

Reaktive Gaswände mittels Direktgasinjektion: Vom Bench-Scale zum Field-Scale (OXYWALL)

H. Geistlinger¹, D. Lazik¹, D. Eisermann¹, A. Beckmann³, M. Martienssen², M. Schirmer², M. Zittwitz³, M. Gerhardt³

¹Department Bodenphysik – UFZ, Theodor-Lieser-Straße 4, 06120 Halle/Saale, helmut.geistlinger@ufz.de

²Department Hydrogeologie – UFZ

³Biopract-GmbH, Berlin

1 Einleitung

Direktgasinjektionen (z.B. von Sauerstoff, Wasserstoff, Methan) zur Beschleunigung des biologischen Abbaus haben sich in den letzten Jahren als Sanierungstechnologie von Grundwasserschadensfällen etabliert. Auch die Begasung von Deponiekörpern und Kippensedimenten über Vertikal- bzw. Horizontalbrunnen wird in Forschungsprojekten intensiv untersucht. Am OXYWALL-Standort Leuna erfolgt die Direktgasinjektion über ca. 15 Injektionslanzen, die mittels Geoprobe-Technologie eingebracht wurden und einen variablen Begasungshorizont zwischen 8 und 12 m u. GOK aufweisen. Der jeweilige Begasungshorizont wurde entsprechend einem klein-skaligen Raster von geologischen Profilen, EC-Logs und tiefenorientierter Analyse der Schadstofffahne festgelegt. Vor der Sauerstoff-Gasinjektion wurde eine Reihe von konservativen Ar-Gastracern durchgeführt, um Fließpfade, Fließgeschwindigkeiten, Heterogenitäten zu erkunden und bestehende Prognose-Modelle iterativ zu kalibrieren.

Da das injizierte Gas sowohl in Phase als auch in gelöster Form migriert, erfordert eine erfolgreiche Direktgasinjektion ein Verständnis der wichtigsten Transportschritte:

- Gasphasen-Transport im heterogenen gesättigten/ungesättigten porösen Medium
- Gastransport von der mobilen/immobilen Gasphase zur angrenzenden Wasserphase
- Transport des gelösten Gases zu den Reaktionsplätzen.

In Bench-Scale-Experimenten wurden die einzelnen Transportschritte eingehend untersucht und modellmässig beschrieben (GEISTLINGER

et al. 2005, 2006). Dabei wurden basierend auf einer Stabilitätsanalyse Gasströmungsmuster in Abhängigkeit vom Sedimenttyp und Injektionsrate klassifiziert. Experimentell bestimmte Massentransferkoeffizienten wurden in Field-Scale-Transportmodelle implementiert, welche sowohl heterogene Permeabilitätsfelder als auch heterogene geochemische Parameterfelder berücksichtigen (EISERMANN 2005).

Mittels konditionierter, geostatistischer Algorithmen (GSLIB) werden die Computer-Modelle entsprechend dem aktuellen Informationsstand (geologische, geophysikalische und hydraulische Information) aktualisiert. Als Datengrundlage dienen Rammkern-Sondierungen (Geoprobe-Technologie), EC-Logs, Injection-Logs, und Gastracerversuche.

Im Rahmen des Feldexperimentes „OXYWALL“ am Standort LEUNA, welches durch das Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle und der Biopract-GmbH durchgeführt wird, soll exemplarisch gezeigt werden, wie eine optimierte Prozessführung mittels Computer-Modelle erfolgen kann. Dabei werden die Teilprozesse wie folgt beschrieben und über Daten-Schnittstellen gekoppelt:

- Injektionsraum der Gaswand: Dynamische Gasphasenverteilung im heterogenen porösen Medium (TOUGH2-Simulator) → Output und Schnittstelle zur 1-Phasen-Modellierung im Reaktionsraum: räumlich-variable Gasverteilung
- Reaktionsraum der Gaswand: Auflösung der räumlich-variable Gasverteilung (MODFLOW-RT3D-Simulator) A) konservativer Gastransport, B) reaktiver Gastransport.

2 Modellierung von Reaktiven Gaswänden auf der Feld-Skala

Das im Folgenden vorgestellte Modellkonzept wurde am Safira-Standort Bitterfeld speziell für den aeroben und anaeroben Abbau von chlorierten, aromatischen Kohlenwasserstoffen entwickelt (EISERMANN 2005) und wird derzeit auf den Safira-Standort Leuna übertragen.

