ansatz basiert, folgte die simulierte Drainage des TCE, nachdem die Quelle ausgeschaltet war (44 Minuten) derselben Kapillardrucksättigungskurve wie die Infiltration. Deshalb lieferte das Modell nach dem Ausschalten der Quelle größere Drücke als im Experiment gezeigt werden konnten.

Die Messung an den Piezometern PT 5 und PT 6 im experimentellen Modell (zu Anfang starke Zunahme, gefolgt von einer langsamen Abnahme, sogar vor dem Ende der Infiltration) wurde durch die numerische Simulation nicht vorhergesagt. Diese Messungen könnten die Folge einer Druckangleichung sein, die nur im Bereich der Infiltrationsquelle nachzuweisen war und somit nur in den Piezometern, die der Quelle am nächsten saßen. Es ist vorstellbar, dass in der Nähe von „Fingern“ (z.B. PT 5 und PT 6), wo der gemessene TCE-Druck größer als der numerisch vorhergesagte war, die Sättigung der Fingerzone größer ist als die Sättigung, die für eine gleichförmige Front vorhergesagt war. Gleichzeitig war jedoch die durchschnittliche Sättigung eines REV im Mittelsand geringer als die vom Modell vorhergesagte Sättigung.

3.1.4 Momentenanalyse der horizontalen und vertikalen Ausbreitung

Da die instabile Ausbreitung des TCE nur an sehr wenigen Stellen an der Glasfront beobachtet und dokumentiert werden konnte, waren nicht genügend experimentelle Daten vorhanden, um eine Momentenanalyse der Infiltration in das homogene poröse Medium durchzuführen. Es konnte trotzdem gezeigt werden, dass vor dem Erreichen der Kapillargrenze die beobachtete vertikale TCE-Bewegung viel höher war als vorhergesagt und dass gleichzeitig die laterale (horizontale) Ausbreitung der Front niedriger als erwartet war.

Abbildung 5: Berechnete Kapillardrücke als Funktion der Zeit im homogenen Aquifer
a) entlang der Mittelachse, b) unterste Reihe, c) oberste Reihe

3.2 Heterogene Befüllung

3.2.1 Visuelle Beschreibung der TCE-Migration: „Fingering“ und „Channeling“

Während jeder Infiltration wurde die TCE-Verteilung kontinuierlich mit Photos festgehalten. In Abbildung 6 wird die TCE-Verteilung nach dem Abschalten der Infiltration dargestellt. Zur Veranschaulichung der Struktur wurden die Feinsandlinsen parallel und die Linsen mit sehr geringer Durchlässigkeit (Nr. 4 Sand) über Kreuz schraffiert. Die Grobsandlinsen, in denen TCE detektiert wurde sind schwarz und TCE im Mittelsand grau dargestellt. Grobsandlinsen, die nicht mit TCE gefüllt waren sind nur als Umrandung dargestellt. Obwohl die Fingers am Glas nicht sichtbar waren, wurde die vermutete Ausbreitung der Finger im Mittelsand gestrichelt eingezeichnet. Mit Ausnahme einer einzigen Linse in der 10b Befüllung sind alle Grobsandlinsen im Bereich der Finger-Zone zumindest teilweise mit TCE gefüllt.

Wie beim homogenen Experiment war die TCE-Bewegung durch den Mittelsand des Aquifers (80 % des Volumens) instabil. Typischerweise wurde TCE sofort nach Injektionsbeginn der Grobsandlinse die am nächsten zur Quelle platziert war detektiert. Die Bewegung des TCE setzte sich bei jedem Experiment auf diese Weise fort, wobei im Mittelsand hauptsächlich „Fingering“ auftrat, die an der Glasscheibe nicht nachgewiesen werden konnte, und somit die Bewegung des TCE hauptsächlich durch das Befüllen der verschiedenen Grobsandlinsen sichtbar gemacht wurde. Während der Infiltration wurde im allgemeinen kein „pooling“ von TCE auf den Feinsandlinsen (Nr. 3 Sand) an der Glasscheibe gesehen. Andererseits wurde extensives Pooling auf der sehr feinen, 40 cm langen Linse (Nr. 4 Sand) nachgewiesen. In den nächsten Abschnitten wird die Ausbreitung des TCE in der heterogenen Befüllung detaillierter beschrieben. Dabei wird auch auf Unterschiede zu den hier beschriebenen, generellen Beobachtungen eingegangen.

Fingering und Channeling von TCE

Wie schon bei der homogenen Befüllung war ein „Fingering“ des TCE durch den wassergesättigten Sand, basierend auf der Berechnung von stabilisierenden und destabilisierenden Kräften auf der makroskopischen Grenzfläche in einem homogenen Material erwartet worden (Kueper und Frind, 1988). Die „Finger“ hörten auf und eine horizontale Ausbreitung begann, sobald die Spitze des Fingers eine grobe Linse erreicht hatte. Dieser Prozess wird im Folgenden als „Channeling“ bezeichnet. Eine weitere Verbreitung des TCEs mittels Finger im Mittelsand war somit teilweise oder vollständig durch die groben, mit TCE gefüllten Linsen kontrolliert.

Abbildung 6: Gemessene Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit (basierend auf Fotoaufnahmen):
a) 10a-Befüllung, b) 20a-Befüllung, c) 20a-Befüllung

In den meisten Fällen setzte sich eine TCE-Befüllung der groben Linsen fort, bis in diesen eine gleichmäßige, hohe Sättigung erreicht war. Einige Linsen füllten sich relativ schnell teilweise, um dann nach einem gewissen Zeitraum vollends gesättigt zu werden. Einige Linsen am Rand der Rinne wurden bis zum Ende des Experiments nur teilweise gefüllt. Diese Beobachtungen unterstützen die These, dass „Fingering“ und/oder „Channeling“ sehr stark von den jeweiligen Druckbedingungen an einem bestimmten Ort innerhalb der Rinne zu einer gewissen Zeit abhängig ist und dass diese Bedingungen sich kontinuierlich mit der Ausbreitung der Front ändern.

