# Technologieentwicklung zur <u>ther</u>mischen <u>I</u>n-situ-<u>S</u>anierung gering durchlässiger Böden (THERIS)

A. Winkler, H.-P. Koschitzky, T. Theurer, U. Hiester Institut für Wasserbau, Lehrstuhl für Hydraulik und Grundwasser, Universität Stuttgart

## Kurzfassung

Zur Sanierung von Kontaminationen mit mittel- bis schwerflüchtigen Schadstoffen sowie gering durchlässigen Bodenbereichen existiert zur Zeit kein anwendungsreifes In-situ-Sanierungsverfahren, welches in der Lage ist, die Schadstoffe in kurzer Zeit aus dem Untergrund zu entfernen. Ein Ansatz zur Entwicklung eines solchen Verfahrens ist der Eintrag thermischer Energie durch elektrisch betriebene feste Wärmequellen, mit denen lokal Bodentemperaturen von weit über 100°C erreicht werden können. Durch die Aufwärmung werden die Schadstoffe verdampft und über die Bodenluft aus dem Untergrund ausgetragen.

Zur Untersuchung der Prozesse der Wärmeausbreitung und des Schadstofftransports in einem porösen Medium wurden in der jetzt endenden ersten Projektphase über einhundert 1D-Versuche durchgeführt, bei denen die Parameter, die den Wärme- und Stofftransport in porösen Medien beeinflussen können, variiert. Parallel zu den experimentellen Arbeiten wurden die Prozesse durch numerische Simulationen mit dem Mehrphasen-Mehrkomponentenmodell MUFTE studiert und untersucht. Zur Modellkalibrierung werden die grundlegenden Kenntnisse und Ergebnisse aus den experimentellen Arbeiten herangezogen. Aufbauend darauf konnten Prognoserechnungen erfolgreich durchgeführt werden.

## Development of a thermally enhanced in-situ remediation technology for low permeable soils

A. Winkler, H.-P. Koschitzky, T. Theurer, U. Hiester

Institute of Hydraulic Engineering, Chair of Hydraulics and Groundwater, University of Stuttgart

## Abstract

Up to date there is no in situ remediation technology available to remediate a contamination of the subsurface with low volatile components as well as low permeable layers within a short period. In order to develop such a technology, one of the possible approaches is the input of thermal energy by electrical local heat sources. With these local heat sources, local soil temperatures high above 100°C can be achieved easily, the contaminants vaporize and can be extracted with the soil air from the subsurface.

To investigate as a first step the processes of heat and contaminant transport in a porous medium, more than one hundred one-dimensional experiments have been conducted for which a systematical variation of all parameters which may affect these transport processes has been done. Parallel to the experimental studies, the transport processes were also numerically simulated and studied by a multiphase-multicomponent model MUFTE. For calibrating the model, the experimental results of temperature-dependent batch-experiments were implemented. With these input data, a sensitivity analysis for all the accounting parameters was performed.

# Inhaltssverzeichnis

1	Einleitun	<b>g</b> 1						
2	Laborex	perimente						
	2.1	Experimenteller Aufbau						
	2.2	Versuchsdurchführung 4						
		2.2.1 Permeabilität						
		2.2.2 Schadstoffdichte und -dampfdruck 5						
		2.2.3 Wassersättigung des Bodens						
		2.2.4 Manteltemperatur des Heizelements 5						
3	Ergebnis	se und Diskussion der 1D-Experimente6						
	3.1	Ausführliche Diskussion der Ergebnisse eines Referenzexperiments						
	3.2	Einfluß der Permeabilität, Wassergehalt und Prozeßtemperatur						
	3.3	Einfluß von Schadstoffdichte und -dampfdruck						
4	Aufbau u	und Kalibrierung des numerischen Modells 11						
5	Numeris	che Simulation der Schadstoffexperimente 13						
6	Zusamm	enfassung und Ausblick						
Lit	eraturhiny	<b>veise</b>						

#### 1 Einleitung

# 1 Einleitung

Stand der Technik zur In-situ-Sanierung der ungesättigten Bodenzone bei einer Kontamination mit mittel- bis schwerflüchtigen Schadstoffen ist die herkömmliche Technik der kalten Bodenluftabsaugung (BLA). Sie kann jedoch nur bei leichtflüchtigen Schadstoffen und gut luftdurchlässigen Böden wirtschaftlich sinnvoll angewendet werden. Da die Massenausträge von der Flüchtigkeit des Schadstoffs und dem geologischen Bodenaufbau abhängig sind, kann sich die Sanierung in vielen Fällen über Jahre erstrecken. Durch den zusätzlichen Eintrag von Energie in Form von Wärme erhöht sich die Flüchtigkeit der Schadstoffe, so daß sich die Massenausträge vervielfachen und daraus kürzere Sanierungszeiten resultieren. Durch den engen Kontakt und die Mitarbeit im altlastenforum Baden-Württemberg und dessen unterschiedlichen Arbeitskreisen, der Mitarbeit im EU-Netzwerk NICOLE (Network for Contaminated Land in Europe) und zahlreichen anderen Kontakten zu Altlastenbesitzern wurden den Verfassern deren Probleme immer wieder vor Augen geführt: Typische Schäden mit schwererflüchtigen Mineralölen kommen bei vielen ehemaligen Industriestandorten, zum Teil auch innerstädtisch, vor, so daß eine effiziente Sanierung rasch erfolgen muß. Selbst wenn bei Einsatz eines thermischen Verfahrens der Schadstoff nicht vollständig aus dem Boden entfernt wird und schwererflüchtige Komponenten zurückbleiben, kann die Emission der Schadensquelle schnell und nachhaltig auf ein tolerierbares Maß reduziert oder weitestgehend beseitigt werden.