2.1 Konservativer Transport für großskalig-zoniertes und kleinskaliges kf-Feld

2.1.1 Lokales Modell

Das lokale Modell für den Safira-Mikrostandort ist ein Ausschnitt des regionalen Modells (ca. 3 km x 4 km) von 900 m Länge und 700 m Breite und mit einer von Diskretisierung 10 m. Die Mächtigkeit des Grundwasserleiters wird über die Differenz zwischen Ober- und Unterkante definiert, sie variiert von Zelle zu Zelle. Die longitudinale Dispersivität α_l beträgt bei allen Simulationen 1 m, die transversale Dispersivität $\alpha_t = 0.1$ m und die effektive Porosität wurde mit 0.3 angenommen.

Der konservative Transport von Monochlorbenzen (MCB) für ein großskalig-zoniertes kf-Feldes (kf = hydraulische Leitfähigkeit; PEST-Kalibrierung) wurde mit dem eines kleinskaligen kf-Feldes (konditioniertes Gauss-Feld) verglichen. Die Strömung wurde mit MODFLOW2000 und der Transport mit dem Programm MT3D berechnet, wobei die Charactersitiken-Methode

(MOC) verwendet wurde, um die numerische Dispersion zu minimieren. Die Ergebnisse der Prognose-Modellierung, d.h. die MCB-Verteilung nach 10 Jahren, sind in Abb. 1 dargestellt. Beachte, dass die Farbskala in Grauwerten aus drucktechnischen Gründen dargestellt ist, d.h. dunkle Flächen ausserhalb der Fahne entsprechen geringe Konzentrationen („blau“ in Originalgrafik) und dunkle Flächen im Zentrum der Fahne entsprechen hohe Konzentrationen („rot“ in Originalgrafik). Dies gilt auch für alle dargestellten Abbildungen.

Wie aus dem Vergleich deutlich zu erkennen ist, wird im großskalig-zonierten kf-Feld MCB wesentlich homogener und schneller in nordwestlicher Richtung wegtransportiert als beim kleinskaligen Gauss'schen kf-Feld. Hier sind noch deutlich Gebiete hoher MCB-Konzentration (> 20 mg/L) vorhanden, das bedeutet aber – wie aus der Literatur bekannt –, dass kleinskalige Heterogenitäten wesentlich den Schadstofftransport determinieren und deren Vernachlässigung zu groben Fehlern führen kann.

2.2 Reaktiver Transport: 3D-Computer-Simulation einer Reaktiven Sauerstoffwand

Für das folgende vollständige Reaktionssystem wurde ein Reaktionsmodul in FORTRAN programmiert:

(1) Aerober mikrobieller MCB-Abbau (Double-Monod-Kinetik):

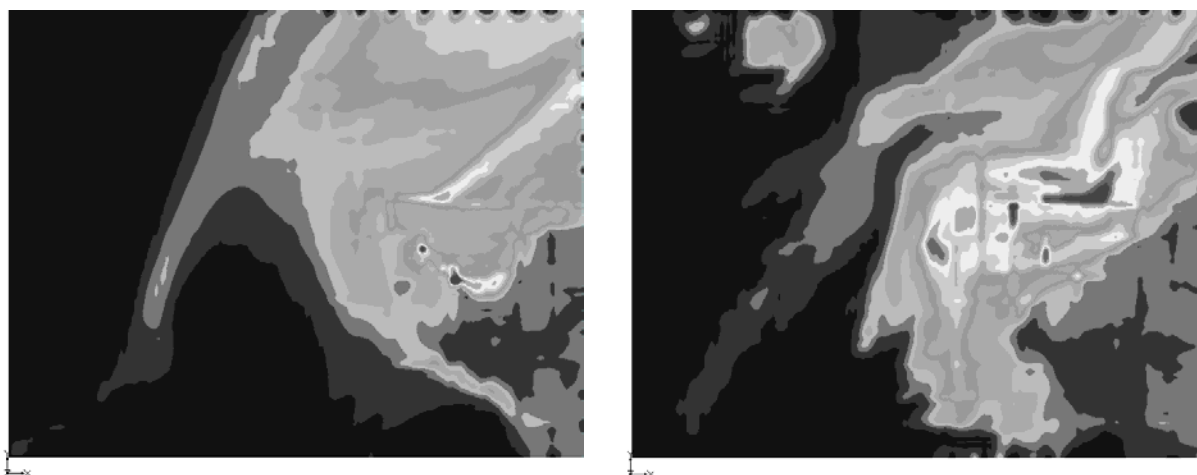
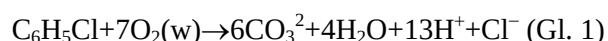
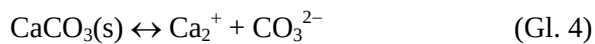