Selbst im Mittelsand der 10b-Befüllung konnte Channeling nachgewiesen werden, da sich dort das TCE an einer Stelle ca. 30 cm horizontal ausbreitete (Abb. 6c). Bei genauerer Betrachtung des Sandes stellte sich heraus, dass hier eine leichte Imperfektion beim Packen durch eine Trennung der Korngrößen stattgefunden hatte. Auch in den 10a- und 20a-Befüllungen wurden bei genauer Betrachtung kleinere Imperfektionen mit der dadurch hervorgerufenen horizontalen Ausbreitung festgestellt. Dies war ein sehr deutliches Anzeichen dafür, dass schon bei einer sehr kleinen Permeabilitätsdifferenz ein großer Unterschied des Eindringdrucks und damit ein Channeling einherging.

In diesen Experimenten fand die TCE-Bewegung an zwei charakteristischen Skalen statt: Instabilitäten in einer Längenskala, die der Breite der Finger entspricht und eine Kontrolle der Finger mit nachfolgendem Channeling in der Größenskala der Linsen. Somit ist die Wahrscheinlichkeit der Ausbildung von Fingern ebenso wie die Wahrscheinlichkeit, dass diese Finger gestoppt werden und in ein horizontales Channeling übergehen eine Funktion von Größe, Permeabilität und Verteilung der makroskopischen Linsen im homogenen Mittelsand. Obwohl die Größen der Linsen und ebenso die Größe der Permeabilitätsdifferenzen für einen Laborversuch groß sind (und auch groß relativ zu den Breiten der Finger), sind sie trotzdem klein im Vergleich zu einem Feldfall. Die Mächtigkeit der Linsen (1 cm) wurde gewählt, um eine Sättigung der Linsen mittels des Gammastrahlensystems bestimmen zu können, und gleichzeitig den Einfluss der darunter und darüber liegenden Sande möglichst zu minimieren. Wie schon bei der homogenen Befüllung gezeigt wurde, wurde auch bei der heterogenen Befüllung die horizontale Ausbreitung im Mittelsand (Channeling) durch sehr feine Permeabilitäts- bzw. Eindringdruckunterschiede hervorgerufen, vorausgesetzt diese Strukturen haben eine gewisse laterale Ausdehnung, wie zum Beispiel die im Borden-Sand nachgewiesenen sehr feinen, aber lateral weit ausgebreiteten „Imperfektionen“ (Kueper und Gerhard, 1995).

Bei der im vorherigen Abschnitt beschriebenen homogenen Befüllung, bei der die gleichen Anteile von Sanden verwendet wurden, die dort jedoch homogen vermischt gepackt wurden, war eine gleichförmige Porengrößenverteilung erwartet worden. Deshalb war bei der homogenen Befüllung 'Fingering' dominant, bis die Ausbreitung an der 40 cm großen Feinsandlinse stabilisiert wurde.

Pooling auf und Eindringen in Feinsandlinsen

Nur in sehr wenigen Fällen wurde ein "Pooling" auf einer Feinsandlinse (Nr. 3 Sand) an der Glasscheibe beobachtet. Die meisten solchen Fälle konnten bei der 20a-Befüllung (Abb. 6b) nachgewiesen werden. Am eindrucksvollsten war dies auf der Feinsandlinse, die 3 cm unter der Quelle angebracht war. Über dieser Linse hatte sich, im Gegensatz zu den anderen heterogenen Experimenten, wegen der Nähe zur Quelle eine sehr uniforme TCE-Front eingestellt (keine Fingers). TCE war in diese Feinsandlinse auch eingedrungen, was dadurch deutlich wurde, dass TCE in einer Grobsandlinse, die direkt darunter angeordnet war, nachgewiesen werden konnte. Dies war jedoch das einzige Anzeichen dafür, dass TCE in eine Feinsandlinse eingedrungen war. Die Hypothese ist, dass durch die Nähe zur Quelle der gesamte TCE-Fluss auf dieser Linse sich schnell aufstaute und durch die sehr schnelle Ansammlung von TCE der notwendige Eindringdruck erreicht wurde, so dass das TCE in diese Linse eindringen konnte. Sobald die Front größer war und die Injektion damit über eine größere Fläche verteilt war, wurden diese Drücke nicht mehr erreicht. Das Verhalten der Kapillardrücke wird in einem späteren Kapitel im Detail diskutiert.

Es ist davon auszugehen, dass durch die Dicke der Rinne (8,5 cm) nicht jeder Fall von Pooling auf den kurzen, 10 cm langen Feinsandlinsen der 10a- und 10b-Befüllung (Abb. 6a und b) an der Glasscheibe entdeckt wurde, bevor das TCE über die Enden der Linsen und weiter nach unten floss. Unabhängig davon konnte gezeigt werden, dass auch kurze Linsen die Fingers kontrollierten und somit die vertikale Verteilung des TCE einschränkten und die horizontale Verteilung des TCE im porösen Medium verstärkten.

3.2.2 Sättigungsverteilung

Bei den Infiltrationen in die verschiedenen Experimente wurden identische experimentelle Methoden und Messtechniken angewandt. Im Nachfolgenden werden die experimentell ermittelten Sättigungen den numerischen Berechnungen für eine heterogene Befüllung gegenübergestellt. Die dargestellten Trends und Beobachtungen sind jedoch für sämtliche anderen heterogenen Experimente ebenso gültig.

Vergleich von experimenteller und simulierter TCE-Verteilung in der 10b-Befüllung

In den Abbildungen 6c und 7 wird die experimentelle und die simulierte TCE-Verteilung in der 10b-Befüllung beim Ende der Infiltration verglichen. Die Interpretation der experimentellen Daten basiert auf der qualitativen TCE-Verteilung, wie sie an der Glasscheibe visuell nachgewiesen werden konnte (d.h. hauptsächlich in den Grobsandlinsen sowie einige wenige Stellen, an denen ein Pooling oder Channeling im Mittelsand observiert wurde). Es konnte gezeigt werden, dass das numerische Modell die Ausbreitung des TCE im heterogenen porösen

Medium und vor allem die Befüllung der Grobsandlinsen hinreichend genau beschrieb. Gleichzeitig sagte es jedoch mehr Pooling auf den Feinsandlinsen und eine zu hohe TCE-Sättigung für den homogenen Mittelsandbereich zwischen den Linsen voraus, da das Modell, basierend auf dem Kontinuums-Ansatz eine gleichförmige Front berechnete.