Ziel des Forschungsvorhabens "*Technologieentwicklung zur <u>ther</u>mischen <u>I</u>n-situ-<u>S</u>anierung gering durchlässiger Böden (THERIS)" ist die Entwicklung eines innovativen Verfahrens zur Sanierung der ungesättigten Bodenzone bei Vorliegen einer Kontamination mit schwerflüchtigen organischen Schadstoffen oder/und gering durchlässigem Untergrund. Der Energieeintrag erfolgt dabei nicht durch Einleiten eines Wärmeträgermediums wie z.B. Dampf (z.B. TUBA-Verfahren, FÄRBER, 1997; BETZ, 1998; BETZ et al., 1998; KOSCHITZKY et al., 1999; SCHMIDT, 2000), sondern durch direkten Energieeintrag über feste Wärmequellen in Form von elektrisch betriebenen Heizpatronen und Wärmeleitung im Untergrund. Gegenüber anderen thermischen Verfahren, wie z. B. dem Radio Frequency Heating (RFH) bietet sich dieser Ansatz wegen seiner einfachen Handhabung und der guten Verfügbarkeit von elektrischem Strom an. Die Gleichmäßigkeit der Aufheizung, die bei allen dieser Verfahren nicht gewährleistet ist, wird bei festen Wärmequellen vor allem durch die Optimierung der Geometrie erreicht, deren dreidimensionale Untersuchung im Technikumsmaßstab Gegenstand unter anderem des zweiten Teils des F+E-Vorhabens ist.* 

In der momentan laufenden ersten Projektphase wurden die grundlegenden Zusammenhänge des Wärme- und Schadstofftransports experimentell und numerisch untersucht, um die Grundlagen für die in der zweiten Projektphase geplanten 3D-Untersuchungen und die Übertragung auf die Feldskala zu ermitteln. Der schematische Aufbau und das Wirkprinzip des Verfahrens sind in Abb. 1.1 dargestellt.

## 1 Einleitung



Abb. 1.1: Prinzipskizze zum Einsatz fester Wärmequellen

Im Vordergrund der im folgenden vorgestellten eindimensionalen experimentellen und numerischen Grundlagenuntersuchungen stand die Analyse aller am Wärme- und Schadstofftransport beteiligten Prozesse.

## 2 Laborexperimente

## 2.1 Experimenteller Aufbau

Kernstück der eindimensionalen (1D) Versuchsanlage war eine DURAN®-Glassäule mit einer Höhe von 40 cm und einem Durchmesser von 10 cm (Abb. 2.1a). Der Energieeintrag erfolgte durch ein elektrisch betriebenes spiralförmige Heizelement am Säulenkopf, so daß eine Erwärmung von oben nach unten erfolgte. Die Temperaturverteilung in der Versuchssäule wurde über 8 in der Säule verteilte Temperaturfühler ( $T_1$  bis  $T_8$ ) auf 5 Meßebenen in den Abständen von 2.5 cm ( $M_1$ ), 7.5 cm  $(M_2)$ , 12.5 cm  $(M_3)$ , 17.5 cm  $(M_4)$  und 22.5 cm  $(M_5)$  des Typs Pt100 gemessen. Alle Fühler wurden dabei mittig in den jeweiligen Meßquerschnitt eingebaut und fixiert. Zusätzlich wurden in der zweiten Meßebene drei weitere Temperaturfühler (T<sub>6</sub> bis T<sub>8</sub>) in unterschiedlichen Positionen angeordnet, um den Einfluß der Säulenberandung auf die Wärmeverluste abschätzen zu können und so die Annahme der Eindimensionalität der Wärmeausbreitung zu kontrollieren. Zur Fixierung der Sandfüllung und Extraktion von Flüssig- und Gasphasenextraktion wurde am unteren Säulenende ein Edelstahl-Lochblech sowie ein Drahtgewebe zwischen Kappe und Mittelteil eingespannt. Zur Minimierung der Wärmeverluste an die Umgebung wurde die Versuchssäule mit Glasfaserdämmatten der Stärke 60 mm umwickelt und mit Draht befestigt. Die Regelung der Manteltemperatur des Heizelements und somit der Leistungszugabe erfolgte über ein eingebautes Ni-Cr-Ni-Thermoelement und einen externen PID-Regler. Über eine am Säulenfuß angeschlossene regelbare Vakuumpumpe wurde die Bodenluftabsaugung durchgeführt. Um keine stark schadstoffbeladene Luft oder flüssige Phase in die Pumpe zu ziehen, mußte ein Kondensator und ein Flüssig/Gasphasenabscheider der Pumpe vorgeschaltet werden (Abb. 2.1b).



