Das Feldexperiment OXYWALL: Direktgasinjektion von Sauerstoff zur in situ Sanierung von organisch kontaminierten Grundwässern

Helmut Geistlinger[1], Annika Beckmann[2], Matthias Gerhardt,[2] Marion Martienssen[1] & Mario Schirmer[1]

[1]Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung – UFZ, Theodor-Lieser-Straße 4, 06120, Halle/Saale, Email: helmut.geistlinger@ufz.de

[2]BIOPRACT GmbH, Rudower Chaussee 29, 12489 Berlin

An einem mit organischen Schadstoffen kontaminierten Standort in Leuna, Sachsen-Anhalt, wird derzeit ein neues Verfahren zur Direktgasinjektion getestet. Dabei wird Sauerstoffgas über Injektionslanzen in die kontaminierten Aquiferbereiche injiziert. Durch eine Aerobisierung des Aquifers wird der Abbau von organischen Schadstoffen durch autochthone Mikroorganismen beschleunigt. Die Feldversuchsanlage zur Direktgasinjektion ist seit Mai 2006 in Betrieb. Infolge einer diskontinuierlichen Sauerstoffinjektion wurden die Schadstoffwerte im Grundwasser deutlich abgesenkt. Zudem konnte durch die Anpassung an die geologischen Verhältnisse am Standort eine Ausgasung von Sauerstoff in die ungesättigte Bodenzone verhindert werden.

A new remediation technology that consists in Direct Oxygen Gas Injection through Direct-Push-Lances is tested at a test site in Leuna, Sachsen-Anhalt, contaminated with organic pollutants. Through aerobisation of certain regions of the aquifer the degradation potential of the autochthonic microorganisms is stimulated. The pilot plant for Direct Gas Injection operates since Mai 2006. Due to discontinuous oxygen injection the contaminant concentration could be decreased, significantly. Moreover, emission of volatilized contaminants into the atmosphere due to diffusion through the unsaturated zone could be hindered based on smart settings of the lances. This was based on geological profiles, EC-Logs and Injection-Logs using Geoprobe technology.

1 Einleitung

Eine Vielzahl von organischen Schadstoffen im Grundwasser wie MKW und BTEX sind unter aeroben Bedingungen biologisch abbaubar. Aus Feldstudien ist bekannt, dass das Fehlen von Sauerstoff ein wesentlicher limitierender Faktor für den aeroben biologischen Schadstoffabbau ist. Durch die Bereitstellung von Sauerstoff kann der Abbau durch autochthone Mikroorganismen beschleunigt werden.

Derzeit wird im Rahmen eines vom BMWi geförderten Projektes (Reg. Nr.: IWO 41248) ein neues Verfahren für die in situ Sanierung von organisch kontaminierten Grundwässern entwickelt. Ziel des OXYWALL-Projektes ist die Entwicklung und der Einsatz einer modellgestützten Feedback-Steuerung für die Errichtung von modularen in situ Gasinjektionssystemen. Das neuartige Verfahren wird in einem Feldversuch an einem mit MKW, BTEX und MTBE kontaminierten Standort in Leuna, Sachsen-Anhalt, getestet.

Im OXYWALL-Projekt wird gasförmiger Sauerstoff über Lanzen direkt in den Untergrund injiziert. Während des Injektionsprozesses wird das Gas kohärent-konvektiv, mäanderartig infolge der heterogenen Permeabilitätsverteilung transportiert. Durch die Schichtung des Aquifers erfolgt i.W. ein horizontaler Gastransport. Nach Abbruch der Injektion bricht die kohärente Gasphase zusammen. Aufgrund von Kapillarkräften und Kapillarbarrieren an Schichtgrenzen kann der Aquifer das Gas speichern. Die immobile Gasphase wirkt hydraulisch und biologisch wie eine reaktive Gaswand. Die Residualgasphasen lösen sich langsam auf und reichern das Grundwasser mit Sauerstoff an. Abbildung 1 veranschaulicht das Verfahrensprinzip schematisch.

2 Grundlagen der Gasinjektion

Eine wesentliche Vorraussetzung der Direktgas-Injektion die Kenntnis der Gasverteilungsmuster in Abhängigkeit von Injektionsrate und Sedimenttyp (GEISTLINGER *et al.* 2006, LAZIK *et al.* 2007) und der Auflösungsprozesse der Gasphasen (GEISTLINGER *et al.* 2005).

Injiziert man Gas in einen wassergesättigten Sedimentkörper, bewegt sich das injizierte Gas entsprechend der Kraftresultierenden aus Kapillarkräften, Reibungskräften und Auftriebskräften. In homogenen, sandigen Sedimenten bildet sich bei ausreichend hoher Injektionsrate ein Netzwerk aus zusammenhängenden, gasdurchströmten Kapillaren. In kiesigen Sedimenten strömt das Gas in Form von nicht zusammenhängenden Gasblasen. Bei Erhöhung der Injektionsrate vergrößert sich auch das gasdurchströmte Kapillarnetzwerk bzw. die von den Gasblasen beeinflusste Fläche (KRAUSS 2006).