Abbildung 7: Berechnete Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit (10b-Befüllung)

TCE-Verteilung nach Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts

Der wohl wichtigste Einfluss der "Finger" auf die Verteilung des TCE im porösen Material kann an der TCE-Verteilung in der Rinne am Ende des Experimentes, nach dem Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts, gezeigt werden. Dies wird besonders deutlich durch einen Vergleich der gemessenen und simulierten Sättigungsprofile (Abb. 8a und 8b) in der 10b-Befüllung nach 10 Stunden. Ein sehr viel größerer Anteil der gesamten injizierten TCE-Masse als durch das numerische Modell vorhergesagt, hatte bei den Experimenten den unteren Rand der Rinne erreicht (Abb. 8a). Im Feldfall, wo oft unten keine Feinsandlinse die Weiterverbreitung verhindert, würde dies bedeuten, dass die vertikal nach unten gerichtete Ausbreitung des TCE sehr viel weitreichender wäre als numerisch vorhergesagt und dass somit auch ein viel größerer Bereich des Aquifers durch TCE verschmutzt worden wäre.

Abbildung 8: Sättigungsverteilung nach 10 Stunden

a) gemessen mit dem Gammasystem, b) numerische Simulation

In Abbildung 9 sind die gemessenen und die berechneten Sättigungsprofile sowie die Permeabilitätsverteilung (gestrichelt) entlang der Mittelachse der Rinne dargestellt. Die numerische Modellierung (durchgehende Linie) sagt im Mittelsand eine residuale TCE-Sättigung ($S_{TCE,r}$) von 15% voraus. Aufgrund der im Experiment festgestellten Instabilitäten (Fingering, Channeling) wurde vom Gamma-System (gepunktete Linie) eine sehr viel geringere Sättigung ($S_{TCE} \sim 0 - 0.05$), die auch weit unter der Residualsättigung des Mittelsandes (Tabelle 2) lag, gemessen. Die einzige Ausnahme hierzu war direkt unter der TCE-Quelle, wo sich das TCE in den ersten ca. fünf Zentimetern gleichförmig ausgebreitet hatte ($S_{TCE} \sim 0.07 - 0.16$).

Abbildung 9: Sättigungsprofil nach 10 Stunden durch die Mittelachse der Rinne (10b-Befüllung)
gemessene Sättigung (gepunktet), berechnete Sättigung (Linie), Permeabilität (gestrichelt)

In den Grobsandlinsen wurde nach dem Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts eine TCE-Sättigung von ca. 0.5 - 0,7 gemessen, was auch den Werten des numerischen Modells entsprach. Nach Beendigung der Injektion hatte das TCE begonnen, aus dem Sand zu drainieren, und mit der Sättigung nahm der TCE-Druck im gesamten experimentellen Modell ab. Sobald der Kapillardruck in den Grobsandlinsen geringer als der Eindringdruck des umgebenden Mittelsandes war, war das TCE in den Grobsandlinsen kapillar gefangen

(entrapped). Bei einem Kapillardruck im Grobsand, der dem Eindringdruck des Mittelsandes (5,5 cm Wassersäule) entspricht, war daher auf Grund von Vorversuchen eine TCE-Sättigung von 0,7 im Grobsand und somit auch keine oder nur eine sehr geringe TCE-Drainage aus den Grobsandlinsen erwartet worden. Hier stimmte das numerische Modell mit den experimentell gemessenen Daten überein. Dies war auch erwartet worden, da im numerischen Modell im Bereich der Linsen die richtigen konstitutiven Beziehungen angewendet wurden (Brooke/Corey-Burdine), während in den homogenen Mittelsandbereichen die Finger im Modell (noch) nicht berücksichtigt waren.

Die tatsächliche Sättigung der Grobsandlinsen des physikalischen Modells mag geringfügig höher gewesen sein als die durch das Gammamessungssystem gemessene. Das lag daran, dass die Gammamessung in sehr geringem Maße die Sättigung des umliegenden Sandes mit einbezog.

3.2.3 Druckentwicklung in den heterogenen Befüllungen

In jedem heterogenen Infiltrationsexperiment stimmte die visuell bestimmte Ausdehnung des TCE mit den Reaktionen der Druckaufnehmer gut überein. Der generelle Trend der Druckentwicklung in der heterogenen Befüllung war ähnlich wie beim homogenen Aquifer, es gab jedoch einige spezifische Unterschiede. Wie in den vorherigen Abschnitten wird der Vergleich der gemessenen und berechneten Drücke exemplarisch für eine Befüllung (10a) diskutiert (Abb. 10). Die beobachteten Trends und deren Interpretationen waren für alle Befüllungen gleich.

Experimentell ermittelte Druckentwicklung in der heterogenen 10a-Befüllung

Der Tensiometer PT4 war in einer Grobsandlinse der 10a-Befüllung eingebaut worden (ABB. 10b). Nach Ankunft des TCE stieg der Druck leicht an und stabilisierte sich zeitweilig an einem mittleren Kapillardruck, bevor er in einem zweiten Schritt wieder anstieg und sich dann endgültig stabilisierte. Dieses Verhalten kann damit erklärt werden, dass der Durchmesser der Tensiometer (13 mm) größer als die Mächtigkeit der Grobsandlinse (10 mm) war und deshalb die Tensiometer in den Grobsandlinsen auch in Kontakt mit dem umgebenden Mittelsand standen.