Abb. 2.1: Versuchsanlage der 1D-Experimente, a) Versuchssäule, b) Gesamtaufbau

Die aus der Säule austretende Flüssigphase wurde über ein barometrisches Fallrohr in einen Abscheider geleitet und konnte dort direkt abpipettiert werden. Die extrahierte Luft wurde durch eine Gaswäsche geleitet, in der eine Lösung des Schadstoff in Acetonitril erzielt wurde. Durch regelmäßiges Beproben war eine zeitlich differenzierte Erfassung des Schadstoffaustrags in der Gasphase möglich.

## 2.2 Versuchsdurchführung

Im Mittelpunkt der eindimensionalen Untersuchungen stand die Ermittlung der Abhängigkeit des Wärme- und Schadstofftransports bei hohen Temperaturen von den maßgebenden Einflußgrößen:

- *Permeabilität/Korngrößenverteilung* (Grobsand, Feinsand, Lößlehm)
- Schadstoffdichte (LNAPL oder DNAPL)
- *Schadstoffdampfdruck* (Siedepunkt von Schadstoff im Vergleich zum Siedepunkt von Wasser, z.B. TCE, m-Xylol, Mesitylen, o-DCB oder Naphthalin)
- *Wassersättigung* des Bodens (trocken oder wasserprimärgesättigt)

- *Manteltemperatur* des Heizelements (kalte BLA, 200°C, 300°C)

Um direkt vergleichbare Daten zu erhalten, war es notwendig, alle Experimente in gleicher Weise vorzubereiten, aufzubauen und durchzuführen. Um den Einfluß verschiedener Parameter eindeutig zu erfassen, wurde ein "Referenzexperiment" durchgeführt und von diesem ausgehend bei jedem folgenden Experiment jeweils nur eine Größe verändert, während die anderen konstant gehalten wurden. So konnten die ablaufenden Prozesse getrennt untersucht, erfaßt und bewertet werden.

#### 2.2.1 Permeabilität

Als Säulenfüllungen wurden zwei Quarzsande mit unterschiedlichen Korngrößenverteilungen eingesetzt. Zusätzlich zu den gewaschenen Sanden wurde ein Lößlehm als natürlicher, bindiger Boden untersucht, der bei Heilbronn-Böckingen abgebaut und von BRINKMANN (1998) detailliert untersucht wurde. In Abb. 2.2 sind die Sieblinien aller Böden dargestellt.



Abb. 2.2: Korngrößenverteilung der eingesetzten Böden

#### 2 Laborexperimente

### 2.2.2 Schadstoffdichte und -dampfdruck

Um in den Sanierungsexperimenten eine möglichst große Schadstoffpalette abzudecken, wurden repräsentative Chemikalien der bei Altlasten häufig vorkommenden organischen Schadstoffe ausgewählt. Die Auswahl erfolgte auf der Basis des Schadstoffdampfdruckes bzw. Siedepunkts und der Dichte im Vergleich zur Dichte von Wasser, also LNAPL oder DNAPL. Als Schadstoffe mit einer geringeren Dichte als Wasser wurden m-Xylol und Mesitylen gewählt, als Schadstoffe mit einer höheren Dichte als Wasser wurden TCE, Dichlorbenzol und Naphthalin eingesetzt. Eine Übersicht über die wichtigsten Schadstoffeigenschaften ist in Tab. 2.1 gegeben.

Stoffkennwerte		LNAPL		DNAPL		
	Wasser	Xylol	Mesity- Ien	TCE	o-DCB	Naphthalin
Dichte bei 20°C [g/cm <sup>3</sup> ]	0.998	0.862	0.865	1.465	1.298	1.179
Molmasse [g/mol]	18.0	106.2	120.2	131.4	147.0	128.2
Schmelzpunkt [°C]	0.0	-47.8	-44.7	-73.0	-17.0	80.2
Siedetemperatur [°C]	100.0	139.1	164.7	86.6	180.0	218.0
Dampfdruck [mm Hg] bei T <sub>1</sub> [°C]	1013.2 (100°C)	238.9 - 280.8 (100°C)	134.7 (100°C)	37.6 (50°C)	67.1 (100°C)	22.7 (100°C)

Tab. 2.1: Stoffkennwerte der eingesetzten Schadstoffe (DAVIS, 1997; BETZ, 1998; YAWS, 1999)