Abb. 1: Prognose-Modellierung: MCB-Verteilung im quartären Grundwasserleiter am Safira-Mikrostandort Bild links: großskaliges kf-Feld (PEST-Kalibrierung) und Bild rechts: kleinskaliges kf-Feld (konditioniertes Gauss-Feld). Skala: blau = 2.5 mg/L, rot = 22.5 mg/L.

(2) Auflösung einer immobilen 2-komponentigen Mischgasphase (first-order Kinetik):



(3) pH-Puffer: Kalzit-Auflösung (first-order Kinetik)



(4) Kalzit-Karbonat-Gleichgewicht



(5) Dissoziation von Wasser



Wesentlich ist, dass dieses Reaktionssystem mit Hilfe einer kanonischen Transformation auf totale Konzentrationen, d.h. Konzentrationen gleicher Größenordnung, überführt werden muss. Verwendet man den Standard-RT3D-Algorithmus führt dies dazu, dass der numerische Solver Konzentrationen behandeln muss, die sich um mehrere Größenordnungen unterscheiden, z.B. ist Protonen-Konzentration $\sim 10^{-7}$ mol/l und die Sauerstoffkonzentration $\sim 10^{-3}$ mol/l. Dies führt zu erheblichen numerischen Fehlern (nähere Details siehe EISERMANN 2005).

Die einzelnen Reaktionen (1) – (5) sind selbsterklärend. Für die Auflösung der 2-komponentigen Mischgasphase wurde das mit Hilfe der 1D-Säulenexperimente validierte konzeptionelle Modell verwendet, d.h. die Massentransferkoeffizienten wurden mit Hilfe einer Sherwood-Zahl-Parametrisierung beschrieben (GEISTLINGER *et al.* 2005). Um die Wirkung von im Aquifer ge-

lösten Gasen zu simulieren, wurde für das anströmende Grundwasser eine vollständige Sättigung mit Stickstoff angenommen. Für reale Feldszenarien müssen hier die Gelöst-Gas-Konzentrationen, z.B. für CO_2 , CH_4 und VOCs berücksichtigt werden. Das Modell ist so konzipiert, dass auch die Auflösung von Mischgasphasen mit mehreren Komponenten simuliert werden kann. Aus Platzgründen können hier nicht alle Ergebnisse dargestellt und diskutiert werden. Im Folgenden diskutieren wir nur die Gelöst-Sauerstoff-Konzentration, die im Rahmen einer Monte-Carlo-Simulation berechnet wurde, und zeigen, wie das stochastische Modell „Unsicherheit“ zu quantifizieren vermag. Für eine Diskussion der anderen Spezies sei wieder auf die Dissertation von EISERMANN (2005) verwiesen.

In den folgenden Abbildungen wird eine „Large-Scale-Sauerstoffwand“ auf einer Skala von 900m x 700m betrachtet, d.h. Sauerstoffgas wurde über Injektionslanzen, welche über Rammkernsondierung (z.B. Geoprobe-Technologie) in den Untergrund eingebracht wurden, in die Schadstoff-führende Schicht und über das gesamte Feld (y-Richtung) injiziert. Der Einfachheit halber wurde eine kontinuierliche residuale Gasphase zu Beginn ($t = 0$) angenommen. Für den OXYWALL-Standort soll die Anfangsverteilung mit dem 2-Phasen-Programm TOUGH2 berechnet werden.

Die Gelöst-Sauerstoff-Verteilung für $t = 0$ und nach 1000 Tagen ist für ein großskalig-zoniertes kf-Feld in Abb. 2 dargestellt. Wie aus Abb. 2 (Bild links) zu erkennen ist, liefert dieses Feld eine über das gesamte Feld ausgedehnte reaktive Barriere. Es ist jedoch zu vermuten, dass die gewünschte homogene Verteilung eine Folge der