Ein ähnliches Verhalten wurde an den Tensiometern PT3 und PT7 beobachtet. Diese Tensiometer waren im Mittelsand eingebaut worden, hatten aber Kontakt mit derselben, darüber liegenden Grobsandlinse. Nachdem das TCE den Tensiometer PT7 erreicht hatte (23 Minuten), nahm der Druck in diesem Tensiometer langsam zu, während sich das TCE in der darüber liegenden Grobsandlinse horizontal ausbreitete und nach 26 Minuten an PT3 ankam. Danach nahm der Kapillardruck, während sich die Poren der Grobsandlinse mit TCE füllten, in beiden Tensiometern gleichmäßig zu, bis der Eindringdruck des Mittelsandes erreicht war. Nach 37 Minuten war der Maximaldruck in der Linse erreicht und der Kapillardruck stabilisierte sich. Kurz

darauf wurde TCE in PT4 (Abb. 10b) und PT11 (Abb.10c) entdeckt. In PT 9 konnte kein TCE nachgewiesen werden.

Der Kapillardruck, bei welchem der Tensiometer PT4 nach ca. 40 Minuten ein Gleichgewicht erreichte, korrespondiert direkt mit dem Eindringdruck des umgebenden Mittelsandes, was als Anzeichen dafür gewertet werden kann, dass die angenommenen konstitutiven Beziehungen richtig waren.

Obwohl die Messung am Tensiometer PT2 erwarten ließ, dass TCE in die Feinsandlinse eingedrungen war, ist dies wohl nicht richtig. Der TCE-Druck war zu gering, um den Eindringdruck der Feinsandlinse aufzubringen, und es ist davon auszugehen, dass die Messung dieses Tensiometers durch die Sättigung im darüber liegenden Mittelsand beeinflusst war.

Numerische Simulation der heterogenen 10a-Befüllung

Die numerischen Ergebnisse bezüglich des Erreichens des TCEs der verschiedenen Tensiometer (Abb. 11) stimmen hinreichend genau mit den experimentellen Resultaten überein. Der Druckverlauf folgte demselben generellen Trend: zuerst ein schneller Anstieg, dem ein weiterer langsamer Anstieg folgte. Die numerischen Ergebnisse für den Tensiometer PT2 reflektierten nur die Bedingungen in der Mitte der Feinsandlinse. Somit wurde auch keine Zunahme des Kapillardrucks vorausgesagt. Dies stimmte mit den gemessenen Daten nicht überein, da der Tensiometer im Kontakt zu dem darüber liegenden Mittelsand war.

Der parallele Druckanstieg in den Tensiometern PT3 und PT7 wurde auch im numerischen Modell vorhergesagt (Abb. 11c). Die langsamere Druckzunahme in vielen Tensiometern, z.B. PT12, nach 52 und 54 Minuten, ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass während dieser Zeit eine Grobsandlinse befüllt wurde und dadurch die Druckzunahme im Mittelsand zeitweilig weniger schnell zunahm.

Abbildung 10: Gemessene Kapillardrücke als Funktion der Zeit im heterogenen(10a) Aquifer
a) entlang der Mittelachse, b) unterste Reihe, c) oberste Reihe

Abbildung 11: Berechnete Kapillardrücke als Funktion der Zeit im heterogenen (10a) Aquifer
a) entlang der Mittelachse, b) unterste Reihe, c) oberste Reihe

Abbildung 12: a) Erstes Moment der nichtbenetzenden Phase
(vertikale Ausbreitung - Z_o) als Funktion des injizierten Volumens
b) Zweites Moment der nichtbenetzenden Phase
(horizontale Ausbreitung - F_{xx}) als Funktion des injizierten Volumens
(experimentelle Daten als Linie, berechnete Daten gestrichelt dargestellt)

Obwohl die Ausbreitung des TCE im Mittelsand der heterogenen Befüllung aufgrund der Beobachtungen an der Glasscheibe sich anscheinend nicht wie das konzeptionelle Modell verhielt, entsprachen die Trends der Druckaufnehmer an verschiedenen Stellen (die meisten waren im Mittelsand angeordnet) trotzdem den Vorhersagen durch das numerische Modell. Die größten Unterschiede waren höhere Drücke (teilweise bis zu 50%) und etwas schnellere Ausbreitungszeiten. Dies zeigt, dass wenn Makro- bzw. Mikroheterogenitäten vorhanden sind, die die Fingers kontrollieren, der Ansatz des Kontinuummodells für die Berechnung der Ausbreitung des TCEs anwendbar ist. Dagegen werden in einem homogenen Modell, wo die Instabilitäten (Fingers) nicht durch makro- bzw. mikroskalige Heterogenitäten verhindert werden, in den experimentellen Untersuchungen sehr viel kürzere Ausbreitungszeiten gemessen. Interessant ist, dass die Drücke der heterogenen Modelle kaum größer sind als die gemessenen Drücke in den homogenen Versuchen.

3.2.4 Momentenanalyse der horizontalen und vertikalen TCE-Verteilung

Die horizontale und vertikale Verteilung des TCE als Funktion des injizierten Volumens wurde wie im vorigen Kapitel beschrieben ermittelt. Während allen Infiltrationsversuchen in einer heterogenen Packung wurde der Grad der horizontalen Verteilung (F_{xx}) und auch die Tiefe des Massenschwerpunktes (Z_c) als Funktion der Infiltration durch das numerische Modell unterschätzt (Abb. 12). Die TCE-Sättigung der Grobsandlinsen wird durch das Modell in guter Annäherung beschrieben. Nachdem jedoch die Masse, die im Mittelsand zurückgehalten war, vom Modell überschätzt wurde, stand in der numerischen Voraussage weniger TCE zur Ausbreitung der Front zur Verfügung, wodurch eine langsamere Ausbreitung für eine gegebene Injektionsmasse vorhergesagt wurde.

Mit der Ausbreitung der Front geht ein Kontakt des TCE mit dem Mittelsand, wo der Unterschied zwischen gemessener und vorhergesagter Sättigung divergiert, einher. Deshalb ist zu erwarten, dass die experimentellen und numerischen Daten als Funktion der Zeit divergieren. Die Trends der numerisch und experimentell ermittelten Momente sind annäherungsweise linear und gehen durch den Ursprung des Koordinatensystems. Es ist zu erwarten, dass diese Momente solange divergieren, bis die Quelle ausgeschaltet wird. Ein Vergleich der berechneten und gemessenen Momente nach dem Ausschalten der Quelle ist nicht sinnvoll, da die vertikale Ausbreitung innerhalb des Systems durch die unten liegende Kapillargrenze behindert wird.