## 2.2.3 Wassersättigung des Bodens

Zur Ermittlung des Einflusses der Wasserprimärsättigung auf den Wärmetransport wurden Versuche mit zwei unterschiedlichen Anfangswassergehalten durchgeführt. Gewählt wurde trockener Sand sowie Sand mit einer Primärsättigung im Bereich der Residualsättigung des jeweiligen Sandes. Die Sättigung von 0% wurde durch eine Ofentrocknung nach DIN 18121, Teil 1 (1998) erzielt. Die Primärsättigung des untersuchten Bodens wurde für beide Sande über die Injektion von Sattdampf und für den Lößlehm durch Zugabe einer definierten Wassermenge und mechanisches Vermischen vor dem Einbau in die Versuchssäule erzielt.

#### 2.2.4 Manteltemperatur des Heizelements

Um den Einfluß des zusätzlichen Energieeintrags in Form von Wärme zu untersuchen, wurden drei verschiedene Prozeßtemperaturen gewählt: zum einen wurde eine kalte Bodenluftabsaugung betrieben, zum anderen wurde die feste Wärmequelle auf 200°C bzw. 300°C erhitzt und während der gesamten Versuchsdauer konstant gehalten.

# **3** Ergebnisse und Diskussion der 1D-Experimente

## 3.1 Ausführliche Diskussion der Ergebnisse eines Referenzexperiments

Um die ablaufenden Prozesse des Wärme-und Schadstofftransports in einem porösen Medium zu diskutieren, sollen im folgenden die Ergebnisse eines Experiments exemplarisch dargestellt werden. Eine mit Feinsand gefüllte und mit Wasser primärgesättigte Versuchssäule wurde mit einem definierten Volumen Mesitylen kontaminiert, das zu Visualisierungszwecken rot angefärbt wurde. Die Heizelementtemperatur betrug 300°C und die Bodenluftabsaugrate 200 ml/min. Der Versuch wurde über 48 Stunden betrieben, während der gesamten Versuchsdauer wurden die Temperaturen an den acht Meßstellen aufgezeichnet und der Schadstoffaustrag über die Flüssigund Gasphase überwacht. Die in Abb. 3.1 dargestellten Fotos zeigen den zeitlichen Verlauf des Experiments.



Abb. 3.1: Sanierung einer mit Mesitylen kontaminierten Versuchssäule a) vor Versuchsbeginn (rote Färbung), b) nach 4 h ist oberer Bereich schon sauber, c) nach Versuchsende

In Abb. 3.2 dargestellt ist der zeitliche Temperaturverlauf für die Meßebenen 1 bis 5 in der Versuchssäule. Wie beim reinen Wärmetransportexperiment (WINKLER et al., 2000a) steigt auch hier die Temperatur nahe des Heizelements sehr schnell und stark an und verflacht mit zunehmender Versuchsdauer. In der zweiten Meßebene ist ein beinahe ebenso schneller Anstieg zu beobachten, der dann auf einer Temperatur von knapp 100°C stagniert und erst einige Stunden später wieder ansteigt. Die Wärmeausbreitung erfolgt in zwei Phasen. Dieses Stagnieren auf der Plateauoder Gemischsiedetemperatur wird durch das gemeinsame Sieden der zwei nicht miteinander mischbaren Fluide Wasser und Mesitylen verursacht. In den Meßebenen 3, 4 und 5 dagegen wird die Plateautemperatur nicht erreicht, so daß dort sowohl noch Wasser als auch NAPL im Porenraum vorhanden ist, wie auch später genommene Bodenproben bestätigen. Um die Massenbilanz zu komplettieren, wurden neben der zeitlichen Erfassung des Flüssig- und Gasphasenaustrags nach Versuchsende Bodenproben über die gesamte Säulenhöhe entnommen.



Abb. 3.2: Temperaturverläufe während des Referenzexperiments

In Abb. 3.3 sind vergleichend die Bodenproben an einer kontaminierten, mit kalter BLA bzw. thermisch sanierten Sandfüllung dargestellt. Deutlich sichtbar ist die Reduktion der Konzentrationen um sechs Größenordnungen im Bereich nahe des Heizelements und damit im Bereich hoher Temperaturen gegenüber der kalten BLA, bei der für denselben Zeitraum keine nennenswerte Abnahme der Konzentrationen zu beobachten war.



Abb. 3.3: Vergleich Mesitylen-Bodenkonzentrationen in der Versuchssäule

Die Gesamtmassenbilanz des Experiments ist in Abb. 3.4 dargestellt. Durch den Energieeintrag und der damit verbundenen Temperaturerhöhung wurde die Viskosität des Schadstoffes herabgesetzt, so daß als Hauptschadstoffaustrag knapp 90% der eingebrachten Masse als Flüssigphase ausgetragen werden konnte. Über die Gasphase dagegen wurden nur 0,5% der Gesamtmasse ausgetragen. Im Boden konnten nach Versuchsende noch ca. 4% der ursprünglich eingetragenen Masse detektiert werden. Nicht erfaßt wurden ca. 6%, verursacht wurde dies durch Ungenauigkeiten beim Wiegen, Einfüllverluste etc. Insgesamt läßt sich bei diesem thermischen Verfahren im Gegensatz zur kalten BLA eine sehr gute Sanierungseffizienz feststellen.