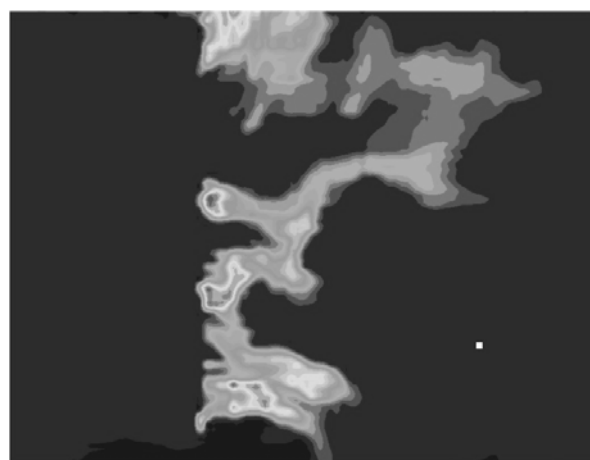
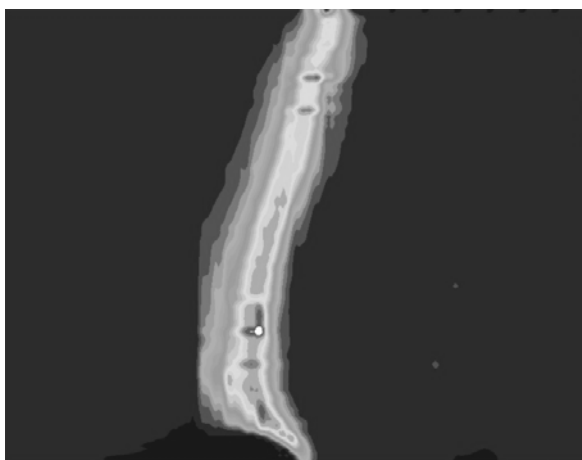


Abb. 2: Reaktive Sauerstoffwand: Feldskala 900m x 700m. Vergleich der Gelöst-Sauerstoff-Konzentration (Konzentrationsintervall: blau = 0 mg/l, rot = 50 mg/l) nach 1000 Tagen für ein großskalig-zoniertes (Bild links) und ein kleinskaliges konditioniertes kf-Feld (Bild rechts).

großskaligen Zonierung ist. Unter denselben Anfangs- und Randbedingungen wurde eine „Large-Scale-Sauerstoffwand“ für verschiedene, gleichwahrscheinliche Aquifer-Realisierungen (konditionierte Gauss-Felder) simuliert. Deren Charakteristika, d.h. der Mittelwert der logarithmierten k_f -Werte und deren Varianz, sind:

$$\langle \ln k_f \rangle = -8.0, \quad \sigma_{\ln k_f}^2 = 4.6.$$

Wir bemerken, dass die Varianz ein Maß für die Heterogenität des Aquifers ist, z.B. ist die Varianz für den Borden-Aquifer 0.3, d.h. relativ homogen im Vergleich zum Safira-Aquifer.

Wie aus Abb. 2 (Bild rechts) ersichtlich zerfließt die reaktive Sauerstoffwand aufgrund der kleinskaligen Heterogenitäten wesentlich stärker als im großskalig-zonierten k_f -Feld. Wichtig für eine technologische Umsetzung ist, dass entsprechend dem heterogenen Strömungsfeld das Sauerstoff-Injektions-Regime angepasst wird.

Die in Abb. 2 (Bild rechts) dargestellte Verteilung berücksichtigt wesentlich mehr experimentelle Information, als die in Abb. 2 (Bild links) dargestellte Verteilung, nämlich eine umfangreiche Datenbasis von ca. 60 Slug-and-Bail-Tests und ca. 50 geologische Rammkernprofile. Damit ist die Zuverlässigkeit der Modellaussagen im Vergleich zum großskalig-zonierten k_f -Feld als wesentlich höher einzuschätzen. Um die Unsicherheit der Simulationen quantifizieren zu können, wurde eine Monte-Carlo-Simulation (RUBIN 2003) mit 10 Aquiferrealisierungen durchgeführt. Die mittlere Gelöst-Sauerstoff-Konzentration (Mittelwert über alle Realisierungen) ist in Abb. 3 (Bild links) und der Mittelwert

der Standardabweichung in Abb. 3 (Bild rechts) dargestellt.

Deutlich zu erkennen ist, dass die Sauerstoffwand im oberen und unteren Bereich durchbrochen wird. Betrachtet man die Unsicherheit der Modellaussagen, d.h. den Mittelwert der Standardabweichung (Abb. 3, Bild rechts), so können im mittleren und südlichen Abschnitt der Sauerstoffwand, Bereiche hoher Unsicherheit lokalisiert werden. In diesen Bereichen bedarf es zusätzlicher experimenteller Information, um die Unsicherheit zu minimieren.

3 Zusammenfassung und Ausblick

Die im Bench-Scale durchgeführten Untersuchungen und mittels inverser Modellierung bestimmten Parameter, wurden zur Parametrisierung von Field-Scale-Modellen verwendet. Alle Programmentwicklungen und Modellrechnungen, wurden für den Safira-Standort Bitterfeld durchgeführt. Die Übertragung auf den OXY-WALL-Standort ist ‚straight-forward‘. Diese Computermodelle sind zentraler Bestandteil eines vom BmfWA geförderten Projektes, in dessen Rahmen modulare in-situ Gasinjektionssysteme errichtet und optimiert werden sollen.

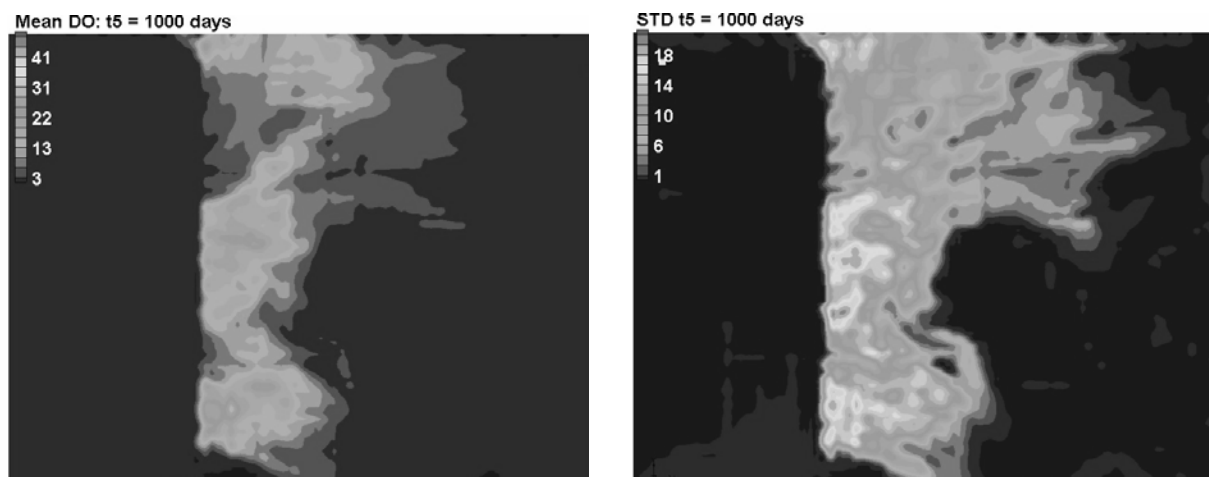


Abb. 3: Monte-Carlo-Simulation einer reaktiven Sauerstoffwand für $t = 1000$ Tage. Bild links: Mittelwert der Gelöst-Sauerstoffkonzentration (blau = 0 mg/l, rot = 50 mg/l), Bild rechts: Mittelwert der Standardabweichung (SDV) (blau = 0, rot = maximale SDV).

4 Literatur

GEISTLINGER, H., BECKMANN, A., & LAZIK, D. (2005): Mass transfer between a multi-component trapped gas phase and a mobile water phase: Experiment and theory, *Water Resour. Res.* 41, W11408, doi:10.1029/2004WR003885.

GEISTLINGER *et al.* (2006): Direct Gas Injection into Saturated Glass Beads: Transition from Incoherent to Coherent Gas Flow Pattern, *Water Resour. Res.*, (in press).

EISERMANN, D. (2005): Multi-Spezies-Modellierung sanierungsrelevanter Fragestellungen für einen he-

terogenen Feldstandort: SAFIRA-Bitterfeld, *Dissertation 17/2005*, UFZ-Leipzig-Halle.

RUBIN, Y. (2003): *Applied Stochastic Hydrology*, Oxford University Press.

5 Patent

MARTIENSSEN, M. GEISTLINGER, H. SCHIRMER, M. ZITTWITZ, M., BECKMANN, A., GERHARDT, M. (2005): Ringpfeil, Verfahren und Anordnung zur Direktgasinjektion für die Sanierung von kontaminierten Böden und/oder Grundwasserleitern ..., eingereicht P354305DE.