Heterogenität und Schichtgrenzen können die Strömungsmuster sowohl qualitativ (Übergang von kohärentem zu inkohärentem Gastransport) als auch quantitativ (Gassättigung) ändern. Unterhalb von feinkörnigeren Sedimentschichten kommt es zu einem bevorzugten horizontalen Gastransport, da Schichtgrenzen als hydraulische Barrieren wirken. Der Einfluss von Heterogenität und Anisotropie

ist exemplarisch mit dem Mehrphasenprogramm TOUGH2 simuliert und in Abbildung 2 dargestellt. Im dargestellten Beispiel wurden Sedimentschichten mit unterschiedlichen horizontalen und vertikalen Permeabilitäten verwendet.

Sobald die Gasinjektion gestoppt wird, kollabiert ein einmal gebildetes Kapillarnetzwerk und die zusammenhängenden Gasphasenströme zerfallen in einzelne immobile Gasphasen (oder Gascluster) von verschiedener Größe und Form. Ein Großteil der Gascluster wird durch Kapillarkräfte im Sediment zurückgehalten. Auf diese Weise kann eine Gasmenge von ungefähr 14 bis 17 % des Porenraumes gespeichert werden. Die residualen, getrappten Gasphasen lösen sich langsam im Grundwasser auf, so dass bis zur vollständigen Auflösung der residualen Gasphase gelöster Sauerstoff zur Verfügung steht und von Mikroorganismen als Elektronenakzeptor für den Schadstoffabbau genutzt werden kann.

3 Das Feldexperiment OXYWALL

3.1 Lage der Feldversuchsanlage am Standort Leuna

Der Standort der Feldversuchsanlage liegt im südlichen Teil des Bundeslandes Sachsen-Anhalt, jeweils 30 km von den Städten Halle und Leipzig entfernt. Die Anlage befindet sich am Chemiestandort Leuna auf dem Gelände der Alten Raffinerie. Der Standort ist Teil eines ausgedehnten Schadensbereiches. Es sind keine flächenhaften, zusammenhängenden Belastungen ausgebildet, sondern mehrere, kleinere Kontaminationsbereiche um punktuelle Quellen.

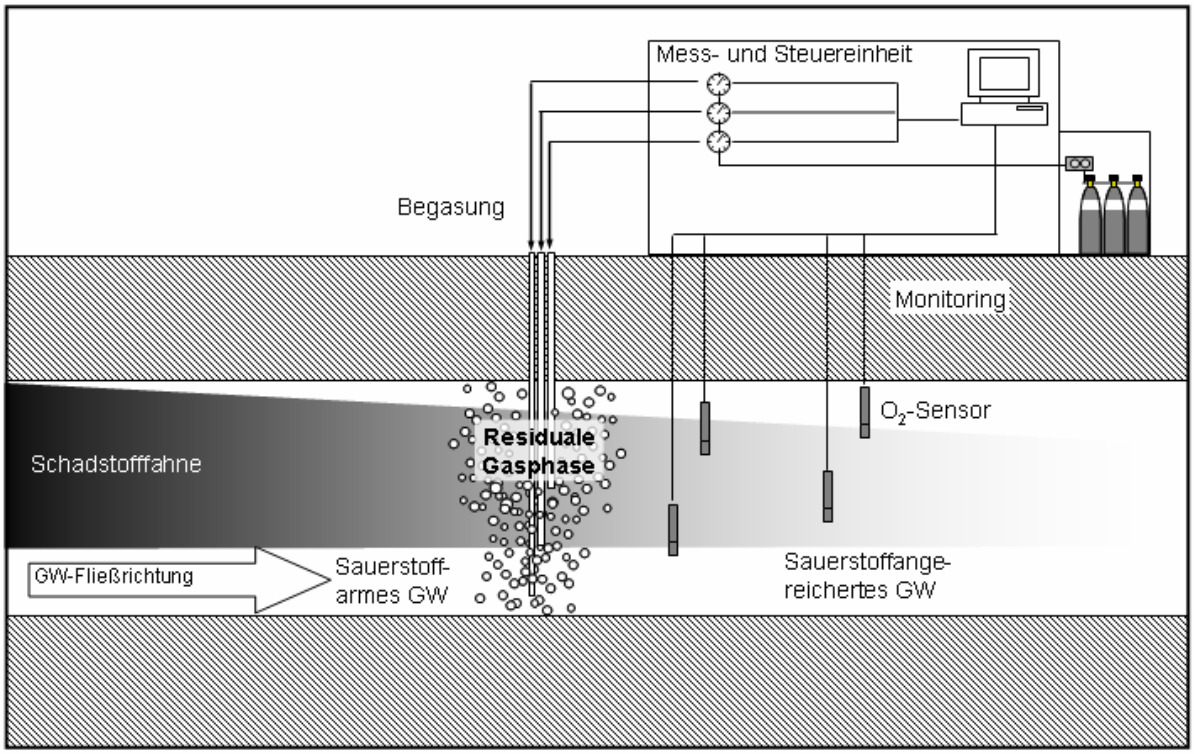

Abb. 1: Schema des Feedback-gesteuerten in situ Gasinjektionssystems (Vertikalschnitt).