Abb. 3.4: Massenbilanz nach Ende des Versuchs

## 3.2 Einfluß der Permeabilität, Wassergehalt und Prozeßtemperatur

Nach der Erfassung aller maßgebenden Parameter und ablaufenden Prozesse über das in Kap. 3.1 beschriebene Referenzexperiment wurde der Einfluß der einzelnen Größen auf den Sanierungsverlauf durch gezielte Variation untersucht. So wurde z.B. bei einer mit Mesitylen kontaminierten Versuchssäule die Prozeßtemperatur variiert, so daß einmal nur die Bodenluftabsaugung betrieben, in zwei anderen Experimenten aber zusätzlich die feste Wärmequelle auf 200°C bzw. 300°C erhitzt wurde. Außerdem wurde der Einfluß des Wassergehalt auf den Wärmetransport untersucht, wobei in den Experimenten sowohl ofengetrockneter als auch wasserprimärgesättigter Feinsand, mit Mesitylen kontaminiert, eingesetzt wurde. Zusätzlich konnte auch noch die Permeabilität variiert werden, indem anstatt Feinsand ein Grobsand oder ein Lößlehm eingesetzt und kontaminiert wurde. Ein Vergleich der Massenbilanzen aller Versuche ist in Abb. 3.5 dargestellt.

Bei der kalten BLA konnte man bis zum Versuchsende (48 h Versuchsdauer) keinen nennenswerten Schadstoffaustrag in der Gas- oder Flüssigphase verzeichnen. Es konnten noch über 80% des eingetragenen Schadstoffs im Boden nachgewiesen werden. Erfolgte aber der Einbau des Schadstoffs in ofengetrocknetem Sand, so konnten auch beim Betrieb der festen Wärmequelle mit 300°C zwar gegenüber der BLA höhere Austragsraten erzielt werden, die ausgetragene Masse lag jedoch nur bei ca. 5% der Gesamtmasse. Dies liegt daran, daß in diesem System der Schadstoff und nicht Wasser die Bodenkörner benetzt und durch adhäsive Kräfte am Korngerüst gehalten wird. Dieses Experiment ist als Extremfall anzusehen, da in der Realität ein Schadstoff in einen feuchten Boden eindringt und daher das nichtbenetzende Fluid im System Boden-Wasser-Schadstoff-Luft bildet. Erhöht man in diesem System die Temperatur auf 200°C oder auf 300°C, so ist eine deutliche Erhöhung des Austrags an Flüssigphase zu beobachten, zudem nehmen die Konzentrationen in der Gasphase deutlich zu. Dabei ist zwischen Grob- und Feinsand kein nennenswerter Unterschied festzustellen, während im Lößlehm aufgrund des hohen Wassergehalts eine lang-



samere Erwärmung und damit gekoppelt ein langsamerer Schadstoffaustrag zu beobachten ist.

Abb. 3.5: Massenbilanz der Mesitylen-Sanierungsexperimente

## 3.3 Einfluß von Schadstoffdichte und -dampfdruck

Um die Abhängigkeit der Sanierungseffizienz von der Dichte und dem Dampfdruck des im Porenraum vorliegenden Schadstoffes zu untersuchen, wurden Sanierungsexperimente mit unterschiedlichen Chemikalien durchgeführt, Xylol, Mesitylen, TCE, DCB und Naphthalin. Auf die Untersuchung von Gemischen wurde wegen der notwendigen Bilanzierbarkeit und der schon bei reinen Stoffen hohen Komplexität der ablaufenden Prozesse verzichtet. Versuche mit Gemischen werden im Rahmen der zweiten Projektphase durchgeführt.

Eine mit Feinsand gefüllte und mit Wasserdampf primärgesättigte Versuchssäule wurde mit einem definiertem Volumen an Schadstoff kontaminiert. Über 48 Stunden erfolgte eine Erwärmung der Säule mit einer Manteltemperatur des Heizelements von 300°C und einer Bodenluftabsaugrate von 200 ml/min. Zusammengefaßt sind die Ergebnisse der Massenbilanzen der vergleichenden Schadstoffexperimente in Abb. 3.6 dargestellt.

Man erkennt, daß mit zunehmendem Siedepunkt der Schadstoffe der Massenaustrag deutlich abnimmt. Die Austragsraten von TCE und Xylol, beides Schadstoffe mit einem relativ niedrigen Siedepunkt, sind sowohl in der Flüssig- als auch in der Gasphase sehr hoch. Die im Boden nach dem Versuch verbleibende Restkontamination waren nahe der analytischen Nachweisgrenze.