Obwohl alle heterogenen Befüllungen mittels Zufallsverteilung einer gleichen Anzahl von feinen und groben Linsen durchgeführt worden waren, war die Anzahl der Feinsandlinsen in der 10b-Befüllung in der Nähe der Quelle viel höher als die der Grobsandlinsen (vergleiche Abb. 6a und 6b). Wie in vorausgehenden Abschnitten schon diskutiert, wurde die Akkumulation von TCE über den Feinsandlinsen durch das numerische Modell überschätzt, was in einer höheren "Pooling-Rate" in der Nähe der Quelle resultierte als experimentell gemessen wurde. Zusätzlich

waren bei der 10b-Befüllung in der Nähe der Quelle weniger Grobsandlinsen angeordnet (wo die experimentellen und numerischen Ergebnisse besser übereinstimmen). Dies erklärt, weshalb die numerischen und experimentellen Daten bei der 10b-Befüllung mehr als bei den anderen Befüllungen divergierten und verdeutlicht, dass das Verhalten im Bereich von Grobsandlinsen durch das Modell besser vorhergesagt wird als das Verhalten in Bereichen, in denen Feinsandlinsen dominieren.

3.3 Numerische Simulation unter Berücksichtigung einer „Finger“-Porosität

In den vorhergehenden Abschnitten war diskutiert worden, dass beim Vorhandensein von Instabilitäten (Fingern) Unterschiede zwischen beobachteten und vorhergesagten Ausbreitungsgeschwindigkeiten und horizontalen TCE-Verteilungen zu verzeichnen sind. Dies liegt daran, dass in den Fingern weniger TCE zurückgehalten wird, als wenn der gesamte Mittelsand gleichförmig mit TCE gesättigt wäre. Als direktes Resultat dieser unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten ist auch beim experimentellen Versuch (mit Fingern) am unteren Rand der Rinne mehr TCE nachzuweisen (Pool).

Um den Einfluss von Fingern und Instabilitäten auch im numerischen Modell berücksichtigen zu können, wurde ein spezieller Begriff für die Porosität, die „Fingerporosität“, eingeführt. Unter Fingerporosität wird nur der Teil der Porosität verstanden, der durch Finger definiert wird und deshalb ist die Finger-Porosität geringer als die wirkliche Porosität. Bei den weiteren numerischen Berechnungen wurde die Porosität des Mittelsandes entsprechend modifiziert. Die Permeabilität, das Kapillardrucksättigungsverhalten sowie die relative Permeabilität wurden nicht verändert. Ebenso blieben die Parameter der Grob- und Feinsandlinsen unverändert. Ziel dieser Veränderung war es nicht, die numerischen Daten den experimentellen anzupassen, sondern eher nachzuweisen, dass eine Verringerung der Porosität im porösen Medium, in dem Finger dominierten, z.B. im Mittelsand, zu einer allgemein besseren Beschreibung der vertikalen und horizontalen Ausbreitung sowie der endgültigen TCE-Verteilung führten.

Bei den weiteren Berechnungen wurden für den Mittelsand eine „Fingerporosität“ von der Hälfte der für diesen Sand gemessenen Porosität angenommen. Physikalisch würde das bedeuten, dass nur die Hälfte des Porenraumes an der DNAPL-Ausbreitung (Finger) beteiligt war. Diese numerischen Berechnungen werden im weiteren als Fingerporositätsmodelle bezeichnet.

In Abb. 13 wird die gemessene TCE-Verteilung und die numerisch berechnete (Fingerporositätsmodell) in der 10b-Befüllung nach Beendigung der Infiltration dargestellt (siehe Abb. 7 zum direkten Vergleich ohne Berücksichtigung der Finger). Zur Verdeutlichung die Sättigungsverteilung des TCE im Fingerporositätsmodell gegenüber dem herkömmlichen Porositätsmodell mit einem Faktor von 0,5 multipliziert, wodurch die Sättigungen relative, skalierte Sättigungswerte pro Volumen repräsentierten. Wie erwartet, wurde weniger TCE im

Fingerporositätsmodell zurückgehalten, was bei gleicher Infiltrationsmenge, verglichen mit dem herkömmlichen numerischen Modell, in einer schnelleren Ausbreitung und einem größeren Volumen an durch TCE infiltriertem porösen Material resultierte.

Abbildung 13: Mit dem Fingerporositätsmodell berechnete Sättigungsverteilung am Ende der Infiltrationszeit (10b-Befüllung)

Die Momentenanalyse der vertikalen und horizontalen Verteilung im Vergleich zu den experimentellen Daten zeigte, dass das neue Modell die horizontale TCE-Verteilung als Funktion des injizierten Volumens richtig voraussagte (Abb. 15), während die Voraussagen der vertikalen Ausbreitung als Funktion der Injektionsrate durch das Modell überkorrigiert wurden (Abb. 14).

Abbildung 14: Erstes Moment der nichtbenetzenden Phase (vertikale Ausbreitung - Z_c) als Funktion des injizierten Volumens (experimentell, numerisch mit Kontinuumsansatz und numerisch mit Fingerporositätsansatz)
a) 10a-Befüllung, b) 20a-Befüllung, c) 10b-Befüllung

Abbildung 15: Zweites Moment der nichtbenetzenden Phase (horizontale Ausbreitung - F_c) als Funktion des injizierten Volumens (experimentell, numerisch mit Kontinuumsansatz und numerisch mit Fingerporositätsansatz)
a) 10a-Befüllung, b) 20a-Befüllung, c) 10b-Befüllung

Wichtiger noch als die dynamische Ausbreitung ist für die praktische Anwendung in der Grundwasser- und Aquifersanierung die letztendliche Verteilung des TCE im Boden. Abbildung 16 zeigt die mit dem Fingerporositätsmodell errechnete TCE-Ausbreitung in der 10b-Befüllung nach Erreichen von hydrostatischen Bedingungen (10 Stunden) zum Vergleich der gemessenen bzw. der durch numerische Simulation mit dem herkömmlichen Modell berechneten TCE Verteilung (Abb. 8a und b). In Abbildung 17 werden die Ergebnisse der Experimente und der verschiedenen Modelle gegenübergestellt. Dabei sind die experimentellen Ergebnisse durch eine fette Linie, die Ergebnisse des Fingerporositätsmodell gepunktet und die des herkömmlichen numerischen Modells mit einer feinen Linie dargestellt. Die Simulationen mit dem Fingerporositätsmodell sagten einen geringeren Anteil von zurückgehaltenem TCE voraus und als direktes Resultat auch einen größeren Anteil von TCE auf der Kapillarbarriere am Boden der Rinne. Durch das Fingerporositätsmodell wurde auch das Pooling auf den Feinsandlinsen besser vorhergesagt. Auf der anderen Seite hatte dieses Modell wie keinen negativen Effekt auf Pooling und Einschluss des TCE in Grobsandlinsen.

Abbildung 16: Mit dem Fingerporositätsmodell berechnete Sättigungsverteilung nach Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts (10b-Befüllung)

Während durch das Fingerporositätsmodell ein größerer Anteil des injizierten TCE-Volumens zur Ausbreitung zur Verfügung steht und somit sich die Front schneller als mit dem herkömmlichen Modell berechnet vergrößert, hat es nur einen äußerst geringen Einfluss auf die Form der Front, während sich diese im Untergrund ausbreitet. Dies wird im Vergleich der Abbildungen 8b und 16 sehr deutlich gezeigt.

Abbildung 17: Sättigungsprofil durch die Mittelachse der Rinne (10b-Befüllung) nach Erreichen des hydrostatischen Gleichgewichts
gemessene Sättigung (gestrichelt), nach Kontinuumsansatz numerisch berechnet (Linie), und mit dem Fingerporositätsansatz numerisch berechnet (gepunktet)

4 Zusammenfassung

Eine Serie von TCE-Infiltrationen in eine quasi-zweidimensionale wassergesättigte Rinne mit homogener und heterogener Sandbefüllung wurde durchgeführt. Ziel war es, den Einfluss von Heterogenitäten in Form von Grob- und Feinsandlinsen auf verschiedenen Skalen (Mikro- und Makroskala) auf die Entwicklung der Schadstoffausbreitung unter Berücksichtigung von Instabilitäten zu untersuchen. Aufgrund der experimentellen Ergebnisse wurden Möglichkeiten und Grenzen des Mehrphasenmodells „MUFTE“ aufgezeigt. In einem weiteren Schritt wurde das Modell modifiziert, um eine instabile Ausbreitung von DNAPL in der gesättigten Zone besser bestimmen zu können.

Die experimentellen Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die Ausbreitung des DNAPL fand im makroskopisch homogenen Medium sehr schnell statt und war aufgrund von mikroskopischen Heterogenitäten durch abwärts gerichtete "Finger" dominiert.
- Bei heterogenen Befüllungen konnten diese Instabilitäten im Bereich des makroskopisch homogenen Mittelsandbereichs ebenfalls nachgewiesen werden, sie wurden jedoch durch die makroskopische Heterogenität des porösen Materials (Fein- und Grobsandlinsen) stabilisiert, damit wurde die Ausbreitung des TCE verlangsamt.
- Sobald die "Finger" eine Grobsandlinse erreicht hatten, fand eine horizontale Ausbreitung, als horizontales Channeling bezeichnet, statt, bis diese Linse mit TCE angereichert war. Danach setzte wiederum vertikales "Fingering" im umliegenden Mittelsand ein.
- An den Grenzschichten zu Feinsandlinsen fand eine horizontale Umleitung des TCE statt. Dabei wurde nur eine sehr geringe Akkumulation von TCE auf diesen Linsen beobachtet. Dies mag z.T. auch in der Dicke (8,5 cm) des quasi-zweidimensionalen porösen Mediums begründet sein.
- TCE wurde in hoher Sättigung in den Grobsandlinsen zurückgehalten, solange der dort herrschende Kapillardruck geringer war als der Eindringdruck des umgebenden Mittelsandes.
- Da die Front sich hauptsächlich durch "Fingering" ausbreitete, wurde sehr wenig TCE im Mittelsand zurückgehalten. Die einzige Akkumulation von TCE fand in den Grobsandlinsen statt.

Der Vergleich von experimentellen Resultaten und numerischen Modellen (Kontinuums-Ansatz) kam zu folgendem Ergebnis:

- Das auf Kontinuität basierende numerische Modell ist für die Infiltration von TCE in homogenem porösem Material nicht anwendbar, da die Ausbreitung des TCE durch vertikales „Fingering“ kontrolliert wird.
- Bei den heterogenen Modellen waren die numerischen Voraussagen besser, trotzdem sagte das Modell auch hier eine zu geringe Ausbreitungsgeschwindigkeit und eine zu geringe TCE-Sättigung in den homogenen Mittelsandbereichen, in denen eine instabile Ausbreitung stattfand, voraus. Dies resultierte in einer Unterschätzung der horizontalen und vertikalen Ausbreitung des TCEs für ein definiertes TCE-Volumen.
- Die vom Modell berechneten Druckverteilungen stimmten in den heterogenen Modellen hinreichend genau mit den experimentellen Daten überein (Dies war sogar für die durch Finger dominierten Mittelsandbereiche gültig). Unterschiede waren lediglich in der Höhe der Drücke und vor allem im zeitlichen Verlauf der Druckreaktionen zu verzeichnen.

Nachdem der bei der Ausbreitung von TCE in makroskopisch homogenen Material vor allem durch Instabilitäten und den daraus resultierenden „Fingers“ geprägt ist, das auf dem Kontinuums-Ansatz basierende numerische Modell dies jedoch nicht berücksichtigt, musste ein neuer Ansatz zur numerischen Bestimmung der TCE-Ausbreitung gefunden werden:

- Im „Fingerporositätsmodell“ wurde die Porosität des makroskopisch homogenen Mittelsandes derart verändert, dass nur ein reduzierter Anteil der Poren an der Ausbreitung beteiligt war (Finger). Dies führte zu einer schnelleren und auch räumlich ausgedehnteren Ausbreitung des TCE und somit zu einer guten Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.
- Besonders wichtig, auch im Hinblick auf die Feldanwendung, ist, dass das Fingerporositätsmodell nicht nur die Ausbreitung, sondern auch die letztendliche hydrostatische TCE-Verteilung in einem gesättigten Aquifer besser voraussagt und somit auch die gezielte Implementation von Sanierungstechnologien ermöglicht.

Bei dem Fingerporositätsansatz handelt es sich um einen relativ einfachen Ansatz, der trotzdem ohne einen wesentlich erhöhten Rechenaufwand sehr viel bessere numerische Vorhersagen der DNAPL-Verteilung im Boden ermöglicht. Trotzdem sollte dieser Ansatz in weiterführenden experimentellen und numerischen Forschungsarbeiten verfeinert und besonders unter Berücksichtigung der die Instabilitäten kontrollierenden Parameter (Fließgeschwindigkeit, Fluideigenschaften und Eigenschaften des porösen Materials) weiter entwickelt werden.

Veröffentlichungen:

Ewing, J., J. Allan, R. Helmig: „Upscaling in Multiphase Flow Modeling“, Vortrag, VEGAS-Statuskolloquium, Universität Stuttgart, 10. Oktober 1997

Allan, J., J. Ewing, R. Helmig, and J. Braun: „Scale Effects in Multiphase Flow Modeling“, Vortrag, First international conference on remediation of chlorinated and recalcitrant compounds, Monterey, Ca, USA, 17.05.-21.05.1998

Allan, J., J. Braun, J. Ewing, and R. Helmig: „Parameters influencing instable multi-phase flow in heterogeneous porous media“ (Arbeitstitel), in Bearbeitung zur Veröffentlichung in Water Resources Research

Literaturverzeichnis

- Abriola, L.M. and Pinder, 1985. A multiphase approach to the modeling of porous media contamination by organic compounds, 1. Equation development and 2. Numerical simulations, *Water Resour. Res.*, 21: 11-26.
- Bear, J. and Y. Bachmat, 1986. "Macroscopic Modelling of Transport Phenomena in Porous Media. 2: Applications to Mass, Momentum and Energy Transport." *Trans. In Por. Med.* 1: 221-269.
- Brewster, M.L., A.P. Annan, J.P. Greenhouse, B.H. Kueper, G.R. Olhoeff, J.D. Redman and K.A. Sander, 1995, Observed migration of a controlled DNAPL release by geophysical methods, *Ground Water*, 33: 977-987.
- Brooks, R.H. and A.T. Corey. 1964. Hydraulic properties of porous media. *Colo. State Univ. Fort Collins, CO, Hydrol. Pap. No. 3,27 pp.*
- Brooks, R.H. and A.T. Corey. 1966. Properties of porous media affective fluid flow. *J. Irrig. Drain. Div. Proc. ASCE. 92IR(2):61-88.*
- Burdine, N.T. 1953. Relative permeability calculations from pore-size distribution data. *Trans. Am. Inst. Min. Met. Eng.* 198:71-77.
- Butts, M.B. and K.H. Jensen, 1996. Effective parameters for multiphase flow in layered soils, *Journal of Hydrology* 183, 101-116.
- Cary, J.W., J.F. McBride and C.S. Simmons, 1989. Observations of water and oil infiltration into soil: some simulation challenges. *Water Resour. Res.*, 25:73-80.
- Croisé, J., R. Helmig and H. Sheta, 1995. Numerical simulations of DNAPL-infiltration processes in saturated heterogeneous porous media. *Proceedings of GQ 95 conference, May 18, Prag.*
- Dullien, F.A.L., 1992. *Porous Media, Fluid Transport and Pore Structure.* Academic Press, 574 S.
- Faust, C.R., J.H. Guswa and J.W. Mercer, 1989. Simulation of three-dimensional flow of immiscible fluids within and below the unsaturated zone. *Water Resour. Res.*, 25: 2449-2464.
- Fayers, F.J. and T.A. Hewett, 1992. A review of current trends in petroleum reservoir description and assessment of the impacts on oil recovery, *Advances in Water Resources*, 15, pp. 341-365.
- Ferrand, L.A., P.C.D. Milly, and G.F. Pinder, 1986. Dual-gamma Attenuation for the determination of porous medium saturation with respect to three fluids. *Water Resour. Res.* 22: 1657-1663.
- Ferrand, L.A., and M.A. Celia, 1992. The effect of heterogeneity on the drainage capillary pressure – saturation relation. *Water Resour. Res.*, 28(3), 859-870.
- Großmann, J. und R. Ruske, 1997. Grundwasserschadensfälle in den neuen Bundesländern. In: Klein, J. (Hrsg.): *Möglichkeiten und Grenzen der Reinigung kontaminierter Grundwässer. Resümee und Beiträge des 12. DECHEMA-Fachgesprächs Umweltschutz.* Frankfurt a. Main: DECHEMA.
- Held, R.J. and T.H. Illangasekara, 1995. Fingering of dense nonaqueous phase liquids in porous media. 1. Experimental investigation. *Water Resour. Res.* 31:1213-1222.
- Helmig, R. 1997. *Multiphase Flow and Transport Processes in the Subsurface: A Contribution to the Modeling of Hydrosystems.* *Environ. Eng., Springer, Berlin.*
- Helmig, R. 1993. *Theorie und Numerik der Mehrphasenströmungen in geklüftet-porösen Medien.* Bericht Nr. 34, Institut für Strömungsmechanik und Elektron. Rechnen im Bauwesen, Universität Hannover.
- Hill S., 1952. Channeling in packed columns. *Chem. Eng. Sci.* 1:247-253.
- Hofstee, C., R.C. Walker and J.H. Dane. 1998. Infiltration and redistribution of Perchloroethylenen in Stratified Water-Saturated Porous Media. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 62:13-22.

- Host-Madsen, J. and H.K. Jensen, 1992. Laboratory and numerical investigations of immiscible flow in soil. *J. Hydrol.*, 135: 13-52.
- Illangasekare, T.H., J.L.Ramsey, K.H. Jensen, and M.B. Butts. 1995. Experimental study of movement and distribution of dense organic contaminants in heterogeneous aquifers. *J. Contam. Hydrol.* 20:1-25.
- Kaluarachchi, J.J. and J.C. Parker, 1987. Effects of hysteresis with air entrapment on water flow in the unsaturated zone. *Water Resour. Res.*, 23: 1967-1976.
- Kaluarachchi, J.J. and J.C. Parker, 1989. An efficient finite element method for modeling multiphase flow. *Water Resour. Res.*, 22: 1109-1114.
- Kueper, B.H., W. Abbott and G. Farquhar. 1989. Experimental observations of multiphase flow in heterogeneous porous media. *J. Contam. Hydrol.* 5:83-95.
- Kueper, B.H. and E.O. Frind, 1988. An overview of immiscible fingering in porous media, *J. Contam. Hydrol.*, 2: 95-110.
- Kueper, B.H. and E.O. Frind, 1991. Two-Phase Flow in Heterogeneous Porous Media: 1. Model development, 2. Model Application, *Water Resour. Res.*, 6: 1049-1070.
- Kueper, B.H. and J.I. Gerhard. 1995. Variability of point source infiltration rates for two-phase flow in heterogeneous porous media. *Water Resour. Res.* 31:2971-2980
- Kueper, B.H., D. Redman, R.C. Starr, S. Reitsma, and M. Mah. 1993. A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene below the water table: spatial distribution of residual and pooled DNAPL. *Groundwater* 31:756-766.
- Lenhard, R.J. and J.C. Parker, 1987. Measurement and prediction of saturation-pressure relationships in three phase porous media systems. *J. Contam. Hydrol.*, 1: 407-424.
- Lenhard, R.J., J.H. Dane, J.C. Parker and J.J. Kaluarachchi, 1988. Measurement and simulation of one-dimensional transient three-phase flow for monotonic liquid drainage. *Water resour. Res.*, 24: 853-863.
- Lenhard, R.J., T.G. Johnson and J.C. Parker, 1993. Experimental observations of nonaqueous-phase liquid subsurface movement. *J. Contam. Hydrol.*, 12:79-101.
- Leverett, M.C., 1941. Capillary behaviour in porous solids. *Trans. Am. Inst. Min. Metall. Eng.*, 142: 152-169.
- LfU Baden-Württemberg, 1997. *Umweltdaten 95/96*. Karlsruhe.
- Lorentz, S.A., D.S. Durnford and A.T. Corey, 1992. Liquid retention measurement on porous media using a controlled outflow cell. A manuscript available from the Dept. of Chemical and Bioresource Engineering, Colorado State University, Fort Collins, CO, USA.
- Lui, H.H., and J.H. Dane. 1997. A numerical study on gravitational instabilities of dense aqueous phase plumes in three-dimensional porous media. *J. Hydrol (Amsterdam)* 194:126-142. Poulsen, M.M. and B.H. Kueper, A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene in unsaturated porous media, *Environ. Sci. Technol.*, 26(5), pp 889-895, 1992.
- McWorther, D.B. and D.K. Sunada, 1990. Exact integral solutions for two-phase flow. *Water Resour. Res.*, 26: 399-414.
- Mualem, Y., 1976. A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resour. Res.*, 12: 513-522
- Poulsen, M.M. and B.H. Kueper, 1992. A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene in unsaturated porous media. *Environ. Sci. and Technol.*, 26:889-895.
- Rad, N.S. and M.T. Tumay. 1985. Factors affecting sand specimen preparation by raining. *Geotechnical Testing Journal*, GTJODJ. V.10, no. 1, March 1987
- Rogers, J.S. and A. Klute, 1971. The hydraulic conductivity-water content relationship during non-steady flow through a sand column. *Soil Sci. Am. Proc.*, 35: 695-699.
- Schiegg, H.O., 1980. Grundlagen, Aufbau und Resultate von Laborexperimenten zur Erforschung von

- Ölausbreitungen in Grundwasserträgern, Rep. VAW-43, Versuchsanstalt für Wasserbau, Zürich.
- Schwille, F. 1984. Leichtflüchtige Chlorwasserstoffe in porösen und klüftigen Medien. Besondere Mitteilungen zum Deutschen Gewässerkundlichen Jahrbuch, Nr. 46, Bundesanstalt für Gewässerkunde, Koblenz.
- Schwille, F. 1988. Dense Chlorinated solvents in porous and fractured media. Lewis Publ., Chelsea, MI.
- van Geel, P.J. and J.F. Sykes, 1994. Laboratory and model simulations of a LNAPL spill in a variably-saturated sand, 1. Laboratory experiment and image analysis techniques, 2. Comparison of laboratory and model results, J. Contam. Hydrol. 17: 1-53
- van Genuchten, M. Th., 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci. Soc. Am. J., 44:892-898.
- White, M.D. and R.J. Lenhard, 1993. Numerical analysis for a three-phase system with fluctuating water table. Proc. 13th Annu. Am. Geophys. Union Hydrology Days, Mar. 30 - Apr.2, 1993, Colorado State Univ., Fort Collins, CO, pp. 219-236.
- Wilson, J.L., S.H. Conrad, W.r. Mason, W.Peplinski, and E. Hagan, Laboratory investigations of residual liquid organics form spill, leaks and the disposal of hazardous wastes in groundwater, Rep. EPA/600/6-90/004, Environ. Prot. Agency, Ada, Okla., 1990.
- Wilson, J.L., 1996. Visualization Experiments at the Pore scale, in: Groundwater and subsurface Remediation: Research Strategies for in-situ Technologies, Ed.: Kobus, H. et. al., Springer Verlag Heidelberg.