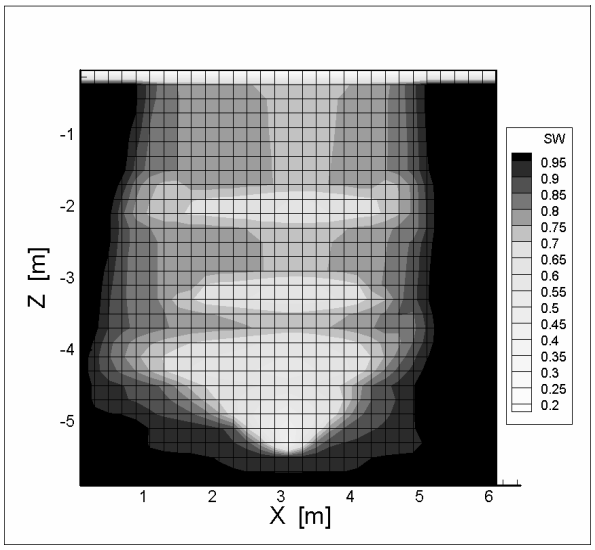

Abb. 2: Numerische Simulation (TOUGH2) einer Direktgasinjektion für einen heterogenen, anisotropen Aquifer: Injektionstiefe Z = -5.5 m, Injektionsrate: 10L/h, Injektionsdauer: 1 h Was(schwarz: Wassersättigung (Sw) = 1, weiss: : Wassersättigung = 0).

Vom Werksgelände ausgehend erreicht eine Schadstofffahne in nordöstlicher Richtung etwa die Ortslage Leuna.

Der unmittelbare Standort der Feldversuchsanlage ist eine Brachfläche am Chemiestandort, das Umfeld wird als Industriefläche genutzt. Das Untersuchungsgebiet liegt außerhalb von Grundwasserschutzzonen. Für den untersuchten Grundwasserleiter wirkt die Saale im Osten als Vorfluter. Der Grundwasserstand schwankt zwischen 3,4 und 4,0 m unter Geländeoberkante (GOK). Die Grundwasserfließgeschwindigkeit beträgt ca. 0,5 m/d.

Der Grundwasserleiter, bestehend aus Kiesen und Sanden der fluviatilen Saalehauptterrasse, ist in allen Bohrungen innerhalb des Testfeldes aufgeschlossen. Er besitzt im Hinblick auf den Schadstofftransfer, der von den Quellen im Bereich der Alten Raffinerie ausgeht, eine zentrale Bedeutung. Die Schichten der Saalehauptterrasse haben eine mittlere Mächtigkeit von 5,3 m. Im Liegenden der Saalehauptterrasse wurden die Schichten des Tertiärs angetroffen.

Das Testfeld liegt im Bereich ehemaliger Tanklager und einer Tankkraftwagen-Verladestation

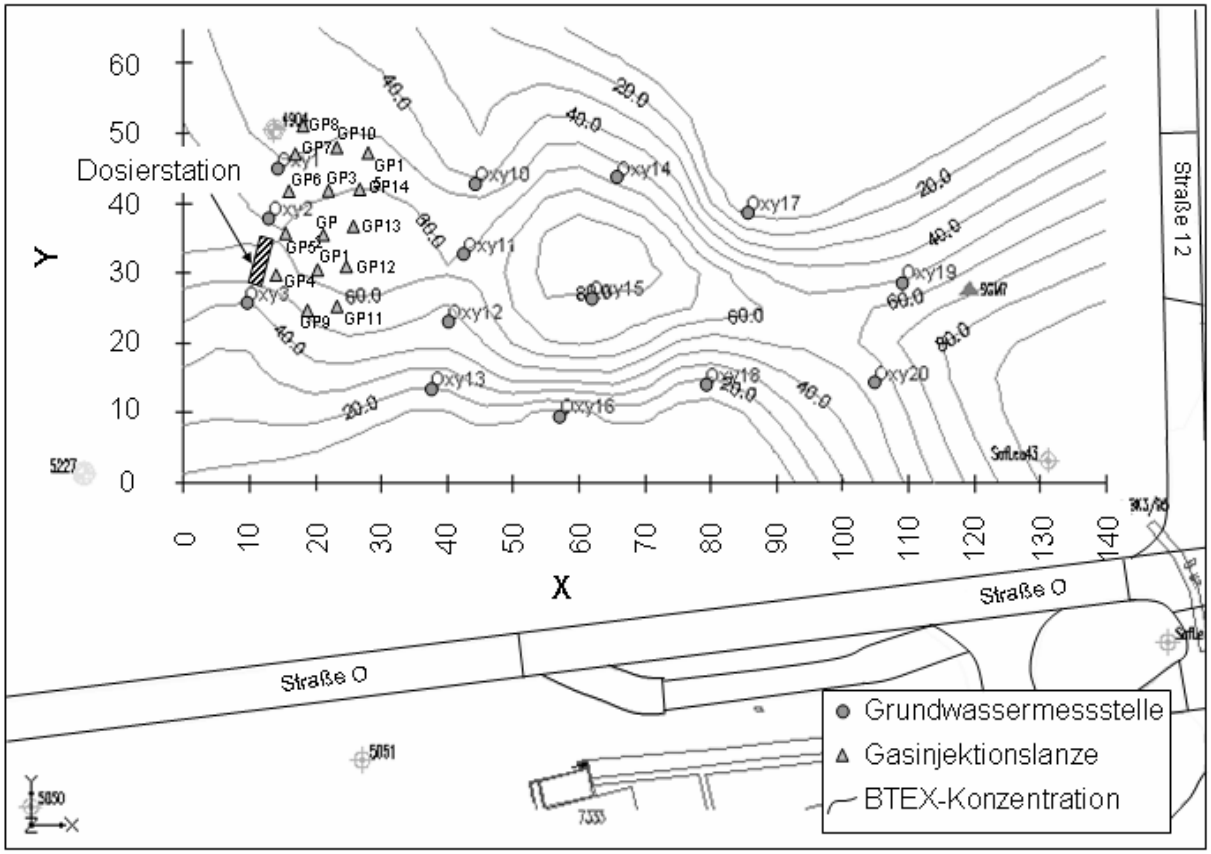

Abb. 3: Verteilung der BTEX-Konzentration im Grundwasser am Testfeld vor Projektbeginn. Die Lage der Grundwassermessstellen (Kreise) und Gasinjektionspunkte (Dreiecke) ist ebenfalls dargestellt.

und umfasst sowohl Quell- als auch Ausbreitungszone. Im Anstrom des Testfeldes findet eine passive Phasenabschöpfung statt. Die Ergebnisse der Boden- und Grundwasseruntersuchungen vor Beginn des Feldversuches belegen eine erhebliche Kontamination durch MKW, BTEX-Aromaten und MTBE.

Im Grundwasser wurde eine Ausgangsbelastung mit MKW von 3,6 mg/L ermittelt. Für BTEX betrug die maximale Belastung des Grundwassers 79 mg/L, für MTBE lag sie bei 112 mg/L. In Abbildung 3 ist exemplarisch die Verteilung der vor Beginn der Direktgasinjektion im Grundwasser gemessenen BTEX-Konzentration dargestellt. Eine tiefenorientierte Beprobung des Grundwassers ergab, dass die Hauptbelastung für MKW und BTEX eher im oberen Bereich des Grundwasserleiters liegen, während für MTBE die maximalen Belastungen am Testfeld eher an der Grundwassersohle vorgefunden wurden.

Die maximale Belastung des Bodens betrug für MKW 4300 mg/kgTS und für BTEX 2600 mg/kgTS. Die Hauptbelastung befand sich in ca. 3,6 m Teufe unter GOK im oberen Teil des Grundwasserleiters an der Grenze zum geringer durchlässigen Periglazialhorizont und nahm mit zunehmender Teufe ab. Für MKW wurde eine Verunreinigung bis in eine Tiefe von 10 m unter GOK nachgewiesen, für BTEX reichte die Verunreinigung ca. 5 bis 6 m unter GOK.

3.2 Auswahl und Einbau der Gasinjektionslanzen

Am Testfeld wurde im Dezember 2005 ein Injektionsfeld zur Direktgasinjektion von Sauerstoff installiert. Als Lanzentyp wurde nach Vorversuchen mit verschiedenen Injektionselementen ein System bestehend aus PVC-U Rohr (DN 22) mit gazeumspannter Perforierung ausgewählt. Die Perforierung erfolgte über eine Breite von 20 cm am Lanzenende (Abbildung 4a). Die PVC-U Rohre haben den Vorteil, dass sie zum einen mechanisch stabil sind, zum anderen die für den Einbau mit Direct-Push Methoden erforderliche Flexibilität aufweisen (Abbildung 4b). Zudem ist eine Reinigung der Rohre im Betriebsverlauf möglich. Insgesamt wurden 15 Gasinjektionslanzen in drei Reihen von je fünf Lanzen am Standort installiert. Die Lanzen weisen einen Abstand von 5 m untereinander auf, die einzelnen Reihen sind ebenfalls in einem Abstand von 5 m voneinander platziert. Der modulare Aufbau eines Gasinjektionsfeldes mittels gezielter Platzierung einzelner Gaslanzen ermöglicht eine flexible Anpassung der Sanierungsanlage an den jeweiligen Standort.