Abb. 3.6: Massenbilanz der Sanierungsexperimente für verschiedene Schadstoffe bei konstanten Versuchsbedingungen

DCB oder Naphthalin, die beide einen sehr hohen Siedepunkt besitzen, wurden im Bereich nahe des Heizelements verdampft, da aber mit zunehmender Entfernung vom Energieeintrag die Temperatur abnimmt, kondensierten sie dort aus und konnten nicht vollständig aus dem Boden entfernt werden. Trotzdem weist auch hier das thermische Verfahren deutliche Vorteile gegenüber der kalten Bodenluftabsaugung auf, die für diese Chemikalien nach WINKLER et al. (2001) als "nicht mehr wirtschaftlich einsetzbar" zu betrachten ist.

# 4 Aufbau und Kalibrierung des numerischen Modells

Für die numerische Validierung der Wärmeexperimente ohne Schadstoff wurde das nichtisotherme Mehrphasen-Mehrkomponenten-Modell MUFTE (Multiphase Flow, Transport and Energy, Helmig 1998) verwendet. Das Finite-Elemente-Netz mit 80 Elementen besteht aus 27 Reihen und 3 Spalten, von denen die mittlere Spalte die Säule charakterisiert, während die äußeren Spalten die Isolierung beschreiben.

Bei der Modellierung nichtisothermer Prozesse muß auch die Temperaturabhängigkeit verschiedener das Fließverhalten von Fluiden beschreibender Parameter berücksichtigt werden. Diese sind jedoch vielen Fällen nicht oder nur unzureichend bekannt. Zudem können die relativ hohen Energieverluste über den Säulenrand nicht vernachlässigt werden, die bei den Experimenten trotz guter Isolierung nicht zu vermeiden sind. Die Nachrechnung eines Experiments mit Standardfluidparametern aus der Literatur und ohne Berücksichtigung von Verlusten bringt daher nur sehr unzureichende Resultate.



Abb. 4.1: Vergleich 1D-Experiment - Berechnung (keine Temperaturabhängigkeit der Fluidparameter)

In Abb. 4.1 ist für ein Wärmetransportexperiment in Grobsand mit einer Heizelementtemperatur von 300°C der Vergleich experimentell ermittelter Temperaturganglinien mit numerisch in einem Zweiphasenmodell (Gas und Wasser) berechneten dargestellt . Bei der Modellierung wurden weder die Energieverluste über die Ränder noch die Temperaturabhängigkeit der Fluidgrößen berücksichtigt. Folgendes läßt sich feststellen:

- Die berechneten Temperaturen steigen erst viel später an,
- Der stationäre Zustand, der beim Experiment nach ca. 15 h zu beobachten war, wird in der Simulation auch nach 25 h noch nicht erreicht.

Um diese beiden Hauptprobleme zu lösen, wurde eine temperaturabhängige Formulierung verschiedener Fluid- und Boden-Fluid-Systemeigenschaften wie Dichte, Viskosität und Kapillardruck-Sättigungsbeziehung in das Modell implementiert. Die dazu notwendigen Beziehungen wurden im Rahmen des Projekts mittels umfangreicher Versuchsreihen gewonnen. Zusätzlich wurde eine Betrachtung der Wärmeverluste vorgenommen, indem über die linke und rechte Elementreihe des Netzes ein Energiefluß aus der Säule ermöglicht wird. Das Ergebnis dieser Berechnung und die zugehörigen experimentellen Daten sind in Abb. 4.2 dargestellt.



Abb. 4.2: Vergleich 1D-Experiment - Berechnung (temperaturabhängige Fluidparameter)

Vergleicht man in diesem Fall die gemessenen mit den berechneten Werten, so kann eine deutlich verbesserte Übereinstimmung festgestellt werden: die modellierten Temperaturen reagieren erheblich schneller auf den Energieeintrag, vor allem in der ersten Meßebene. Die berechneten Temperaturen sind konvergent mit den gemessenen Temperaturen der stationären Endtemperaturverteilung, und es werden auch die Verdampfungsplateaus der gemessenen Temperaturverläufe durch die Berechnung wiedergegeben.

Zusammenfassend läßt sich sagen, dass mit Hilfe der aufwendigen Kalibrierung ein Modell geschaffen wurde, das die Vorgänge qualitativ sehr gut wiedergibt.

# 5 Numerische Simulation der Schadstoffexperimente

Die im vorigen Kapitel vorgestellten Untersuchungen dienten dem Zweck, ein numerisches Modell aufzubauen, das die definierten Randbedingungen, Geometrie und konstitutiven Beziehungen der ablaufenden Zweiphasen-Transportprozesse möglichst realitätsnah abbildet. Um aber effektiv auch die Interaktion von Wasser, Luft und Schadstoff im Porenraum betrachten zu können, muß eine Erweiterung des Modells auf Dreiphasensysteme erfolgen (CLASS, 2001). Der Aufbau und die Kalibrierung dieses Modells hat das Ziel, zunächst die Sanierungsexperimente nachvollziehen zu können, um letztendlich ein numerisches Prognoseinstrument zur Unterstützung der Versuchsplanung (1D, 2D und auch 3D) und zur Vorhersage des Sanierungsverlaufs zu schaffen.

Im folgenden wird beispielhaft die Berechnung einer 1D-Sanierung vorgestellt und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Betrachtet wurde ein Grobsand, der zuerst mit Wasser residual gesättigt und dann durch Mesitylen kontaminiert wurde. Während der gesamten Sanierung betrug die Heizelementtemperatur 300°C und die BLA-Absaugrate 0,2 l/min.



Abb. 5.1: Gemessene und berechnete Temperaturen der fünf Meßebenen im Dreiphasenmodell

Der Vergleich der berechneten mit den gemessenen Temperaturen weist eine gute Übereinstimmung mit den zeitlichen Verläufen auf. Damit konnte gezeigt werden, daß das Dreiphasenmodell trotz der dritten Phase sehr gut die ablaufenden Prozesse reproduziert, obwohl infolge der größeren Komplexität eine höhere gegenseitige Beeinflussung der Parameter vorliegt.

Die in Abb. 5.2 dargestellten Konturplots zeigen die berechnete räumliche Verteilung von Temperatur, Wasser- und Schadstoffsättigung im betrachteten System (1D Säule) zum Zeitpunkt t = 5 h nach Versuchsbeginn.

#### 5 Numerische Simulation der Schadstoffexperimente



Abb. 5.2: Berechnete Parameter eines ausgesuchten Säulenexperiments fünf Stunden nach Versuchsbeginn (unmaßstäblich)

Fünf Stunden nach Sanierungsbeginn hat sich der Boden nahe des Heizelements stark erwärmt. Die Ausbreitung der Wärme erfolgte hauptsächlich eindimensional, also vom Heizelement nach unten. Dies liegt nicht nur an dem vorliegenden Temperaturgradienten, sondern wird auch maßgeblich durch die Abnahme der Viskosität bei steigender Temperatur hervorgerufen, wodurch die Flüssigkeiten nach unten sickern und dabei Energie transportieren. In einem größeren Bereich konnte bereits das im Porenraum vorliegende Wasser verdampft werden, das als Dampf nach unten transportiert wurde und am unteren Ende der Säule kondensiert und sich aufstaut. Auch der Schadstoff wird auf diese Weise transportiert. Im Vergleich zu Wasser findet aber eine schnellere und größere Verlagerung der Flüssigphase infolge der deutlich geringeren Viskosität statt. Im gegebenen Beispiel läßt sich über die Integration der Sättigung der Schadstoffphase bestimmen, dass zum Zeitpunkt t = 5 h ca. 65% des Schadstoffs ausgetragen wurden. Im Experiment wurden zu diesem Zeitpunkt ca. 53% des Schadstoffs ausgetragen.

Über das numerische Modell ist neben den Prognoserechnungen auch eine Sensitivitätsanalyse aller beteiligten Parameter möglich. Ein Hauptaugenmerk wurde auf jene Parameter gelegt, die in den Experimenten nicht oder nur mit ungenügender Genauigkeit eingestellt werden können, wie beispielsweise Sättigungen oder Kapillardrücke. Durch gezielte Variation der Parameter wurde der jeweilige Einfluß auf den Verlauf des Experiments festgestellt und damit die Versuchsplanung unterstützt. In der zweiten Projektphase soll die Numerik für dreidimensionale Berechnungen weiter ausgebaut werden, so daß ein Prognosewerkzeug für Sanierungsplanungen zur Verfügung steht.

# 6 Zusammenfassung und Ausblick

In ersten experimentellen Untersuchungen im Labormaßstab (1D) wurde die Wärmeausbreitung in einem porösen Medium in Abhängigkeit der Permeabilität und der Wassersättigung bei Temperaturen bis 300°C untersucht. Es zeigt sich, daß nahe des Heizelements Temperaturen weit über dem Siedepunkt von Wasser erreicht werden und dort eine Verdampfung auch von mittel- und schwerflüchtigen Schadstoffen bewirkt wird. Mit zunehmender Entfernung vom Heizelement wird die erreichbare Temperaturerhöhung bezogen auf die natürliche Bodentemperatur aber niedriger. Es konnte außerdem gezeigt werden, daß der Bodenfeuchtegehalt einen großen Einfluß auf den Wärmetransport und auf die Geschwindigkeit der Wärmeausbreitung hat. Da Wasser eine hohe Wärmeleitfähigkeit im Vergleich zu trockenem Sand besitzt, wird in Bodenbereichen, in denen sich noch Wasser befindet, die Wärme schneller weitertransportiert, was insgesamt zu einer gleichmäßigeren Temperaturverteilung führt.