Die Installation erfolgte in der Weise, dass zunächst ein Schutzrohr mit einem Durchmesser von 50 mm mit Geoprobe-Technologie eingebracht wurde. In dem Schutzrohr wurde die Gasinjektionslanze abgesenkt (Abbildung 4b). Anschließend wurde das Schutzrohr zurückgezogen, wobei eine so genannte verlorene Spitze im Boden verblieb. Das Schutzrohrloch wurde nach dem Ziehen des Gestänges im Bereich oberhalb des Grundwasserleiters mit Bentonitgranulat abgedichtet.

Vor der Installation der Gasinjektionslanzen wurde für jeden Ansatzpunkt eine Messung der elektrischen Leitfähigkeit des Sedimentes (EC-Log) durchgeführt. Ein solches EC-Log ist exemplarisch für die Gasinjektionslanze GP 6 in Abbildung 5 dargestellt. Die einzelnen EC-Logs wurden ausgewertet und durch Vergleich mit am Standort aufgenommenen lithostratigraphischen Bohrprofilen geologisch interpretiert. Die Installationstiefe der einzelnen Gasinjektionspunkte

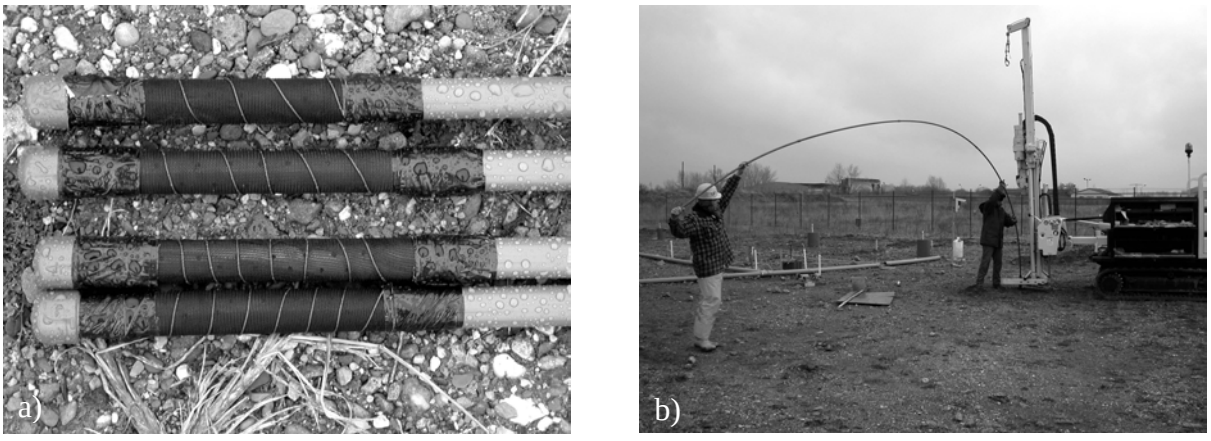

Abb. 4: a) Gazeummantelte Perforierung am Ende der PVC-U Rohre, b) Einbau der Gasinjektionslanzen am Testfeld mit Geoprobe-Technologie.

wurde anhand der EC-Logs unterhalb feinkörnigerer Schichten innerhalb der quartären Saalehauptterrasse festgelegt (Abbildung 5). Auf diese Weise konnte eine punktgenaue Platzierung der Injektionshorizonte und damit eine optimale Anpassung an die geologischen Gegebenheiten gewährleistet werden. Alle 15 Gasinjektionslanzen wurden in einer Tiefe zwischen 9 und 10 m unter GOK installiert.

An fünf Gasinjektionslanzen in einer Reihe wurden je drei konventionelle Bodenluftmessstellen pro Injektionslanze installiert. Als Material wurde HDPE-Vollrohr (DN 32) verwendet, wobei der untere Meter als Filterrohr ausgebaut wurde. Alle Bodenluftmessstellen wurden in einer Tiefe von 2,5 m unter GOK installiert und mit einer Kappe verschlossen. Abbildung 6 zeigt die Feldversuchsanlage am Standort Leuna mit Dosierstation, Gasinjektionslanzen, Bodenluftmessstellen und Grundwassermessstellen.

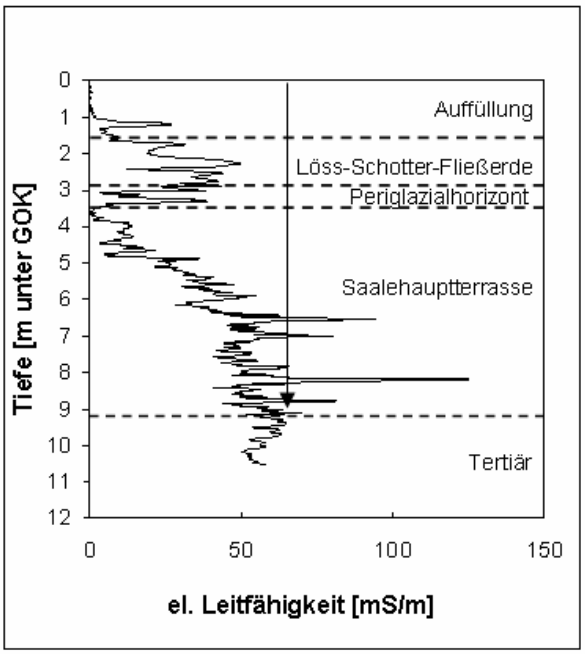

Abb. 5: Aufzeichnung der elektrischen Leitfähigkeit des Bodens (EC-Log) an der Gasinjektionslanze GP 6. Die gestrichelten Linien markieren die Schichtgrenzen zwischen den einzelnen lithostratigraphischen Einheiten. Der Pfeil markiert die Einbautiefe der Gasinjektionslanze.

3.3 Abschätzung der Raumwirkung mittels Gastracerversuche

Für die Abschätzung der Raumwirkung des Begasungssystems wurden im Januar 2006 Gastracerversuche mit dem nicht-reaktiven Gas Argon durchgeführt. Argon weist ähnliche Eigenschaften wie Sauerstoff in Bezug auf Löslichkeit und Diffusionskoeffizient in Wasser auf. Im Gegensatz zu Sauerstoff waren Verluste durch mikrobiellen Abbau und chemische Reaktionen vernachlässigbar.

Für die Gastracerversuche wurde an zwei Gasinjektionslanzen Argongas bei verschiedenen Injektionsraten und verschiedener Injektionsdauer injiziert. Beim ersten Test wurde mit einer Injektionsrate von 30 L/min eine Stunde Argongas injiziert. Beim zweiten Versuch wurde mit einer Injektionsrate von 20 L/min fünf Stunden injiziert. Da der kohärente Gastransport isotrop ist, d.h. auch entgegen der Grundwasserfliessrichtung, wurde sowohl anstrom- als auch abstromseitig des Injektionspunktes die Grundwassermessstellen auf Gelöst-Argon beprobt. Die Reichweite der Gasströmung wurde anhand der Beobachtung von Ausgasungen in den Grundwassermessstellen um die Gasinjektionslanzen abgeschätzt. Beide Gastracerversuche lieferten auswertbare Tracerkurven und wurden zur Kalibrierung des Strömung- und Transportmodells verwendet (GMS-MODFLOW-RT3D).

3.4 Ergebnisse der Sauerstoffinjektion am Testfeld

Seit Mai 2006 wird am Testfeld Sauerstoffgas injiziert. Die Gasinjektion erfolgt mittels modellgestützter, vollautomatischer Ansteuerung der einzelnen Gasinjektionslanzen mit unterschiedlich langen Begasungsdauern und Injektionspausen. Nach einer Injektionsphase an einer Gasinjektionslanze folgt jeweils eine Injektionspause. Diese Injektionspausen werden geschaltet, damit sich die injizierten Gasmengen vollständig auflösen können und Blockierungen des Porenraums vermieden werden. Die Injektionsrate pro Injektionslanze beträgt 10 L/min.

Seit Beginn der Direktgasinjektion von Sauerstoff am Testfeld werden monatlich Wasserproben in Grundwassermessstellen im An- und Abstrom des Injektionsfeldes entnommen und die Schadstoffkonzentrationen sowie die wichtigsten geochemischen Parameter bestimmt.

Abb. 6: Gasinjektionsfeld mit Gasinjektionslanzen, Bodenluftmessstellen und Grundwassermessstellen.

Im direkten Abstrom des Injektionsfeldes ist eine deutliche und kontinuierliche Abnahme sowohl der BTEX- als auch der MTBE-Konzentrationen erkennbar, während im Anstrom die Konzentrationen relativ konstant bleiben (Abbildung 7). Gleichzeitig sinkt die Sulfidkonzentration im Abstrom des Injektionsfeldes im Vergleich zum Anstrom deutlich ab, da Sulfid durch den injizierten Sauerstoff zu Sulfat oxidiert wird (Abbildung 8). Dies wird durch steigende Sulfat-Konzentrationen im direkten Abstrom des Injektionsfeldes bestätigt. In 80 m Entfernung vom Injektionsfeld findet wie im Anstrom Sulfatreduktion statt, so dass dort die Sulfid-Konzentrationen ähnlich der im Anstrom sind.

Der Gehalt an Eisen(II) nimmt im Gegensatz zum Sulfid im direkten Abstrom des Injektionsfeldes deutlich zu (Abbildung 8). Es wird vermutet, dass ein Teil des Eisen(II) zunächst zu Eisen(III) oxidiert wird. Nach Verbrauch des injizierten Sauerstoffes findet in der Folge wiederum eine Eisenreduktion statt. Auf diese Weise werden zusätzlich Schadstoffe abgebaut. Der Anteil des injizierten Sauerstoffes, der bei der Eisen- und Sulfidoxidation verbraucht wird, ist im Vergleich zum Anteil, der beim mikrobiellen Abbau der Schadstoffe verbraucht wird, relativ gering (ca. 1%).

Um den Anteil der tatsächlich im Sedimentkörper zurückgehaltenen Sauerstoffgasmenge abschätzen zu können, wurde die Ausgasung von Sauerstoffgas in die wasserungesättigte Bodenzone untersucht. Dazu wurden Sauerstoffelektroden (Sauerstoffsensor MF 39.1, Sensortechnik Meinsberg GmbH, Ziegra-Knobelsdorf) in den Bodenluftmessstellen um die einzelnen Gasinjektionslanzen installiert. Die Sauerstoffkonzentration in den Bodenluftmessstellen wurde für mehrere Gasinjektionsintervalle online aufgezeichnet. Im Ergebnis wurde an keiner der 15 Bodenluftmessstellen um die fünf Gasinjektionslanzen ein Durchbruch in die wasserungesättigte Bodenzone beobachtet.

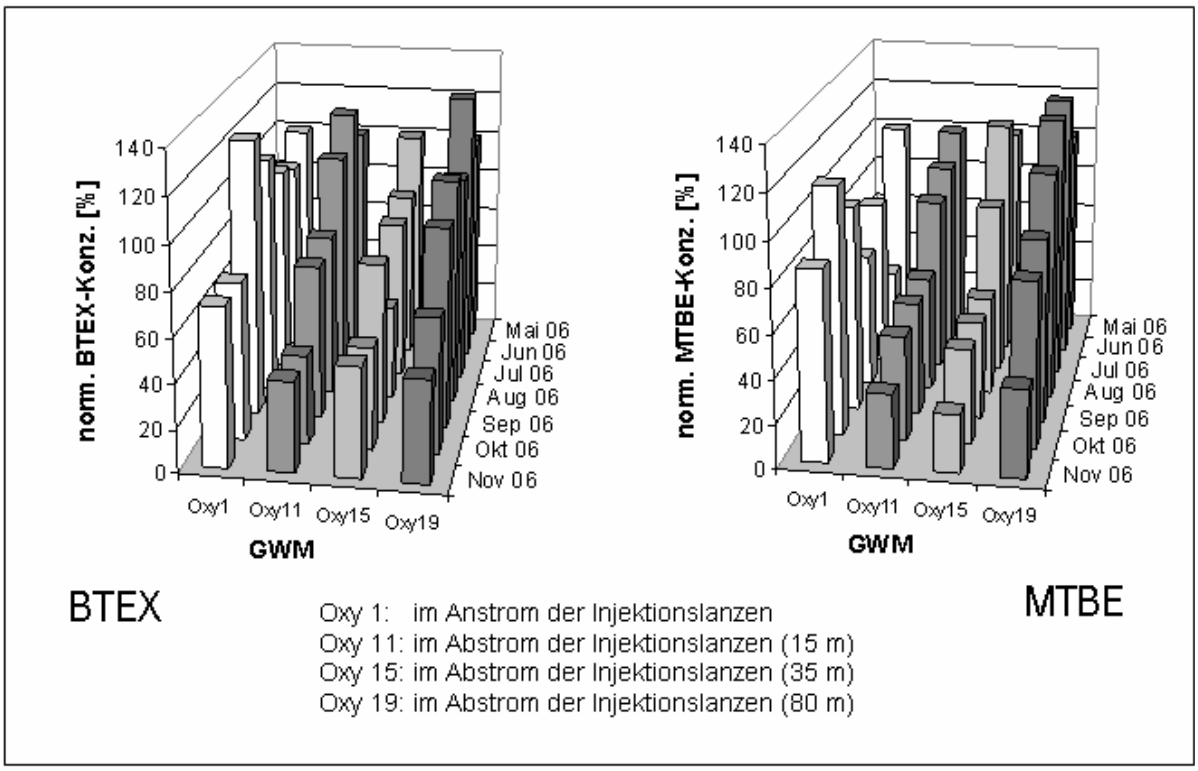

Abb. 7: BTEX- und MTBE-Konzentration im Grundwasser am Testfeld im Verlauf der Direktgasinjektion von Sauerstoff (normiert auf die jeweiligen Anfangskonzentration vom Mai 2006).

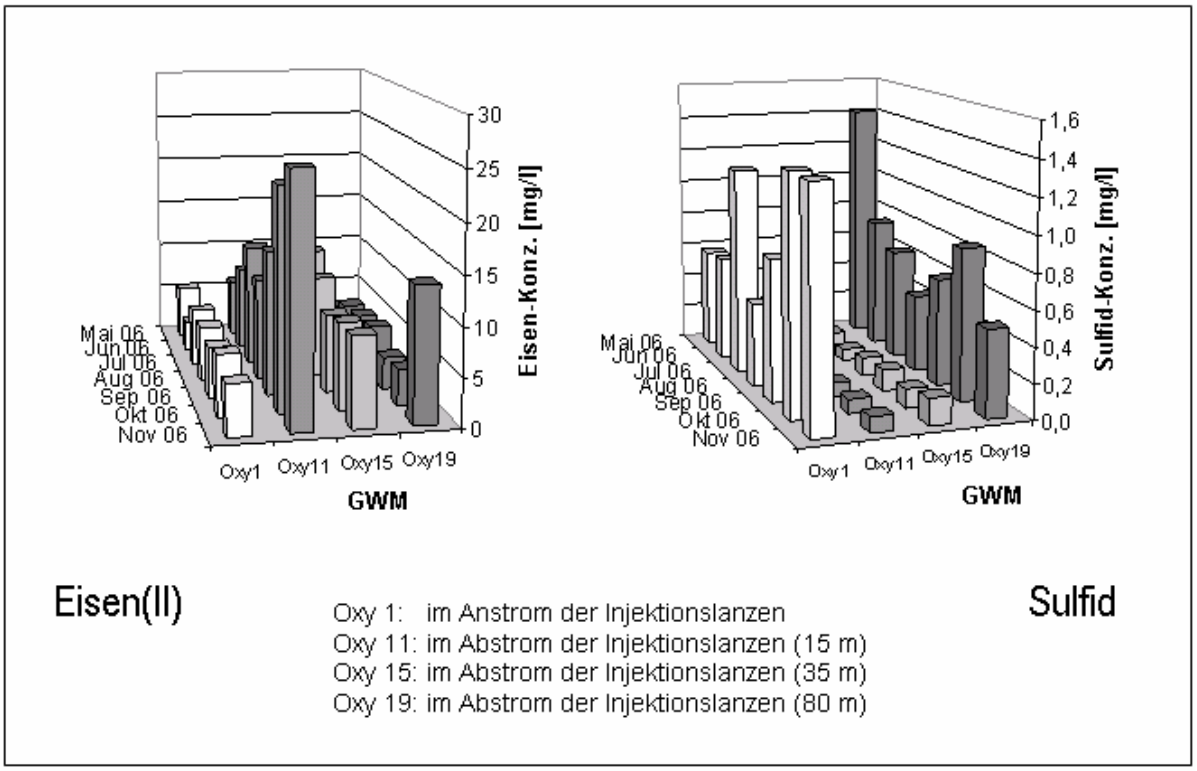

Abb. 8: Eisen(II)- und Sulfid-Konzentration im Grundwasser am Testfeld im Verlauf der Direktgasinjektion von Sauerstoff.

4 Zusammenfassung

Die bisherigen Ergebnisse der Sauerstoffgasinjektion am Standort Leuna bestätigen die Wirksamkeit der Direktgasinjektion von Sauerstoff als biologische in situ Sanierungsvariante für aerob abbaubare organische Kontaminanten. Die Belastung des Grundwassers an BTEX und MTBE konnte deutlich abgesenkt werden. Zudem wurde durch den Eintrag von Sauerstoff die Gelöstkonzentration von Sulfid deutlich gesenkt. Ein zusätzlicher Abbau von Schadstoffen durch Eisenreduktion ist möglich. Bei einem Betrieb der Gasinjektionslanzen von bisher 10 Monaten wurde keine Verminderung des Gaseintrages aufgrund von Verockerungen der Gaseintragselemente festgestellt.

Eine Anwendung des im Rahmen des OXYWALL-Projektes entwickelten modularen in situ Gasinjektionssystems ist nicht nur für molekularen Sauerstoff sondern auch für weitere sanierungsrelevante Gase wie z.B. den Eintrag von Methan beim Methan-Biostimulationsverfahren denkbar.

5 Literaturhinweise

GEISTLINGER, H., BECKMANN, A., AND D. LAZIK (2005): Mass transfer between a Multicomponent trapped gas phase and a mobile water phase: Experiment and theory, Water Resour. Research, 41, W11408, doi:10.1029/2004WR003885.

GEISTLINGER, H., KRAUSS, G., LAZIK, D. & LUCKNER, L. (2006): Direct gas injection into saturated glass beads: Transition from incoherent to coherent gas flow pattern. Water Resources Research, 42, W07403.

KRAUSS, G. (2006): Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte poröse Medien: Visualisierung und Quantifizierung von Gas-Phasen-Verteilung und –Transport, Dissertation, Fakultät Geowissenschaften Geowissenschaften, Geotechnik und Bergbau, TU Bergakademie Freiberg.

LAZIK, D., KRAUSS, G., GEISTLINGER, H. & VOGEL, H.-J. (2007): Multi-scale optical analyses of dynamic gas saturation during air sparging into glass beads, to be published in Transport of Porous Media.