Es ist beabsichtigt, in einer zweiten Projektphase die über aufwendige Untersuchungen gewonnenen Kenntnisse des Wärme- und Schadstofftransports einzusetzen, um die Technologie THERIS über Laborexperimente (2D) sowie 3D-Experimente im Technikumsmaßstab bis zur Anwendungsreife zu entwickeln. Dabei werden nicht nur die festen Wärmequellen als einzige Möglichkeit zum Energieeintrag betrachtet, vielmehr soll auch die Kombination mit einer Dampfinjektion untersucht werden. Gerade bei heterogenen Bodenstrukturen mit unterschiedlichen Durchlässigkeiten erfolgt dann die Wärmeausbreitung nicht alleine aufgrund reiner Wärmeleitung, sondern es wird infolge des Durchströmens des porösen Mediums mit Dampf die Wärme auch konvektiv transportiert.

# Literaturhinweise

Betz, C., 1998: Wasserdampfdestillation von Schadstoffen im porösen Medium: Entwicklung einer thermischen In-situ-Sanierungstechnologie, Mitteilungen, Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart, Heft 97, ISBN 3-921694-97-3.

Betz, C., Färber, A., Kaleris, V., Kobus, H., Koschitzky, H.-P., Schmidt, R., 1998: In-situ-Sanierung verunreinigter Böden durch Injektion von Wasserdampf/Luft-Gemischen, Diskussionskreise "Wasser, Abfall, Boden" (PWAB) beim Statusseminar 1998, internet: http://bwplus.fzk.de

Brinkmann, C., 1998: "Untersuchungen zum Verhalten von Dichtungsübergängen im Staudammbau", Mitteilungen, Institut für Geotechnik, Universität Stuttgart, Heft 43, ISBN 3-921837-43-1.

Class, H., 2001: Theorie und numerische Modellierung nichtisothermer Mehrphasenprozesse in NAPLkontaminierten porösen Medien. Mitteilungen, Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart, Heft 105 (in Druck)

Davis, E.L., 1997: "How Heat can enhance In-situ Soil and Aquifer Remediation: Important Chemical Properties and Guidance on Choosing the Appropriate Technique", *EPA/540/S-97/502*, Robert S. Kerr Environmental Research Laboratory, Ada, Oklahoma.

DIN 18121, 1998: "Untersuchung von Bodenproben - Wassergehalt - Teil 1: Bestimmung durch Ofentrocknung".

Färber, A., 1997: Wärmetransport in der ungesättigten Bodenzone: Entwicklung einer thermischen In-situ-Sanierungstechnologie, Mitteilungen, Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart, Heft 96, ISBN 3-921694-96-5.

Helmig, R., 1998: "Gekoppelte Strömungs- und Transportprozesse im Untergrund - Ein Beitrag zur Hydrosystemmodellierung", Mitteilungen, Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart, Heft 91, ISBN 3-921694-91-7.

Koschitzky, H.-P., Schmidt, R., Winkler, A., 1999: Thermisch unterstützte Bodenluftabsaugung zur In-situ-Reinigung kontaminierter heterogener Bodenstrukturen, Diskussionskreis Abfall und Altlasten beim Statusseminar BWPLUS 1999, internet: http://bwplus.fzk.de

Schmidt, R., 2000: "Thermisch unterstützte Bodenluftabsaugung (TUBA) zur In-situ-Mobilisierung von Schadstoffen in Phase", Wiss. Bericht WB 00/8 (HG 275), Institut für Wasserbau, Universität Stuttgart.

Winkler, A., Koschitzky, H.-P., Theurer, T., Schmidt, R., 2000a: Technologieentwicklung zur thermischen In-situ-Sanierung gering durchlässiger Böden, DISKUSSIONSKREIS ABFALL UND ALTLASTEN BEIM STATUSSEMINAR BWPLUS 2000, 2. MÄRZ 2000, INTERNET: <u>http://bwplus.fzk.de</u>

Winkler, A., Theurer, T., Schmidt, R., Koschitzky, H.-P., 2000b: Thermal In-Situ Remediation of Low Permeable Soils: Theory and Experimental Results, Proceedings of the 7<sup>th</sup> International Conference on Contaminated Soil, 18.-22. September 2000, Leipzig, Vol. 2, 1127 - 1128.

Winkler, A., Koschitzky, H.-P., Theurer, T., Schmidt, R., 2000c: Thermische In-situ-Sanierung mit festen Wärmequellen (THERIS): Grundlagen des Wärme- und Schadstofftransports, Kurzfassungen der Vorträge zum *VEGAS* Statuskolloquium am 13. Oktober 2000

Winkler, A., Koschitzky, H.-P., Weiske, A., Gropper, H., 2001: Statusbericht "Thermische In-situ-Sanierungstechnologien", Arbeitskreis "Innovative Erkundungs-, Sanierungs- und Überwachungsmethoden", Schriftenreihe des *altlastenforums* Baden-Württemberg e.V., Heft 4, Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart