

Institut für Agrar- und Ernährungswissenschaften  
(Direktor: Prof. Dr. M. Rodehutschord)  
der  
Naturwissenschaftlichen Fakultät III  
(Dekan: Prof. Dr. P. Wycisk)  
der  
Martin-Luther-Universität  
Halle-Wittenberg

**Einfluss der applizierten Wassermenge und der  
Applikationsrate auf die Auswaschung  
von Stoffen aus porösen Medien**

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor agriculturarum (Dr. agr.)

vorgelegt von

Dipl.-Ing. agr. Jens Hagenau  
geb. am 29.03.1972 in Halle/Saale

Gutachter: Prof. Dr. H. Borg  
Prof. Dr. M. Arnold  
Prof. Dr. G. Rettenberger

Verteidigung am: 11.12.2006

Halle/Saale 2006

**urn:nbn:de:gbv:3-000011295**

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=nbn%3Ade%3Agbv%3A3-000011295>]

## Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b> .....	VII
<b>Summary</b> .....	XII
<b>Verzeichnis der Variablen</b> .....	XVI
<b>I. Einleitung</b> .....	<b>1</b>
Veranlassung.....	1
Stoffaustrag aus Deponien über den Wasserpfad.....	4
Literatur.....	11
<b>II. Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoff- auswaschung aus porösen Medien</b> .....	<b>14</b>
Zusammenfassung.....	14
Summary.....	14
Einleitung.....	15
Material und Methoden.....	17
Allgemeine Vorgehensweise.....	17
Säulen und Bodenmaterial.....	17
Stoffbeladung.....	18
Wasserzufuhr.....	18
Chlorid-Bestimmung.....	19
Spezielle Versuchsdurchführung.....	20
Abhängigkeit der Stoffverteilung von der Porengröße.....	20
Verlauf von Stoffkonzentration und Fracht als Funktion der Drainagemenge..... bei konstanter Applikationsrate	20
Verlauf der Fracht bei gleicher Wassermenge aber unterschiedlicher..... Applikationsrate	20
Versuche mit einem anderen Boden.....	21
Ergebnisse.....	22
Wasserspannungskurve, Wassergehalt und Flux.....	22
Stoffverteilung.....	24
Stoffkonzentration und Fracht bei konstanter Applikationsrate.....	24
Fracht bei gleicher Wassermenge aber unterschiedlicher Applikationsrate.....	26
Fazit.....	28
Literatur.....	28
<b>III. Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien..... in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate</b> .....	<b>30</b>
Zusammenfassung.....	30
Summary.....	30

Einleitung.....	31
Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung.....	32
Modellskizze.....	32
Porenradius.....	33
Durchflussrate und Flux.....	34
Stoffmenge und -konzentration im PM.....	35
Fracht im Sickerwasser.....	36
Stoffkonzentration im Sickerwasser.....	37
Berechnungen.....	38
Ergebnisse.....	38
Stoffverteilung.....	38
Fracht und Konzentration als Funktion der applizierten Wassermenge und der... Applikationsrate	40
Diskussion.....	44
Literatur.....	46
<b>IV. Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid..... und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate</b>	<b>48</b>
Zusammenfassung.....	48
Summary.....	48
Einleitung.....	49
Material und Methoden.....	51
Allgemeine Vorgehensweise.....	51
Wasserzufuhr.....	51
Säulen, Substrat und Probenahme.....	52
CSB-Bestimmung.....	53
Bestimmung von Chlorid und Zink.....	54
Spezielle Versuchsdurchführung.....	54
Hydraulische Eigenschaften der Substrate.....	54
Versuche mit getrocknetem Kompost.....	55
Versuche mit Sand-Kompost-Gemisch.....	57
Ergebnisse.....	59
Getrockneter Kompost.....	59
Sand-Kompost-Gemisch.....	63
Fazit.....	66
Literatur.....	68

<b>V.</b>	<b>Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern</b>	<b>70</b>
	Zusammenfassung .....	70
	Summary.....	70
	Einleitung.....	71
	Material und Methoden.....	73
	Wasserzufuhr; Säulen, Substrat und Probenahme; CSB-Bestimmung.....	73
	Spezielle Versuchsdurchführung.....	73
	Versuche mit hydrophobem Kompost.....	73
	Versuche mit einem Gemisch aus Sand und hydrophobem Kompost.....	74
	Versuche mit einem Tensid zur Überwindung der Hydrophobie im Kompost.....	75
	Versuche mit Sand, der mit organischen Verbindungen aus hydrophobem Kompost versetzt wurde	76
	Ergebnisse.....	77
	Hydrophober Kompost.....	77
	Gemisch aus Sand und hydrophobem Kompost.....	77
	Einsatz eines Tensides zur Überwindung der Hydrophobie.....	80
	Sand, der mit organischen Verbindungen aus hydrophobem Kompost versetzt wurde	82
	Fazit.....	84
	Literatur.....	84
<b>VI.</b>	<b>Ermittlung eines Dispersivitätsfaktors beim Chloridtransport - Abhängigkeit von Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit</b>	<b>86</b>
	Zusammenfassung.....	86
	Summary.....	86
	Einleitung.....	87
	Material und Methoden.....	88
	Säulen und Substrat.....	88
	Wasserzufuhr.....	88
	Versuchsdurchführung und Probenahme.....	89
	Bestimmung von Chloridkonzentration und Wassergehalt.....	90
	Darstellung der Versuchsergebnisse.....	91
	Berechnung der Konzentrationsverläufe.....	92
	Ergebnisse.....	95
	Diskussion.....	100
	Literatur.....	101

<b>VII. Eine verbesserte mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung.....</b>	<b>102</b>
<b>aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate</b>	
Zusammenfassung.....	102
Summary.....	102
Einleitung.....	103
Herleitung des Modells.....	104
Grundlegender Ansatz.....	104
Tortuosität und nicht konstante Porenradien.....	107
Durchmischung.....	108
Porengrößenabhängige Stoffkonzentration.....	112
Retardation.....	115
Stoffverlagerung während der Aufsättigung eines PM.....	117
Diskussion.....	119
Literatur.....	121
<b>VIII. Test eines verbesserten Modells zur Beschreibung der Stoffauswaschung....</b>	<b>123</b>
<b>aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate</b>	
Zusammenfassung.....	123
Summary.....	123
Einleitung.....	124
Vergleichsgrundlagen.....	126
Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG).....	126
Eingabe- und Berechnungsgrößen in den Modellen.....	129
Vergleich von Berechnungen mit unserem Ansatz und der ADG.....	131
Ermittlung der Mischungszahl.....	131
Abhängigkeit der Mischungszahl von verschiedenen Modellparametern.....	132
Beziehung zwischen $f$ und $z_m$ .....	136
Tiefenverteilung.....	137
Vergleich von Versuchsergebnissen mit Berechnungen mit dem verbessertem Modell	137
Stoffeintrag und -verlagerung durch Beregnung eines stofffreien PM mit stoffbeladenem Wasser	137
Stoffverlagerung durch Beregnung eines stoffbeladenen PM mit stofffreiem Wasser	139
Vorbemerkungen.....	139
Auswaschung von Chlorid aus Sand.....	140
Auswaschung von organischer Substanz aus Sand.....	141

Auswaschung von organischer Substanz aus einem Sand-Kompost-Ge-..... misch	143
Sensitivitätsanalyse für den verbesserten Ansatz.....	144
Diskussion.....	147
Literatur.....	148
<b>IX. Abschlussdiskussion.....</b>	<b>150</b>
<b>X. Literaturverzeichnis.....</b>	<b>156</b>
<b>Anhang 1.....</b>	<b>160</b>
<b>Anhang 2.....</b>	<b>176</b>
<b>Anhang 3.....</b>	<b>181</b>
<b>Anhang 4.....</b>	<b>187</b>

## Zusammenfassung

Die Belastung von Grund- und Oberflächenwasser durch Stoffeinträge aus Ablagerungen oder kontaminierten Böden stellt ein ernstes Umweltproblem dar. Eine wesentliche Quelle solcher Belastungen sind Mülldeponien. Besonders auf dem Gebiet der ehemaligen DDR befinden sich viele Deponien, die nicht mit einer Basisabdichtung versehen sind, so dass Sickerwasser aus dem Deponiekörper umweltrelevante Stoffe in das Grundwasser eintragen kann.

Eine Möglichkeit Kontaminationsquellen, wie z. B. Deponien, zu bereinigen besteht darin, sie gezielt auszulaugen. Das ist grundsätzlich aber nur dann möglich, wenn eine Sickerwasserfassung vorhanden ist, damit ein Übertritt von kontaminiertem Sickerwasser ins Grundwasser vermieden wird.

Für die Deponie Lochau bei Halle/Saale wurde eine gezielte Auslaugung in Erwägung gezogen. Sie liegt in einem Tagebaurestloch, das zur Zeit noch durch ständiges Abpumpen des Grundwassers trocken gehalten wird. Der Müllkörper liegt fast komplett unter dem natürlichen Grundwasserspiegel. Unterhalb der Deponiesohle liegt ein gespannter Grundwasserleiter, dessen Druckwasserspiegel etwa dem natürlichen Niveau des darüberliegenden ungespannten Grundwasserleiters entspricht. Aus diesem Tagebaurestloch kann daher weder nach unten noch an den Seiten Wasser abfließen, solange der Wasserspiegel unter dem natürlichen Grundwasserspiegel gehalten wird. Dazu müssten nur geringe Wassermengen pro Tag aus dem (wassergefüllten) Restloch abgepumpt werden. Da die Kosten dafür sehr gering wären, entstand folgende Idee:

Das Restloch samt der darin enthaltenen Deponie wird geflutet. Dann wird täglich die Wassermenge abgepumpt, die notwendig ist, um den Wasserspiegel im Restloch unter dem des umgebenden Grundwassers zu halten, damit keine unkontrollierten Stoffausträge auftreten. Das abgepumpte Wasser, das stoffbelastet ist, wird einer Reinigung zugeführt und danach in einen Vorfluter geleitet. Durch das ständige Abpumpen und Nachfließen von Grundwasser wird der Deponiekörper allmählich ausgewaschen, so dass die Stoffkonzentration im gehobenen Wasser mit der Zeit abnimmt und schließlich ohne Reinigung direkt abgeleitet werden kann. Ab dann kann das Abpumpen eingestellt und der Deponiekörper ohne Gefahr für die Umwelt sich selbst überlassen werden.

Eine der grundsätzlichen Fragen in diesen Überlegungen war, wie effektiv es ist, einen Deponiekörper auf diese Weise auszulaugen. Das zu klären war der ursprüngliche Anlass für die vorliegende Dissertation. Es wurde aber bereits in einer frühen Phase der Arbeit deutlich, dass die o. g. Vorgehensweise nicht besonders wirkungsvoll ist, so dass sie inzwischen verworfen wurde. Nichtsdestoweniger blieb die grundsätzliche Frage, wie man ein kontaminier-

tes poröses Medium (PM) am effektivsten gezielt auslaugt bzw. wie sich unterschiedliche natürliche Niederschlagsraten auf die Stoffauswaschung aus einem PM auswirken. Dem wird in dieser Dissertation nachgegangen.

Ausgangspunkt für die Betrachtungen waren Erkenntnisse aus Versuchen zur Auswaschung von Salzen aus Böden, die schon vor einigen Jahrzehnten durchgeführt wurden. Sie haben gezeigt, dass die Salzkonzentration im Sickerwasser und die ausgewaschene Salzfracht nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängt: Mit einer gegebenen Wassermenge wird bei niedrigen Raten (z. B. bei unterbrochenem Überstau) mehr Salz je Volumen Wasser ausgewaschen als bei hohen (z. B. bei durchgehendem Überstau). Bei gleicher Rate nimmt die Fracht mit der applizierten Wassermenge degressiv zu, da die Stoffkonzentration im Sickerwasser sinkt.

Im Rahmen dieser Dissertation wurden Versuche durchgeführt, um die o. g. Beobachtungen zu bestätigen und sie auf andere PM und Stoffe zu übertragen. Darauf aufbauend wurde ein mathematisches Modell entwickelt, mit dem die Versuchsergebnisse erklärt und der Einfluss von Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung simuliert werden können.

In einer ersten Versuchsreihe wurden ein schwach toniger Sand und ein Sandlöss mit Chlorid versetzt, dann in Säulen gefüllt und anschließend im Labor durch Überstau bzw. verschiedene Beregnungsraten ausgewaschen. Der Chloridgehalt des ablaufenden Sickerwassers wurde bestimmt. Damit konnten die Erkenntnisse aus den o. g. Entsalzungsversuchen bestätigt werden, nämlich dass nicht nur die Wassermenge bestimmt, wie viel Stoff ausgelaugt wird, sondern auch die Rate, mit der sie appliziert wird. Außerdem wurde damit gezeigt, dass sie nicht nur bei Überstau, sondern auch bei Beregnung zutreffen.

In einer zweiten Versuchsreihe wurden Fertigungskompost sowie eine Mischung aus Kompost und dem o. g. Sand als Substrat verwendet. Damit sollte die Zusammensetzung von Hausmüll simuliert werden. Wasser wurde wieder durch Überstau und verschiedene Beregnungsraten zugeführt. Neben dem Chloridgehalt wurde nun auch der Gehalt an Zink und organischen Verbindungen (erfasst über den Parameter CSB) im Sickerwasser bestimmt. In Kompost waren diese Stoffe natürlicherweise schon reichlich vorhanden, so dass die Substrate damit nicht erst versetzt werden mussten. Auch hier zeigte sich, dass mit der kleinsten Rate grundsätzlich die meisten Stoffe pro gegebener Wassermenge ausgewaschen werden. Das belegt, dass die o. g. Erkenntnisse auch für Substrate gelten, die in ihrer Zusammensetzung Hausmüll ähneln, und außerdem nicht nur für Anionen, hier vertreten durch Chlorid, sondern auch für Kationen und organische Verbindungen, hier repräsentiert durch Zink bzw. den CSB.



Bei einem Teil der Experimente mit Komposten trat jedoch starke Hydrophobie auf, die die Infiltration von Wasser und damit die Auslaugung des Substrates behinderte. Weil mit größeren Beregnungsraten die Hydrophobie teilweise überwunden werden konnte, wurde damit nun mehr Fracht je Wassermenge ausgewaschen als mit kleinen Raten. Das bisher stets beobachtete Verhalten kehrte sich also um. Mit Hydrophobie ist vor allem bei einem hohen Gehalt an organischer Substanz im PM zu rechnen. Auftreten und Überwindung der Hydrophobie bei der Auswaschung eines solchen PM bedürfen noch weiterer Untersuchungen.

Um die beobachteten Abhängigkeiten der Stoffkonzentration und -fracht von der applizierten Wassermenge und Applikationsrate (in Abwesenheit von Hydrophobie) zu erklären, wurde ein zunächst nur qualitatives mathematisches Modell hergeleitet. Es basiert auf der Berechnung der Wasserdurchflussrate durch eine Pore mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung und deren Verknüpfung mit der Porengrößenverteilung in einem PM, die mit Hilfe der kapillaren Aufstiegsleichung aus der Wasserspannungskurve für das PM abgeleitet werden kann. Im Modell wird weiterhin angenommen, dass sich die Stoffe an den Porenwänden des PM anlagern und daher proportional zur Wandoberfläche verteilt sind. Mit diesem Modell können die o. g. Beobachtungen wie folgt erklärt werden:

Bei gleicher Länge hat eine große Pore mehr Wandfläche als eine kleine und daher auch einen höheren Stoffgehalt. In einem PM überwiegen aber kleine Poren, so dass in den aus den kleineren Poren bestehenden 50% des Gesamtporenvolumens oft > 90% der auslaugbaren Stoffmenge zu finden sind. Außerdem ist die Wandfläche je Porenvolumen invers proportional zum Porenradius ( $r$ ). Für ein gegebenes Volumen enthält eine Pore daher umso mehr Stoffe, je kleiner ihr Radius ist. Eine gegebene Wassermenge verlagert daher umso mehr Stoffe, je mehr davon durch kleine Poren fließt, also je kleiner die Applikationsrate ist. Deshalb ist bei kleinen Raten auch die Stoffkonzentration im Sickerwasser höher als bei großen.

Da die Durchflussrate mit  $r^4$  steigt, wird die größte am Durchfluss beteiligte Pore zuerst ausgelaut und dann immer kleinere Poren. Ausgelautete Poren liefern unbelastetes Wasser, so dass bei konstanter Applikationsrate die Stoffkonzentration im Sickerwasser nach Auslaugung der ersten Pore ständig abnimmt. Gleichzeitig führt nun eine steigende applizierte Wassermenge zu einer immer geringeren Zunahme der ausgewaschenen Gesamtfracht. Eine bestimmte Wassermenge, mit einer geringen Rate und somit über eine längere Zeit appliziert, verlagert daher eine größere Stoffmenge, als die gleiche Menge mit höherer Rate, also in kürzerer Zeit appliziert.

Es ist also nicht nur die Wassermenge die bestimmt, wie viel Stoff ausgelaut wird, sondern auch die Rate, mit der sie appliziert wird. Folglich wird bei geringen Applikationsraten, die

niedrige Wassergehalte im PM zur Folge haben, effektiver ausgewaschen als bei höheren Raten und damit zunehmenden Wassergehalten.

Um eine quantitativ korrekte Beschreibung der Stoffauswaschung zu ermöglichen, wurde das qualitative Modell weiterentwickelt. Dabei wurde nun berücksichtigt, dass Poren gewunden sind, nicht den gleichen Radius über ihre gesamte Länge aufweisen und miteinander in Verbindung stehen. Letzteres ermöglicht eine Mischung der Stoffströme aus den einzelnen Poren. Wie auch das ursprüngliche Modell ist es zunächst nur für homogene PM anwendbar und eindimensional.

Das verbesserte Modell wurde anhand von Berechnungen mit der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) sowie Ergebnissen aus eigenen Durchbruchs- und Auslaugungsversuchen validiert. Durch Anpassen der Eingabeparameter ist es möglich, Deckungsgleichheit zwischen Berechnungen mit diesem Modell und Berechnungen mit der ADG bzw. experimentell ermittelten Daten zu erreichen.

Eine Sensitivitätsanalyse zeigte, dass das Modell am sensibelsten auf Variationen der Parameter zur Beschreibung der Wasserspannungskurve, des Retardationsfaktors im PM für den betrachteten Stoff und der Stoffmenge im PM reagiert.

Das weiterentwickelte Modell ermöglicht zum einen die Prognose von Stoffausträgen, wenn die zu betrachtenden Stoffe mit gleichbleibender Konzentration und Rate auf der Oberfläche eines PM aufgebracht werden, und zum anderen, wenn sie bereits im Medium in porengrößenabhängigen Konzentrationen vorliegen. Im zweiten Fall wird auch berücksichtigt, dass schon bei der Aufsättigung eines trockenen PM bis zum der Applikationsrate entsprechenden Wassergehalt und somit vor Beginn der Entwässerung eine Stoffverlagerung stattfindet, sich die Stoffverteilung innerhalb des PM also ändert. Stoffkonzentrationen und -frachten können bei gegebener Berechnungsrate als Funktion der Zeit bzw. der applizierten Wassermenge beschrieben werden. Mit dem Modell können somit grundsätzliche Betrachtungen zur Stoffauswaschung, z. B. zu effektiven Auswaschungsstrategien, angestellt werden.

Schwachpunkt des Modells ist, dass heterogene Medien noch nicht betrachtet werden können, z. B. geschichtete PM mit unterschiedlichen Wasserspannungskurven in den einzelnen Schichten. Auch die Wirkung von unterbrochenem Überstau, wie er in den eingangs zitierten Arbeiten zur Bodenentsalzung oft Anwendung fand, lässt sich noch nicht direkt simulieren. Dafür müssen zur Zeit noch mittlere Berechnungsraten ermittelt und in das Modell eingegeben werden. Diese Aspekte werden im Lauf der Zeit eingearbeitet werden.

Kenntnisse zur Stoffauswaschung aus einem PM als Funktion der Wassermenge und Applikationsrate sind nötig, damit eine gezielte Auslaugung von Müllkörpern oder kontaminierten

Flächen effektiv, also kostengünstig und möglichst schnell, durchgeführt werden kann. Weiterhin ermöglichen sie eine bessere Abschätzung der zu erwartenden Stoffausträge durch natürliche Niederschläge. In diesem Zusammenhang sei auch auf die Auswaschung von Nährstoffen aus landwirtschaftlich genutzten Böden verwiesen. Wie aus den Ergebnissen hier folgt, hängen die ins Grundwasser oder in die Vorfluter gelangenden (Nähr)Stoffkonzentrationen und -frachten dabei nicht nur von der Niederschlagsmenge ab, sondern auch von der Intensität, mit der sie fallen.

## Summary

Pollution of ground and surface water by seepage from waste deposits or contaminated soils is a serious environmental problem. Municipal waste disposal sites are a major source, particularly in the former GDR, where many are not sealed at the bottom so that seepage water can leach pollutants out of the waste and carry them into the ground water.

One way to remove such pollution sources is by planned leaching. However, this is only possible, if the leachate is collected to prevent pollutants from reaching the ground water.

Planned leaching was considered for the Lochau waste disposal site near Halle/Saale. Here the waste body lies in an old open cast mine and almost completely below the natural ground water table. At the moment, the pit is kept dry by ground water pumping. Below the bottom of the pit is a confined aquifer, whose pressure head is about equal to the water table elevation of the overlying unconfined aquifer. Hence, no water can leave the pit through the bottom or its sides as long as the water table is kept below its natural level. To achieve this only a small amount of water would have to be pumped out of the (flooded) pit. Since cost would be low, the following idea arose:

The pit and the waste body within it will be flooded. Then the amount of water necessary to keep the water table in the pit below that of the surrounding ground water will be pumped out every day to prevent an escape of pollutants. The contaminated pumped water will be treated and then discharged into a stream. Due to the continuous pumping and inflow of new ground water, the waste body will be leached as time goes by. As a result, the solute concentration in the pumped water will eventually decrease to a point, where it can be released into the environment without prior treatment. Thereafter, pumping can be stopped and the site left on its own without danger to its surroundings.

A key question in this proposed idea was the effectiveness of leaching a waste body in this manner. To answer it was the original motive for this dissertation. However, it became obvious early in the work that this is not a very efficient approach. Hence, the idea was abandoned. Nevertheless, the basic problem remained, namely how to best leach a contaminated porous medium (PM) or, in a natural context, how different precipitation rates affect leaching. This is examined in this thesis.

Starting point for the investigation were trials on leaching of salts from soils, which were carried out a few decades ago. They showed that the salt concentration and load in the leachate not only depends on the amount of water applied, but also on its application rate: With a given amount of water, more salt is leached per unit volume of water at a low (e. g. intermittent flooding) than at a high rate (e. g. continuous flooding). At a given rate, the load per unit

volume of drainage water decreases as the amount of water applied goes up, because the concentration in the drainage water declines.

For this dissertation, experiments were conducted to confirm the above observations and to check their validity for other porous media and solutes. On that basis a mathematical model was developed, which can explain the experimental results and which allows the simulation of the effect of the amount of water applied and its application rate on solute leaching.

In a first set of experiments a loamy sand and a sandy silt loam were spiked with chloride, filled into columns and then leached in the laboratory flooding as well as various sprinkler irrigation rates. The chloride content of the drainage water was monitored. With these experiments the conclusions from the aforementioned salt leaching trials could be confirmed, namely that it is not only the amount of water applied, but also its application rate, which determine the amount of solutes leached. In addition, it was shown that they not only hold for flooding, but also for sprinkling.

In a second set of experiments compost and a mixture of compost and the above loamy sand were used as substrates to reflect the composition of household waste. Water was again applied by flooding and various sprinkler rates. Besides chloride, the amount of zinc and organic compounds (determined via the chemical oxygen demand, COD) were measured in the drainage water. In the compost these substances were present in sufficient quantity so that the substrates did not have to be spiked with them. Here, too, the amount of solutes leached per unit amount of water applied was highest at the lowest application rates. This shows that the above conclusions are also valid for substrates similar in composition to household waste and, in addition, not only for anions, but also for cations and organic substances, represented here by chloride, zinc and COD, respectively.

However, in some experiments with compost strong hydrophobia occurred. This obstructed infiltration of water and, thus, leaching of the substrate. Since hydrophobia could be partially overcome with high water application rates, more solutes per unit amount of water applied were leached with them than with lower rates. The behaviour always observed so far was reversed. Hydrophobia is most likely to appear in substrates with a high organic matter content. The conditions for its appearance and how to overcome it then need further investigation.

To explain the observed dependencies of solute concentration and load in drainage water on the amount of water applied and its application rate (in the absence of hydrophobia), an initially only qualitative mathematical model was formulated. It is based on the calculation of the flow rate through a pore with the Hagen-Poiseuille-equation and its combination with the pore

size distribution in a PM. The latter can be deduced from the moisture release curve of the PM. In the model it is further assumed that substances attach themselves to pore walls in a PM and are therefore distributed proportionally to the wall surface area. With this model the above observations can be explained as follows:

For a given length a large pore has more surface area than a small one and therefore contains more solutes. However, in a PM small pores usually dominate. As a result, the 50% of the total pore volume made up of the smaller pores often contain > 90% of all attached solutes. Also, the pore surface area per unit pore volume is inversely proportional to the pore radius ( $r$ ). Hence, for a given volume a pore contains the more attached solutes, the smaller its radius is. A given amount of water therefore leaches more solutes, the more of it flows through small pores, i. e. the lower the application rate is. For that reason the solute concentration in drainage water is higher at low than at high rates.

Since the flow rate increases with  $r^4$ , the largest pore participating in flow is leached out first, followed by ever smaller ones. Leached pores only yield clean water. At a constant application rate the solute concentration in the leachate therefore decreases steadily after the first pore has been leached out. At the same time, each increase in the amount of water applied leads to a progressively smaller increase in the solute load. A given amount of water applied at a low rate, i. e. over a longer period, therefore removes more solutes than the same amount applied at a higher rate, i. e. over a shorter period.

Consequently, it is not only the amount of water applied, which determines the mass of solutes leached, but also the rate it is applied at. Thus, at low application rates, which result in low water contents in the PM, leaching is more effective than at higher application rates and the ensuing higher water contents.

To provide a quantitative description of solute leaching, the qualitative model was developed further. In the process it was considered that pores are tortuous, do not have a constant radius over their course and are interconnected. The latter enables mixing of the solutions in the individual pores. Like the original model it is only applicable to a homogeneous PM and one dimensional so far.

The improved model was validated by comparing it to calculations with the advection-dispersion-equation (ADE) and to results from own breakthrough and leaching experiments. By adjusting input parameters it is possible to achieve congruence between this model and calculations with the ADE and experimental data.

A sensitivity analysis revealed that the model is most sensitive to variations of the parameters describing the moisture release curve, the retardation coefficient of the PM for the solute in question and the amount of solutes in the PM.

The improved model can simulate solute transport, if the substances in question are applied at a constant concentration and rate to the surface of the PM, or if they are already present in the PM in pore size dependent concentrations. In the latter case it takes into account that solute transport already begins, while a dry PM is wetted to the water content corresponding to the chosen application rate, i. e. that the solute distribution in the PM changes, before any drainage occurs. At a given water application rate, solute concentrations and loads can be described as a function of time or the amount of water applied. With these characteristics, fundamental solute transport issues can be addressed with the model, e. g. the question of the most effective leaching strategy for a problem at hand.

Knowledge about the effect of the amount of water applied and its application rate on leaching solutes out of a PM are necessary to achieve an efficient (i. e. quick and cheap) leaching of waste bodies or contaminated sites. It permits a more precise assessment of solute leaching by rain, too. In this context the leaching of nutrients from agricultural soils is worth mentioning. It follows from the results presented here that solute (nutrient) concentrations and loads reaching ground and surface waters not only depend on the amount of rainfall, but also its intensity, i. e. the rainfall rate.

There are some weak points in the model. Heterogeneous substrates cannot be studied yet, e. g. a layered PM with a different moisture release curve in each layer. Also, intermittent flooding as used in the salt leaching trials mentioned at the beginning cannot be simulated directly at this stage, but only by using mean irrigation rates in the model. These deficiencies will be removed in future work.

## Verzeichnis der Variablen

Variable	Beschreibung	Einheiten
a	vom PM abhängender empirischer Faktor	m
b	vom PM abhängender empirischer Faktor	dimensionslos
f	Dispersivitätsfaktor	dimensionslos
$f_{\emptyset}$	Fracht je Einheit Querschnittsfläche des PM	kg/m <sup>2</sup>
$f_1$	Fracht je Einheit Querschnittsfläche des PM aus Poren, die am Durchfluss beteiligt, aber noch nicht völlig ausgelaugt sind	kg/m <sup>2</sup>
$f_2$	Fracht je Einheit Querschnittsfläche des PM aus Poren, die am Durchfluss beteiligt, aber bereits ausgelaugt sind	kg/m <sup>2</sup>
$f_g$	gesamte bis zur Zeit t ausgewaschene Fracht	kg/m <sup>2</sup>
g	Fallbeschleunigung	m/s <sup>2</sup>
k	hydraulische Leitfähigkeit	m/s
kf	gesättigte Wasserleitfähigkeit	mm/h, m/s
$k_h$	Verteilungskoeffizient eines Stoffs zwischen Lösung und Feststoff in der Henry-Isotherme	m <sup>3</sup> /kg
n	Abschnittszähler	dimensionslos
q	Flux durch das gesamte PM	m/s
$q_{ap}$	(Wasser)Applikationsrate bzw. Beregnungsrate je Einheit Querschnittsfläche des PM	mm/h, m/s
$q_i$	Flux durch eine Pore mit Radius i	m/s
r	Radius	m
$r_0$	Radius, unterhalb dessen in einer Pore kein Wasser mehr fließen kann	m
$r_i$	Radius der Pore i	m
$r_{max}$	Radius der größten wassergefüllten Pore	m
$r_{min}$	Radius der kleinsten Pore, in die ein betrachteter Stoff eindringen kann	m
$r_q$	Radius der kleinsten Pore, die zur Zeit t schon völlig ausgelaugt ist	m
$r_{Stoff}$	Radius eines betrachteten Stoffs	m
$r_t$	Radius der größten Pore, die zur Zeit t noch nicht völlig ausgelaugt ist	m
s	Stoffmenge je Einheit Querschnittsfläche des PM in den wassergefüllten Poren	kg/m <sup>2</sup>
$s_g$	Stoffmenge je Einheit Querschnittsfläche des PM in allen Poren	kg/m <sup>2</sup>
$s_i$	Stoffmenge je Einheit Querschnittsfläche in einer Pore mit Radius i	kg/m <sup>2</sup>



$s_{rel}$	Quotient aus $s$ und $s_g$	dimensionslos
$t$	Zeit	s
$t_0$	Zeit zu Beginn der Stoffapplikation	s
$t_a$	Zeit, die zur Aufsättigung eines PM-Abschnitts benötigt wird	s
$t_e$	Zeit am Ende der Stoffapplikation	s
$v$	mittlere Fließgeschwindigkeit des Wassers	m/s
$v_i$	Fließgeschwindigkeit des Wassers in einer Pore mit Radius $i$	m/s
$z$	Höhe des Betrachtungspunktes im PM über dem Referenzniveau (Gravitationspotential) oder Entfernung in Fließrichtung	m
$z_m$	Mischungszahl	dimensionslos
$A_g$	Querschnittsfläche des PM	m <sup>2</sup>
$A_i$	Querschnittsfläche einer Pore mit Radius $i$	m <sup>2</sup>
$A_{oi}$	Wandfläche einer Pore mit Radius $i$	m <sup>2</sup>
$C$	Stoffkonzentration	kg/m <sup>3</sup>
$C_0$	Stoffkonzentration im Beregnungswasser	kg/m <sup>3</sup>
$C_a$	Masse des an die Matrix gebundenen Stoffs je Volumen Lösung	kg/m <sup>3</sup>
$C_D$	durchschnittliche Stoffkonzentration des Sickerwassers, das aus dem PM austritt	kg/m <sup>3</sup>
$C_{ein}$	Stoffkonzentration des Wassers, das in einen PM-Abschnitt fließt	kg/m <sup>3</sup>
$C_g$	gesamte Stoffmasse je Volumen Lösung	kg/m <sup>3</sup>
$C_{gm}$	Mischungskonzentration gelöster und gebundener Stoffe	kg/m <sup>3</sup>
$C_i$	Stoffkonzentration in einer Pore mit Radius $i$	kg/m <sup>3</sup>
$C_{init}$	Stoffkonzentration vor Beginn eines Stoffeintrags	kg/m <sup>3</sup>
$C_l$	Masse des gelösten Stoffs je Volumen Lösung	kg/m <sup>3</sup>
$C_{lm}$	Mischungskonzentration gelöster Stoffe	kg/m <sup>3</sup>
$C_t$	Stoffkonzentration im Sickerwasser, das das PM zur Zeit $t$ verlässt (Momentankonzentration)	kg/m <sup>3</sup>
$C_{vor}$	Stoffkonzentration des Wassers, das in einem PM-Abschnitt vorhanden ist	kg/m <sup>3</sup>
$C(z, t)$	Stoffkonzentration an einer Position $z$ zur Zeit $t$	kg/m <sup>3</sup>
$D$	Dispersions-Diffusionskoeffizient	m <sup>2</sup> /s
$D_d$	Diffusionskoeffizient	m <sup>2</sup> /s
$D_h$	Dispersionskoeffizient	m <sup>2</sup> /s
$E$	Stoffentnahme durch interne Senken im PM	kg/m <sup>3</sup> /s
$F$	Gesamtfracht aus dem PM	kg

$F_{\text{ein}}$	relativer Anteil an Lösung mit der Stoffkonzentration $C_{\text{ein}}$ an der gesamten Wassermenge in einem PM-Abschnitt	dimensionslos
$F_i$	Fracht aus einer Pore mit Radius $i$	kg
$F_{\text{vor}}$	relativer Anteil an Lösung mit der Stoffkonzentration $C_{\text{vor}}$ an der gesamten Wassermenge in einem PM-Abschnitt	dimensionslos
$L$	Länge der durchströmten Schicht oder des PM	m
$L_a$	Länge eines PM-Abschnitts	m
$L_e$	Länge des tatsächlichen Fließweges	m
$L_i$	Länge einer Pore mit Radius $i$	m
$Q$	Durchflussrate durch das PM	$\text{m}^3/\text{s}$
$Q_i$	Durchflussrate durch eine Pore mit Radius $i$	$\text{m}^3/\text{s}$
$R$	Retardationskoeffizient	dimensionslos
$S_a$	(ad)sorbierte Stoffmenge je Masseneinheit PM	kg/kg
$S_g$	Summe aus gelöster und (ad)sorbierter Stoffmenge je Masseneinheit PM	kg/kg
$S_i$	Stoffmenge in einer Pore mit Radius $i$	kg
$S_l$	gelöste Stoffmenge je Masseneinheit PM	kg/kg
$V_{\text{ein}}$	Wasservolumen, das in einen PM-Abschnitt fließt	$\text{m}^3$
$V_g$	Wasservolumen, das in einem PM-Abschnitt vorhanden ist	$\text{m}^3$
$V_{pi}$	Volumen einer Pore mit Radius $i$	$\text{m}^3$
$V_{wi}$	Wasservolumen in einer Pore mit Radius $i$	$\text{m}^3$
$W_a$	applizierte Wassermenge je Einheit Querschnittsfläche des PM	mm, m
$Z$	Stoffzufuhr aus internen Quellen im PM	$\text{kg}/\text{m}^3/\text{s}$
$\alpha$	Dispersivität	m
$\beta$	Stoffmenge, die je Einheit Wandfläche angelagert werden kann	$\text{kg}/\text{m}^2$
$\nu$	dynamische Viskosität des Wassers	$\text{kg}/\text{m}/\text{s}$
$\varphi$	Kontaktwinkel zwischen Wasser und Porenwand	°
$\pi$	Kreiszahl	dimensionslos
$\theta$	volumetrischer Wassergehalt	$\text{m}^3/\text{m}^3$ , %
$\theta_0$	volumetrischer Wassergehalt, wenn alle Poren mit $r \leq r_0$ wassergefüllt sind	$\text{m}^3/\text{m}^3$ , %
$\theta_{ap}$	volumetrischer Wassergehalt, der sich bei einer Berechnungsrate von $q_{ap}$ im PM einstellt	$\text{m}^3/\text{m}^3$ , %
$\theta_{\text{min}}$	volumetrischer Wassergehalt, wenn alle Poren mit $r \leq r_{\text{min}}$ wassergefüllt sind	$\text{m}^3/\text{m}^3$ , %
$\theta_s$	volumetrischer Wassergehalt bei Wassersättigung	$\text{m}^3/\text{m}^3$ , %

$\theta_t$	volumetrischer Wassergehalt, wenn alle Poren mit $r \leq r_t$ wassergefüllt sind	$m^3/m^3$ , %
$\theta_v$	volumetrischer Wassergehalt (nur in Kapitel 2)	$m^3/m^3$ , %
$\rho$	Dichte des Wassers	$kg/m^3$
$\rho_t$	Trockendichte des PM (Lagerungsdichte)	$kg/m^3$ , $g/cm^3$
$\sigma$	Oberflächenspannung des Wassers	N/m
$\Psi_e$	Luft Eintrittspotential	m
$\Psi_m$	Matrixpotential	m
$\Delta t_m$	Zeit, die das Wasser in der größten am Durchfluss beteiligten Pore braucht, um vom oberen zum unteren Ende eines PM-Abschnitts zu gelangen.	s

PM = poröses Medium

## **I. Einleitung**

### **1. Veranlassung**

Die Belastung von Grund- und Oberflächenwasser durch Schadstoffeinträge aus Ablagerungen oder kontaminierten Böden stellt ein ernstes Umweltproblem dar. Eine wesentliche Quelle solcher Belastungen sind Mülldeponien. Besonders auf dem Gebiet der ehemaligen DDR befinden sich viele Deponien, die nicht mit einer Basisabdichtung versehen sind, so dass Sickerwasser aus dem Deponiekörper umweltrelevante Stoffe in das Grundwasser eintragen kann. Bei diesen Stoffen handelt es sich sowohl um anorganische als auch organische Verbindungen, die oftmals in ionischer Form auftreten. Genauere Beschreibungen der Zusammensetzung von Deponiesickerwasser sind in Arneth et al. (1989) und Krümpelbeck und Ehrig (2001) zu finden.

Die kritischsten Stoffe darin sind organische Verbindungen, da sie einerseits am häufigsten die vorgegebenen Grenzwerte überschreiten und andererseits längere Zeit als andere Stoffgruppen in bedenklichen Konzentrationen im Sickerwasser zu finden sind (Belevi und Baccini, 1989a, b). Sie liegen in einem breiten Spektrum von organischen Säuren über halogenierte Kohlenwasserstoffe bis hin zu Huminstoffen vor und werden mit dem Summenparameter CSB (chemischer Sauerstoffbedarf) erfasst. In den CSB gehen alle durch Oxidation abbaubaren organischen Stoffe ein. Die Zusammensetzung des CSB variiert stark (Andreottola und Cannas, 1992) und ist von der Art des abgelagerten Abfalls sowie vom Alter der Deponie abhängig (Krümpelbeck, 1999). Deshalb ist eine Unterteilung nach Abbaubarkeit und Abbaugeschwindigkeit sinnvoll, wobei das Verhältnis von BSB<sub>5</sub> (biologischer Sauerstoffbedarf in fünf Tagen) zu CSB als ein Maß für die Abbaubarkeit der organischen Verbindungen herangezogen werden kann.

Lösliche organische Verbindungen sind meist anionischer Natur und deshalb relativ mobil. Dennoch dauert es nach Abschluss des Betriebs einer Deponie noch mindestens mehrere Jahrzehnte, bis die CSB-Konzentration im Sickerwasser vertretbare Werte erreicht und keine Reinigung mehr erforderlich ist (Krümpelbeck und Ehrig, 2001). Das liegt hauptsächlich an Abbauprozessen im Deponiekörper, die diese organischen Verbindungen teilweise erst in wässrige Lösung gehen lassen. Die o. g. Zeitdauer gilt dann, wenn die Stoffauswaschung ausschließlich durch natürliche Niederschläge erfolgt und keine zusätzliche Beregnung stattfindet.

Eine Möglichkeit Kontaminationsquellen wie z. B. Deponien zu bereinigen besteht darin, sie gezielt auszulaugen. Das ist grundsätzlich aber nur dann möglich, wenn eine Sickerwasserfassung vorhanden ist, damit ein Übertritt von kontaminiertem Sickerwasser ins Grundwasser vermieden wird. Bei der Auslaugung ist zu beachten, dass die Stoffauswaschung nicht

nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängt. Das lässt sich aus Versuchen zur Bodenentsalzung ableiten. Dabei stellten Luthin und Biggar (1962), Miller et al. (1965), Nielsen et al. (1966), Leffelaar und Pal Sharma (1977) sowie Jury et al. (1979) fest, dass mit geringeren Wasserapplikationsraten (z. B. bei unterbrochenem Überstau) mehr Salz je Volumen Wasser (also effektiver) ausgelaugt wird als mit hohen Raten (z. B. bei durchgehendem Überstau).

In allen genannten Arbeiten fehlt jedoch eine Erklärung der genauen Ursachen dafür. Eigene Überlegungen legen nahe, dass die höhere Auslaugungseffektivität geringerer Raten darauf zurückzuführen ist, dass der größte Teil der auslaugbaren Stoffe in den kleineren Poren enthalten ist. Mit steigender Wasserapplikationsrate werden mehr größere Poren zum Wassertransport benötigt, die sehr viel Wasser leiten können aber wenig Stoff enthalten und daher relativ gering konzentrierte Lösung enthalten.

In dieser Arbeit werden mehrere Zielstellungen verfolgt, die für die Stoffauswaschung aus porösen Medien (PM) von Bedeutung sind:

- Nachweis, dass sich die auslaugbaren Stoffmengen in einem PM überwiegend in den kleineren Poren befinden und deshalb bei gleicher Wassermenge mit geringen Raten mehr Stoffe ausgewaschen werden als mit höheren.
- Prüfung, ob das o. g. von mineralischen PM auf Müllkörper übertragbar ist.
- Entwicklung eines Modells, mit dem der Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung unter Einbeziehung einer porengrößenabhängigen Stoffbeladung beschrieben werden kann.

Der erste Punkt soll mit der Auswaschung verschiedener Stoffe und Stoffgruppen aus unterschiedlichen Substraten durch Säulenversuche belegt werden. Dazu wurden ein schwach toniger Sand und ein Sandlöss zunächst mit Chlorid versetzt und anschließend jeweils mit unterschiedlichen Beregnungsintensitäten ausgewaschen. Der Chloridgehalt des ablaufenden Sickerwassers wurde bestimmt. Damit sollen auch die Ergebnisse der oben zitierten Arbeiten geprüft und nachvollzogen werden.

Als nächste Substrate dienten Fertigkompost sowie eine Mischung aus Kompost und dem anfangs verwendeten Sand. Damit sollte die Zusammensetzung von Hausmüll simuliert werden. "Echter" Müll aus einer Deponie eignet sich nicht für Säulenversuche in unserem Maßstab, weil manche Müllkomponenten größer sind als die von uns eingesetzten Säulendurchmesser. Beim Auswaschen dieser Substrate wurden im Sickerwasser die Konzentrationen von Chlorid und Zink sowie der CSB und die elektrische Leitfähigkeit gemessen. Mit diesen Versuchen soll nachgewiesen werden, dass auch Substrate, die in ihrer Zusammensetzung

Hausmüll ähneln, bei der Stoffauswaschung den gleichen Gesetzmäßigkeiten unterliegen wie mineralische PM.

Ein möglicher Unterschied besteht allerdings darin, dass in einem PM mit einem hohen Anteil an organischer Substanz, wie z. B. Hausmüll, Hydrophobie auftreten kann. Daher erfolgt im letzten experimentellen Teil eine Auseinandersetzung mit diesem Phänomen, das schlimmstenfalls soweit führen kann, dass die Gesetzmäßigkeiten der Infiltration sowie des damit verbundenen Stofftransportes völlig außer Kraft gesetzt werden. Hydrophobie wird durch die hohen Temperaturen während der Umsetzungsprozesse (Rotte) bewirkt und durch Austrocknung des Mediums noch verstärkt.

Weiterhin wird dann ein Stofftransportmodell entwickelt, in das die Porengrößenverteilung des Substrates, verkörpert durch eine mathematische Beschreibung der Wasserspannungskurve, mit eingeht und das dadurch den Fluss durch die einzelnen Poren berücksichtigt. Zunächst wurde nur ein einfaches qualitatives Modell hergeleitet, mit dem die Abhängigkeit der Stoffauswaschung von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate erklärt werden kann, das aber noch keine quantitativen Aussagen zulässt. Es wurde dann später zu einem Modell weiterentwickelt, mit dem auch eine quantitativ korrekte Beschreibung der Stoffauswaschung möglich ist. Die Validität dieses Modells wird dann anhand von Ergebnissen aus Berechnungen mit der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) sowie eigenen Experimenten geprüft. Abschließend wird in einer Sensitivitätsanalyse untersucht, wie sensibel das Modell auf eine Variation der einzelnen Eingabeparameter reagiert.

Erkenntnisse zur Stoffauswaschung aus einem PM als Funktion der Wassermenge und Applikationsrate sind nötig, damit die angesprochene gezielte Auslaugung von Müllkörpern einerseits effektiv und damit kostengünstig und andererseits möglichst schnell durchgeführt werden kann. Letzteres ist wichtig, um die Zeitdauer der meist kostspieligen Nachsorge bei Müllkörpern (besonders Sickerwasserfassung und -reinigung) auf ein Minimum zu reduzieren, bevor die Deponie dann "sich selbst überlassen" werden kann. An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass die Idee einer (bisher in der Praxis noch nicht angewendeten) gezielten Beregnung von Deponien zwecks Auslaugung zwar der Anlass für die hier angestellten Überlegungen war (und der im nächsten Abschnitt noch etwas genauer erläutert wird), sich die gewonnenen Erkenntnisse aber auf die Entfrachtung von anderen stoffbelasteten mineralischen oder organischen PM durch gezielte Beregnung oder natürliche Niederschläge übertragen lassen. In diesem Zusammenhang sei auch auf die Auswaschung von Nährstoffen aus landwirtschaftlich genutzten Böden verwiesen.

Weiterhin ermöglichen diese Kenntnisse eine bessere Abschätzung der zu erwartenden Stoffausträge aus den eingangs erwähnten, unabgedichteten Deponien durch Nieder-

schlagswasser. Wie aus den Thesen folgt, hängen die ins Grundwasser oder in die Vorfluter gelangenden Stoffkonzentrationen und -frachten dabei nicht nur von der Niederschlagsmenge ab, sondern auch von der Intensität, mit der sie fallen. Beides ist von Region zu Region verschieden, so dass bei vergleichbaren Deponiekörpern verschiedene Sickerwasserkonzentrationen auftreten können.

Die vorliegende Arbeit weicht in ihrer Gliederung von der für eine Dissertation weit verbreiteten Form ab. Sie besteht aus mehreren in sich abgeschlossenen und zum Teil veröffentlichten Kapiteln, die um einen vorangestellten Überblick über den Kenntnisstand zum Stoffaustrag aus Deponien über den Wasserpfad und eine abschließende Diskussion ergänzt sind. Die in den autarken Kapiteln zitierte Literatur ist jeweils an deren Ende aufgeführt und am Schluss der Arbeit noch einmal in einem Gesamtliteraturverzeichnis zusammengefasst.

## **2. Stoffaustrag aus Deponien über den Wasserpfad**

Unzählige Arbeiten beschäftigen sich mit der Menge und Zusammensetzung von Deponiesickerwasser und der Prognose dieser Parameter. Dabei wird aber hauptsächlich Wasser betrachtet, was einerseits aus dem Müllkörper selbst stammt und aus ihm abgegeben wird oder was als natürlicher Niederschlag durch den Müllkörper perkoliert und dabei Substanzen aus ihm herauslöst und zur Basis transportiert. Die Möglichkeit einer gezielten Infiltration von Wasser, um den Stofftransport und damit die Entfrachtung einer Deponie über die wässrige Phase zu beschleunigen, wird eher am Rande betrachtet.

Ohne zusätzliche Maßnahmen dauert es zwischen Jahrzehnten und Jahrhunderten, bis alle im Sickerwasser vorkommenden bedenklichen Stoffe und Stoffgruppen die Grenzwerte unterschreiten (Krümpelbeck, 1999; Krümpelbeck und Ehrig, 2001). Belevi und Baccini (1989a) weisen darauf hin, dass organische Stoffe besonders lange im Sickerwasser auftreten; es wird eine Spanne von 400 bis zu 4.000 Jahren angegeben, bis der Gehalt an organischem Kohlenstoff unterhalb 20 bzw. 2 mg/l liegt. Der Rückgang der Werte wird dabei sowohl durch chemische Abbauprozesse im Müllkörper als auch durch Entfrachtung durch perkolierendes Wasser erzielt. Wie bereits angesprochen, ist dabei eine gezielte Beregnung zum Zweck der Stoffauswaschung nicht üblich, aber durchaus sinnvoll.

Vielmehr wird in der Abfallwirtschaft heutzutage angestrebt, eine Deponie nach Ende der Einlagerung möglichst gut abzudecken und zu begrünen, um damit das Eindringen von Niederschlag (und damit das Auftreten von Sickerwasser) zu minimieren, wobei aber auch immer wieder kritisch angemerkt wird, dass solche Maßnahmen die Stabilisierung des Müllkörpers stark verzögern (Krümpelbeck, 1999). In den meisten Fällen kann damit eine Kontamination des Grundwassers vermieden werden, nicht aber dann, wenn der Müllkörper ganz

oder teilweise unterhalb des natürlichen Grundwasserspiegels liegt. Dann muss auch noch nach Schließung der Deponie ein jahrelanges Abpumpen großer Wassermengen erfolgen, um den Deponiekörper trocken zu halten und Stoffausträge in Folge einer Flutung zu unterbinden, was meist sehr aufwendig und kostspielig ist.

Solche Deponien gibt es vor allem in den neuen Bundesländern. Sie befinden sich meist in Tagebaurestlöchern, wie ehemalige Braunkohletagebaue oder Kiesgruben. Die Technische Anleitung Siedlungsabfall (TASi, 1993) verbietet ihre weitere Nutzung als Deponie über das Jahr 2005 hinaus. Nach Abschluss der Müllablagerung ist eine schnellstmögliche Entfrachtung und Inertisierung solcher Deponien erforderlich. Erst wenn dieser Prozess weitgehend abgeschlossen ist, kann die Deponie abgedeckt und durch Abstellen der Pumpen geflutet werden.

Ein Beispiel für eine solche Deponie ist Lochau bei Halle/Saale, deren Müllkörper fast komplett unterhalb des natürlichen Grundwasserspiegels liegt. Unterhalb der Deponiesohle liegt dort ein gespannter Grundwasserleiter, dessen Druckwasserspiegel etwa auf dem natürlichen Niveau des darüberliegenden quartären Grundwasserleiters liegt. Aus diesem Tagebaurestloch kann daher weder nach unten noch an den Seiten Wasser abfließen, solange der Wasserspiegel unterhalb des natürlichen Grundwasserspiegels gehalten wird. Dazu müssten nur geringe Wassermengen pro Tag aus dem (wassergefüllten) Restloch abgepumpt werden. Da die Kosten dafür sehr gering wären, entstand folgende Idee:

Das Restloch samt der darin enthaltenen Deponie wird geflutet. Dann wird täglich die Wassermenge abgepumpt, die notwendig ist, um den Wasserspiegel im Restloch unter dem des umgebenden Grundwassers zu halten, damit keine unkontrollierten Stoffausträge auftreten. Das abgepumpte Wasser, das stoffbelastet ist, wird einer Reinigung zugeführt und danach in einen Vorfluter geleitet. Durch das ständige Abpumpen und Nachfließen von Grundwasser wird der Deponiekörper allmählich entfrachtet, so dass die Stoffkonzentration im gehobenen Wasser mit der Zeit abnimmt und schließlich ohne Reinigung direkt abgeleitet werden kann. Ab dann kann das Abpumpen eingestellt und der Deponiekörper ohne Gefahr für die Umwelt sich selbst überlassen werden.

Eine der grundsätzlichen Fragen in diesen Überlegungen war, wie effektiv es ist, einen Deponiekörper auf diese Weise auszulaugen. Das zu klären war der ursprüngliche Anlass für die vorliegende Dissertation. Es wurde bereits in einer frühen Phase der Arbeit deutlich, dass die o. g. Vorgehensweise nicht besonders effektiv ist, so dass sie inzwischen verworfen wurde. Nichtsdestoweniger blieb die grundsätzliche Frage, wie man ein kontaminiertes poröses Medium (PM) am effektivsten gezielt auslaugt bzw. wie sich unterschiedliche natürliche Nie-



derschlagsraten auf die Stoffauswaschung aus einem PM auswirken. Dem wird im Folgenden nachgegangen.

Wie bereits in der Veranlassung gesagt, sind die kritischsten Stoffe bei der Entfrachtung eines Deponiekörpers organische Verbindungen. Der Summenparameter CSB (chemischer Sauerstoffbedarf) wird in der Abfallwirtschaft verwendet, um die Belastung des Sickerwassers mit organischen Verbindungen zu beziffern. Für ihn gibt es Grenzwerte, die beim Einleiten von (gereinigtem) Sickerwasser in Vorfluter oder stehende Gewässer nicht überschritten werden dürfen. Auch für den Ablauf von Kläranlagen gelten Höchstgrenzen für diesen Parameter. Ehrig (1980) zeigt eine Korrelation zwischen CSB und organischem Kohlenstoff im Deponiesickerwasser. Man kann davon ausgehen, dass die Ermittlung eines der beiden Parameter auf den anderen schließen lässt. Andreottola und Cannas (1992) zeigen eine Einteilung der Bestandteile des CSB in verschiedene Stoffgruppen. Diese unterschiedlichen Stoffe sollen hier aber nicht näher betrachtet werden, da wie oben bereits ausgeführt, der gesamte CSB als Kriterium für die Gewässergüte herangezogen wird. Hier muss allerdings erwähnt werden, dass es im Sickerwasser organische Stoffe mit toxischer Wirkung (PAK oder PCB) ebenso gibt wie Stoffe, deren Anwesenheit im Müllkörper sogar vorteilhaft ist. So sind Humin- und Fulvosäuren beispielsweise in der Lage, Schwermetalle zu komplexieren, was einer Verlagerung entgegenwirkt (Andreottola und Cannas, 1992). Das lässt den Rückschluss zu, dass es gar nicht erstrebenswert ist, sämtliche organische Verbindungen aus dem Müllkörper zu entfernen.

Ein Maß für Abbaubarkeit und Mobilität der organischen Verbindungen im Sickerwasser ist das Verhältnis von BSB<sub>5</sub> (biologischer Sauerstoffbedarf in fünf Tagen) und CSB. Nach Heyer und Stegmann (1997) weisen beide Parameter im Sickerwasser zwar qualitativ eine ähnliche Abnahme über die Zeit auf, quantitativ treffen aber unterschiedliche Aussagen zu. So zeigen verschiedene Autoren, dass der BSB<sub>5</sub> wesentlich stärker abnimmt als der CSB. Während bis zu 5 Jahre nach Müllablagerung der BSB<sub>5</sub> einen Anteil von 50% am CSB einnimmt (Ehrig, 1980), beträgt dieser Anteil nach 30 Jahren nur noch etwa 5% (Wirtz et al., 1997). Hier wird deutlich, dass mit fortschreitendem Deponiealter mehr und mehr schwer abbaubare Substanzen die Organikgehalte im Sickerwasser dominieren.

Der gezielten Auswaschung von organischen Verbindungen aus den Deponien wurde bisher unter anderem auch deshalb relativ wenig Beachtung geschenkt, weil der größte Teil des organischen Kohlenstoffs den Deponiekörper über die Gasphase verlässt (Brinkmann et al., 1997; Heyer und Stegmann, 1997). Krümpelbeck (1999) führt aus, dass bei einer "durchschnittlichen Deponie" weit mehr als 90 Prozent der C-Emissionen über die Gasphase erfolgen. Eine gezielte Applikation von Wasser in einen Deponiekörper dient daher meist zur An-

regung der Umsetzungsprozesse mit dem Ziel, den organischen Kohlenstoff über die Gasphase entweichen zu lassen (Kabbe und Dohmann, 1999).

Die Transportvorgänge in Deponiekörpern lassen sich zwar grundsätzlich mit dem Stofftransport in mineralischen PM vergleichen und mit Hilfe der gleichen physikalischen Gesetzmäßigkeiten beschreiben (modellieren), werden aber stark von vielen zusätzlichen Parametern beeinflusst. Zunächst einmal wird das Transportmedium Wasser in Deponien nicht nur durch Infiltration von Niederschlagswasser oder gezielte Beregnung "bereitgestellt", sondern entsteht teilweise durch chemische Umsetzungsprozesse im Müllkörper selbst (Spillmann und Collins, 1986). Ehrig (1980) führt aus, dass der Wasserhaushalt und die chemischen Prozesse in der Deponie unmittelbar zusammenhängen. Des Weiteren führen Erhöhungen des Deponiekörpers zu Abflussspitzen, da dadurch eine Wasserabgabe durch Drucksetzung erfolgt (Spillmann und Collins, 1986).

Heterogenitäten sowohl im Wasserhaushalt als auch bei der Verteilung der auswaschbaren Substanzen sind weitere Gründe für die Begrenztheit der vorhandenen Prognosemodelle. Ehrig (1980) zeigt sehr inhomogene Tiefenprofile des Wassergehaltes in Deponien und verweist auf die erheblichen Heterogenitäten eines Müllkörpers hinsichtlich seiner Zusammensetzung. Er führt aus, dass die Unterschiede im Wassergehalt abhängen von der Art des Mülls, der Art des Einbaus sowie den Niederschlägen während des Einbaus. Aus den sowohl horizontal als auch vertikal auftretenden Wassergehaltsunterschieden im Deponiekörper lässt sich schlussfolgern, dass die Messung von Wasserspannungen (Matrixpotentialen) sicherlich mehr Auskunft über den Wasserhaushalt eines Deponiekörpers geben würde. Aufgrund von Kontaktproblemen zwischen den gängigen Wasserspannungssensoren und einer typischen Hausmüllmatrix ist das aber technisch so gut wie unmöglich. Wassergehaltsmessungen in einem Müllkörper sind aufgrund seiner Struktur und Heterogenität ebenfalls "äußerst fehlerbehaftet" (Spillmann und Collins, 1986).

Auch bei Kabbe und Dohmann (1999) wird auf die ungleichmäßige Wasserverteilung in Deponiekörpern hingewiesen. Die Autoren führen aus, dass es aufgrund der Schichtung im Deponiekörper zu beachtlichen lateralen Fließbewegungen kommt. Dieser laterale Fluss tritt bei hohen Infiltrationsraten besonders stark auf, was bedeutet, dass die horizontale Leitfähigkeit höher ist als die vertikale und dementsprechend die Poren in horizontaler Richtung auch größer sind. Nach den Ausführungen in der Veranlassung wird in ihnen daher nur wenig Stoff gelöst und transportiert, was für eine höhere Auswaschungseffektivität kleiner Applikationsraten spricht, bei denen hier kein lateraler Abfluss vorkommt.

Spillmann und Collins (1986) stellten anhand von geimpften Keimen fest, dass es "schnell durchflossene Kanäle", also bevorzugte Fließwege geben kann, selbst wenn der Deponie-

körper nicht wassergesättigt ist. Mögliche Gründe dafür werden von den Autoren nicht genannt. Eine wahrscheinliche Ursache dafür könnte in der Hydrophobie von Müllbestandteilen liegen, die besonders bei einem hohen Anteil organischer Substanz auftritt und die Infiltration des Wassers so stark einschränken kann, dass es sich nicht hydrophobe präferentielle Fließwege sucht, die auch lateral sein können. Sind Teile des Müllkörpers einmal ausgetrocknet und dabei hydrophob geworden, ist eine Wiederbenässung besonders erschwert.

Die Zusammensetzung des Müllkörpers stellt den nächsten Parameter dar, der großen Schwankungen unterliegt. So variieren die Angaben für den Gehalt an organischer Substanz in Deponien allein bei Thome-Kozmiensky (1995) zwischen 30 und 70 Gew.-%. In Deponien der alten Bundesländer ist selbst nach mechanisch-biologischer Vorbehandlung der Organikanteil höher als in Deponien der ehemaligen DDR (Brinkmann et al., 1997), was auf eine höhere Verwertung von Bioabfall sowie einen höheren Ascheanteil des Mülls in der DDR zurückzuführen ist.

Sowohl Wirtz et al. (1997) als auch Krümpelbeck (1999) weisen darauf hin, dass durch Abbauprozesse der Feinkornanteil im Müllkörper mit der Zeit steigt. Sie führen auch zu Setzungen. Mit zunehmendem Alter ändern sich also die Korngrößenanteile und die Porengrößenverteilung im Deponiekörper. Außerdem kommt es innerhalb eines Müllkörpers durch die Verlagerung von feinkörnigem Material in die Zwischenräume grobkörnigerer Ablagerung, ähnlich der Lessivierung bei der Bodenbildung (Schachtschabel et al., 1992) oder der Suffosion bei Lockergesteinen (Busch et al., 1993), zu partiellen Veränderungen von Porosität und Lagerungsdichte. Es ist denkbar, dass die Porengrößenverteilung dadurch im Lauf der Zeit ausgeglichener wird und die Heterogenität des Deponiekörpers im Hinblick auf Stoffverteilung und Wassergehalt abnimmt. Es ist allerdings ebenso vorstellbar, dass das eben Gesagte zu größerer Heterogenität führt.

Die Auswaschung von Stoffen aus Deponien lässt sich nicht allein mit Hilfe von Stofftransportmechanismen modellieren, weil darüber hinaus die Bereitstellung bzw. Nachlieferung der auszuwaschenden Substanzen durch chemischen und biologischen Abbau der Deponieinhaltsstoffe, vor allem der organischen Substanz, zu beachten ist. Zwar werden in den meisten Arbeiten die im Sickerwasser anfallenden Konzentrations- und Frachtverläufe ebenso wie bei einer Stofftransportberechnung als Funktion der Zeit dargestellt. Sie sind aber hier vielmehr als Ergebnis der jeweiligen Abbau- und Umsetzungsprozesse und nur sekundär als Ergebnis der Transportprozesse zu sehen. So wird in der Abfallwirtschaft der Zustand einer Deponie in mehrere Phasen (in der Regel vier; Krümpelbeck, 1999) unterteilt. Die Phasen unterscheiden sich nach den im Müllkörper vorrangig ablaufenden Prozessen und den entsprechenden Reaktionsprodukten (z. B. Methanphase). Weitere Parameter zur Einordnung

einer Deponie oder eines Sektors im Müllkörper wären beispielsweise der Rottegrad oder die Atmungsaktivität (Brinkmann et al., 1997). Die Zu- oder Abnahme der Gehalte von Stoffen oder Stoffgruppen im Sickerwasser, beispielsweise des CSB, wird somit hauptsächlich mit der Rate der Nachlieferung begründet.

Außerdem werden in den vorliegenden Arbeiten über Deponiesickerwasser hauptsächlich Stoffkonzentrationen betrachtet, den entsprechenden Sickerwassermengen und den sich daraus ableitenden Frachten, die sich aus den Konzentrationen und den Sickerwassermengen ergeben, wird weniger Beachtung geschenkt. Bei einer künstlichen Beregnung stellt sich deshalb die Frage nach dem Verdünnungsverbot, denn zusätzlich appliziertes Wasser führt zu einer Verringerung der Stoffkonzentrationen im Sickerwasser. Bei der Gabe von besonders viel Beregnungswasser mit hoher Intensität wäre nach den anfangs aufgestellten Thesen (je höher die Wasserapplikationsrate, desto geringer die Stoffkonzentration im Sickerwasser) dann irgendwann der Punkt erreicht, an dem die Konzentrationen der bedenklichen Stoffe unter den Einleitgrenzwerten lägen und somit keine Reinigung mehr erforderten. Das ist jedoch nicht Sinn einer gezielten Auslaugung.

Die bisherigen Ansätze zur Prognostizierung der Stoffkonzentrationen basieren meist auf langjährigen Messwerten von verschiedenen Deponien. Mit Hilfe empirisch entwickelter Funktionen werden die Konzentrationsverläufe dann über den Messzeitraum hinaus extrapoliert. Krümpelbeck und Ehrig (2001) stellen mittels Exponentialfunktionen Prognosen für den CSB-Verlauf an und kommen zu dem Schluss, dass der Grenzwert der Rahmen Abwasser VwV (1996) von 200 mg CSB pro Liter nach 50 bis 200 Jahren erreicht wird. Auch Andreotola und Cannas (1992) werten zahlreiche Daten aus und nutzen dann die entsprechenden Trendlinien zur Prognose der langfristig zu erwartenden Stoffkonzentrationen.

Belevi und Baccini (1989b) entwickelten ein Modell zur Sickerwasserprognose, in das verschiedene in Reaktorversuchen ermittelte Parameter eingehen, wie beispielsweise die Stoffkonzentrationen in den einzelnen Deponiephasen, die Ausgangsmengen der entsprechenden Stoffe und die Remobilisierungsrate als Maß für die Stoffnachlieferung. Auch die jährliche Niederschlagsmenge wird für die Berechnung herangezogen. Jasper et al. (1985) prognostizieren die anfallende Sickerwassermenge auf Basis der Niederschlagsmenge und unter Berücksichtigung bodenkundlicher Parameter wie Wasserleitfähigkeit und Porosität.

Ein anderer Ansatz besteht darin, eine Wassermenge relativ zur Müllmenge anzugeben, die den Müllkörper durchsickern muss, bis sich die Deponie stabilisiert hat und tolerierbare Sickerwasserkonzentrationen erreicht werden (Brinkmann et al., 1997; Krümpelbeck, 1999). Für dieses so genannte Wasser:Feststoff-Verhältnis wird bei Kylefors und Lagerkvist (1997) ein Wert von zehn angegeben, was bedeutet, dass pro Tonne Abfall  $10 \text{ m}^3$  Wasser zur Stabili-

sierung benötigt werden. Walker et al. (1997) halten hingegen ein Verhältnis von 5 - 7,5 für ausreichend. Aus einer Arbeit von Fehse (2004) lässt sich ableiten, dass das Verhältnis von Höhe zu Oberfläche des Deponiekörpers und vor allem seine Stoffbeladung, geprägt durch die Müllzusammensetzung, das benötigte Wasser:Feststoff-Verhältnis bestimmen.

Die Niederschlags- oder Beregnungsintensität, die den in der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) wichtigen Parameter mittlere Durchflussgeschwindigkeit entscheidend beeinflusst, wurde nach unseren Erkenntnissen bisher noch nicht in Modelle zur Sickerwasserprognose integriert. Auch von der Variation dieser Größen oder von unterschiedlichen Stoffkonzentrationen nach verschiedenen Niederschlagsereignissen ist nicht die Rede. Der Sickerwasserabfluss aus einem Deponiekörper unterliegt zwar Schwankungen, ist im Vergleich zur Niederschlagsverteilung aber wesentlich ausgeglichener (Ehrig, pers. Mitt., 2003), was sich mit der großen Mächtigkeit und dem damit verbundenen Wasserspeichervermögen sowie der daraus resultierenden Abflussverzögerung aus dem Müllkörper erklären lässt. (Es ist außerdem ein Zeichen für das Nichtvorhandensein von nennenswerten bevorzugten Fließwegen.) Auch Spillmann und Collins (1986) erklären auf diese Weise den fehlenden Zusammenhang zwischen heftigen Niederschlagsereignissen und Abflussspitzen. Sie erfassten den Niederschlag aber nur täglich und den Abfluss sogar nur wöchentlich. Bei langanhaltenden Niederschlagsereignissen oder längerer Beregnung würde sich im Müllkörper aber, ähnlich wie in einem Boden, ein der Applikationsrate entsprechender Wassergehalt einstellen, was wiederum nach gewisser Zeit zu einem Gleichgewicht zwischen Applikationsrate und Abflussrate führen würde.

Die Wirkung unterschiedlicher Intensitäten auf die Auswaschungseffektivität wurde, wie bereits mehrfach angedeutet, bisher für Müllkörper noch nicht untersucht. Bei Versuchen in Deponiesimulationsreaktoren (DSR) werden Applikationsrate und Wassergehalt in der Regel nicht variiert (Heyer und Stegmann, 1997; Kabbe und Dohmann, 1999). Wenn doch, geschieht das jedoch nicht um Unterschiede in der Effektivität der Auswaschung festzustellen, sondern wie bereits erwähnt, um die Abbauprozesse zu beschleunigen.

Aus dem oben Gesagten und dabei ganz besonders aus den im Müll ständig ablaufenden Umsetzungs- und Abbauprozessen folgt, dass die Prognose der Sickerwasserzusammensetzung allein mit den Methoden der klassischen Stofftransportberechnung nicht möglich ist. Diese Art der Vorhersage gestaltet sich aufgrund ihrer Komplexität und Vielschichtigkeit viel schwieriger als abzuschätzen, wann und mit welcher Konzentration eines bestimmten Stoffs im Grundwasser zu rechnen ist, wenn dieser in einer Lösung auf der Oberfläche eines PM ausgekippt wurde. Letzteres ist der Gegenstand von Stoffverlagerungsberechnungen mit der bereits erwähnten ADG.

Ein Teil dieser Arbeit beschreibt Experimente, mit denen versucht wurde, die Abhängigkeit der Auslaugung von löslichen organischen Verbindungen aus einem Müllkörper von der Wasserapplikationsrate zu simulieren. Abbauprozesse wurden dabei außer Acht gelassen und nur der reine Stofftransport untersucht. Das ist dann legitim, wenn wie hier alle unterschiedlichen Auswaschungsversuche mit dem gleichen Ausgangssubstrat möglichst zeitgleich durchgeführt werden, also *ceteris paribus* Bedingungen herrschen. Um Abbauprozesse im verwendeten Substrat auf ein Minimum zu reduzieren, wurde für die o. g. Müllsimulation mit Kompost des Rottegrades V, also weitgehend stabilisiertem Material, gearbeitet, das für bestimmte Versuchsreihen auch getrocknet wurde.

## Literatur

- Andreottola, G., P. Cannas (1992): Chemical and biological characteristics of landfill leachate. Pages 65-88 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Landfilling of waste: leachate. Elsevier Applied Science, London [u.a.].
- Arneth, J.-D., G. Milde, H. Kerndorff, R. Schleyer (1989): Waste deposit influences on groundwater quality as a tool for waste type and site selection for final storage quality. Pages 399-415 in: Baccini, P. (ed.): The landfill - reactor and final storage. Lecture Notes in Earth Sciences 20. Springer, Berlin [u.a.].
- Belevi, H., P. Baccini (1989a): Water and element fluxes from sanitary landfills. Pages 391-397 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Sanitary landfilling: process, technology and environmental impact. Academic Press, London [u.a.].
- Belevi, H., P. Baccini (1989b): Long-term behaviour of municipal solid waste landfills. Waste Management and Research 7, 43-56.
- Bilitewski, B., G. Härdtle, K. Marek (1994): Abfallwirtschaft, 2. Auflage. Springer, Berlin.
- Brinkmann, U., K. Höring, A. Helfer, H.-J. Ehrig (1997): Untersuchung des Gefährdungspotentials, Deponie- und Langzeitverhalten vorbehandelter z. T. separierter Siedlungsabfälle. Bericht zum Teilvorhaben TV 6 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799.
- Busch, K.-F., L. Luckner, K. Tiemer (1993): Geohydraulik, Lehrbuch der Hydrogeologie, Band 3. Bornträger, Berlin [u.a.].
- Emberger, J. (1993): Kompostierung und Vergärung, 1. Auflage. Vogel Buchverlag, Würzburg.
- Ehrig, H.-J. (1980): Beitrag zum quantitativen und qualitativen Wasserhaushalt von Mülldeponien. Veröffentlichungen des Instituts für Stadtbauwesen, 2. erweiterte Auflage, Heft 26. TU Braunschweig.
- Ehrig, H.-J. (2003): Persönliche Mitteilung.
- Fehse, K.-U. (2004): Zur Sorption von Zink-Ionen an natürliche und technische Sorbentien unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses. Dissertation, Landwirtschaftliche Fakultät, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Heyer, K.-U., R. Stegmann (1997): Langfristiges Gefährdungspotential und Deponieverhalten von Ablagerungen. Bericht zum Teilvorhaben TV 4 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799 D3.

- Jasper, S. E., J. W. Atwater, D. S. Mavinic (1985): Leachate production and characteristics as a function of water input and landfill configuration. *Water Pollution Research J. Canada* 20, 43-56.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 43, 1100-1106.
- Kabbe, G., M. Dohmann (1999): Gezielte Infiltration von Wasser in einen Deponiekörper zur Reduzierung des Emissionspotentials. *LUA Materialien* Nr. 54.
- Krümpelbeck, I.: (1999): Untersuchungen zum langfristigen Verhalten von Siedlungsabfalldeponien. Dissertation, Fachbereich Bauingenieurwesen, Bergische Universität - Gesamthochschule Wuppertal.
- Krümpelbeck, I., H.-J. Ehrig (2001): Sickerwasser aus Hausmülldeponien - Menge und Zusammensetzung. In: Hösel, G., Schenkel, W., Schnurer, H. (Hrsg.): *Müll-Handbuch*, KZ4587. Schmidt, Berlin.
- Kylefors, K., A. Lagerkvist (1997): Changes of leachate quality with degradation phases and time. Sixth international landfill Symposium, Cagliari 1997. *Proceedings* Vol. 2, 133-149.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. *J. Hydrol.* 32, 203-218.
- Luthin, J. N., J. W. Biggar (1962): Drainage-salinity investigations in the Five Points, Tranquillity Area, Fresno County, California. Report to the Bureau of Reclamation, United States Department of the Interior.
- Miller, R. J., J. W. Biggar, D. R. Nielsen (1965): Chloride displacement in Panoche clay loam in relation to water movement and distribution. *Water Resour. Res.* 1, 63-73.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15-19.24.
- Rahmen Abwasser VwV (1996): Rahmen-Abwasser-Verwaltungsvorschrift über Mindestanforderungen an das Einleiten von Abwasser in Gewässer, Rahmen-AbwasserVwV. *GMBI*. 1996, S. 729. <http://www.umwelt-online.de>.
- Schachtschabel, P., H.-P. Blume, G. Brümmer, K.-H. Hartge, U. Schwerdtmann (1992): Scheffer/Schachtschabel - Lehrbuch der Bodenkunde, 13. Auflage. Enke, Stuttgart.
- Spillmann, P., H.-J. Collins (1986): Physikalische Untersuchungen zum Wasser- und Stoffhaushalt. In: Spillmann, P. (Hrsg.): *Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkung auf Gewässer*. VCH, Weinheim.
- TASi (1993): Dritte allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz (TA Siedlungsabfall). Technische Anleitung zur Verwertung, Behandlung und sonstigen Entsorgung von Siedlungsabfällen. *Bundesanzeiger* Nr. 99a, 1993. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.
- Thome-Kozmiensky, K. J. (1995): *Biologische Abfallbehandlung*. EF-Verlag für Energie- und Umwelttechnik, Berlin.
- Walker, A. N., R. B. Beaven, W. Powrie (1997): Overcoming problems in the development of a high rate flushing bioreactor landfill, Sixth international landfill Symposium, Cagliari 1997, *Proceedings* Vol. 1, 397-408.

Wirtz, A., G. Kabbe, H.-J. Roos, F. Forge, M. Dohmann (1997): Emissionsverhalten umweltrelevanter Schadstoffe in Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Abfalls und der Standzeit der Deponien. Bericht zum Teilvorhaben TV 3 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799 C.



## **II. Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien**

### ***Effect of amount of water applied and application rate on solute leaching from porous media***

#### **Zusammenfassung**

In den letzten Jahrzehnten wurden etliche Versuche zur Auswaschung von Salzen aus Böden durchgeführt. Daraus lassen sich folgende Thesen über den Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Auswaschung von Stoffen aus Böden ableiten:

- Kleine Poren enthalten größere auslaugbare Stoffmengen als große. Deshalb wird schon bei relativ geringen Applikationsraten, bei denen nur kleine Poren durchflossen werden, eine große Stoffmenge verlagert und eine Erhöhung der Rate und damit der Größe der am Durchfluss beteiligten Poren führt nicht zu proportional höheren Frachten.
- Bei konstanter Applikationsrate nimmt die Stoffkonzentration im Drainagewasser mit steigender applizierter Wassermenge (Durchflussmenge) ständig ab. Jede zusätzliche Einheit Wasser führt zu einer geringeren Zunahme der ausgewaschenen Gesamtfracht.
- Eine bestimmte Wassermenge, mit einer geringen Rate und somit über eine längere Zeit appliziert, verlagert eine größere Stoffmenge, als die gleiche Menge mit höherer Rate, also in kürzerer Zeit appliziert.

Diese Thesen wurden durch gezielte Laborversuche geprüft und bestätigt. Für die Praxis leitet sich daraus ab, dass nicht primär die Wassermenge bestimmt, wie viel Stoff ausgelaugt wird, sondern die Rate, mit der sie appliziert wird. Je kleiner die Rate, desto größer die Stoffmenge, die mit einer bestimmten Wassermenge ausgelaugt werden kann. Folglich wird bei geringen Applikationsraten, die niedrige Bodenwassergehalte zur Folge haben, effektiver ausgewaschen als bei höheren Raten und damit zunehmender Wassersättigung. Außerdem ist bei kleinen Applikationsraten die Stoffkonzentration im Sickerwasser höher als bei großen.

#### **Summary**

In the last decades many experiments were conducted to study the leaching of salts from soils. The results lead to the following hypotheses about the effect of the amount of water applied and the application rate on the leaching of solutes from soils:

- Small pores contain more solutes than large ones. Hence, even at low application rates, when water flows only through small pores, large amounts of solutes are leached out of a soil. Raising the application rate and thereby increasing the size of the pores taking part in flow will not lead to a proportional increase in the solute load.
- If the application rate is kept constant, the solute concentration in the drainage water decreases with the amount of water applied. Each additional unit of water leads to smaller increases in the total solute load.
- A given amount of water applied at a low rate, and hence over a longer time, leaches more solutes than the same amount applied at a higher rate, i. e. over a shorter time.

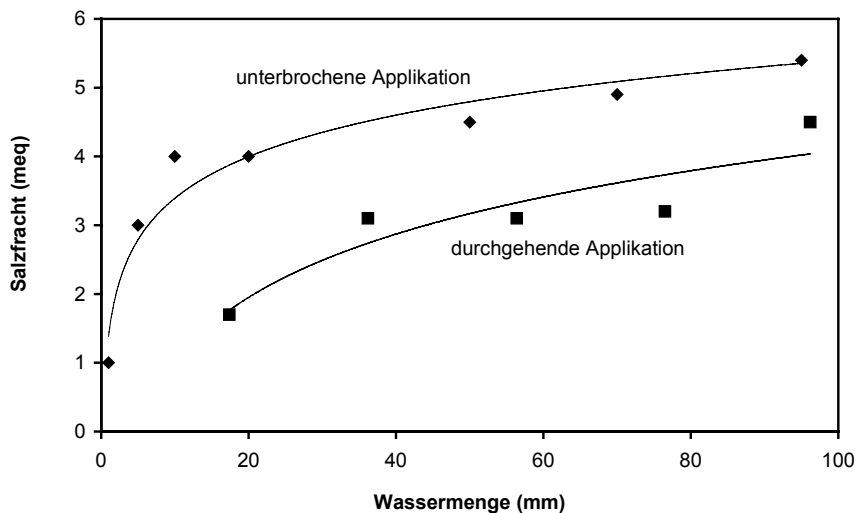
These hypotheses were examined in laboratory experiments and found to be valid. For practical purposes this means that it is not the amount of water, but the rate at which it is applied, which mainly determines the amount of solutes leached. The lower the rate, the more can be leached with a given volume of water. Leaching is therefore more effective at lower application rates, which result in lower soil water contents, than at higher ones, which result in higher water contents. Furthermore, solute concentrations in the drainage water are higher at lower application rates.

## 1. Einleitung

Ein erheblicher Teil unseres Trinkwassers wird aus Grundwasser gewonnen. Seine Belastung durch Schadstoffeinträge aus Ablagerungen oder kontaminierten Böden stellt daher ein ernstes Umweltproblem dar. Eine Möglichkeit solche Kontaminationsquellen zu bereinigen ist, sie gezielt auszulaugen. Dabei stellt sich die Frage, wie die Stoffauswaschung von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate abhängt.

Reeve et al. (1955) stellten bei der Auswaschung versalzener Böden fest, dass bei konstanter Wasserapplikationsrate eine Verlängerung der Applikationszeit und damit eine Erhöhung der applizierten Wassermenge die ausgewaschene Stoffmenge nicht proportional steigert. Leffelaar und Pal Sharma (1977) kamen zum selben Schluss. Sie stellten weiterhin fest, dass mit zunehmender Wassermenge (wiederum bei konstanter Applikationsrate) die Stoffkonzentration im Sickerwasser sinkt. Luthin und Biggar (1962) verglichen die Auswaschung von Salzen aus einem schluffigen Ton bei durchgehendem und unterbrochenem Überstau. (In Phasen ohne Überstau entwässert der Boden und es findet ungesättigter Wasserfluss statt.) Bei der unterbrochenen Variante reichte eine Wassermenge von  $260 \text{ l/m}^2$ , um die gleiche Stoffmenge auszuwaschen wie mit  $750 \text{ l/m}^2$  bei der durchgehenden. Auch Leffelaar und Pal Sharma (1977) sowie Jury et al. (1979) fanden, dass bei unterbrochenem Überstau die Auswaschungseffektivität (ausgewaschene Stoffmenge je Wassermenge) höher ist als bei

durchgehendem. Wenn die in Leffelaar und Pal Sharma (1977) gegebenen Stoffkonzentrationen mit der dazugehörigen Wassermenge multipliziert, dann summiert und der applizierten Wassermenge gegenübergestellt werden, erhält man eine Beziehung zwischen applizierter Wasser- und ausgewaschener Stoffmenge (Bild 1). Das Bild veranschaulicht die höhere Auswaschungseffektivität des unterbrochenen Überstaus und die degressive Zunahme der ausgewaschenen Stoffmenge mit der Erhöhung der applizierten Wassermenge.



**Bild 1:** Salzfracht im Verhältnis zur applizierten Wassermenge (nach Leffelaar und Pal Sharma, 1977).

Miller et al. (1965) und Nielsen et al. (1966) nennen die unterschiedlichen Durchflusgeschwindigkeiten für die einzelnen Poren und daraus folgend die Kontrolle des Wassergehaltes als besonders wichtige Faktoren für die Effektivität der Auswaschung, ohne das jedoch näher zu begründen. Diese Aussagen sowie die experimentellen Ergebnisse deuten aber darauf hin, dass kleinere Poren mehr auslaugbare Stoffe enthalten als größere.

Die eben zitierten Experimente liefern bereits wesentliche Erkenntnisse über den Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung. Sie wurden aber alle mit Überstau durchgeführt, der nicht immer zweckmäßig ist. Bei sehr wasser-durchlässigen Böden ist z. B. künstliche Beregnung eine sinnvollere Variante. Außerdem war die Stoffverteilung zwischen den verschiedenen Porengrößen nicht bekannt. Daher haben wir Versuche mit definierter Stoffverteilung durchgeführt, um zu prüfen, ob bei Wasserzufuhr durch Beregnung folgende, aus den o. g. Überstauexperimenten ableitbare Thesen zutreffen:

- 1. These: Kleine Poren enthalten größere auslaugbare Stoffmengen als große. Deshalb wird schon bei relativ geringen Applikationsraten, bei denen nur kleine Poren durchflos-

sen werden, eine große Stoffmenge verlagert und eine Erhöhung der Rate und damit der Größe der am Durchfluss beteiligten Poren führt nicht zu proportional höheren Frachten.

- 2. *These*: Bei konstanter Applikationsrate nimmt die Stoffkonzentration im Drainagewasser mit steigender applizierter Wassermenge (Durchflussmenge) ständig ab. Jede zusätzliche Einheit Wasser führt zu einer geringeren Zunahme der ausgewaschenen Gesamtfracht.
- 3. *These*: Eine bestimmte Wassermenge, mit einer geringen Rate und somit über eine längere Zeit appliziert, verlagert eine größere Stoffmenge, als die gleiche Menge mit höherer Rate, also in kürzerer Zeit appliziert.

Eine theoretische Betrachtung dieser Thesen und ihrer Einschränkungen ist in Hagenau und Borg (2003) zu finden.

## **2. Material und Methoden**

### **2.1 Allgemeine Vorgehensweise**

#### **2.1.1 Säulen und Bodenmaterial**

Alle Versuche wurden im Labor in 20 cm langen Säulen (PE-Rohr) mit einem Durchmesser von 7 cm (Querschnittsfläche =  $38,5 \text{ cm}^2$ ) durchgeführt. Den unteren Abschluss der Säulen bildete ein aufgestecktes Plastiksieb, das mit einem Vlies ausgelegt war. Dadurch werden feine Bodenteilchen zurückgehalten, während Drainagewasser abfließen kann.

Als Boden wurde Material aus dem C-Horizont einer Braunerde von einem Feldrand westlich von Bitterfeld verwendet. Es besteht aus 88% Sand, 5% Schluff sowie 7% Ton und ist damit gemäß KA 4 (AG Boden, 1994) ein schwach toniger Sand (St2). Seine Wasserspannungskurve wurde mit Drucktöpfen nach Richards (Klute, 1986) und über den kapillaren Aufstieg in einer 60 cm hohen Säule bestimmt, die gesättigte Wasserleitfähigkeit (kf-Wert) mit der Methode nach Schönberg (Birecki et al., 1967).

Mit Chlorid versetzter Boden (siehe 2.1.2) wurde bei  $105^\circ\text{C}$  im Trockenschrank bis zur Gewichtskonstanz getrocknet, dann in vier bis fünf Lagen in die Säule gefüllt und dabei nach Einbringen jeder Lage durch mehrmaliges kurzes Aufstauchen der Säule verdichtet. Das Material wurde mit einer Lagerungsdichte von  $\rho_t = 1,70 \pm 0,05 \text{ g/cm}^3$  in die Säulen eingebaut, was eine Porosität von  $\theta_s = 36 \pm 2\%$  ergab. Je nach Versuch wurden die Säulen entweder komplett mit chloridversetztem Material befüllt oder nur die oberen 5 cm, gefolgt von unversetztem Ausgangssubstrat darunter. Es wurden jedoch immer nur die unteren 19 cm der 20 cm langen Säulen befüllt, der oberste cm wurde für die Wasserzufuhr freigehalten.

### **2.1.2 Stoffbeladung**

Als auszuwaschender Stoff wurde Chlorid gewählt, da es einfach nachzuweisen ist und wegen seiner hohen Mobilität kurze Versuchszeiten ermöglicht. Je 1 kg Boden wurden 400 mg Chlorid als NaCl zugegeben. Um eine gleichmäßige Verteilung des Chlorids im Boden zu erreichen, wurde lufttrockener Boden in einer flachen Schale ausgebreitet, dann mit NaCl-Lösung bis zur Wassersättigung versetzt und dabei ständig gemischt. Anschließend wurde der so behandelte Boden bei 105°C getrocknet. Es wurde davon ausgegangen, dass sich so das Chlorid im Zuge der Trocknung an den Bodenpartikeln anlagert und sich proportional zur Oberfläche der einzelnen Partikel verteilt.

Diese Verteilung wurde angestrebt, weil sie in Kontaminationsherden häufig anzutreffen ist. In Abraumhalden aus dem Bergbau liegt sie z. B. natürlicherweise vor, in Deponiekörpern entsteht sie durch die Mischung der Abfälle im Zuge des Sammelns, Transportes und Einbaus. Sie tritt nicht für Stoffe auf, die nur unter bestimmten Bedingungen im Boden gebildet werden, z. B. Nitrat, das vorwiegend in nicht wassergefüllten, also größeren Poren gebildet wird (Myers et al., 1982).

### **2.1.3 Wasserzufuhr**

Die Wasserzufuhr erfolgte mit Hilfe einer an unserem Institut entwickelten Beregnungsapparatur (Lohmann, 1999 unveröffentlicht). Sie besteht aus einer Mariotteschen Flasche und einem Beregnungskopf, die über einen Schlauch miteinander verbunden sind. Der Beregnungskopf hat einen Durchmesser von 10 cm und eine Höhe von 5 cm. An seinem Boden befinden sich 12 rasterförmig angeordnete Öffnungen, die entweder mit Kanülen bestückt oder verschlossen werden können. Durch die Mariottesche Wasserführung wird ein konstanter Wasserdruck und damit eine gleichbleibende Applikationsrate während der Beregnung gewährleistet. Unterschiedliche Raten können entweder durch Höhenverstellung des Beregnungskopfes gegenüber dem Wasserbehälter und damit einer Änderung des Druckes, Einsetzen von Kanülen mit anderem Durchmesser oder Änderung der Kanülenanzahl am Beregnungskopf erreicht werden. Dadurch können Werte zwischen 4 und 3600 ml/h eingestellt werden. Bei dem o. g. Querschnitt sind das etwa 1 bzw. rund 900 mm/h. Da es jedoch schwierig ist, kleinere Werte mit dieser Apparatur konstant zu halten, wurde nur mit Raten  $\geq 20$  ml/h ( $\approx 5$  mm/h) gearbeitet.

Durch die rasterförmige Anordnung der Kanülen wird eine gleichmäßige Horizontalverteilung des Wassers im Boden erreicht. Das wurde in Vorversuchen durch Wassergehaltsmessungen mit dem Thermolink<sup>®</sup>-Gerät (Decagon Devices, Pullman, Washington, USA) an verschiedenen Stellen in gleicher Höhe in der Bodensäule sichergestellt. Um Verschläm-

mungswirkungen an den Aufprallstellen der Tropfen zu vermeiden, wurde zwischen Kanülen und Boden ein Abstand von nur etwa einem Zentimeter eingestellt.

Während der Versuche wurde der Bodenwassergehalt mit dem Thermolink<sup>®</sup>-Gerät verfolgt, um die Beziehung zwischen Wassergehalt und Durchflussrate, die hier der Applikationsrate entspricht, zu ermitteln.

Außer den Versuchen mit Beregnung wurden noch einige mit Überstau durchgeführt, um festzustellen, ob unsere Versuchsanordnung qualitativ die gleichen Resultate liefert wie die o. g. Feldversuche und ob Erkenntnisse aus Beregnungsversuchen auf Überstauversuche übertragbar sind und umgekehrt.

#### **2.1.4 Chlorid-Bestimmung**

Weil selbst eine geringe Aufsättigung des Bodens schon zur Verlagerung des sehr mobilen Chlorids geführt hätte, wurden die Versuche stets mit bei 105°C im Ofen getrocknetem Boden begonnen. Sickerwasser trat daher erst nach einer Bewässerungsmenge von ca. 200 ml aus der Säule aus. (Zwischen der Entnahme des Bodens aus dem Trockenschrank und dem Beginn der Bewässerung lagen in der Regel einige Stunden, so dass der Boden wieder etwas Feuchte aus der Luft aufnahm. Zu Versuchsbeginn war der volumetrische Wassergehalt ( $\theta_v$ ) dennoch immer  $< 1\%$ .)

Das Sickerwasser wurde über einen Trichter in einen Messzylinder geleitet und seine Chloridkonzentration nach jeweils 20 ml angefallenen Wassers mit einer ionenselektiven Mess- und einer Referenzelektrode (Elektrode Cl 500 bzw. R 502, WTW, Weilheim, Deutschland) bestimmt. Diese Wassermenge ist notwendig, damit die Elektroden bei der Messung ausreichend mit Lösung umgeben sind. Die so gemessenen Werte reflektieren somit nicht die Chloridkonzentration im gerade ausgetretenen Sickerwasser, sondern die in einer über einen bestimmten Zeitraum gesammelten Sickerwassermenge. Auf die Schlussfolgerungen aus den hier durchgeführten Experimenten hat das jedoch keinen Einfluss.

Bei Versuchen, in denen nur die obersten 5 cm chloridversetzten Boden enthielten, wurde dieser nach dem Versuchsende aus der Säule entfernt und in einem Liter destilliertem Wasser für fünf Minuten per Hand geschüttelt, um das noch im Boden verbliebene Chlorid zu erfassen. Anschließend wurde die Lösung filtriert und ihr Chloridgehalt ermittelt. In Vorversuchen war sichergestellt worden, dass mit dieser Methode das gesamte im Boden enthaltene Chlorid erfasst wird.

Damit der ursprünglich chloridversetzte Boden später wieder möglichst genau entfernt werden konnte, wurde er beim Einbau durch einen kleinen Plastikeinsatz vom darunterliegenden

unversetzten Substrat abgetrennt. Dieser Einsatz bedeckt nur etwa 5% der Querschnittsfläche der Bodensäule und behindert daher die Wasserbewegung nicht nennenswert.

## **2.2 Spezielle Versuchsdurchführung**

### **2.2.1 Abhängigkeit der Stoffverteilung von der Porengröße**

Dieser Versuch diente der Prüfung der ersten These. Dazu wurde der Sand mit vier verschiedenen Applikationsraten beregnet (20, 55, 142 und 300 ml/h  $\approx$  5, 14, 37 und 78 mm/h). Dabei stellten sich Wassergehalte von  $\theta_v = 24, 27, 31$  und 36% ein. Die höchste Rate entspricht etwa der gesättigten Wasserleitfähigkeit (vgl. 3.1), die von Säule zu Säule etwas unterschiedlich ist.

Mit Chlorid versetzter Boden wurde hier nur für die oberen 5 cm der Säule verwendet, da durch die rasche Zunahme des Wassergehaltes mit zunehmender Tiefe der Bodensäule (s. Wasserspannungskurve in 3.1) im unteren Säulenbereich selbst bei geringen Applikationsraten fast alle Poren durchflossen werden und somit das Ergebnis verfälscht werden würde.

Es wurde beregnet, bis sich in jeweils 20 ml Drainagewasser (siehe 2.1.4) eine Chloridkonzentration einstellte, die unterhalb des Messbereichs des Gerätes lag. Die in den oberen 5 cm verbliebene Chloridmenge wurde dann mit der in 2.1.4 beschriebenen Methode ermittelt. Die Differenz zur Ausgangsmenge in den oberen 5 cm ist die Menge an ausgewaschenem Chlorid.

### **2.2.2 Verlauf von Stoffkonzentration und Fracht als Funktion der Drainagemenge bei konstanter Applikationsrate**

Zum Nachweis der zweiten These wurde diesmal die gesamte Säule mit chloridversetztem Boden befüllt, mit einer konstanten Rate von 55 ml/h ( $\approx$  14 mm/h bei  $\theta_v = 27\%$ ) beregnet und die Chloridkonzentration in jeweils 20 ml durchgelaufenem Drainagewasser bestimmt. Die Fracht je Probe wurde dann als Konzentration x Sickerwassermenge berechnet und die Einzelfrachten zur Gesamtfracht addiert.

### **2.2.3 Verlauf der Fracht bei gleicher Wassermenge aber unterschiedlicher Applikationsrate**

Zur Untersuchung der dritten These erfolgte die Gabe von jeweils 400 ml Wasser ( $\approx$  100 mm Wasserhöhe) mit den gleichen vier Applikationsraten wie im ersten Experiment (vgl. 2.2.1), was in Applikationsdauern von 4800, 436, 169 und 80 Minuten resultierte. In der gesamten Säule wurde chloridversetzter Boden verwendet. Die Chloridkonzentrationen und -frachten im Drainagewasser wurden wie im zweiten Versuch bestimmt (vgl. 2.2.2).

Des Weiteren erfolgten noch zwei Experimente mit der Zufuhr von jeweils 400 ml Wasser durch Überstau. Dabei wurden Überstauhöhen von 1 cm nicht überschritten. Im ersten Experiment erfolgte eine kontinuierliche Gabe, wobei es etwa 20 Minuten dauerte, bis das gesamte Wasser infiltrierte. Beim zweiten Versuch wurden im Abstand von je einer halben Stunde je 50 ml Wasser zugegeben. Bei der ersten Gabe war diese Menge in 3, bei der letzten Gabe in 7 Minuten versickert.

#### **2.2.4 Versuche mit einem anderen Boden**

Der erste Teil des Versuchs in 2.2.3 wurde mit Material aus dem C-Horizont einer Schwarzerde auf Sandlöss bei Halle wiederholt, die 40% Sand, 44% Schluff und 16% Ton enthält und somit laut KA 4 (AG Boden, 1994) als lehmig schluffiger Sand (Slu) bezeichnet wird. Damit sollte geprüft werden, ob die beim schwach lehmigen Sand erzielten Ergebnisse qualitativ auch für einen anderen Boden zutreffen. Die Wasserspannungskurve und der kf-Wert wurden auf die gleiche Weise wie beim Sand bestimmt, auf sie wird im Ergebnisteil aber nicht näher eingegangen.

Die Auswaschung konnte nicht wie beim Sand durchgeführt werden (vgl. 2.2.3). Aufgrund des Lufteintrittspotentials von etwa 30 cm und des weiteren Verlaufs der Wasserspannungskurve wäre beim Sandlöss eine Säule von wenigstens 60 cm Länge nötig gewesen, um bei verschiedenen Applikationsraten auch deutlich verschiedene Wassergehalte einzustellen. Wegen der geringen ungesättigten hydraulischen Leitfähigkeit dieses Substrates hätte es dann allerdings bis zu mehreren Wochen gedauert, bis genug Sickerwasser am Säulenende ausgetreten wäre, um den Verlauf der Chloridkonzentration und -fracht verfolgen zu können. Daher wurde mit 40 cm langen Säulen gearbeitet, in denen die unteren 34 cm mit unbelastetem und nur die folgenden 5 cm mit chloridversetztem Boden befüllt wurden. Der Einbau erfolgte in 8 bis 10 Lagen. Nach Einbringen einer Lage wurde der Boden durch mehrmaliges kurzes Aufstauchen der Säule soweit verdichtet, dass letztlich in jeder Säule eine mittlere Lagerungsdichte von  $\rho_t = 1,3 \text{ g/cm}^3$  erreicht wurde. Daraus resultierte  $\theta_s = 51\%$ . Der oberste cm wurde wieder für die Wasserzufuhr freigehalten.

Bei konstanter Applikationsrate wurde dann eine Säule über eine bestimmte Zeit und so mit einer bestimmten Wassermenge beregnet. Es wurde mit zwei Raten (7,7 und 100 ml/h  $\approx$  2 und 26 mm/h) und fünf verschiedenen Zeiten je Rate gearbeitet (300, 360, 600, 750 und 1200 min für die geringere bzw. 30, 45, 60, 75 und 90 min für die höhere). Für jede Rate-Zeit-Kombination wurde eine eigene Säule verwendet. Die Kombinationen bzw. Wassermengen wurden so gewählt, dass kein Sickerwasser aus den Säulen austrat. Der kf-Wert für den Sandlöss beträgt 40 mm/h, so dass bei beiden Applikationsraten ungesättigter Wasserfluss resultiert, nämlich bei  $\theta_v = 32\%$  mit 2 mm/h und  $\theta_v = 43\%$  mit 26 mm/h.



Da die Beregnungsapparatur leichte Schwankungen in der Applikationsrate aufweisen kann, erfolgte die Bestimmung der insgesamt applizierten Wassermenge durch Wägung der Bodensäule nach Ende der Beregnung. Danach wurde die eingangs mit Chlorid versetzte obere Schicht abgehoben, die darin befindliche Wassermenge gravimetrisch ermittelt und dann von der Gesamtwassermenge abgezogen. Das Ergebnis ist die Menge, die die oberen 5 cm als Sickerwasser passiert hat.

Die nach der Beregnung in den obersten 5 cm verbliebene Chloridmenge wurde, wie in 2.1.4 beschrieben, ermittelt. Wird dieser Rest von der Ausgangsmenge abgezogen, erhält man die Fracht, die aus den obersten 5 cm ausgewaschen wurde. Eine Gegenüberstellung mit der durchgeflossenen Wassermenge ergibt die Beziehung zwischen Fracht und Drainagemenge für die betrachtete Applikationsrate.

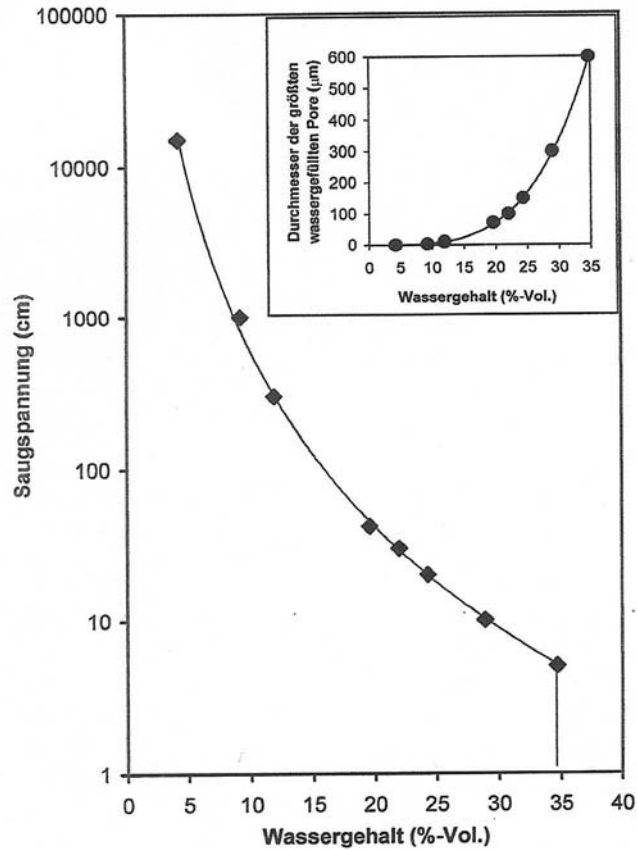
### **3. Ergebnisse**

#### **3.1 Wasserspannungskurve, Wassergehalt und Flux**

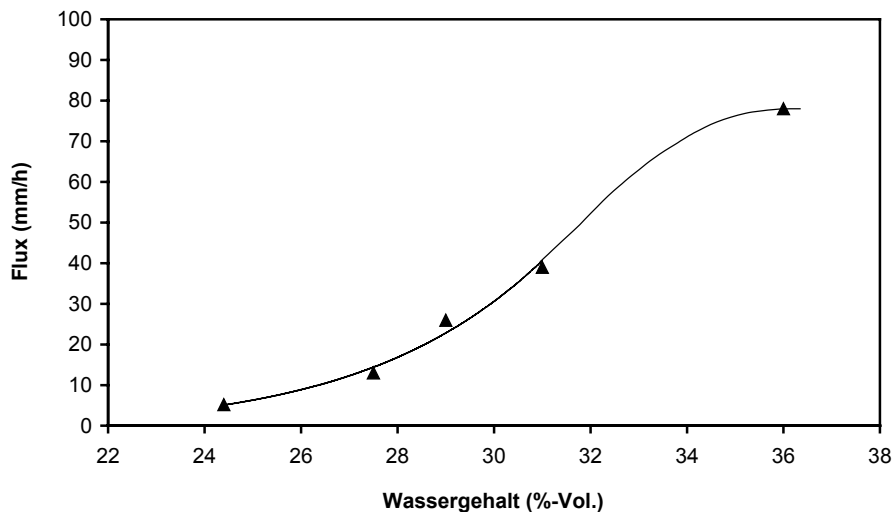
Die Wasserspannungskurve für den schwach tonigen Sand ist in Bild 2 zu sehen. Es zeigt einen Sättigungswassergehalt von  $\theta_s = 35\%$ , ein Luftertrittspotential von 5 cm und einen Wassergehalt von  $\theta_v = 24\%$  bei 19 cm Saugspannung. Diese Werte bedeuten, dass sich eine Säule mit diesem Boden bei ausreichender Bewässerung bis in 5 cm Höhe über dem Säulenboden bis auf 35% aufsättigt und sich in 19 cm über dem Säulenboden ein Wassergehalt von mindestens 24% einstellt. Bei anfangs trockenem Boden folgt daraus weiterhin, dass ca. 200 ml (50 mm) Bewässerung nötig sind, bevor Wasser aus dem unteren Ende der Säule austritt. In den Experimenten war das auch tatsächlich erst nach einer Gabe von etwa 200 ml Wasser der Fall.

In Bild 3 ist das Verhältnis von gemessenem Wassergehalt und dabei ermittelter Drainagerate dargestellt. Diese Drainagerate entspricht jeweils etwa der hydraulischen Leitfähigkeit beim dazugehörigen Wassergehalt, da der Gradient im Matrixpotential in der Bodensäule gering war. Bei  $\theta_v = 36\%$ , was hier Wassersättigung entsprach, wurde eine Drainagerate von 80 mm/h gemessen. Dieser Wert deckt sich gut mit dem nach Schönberg (Birecki et al., 1967) bestimmten  $k_f$ -Wert von 75 mm/h.

Aus Bild 2 lässt sich ableiten, dass es hier keinen Sinn hat, die Beregnungsrate unter 5 mm/h zu senken, da sich auch bei kleineren Raten an keiner Stelle der Säule ein Wassergehalt  $< 24\%$  einstellen würde.



**Bild 2:** Wasserspannungskurve und Porengrößenverteilung (Einlagebild) des verwendeten Sandes.



**Bild 3:** Wasserflux als Funktion des Bodenwassergehaltes in den Experimenten mit Sand.

Die Lagerungsdichte und damit die Porosität waren von Säule zu Säule leicht unterschiedlich (vgl. 2.1.1), was sich trotz sorgfältigem Substrateinbau nicht vermeiden lässt. Daher ist zu

beachten, dass die Wasserspannungskurve und die hydraulische Leitfähigkeit in den einzelnen Säulen etwas von den eben beschriebenen Werten abweichen können.

### 3.2 Stoffverteilung

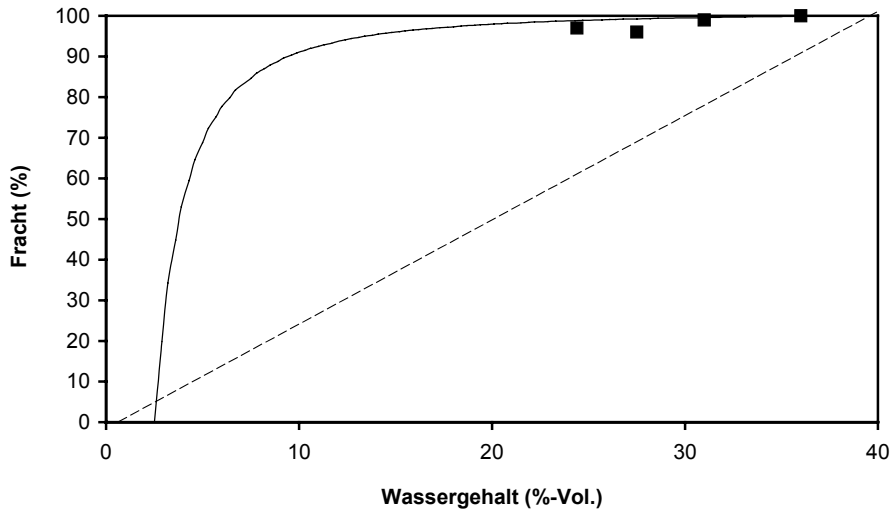
Bild 4 zeigt die ausgewaschene Fracht (in % der anfänglich in der Säule enthaltenen Chloridmenge) bei den vier o. g. Applikationsraten als Funktion des Wassergehaltes. Bei  $\theta_v = 24, 27, 31$  bzw.  $36\%$  wurden demnach  $97, 96, 99$  bzw.  $100\%$  der Stoffmenge ausgewaschen. Die durchgezogene Linie zeigt den Frachtverlauf der sich theoretisch ergibt, wenn, wie hier durch die oben beschriebene Beladung des Bodens angestrebt, das Chlorid proportional zur Partikeloberfläche und damit letztlich proportional zur Wandfläche der Poren verteilt ist (für Details zur Berechnung der Linie siehe Hagenau und Borg, 2003). Die experimentellen Daten fallen auf diese Linie. Das lässt den Schluss zu, dass eine solche Verteilung tatsächlich vorlag und somit in den kleinsten  $50\%$  der Poren ( $\theta_v = 18\%$ ) bereits  $> 95\%$  der gesamten Chloridmenge enthalten waren.

Um diese Schlussfolgerung zu untermauern, wären zusätzlich Daten bei  $\theta_v < 10\%$  wünschenswert. Solche Wassergehalte sind aber mit unserer Berechnungsapparatur bei diesem Boden nicht zu erreichen. Selbst bei der kleinsten damit möglichen (aber gemäß 2.1.3 nicht empfehlenswerten) Applikationsrate von  $1 \text{ mm/h}$  würde sich immer noch ein Wassergehalt von ca.  $18\%$  einstellen, bei dem auch schon über  $95\%$  der Chloridmenge erfasst werden würde.

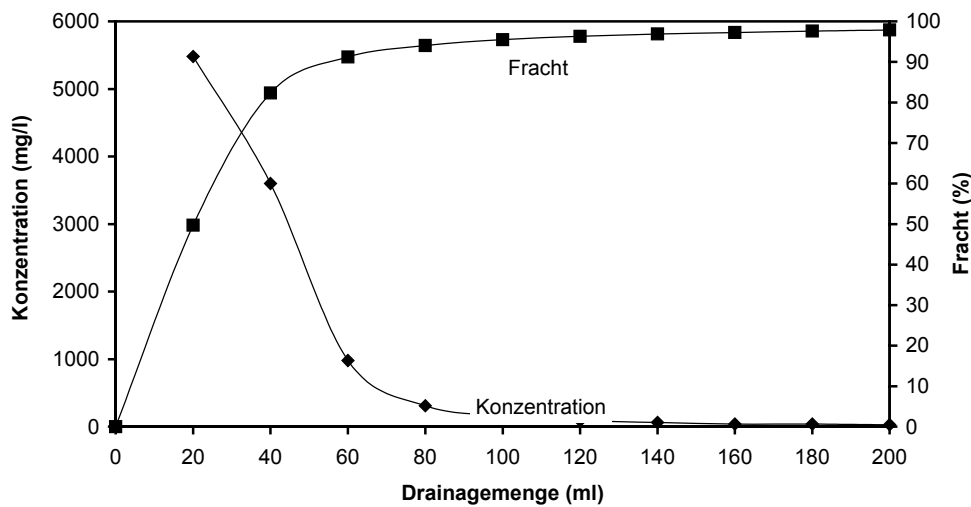
Wenn das Chlorid proportional zum Porenvolumen verteilt wäre, was eine gleiche Chloridkonzentration in allen Porengrößen bedeutet, müsste sich der Verlauf der gestrichelten Linie in Bild 4 ergeben. Die experimentellen Daten zeigen aber, dass eine solche Verteilung nicht vorliegt.

### 3.3 Stoffkonzentration und Fracht bei konstanter Applikationsrate

Der Verlauf von Chloridkonzentration und -fracht bei einer Auswaschung mit  $14 \text{ mm/h}$  ist in Bild 5 dargestellt. Die Konzentration nimmt mit der Drainagemenge schnell ab. Die Fracht nimmt schnell zu, aber die Zunahme wird mit jeder weiteren Einheit Wasser geringer. Schon nach  $100 \text{ ml}$  Drainagemenge, die etwa  $26 \text{ mm}$  Niederschlagshöhe entsprechen, ist hier fast das gesamte Chlorid ausgelaugt. Andere Applikationsraten, dargestellt in Bild 6, auf das später genauer eingegangen wird, führen zu den gleichen qualitativen Ergebnissen. Bei höheren Raten werden allerdings  $> 100 \text{ ml}$  Wasser gebraucht, um die gleiche Chloridmenge auszuwaschen, bei niedrigeren Raten  $< 100 \text{ ml}$ .



**Bild 4:** Chloridfracht als Funktion des Wassergehaltes für den Sand. (■ = gemessene Daten, — = theoretischer Frachtverlauf bei anfänglicher Stoffverteilung proportional zur Porenwandfläche, ---- = theoretischer Frachtverlauf bei anfänglicher Stoffverteilung proportional zum Porenvolumen.)

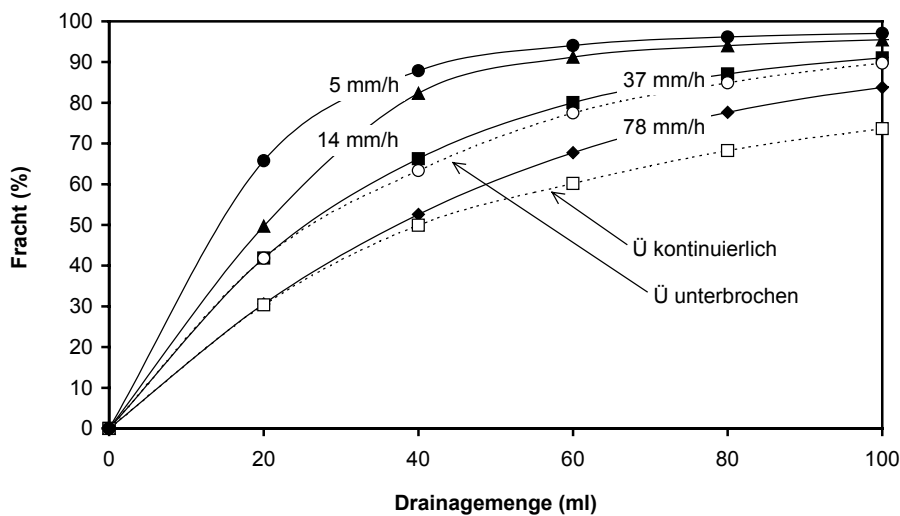


**Bild 5:** Chloridkonzentration und -fracht als Funktion der Drainagemenge aus dem Sand bei einer Applikationsrate von 14 mm/h.

Wie eben gezeigt, enthalten kleine Poren eine größere Stoffmenge als große. Wasser fließt aber schneller durch große Poren. Bei einer gegebenen Applikationsrate wird daher die größte am Durchfluss beteiligte Pore als erste ausgelaugt und dann immer kleinere. Ausgewaschene Poren liefern nur noch sauberes Wasser, so dass die Stoffkonzentration mit der Zeit bzw. der Wassermenge abnimmt und die Fracht nur degressiv zunimmt.

### 3.4 Fracht bei gleicher Wassermenge aber unterschiedlicher Applikationsrate

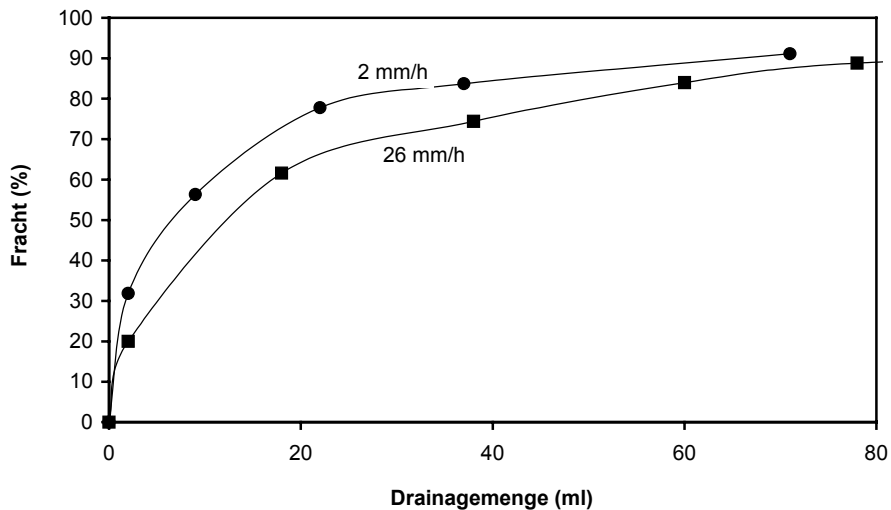
Bild 6 stellt für die Versuche mit Sand den Verlauf der Fracht für die vier verwendeten Applikationsraten sowie die zwei Überstauvarianten als Funktion der Drainagemenge dar. Es zeigt, dass eine gegebene Wassermenge mehr Stoff auslaugt, wenn sie mit unterbrochenem statt kontinuierlichem Überstau bzw. geringer statt hoher Rate appliziert wird. Es veranschaulicht außerdem, wie schon Bild 5, die degressive Zunahme der Fracht mit steigender applizierter Wassermenge. Die Beregnungsversuche mit Sandlöss zeigen das Gleiche (Bild 7). Die Bodenart hat demnach keinen Einfluss auf die qualitativen Versuchsergebnisse.



**Bild 6:** Chloridfracht als Funktion der Drainagemenge aus dem Sand bei vier Applikationsraten bei Beregnung und zwei Überstauvarianten ( $\ddot{U}$ ).

Wird ein trockener Boden bewässert, tritt Wasser zuerst in die kleinste Pore ein, da sie die größte Saugspannung aufbringt, und dann in immer größere Poren, bis genügend in Anspruch genommen wurden, um das applizierte Wasser weiterzuleiten. Mit steigender Applikationsrate werden mehr und größere Poren benötigt, um das Wasser weiterzuleiten. Bei gleicher Wassermenge fließt dann ein zunehmender Teil durch größere Poren. Wie oben schon erläutert, enthalten größere Poren geringere Stoffmengen je Porenvolumen. Eine Einheit Wasser wäscht daher weniger aus ihnen heraus als aus kleineren Poren. Hinzu kommt, dass größere Poren bald ausgelaugt sind und dann nur noch unbelastetes Wasser liefern.

Dass hier in allen Fällen schon mit einer relativ geringen Wassermenge von 40 ml mindestens die Hälfte der anfänglich im Boden enthaltenen Chloridmenge ausgewaschen wurde (Bild 6 und 7), liegt zum einen an der geringen Säulenlänge und -dicke und zum anderen an der sehr hohen Mobilität (keine oder kaum Sorption an den Bodenteilchen) des Chlorids.



**Bild 7:** Chloridfracht als Funktion der Drainagemenge aus dem Sandlöss bei zwei Applikationsraten.

In Bild 6 und 7 sind die Frachtkurven nur bis 100 bzw. 80 ml Drainagemenge dargestellt, um die Unterschiede in der Fracht bei den verschiedenen Applikationsraten zu verdeutlichen. Da die auswaschbare Stoffmenge in unseren Versuchen immer gleich und begrenzt war, nähern sich die Kurven letztlich immer mehr an. Bei 200 ml Drainagemenge waren in allen Versuchen > 92% ausgewaschen.

Die Form des Frachtverlaufs ist für Beregnung und Überstau gleich (Bild 6). Die Art der Wasserzufuhr wirkt sich demnach nicht qualitativ auf die Ergebnisse aus. Beim unterbrochenen Überstau folgt der Frachtverlauf etwa dem bei einer Beregnung mit 37 mm/h, bei der sich ein Wassergehalt von  $\theta_v = 31\%$  und somit ungesättigter Wasserfluss einstellt. Das deutet darauf hin, dass beim unterbrochenen Überstau während der Unterbrechungen ebenfalls ungesättigter Fluss stattfindet, was nach den Gesetzen der Bodenphysik zu erwarten ist.

Beim kontinuierlichen Überstau gleicht der Frachtverlauf anfänglich dem bei einer Beregnung mit 78 mm/h. Kontinuierlicher Überstau führt zu gesättigtem Wasserfluss. Die Applikationsrate von 78 mm/h liegt im Bereich der gesättigten hydraulischen Leitfähigkeit des verwendeten Bodens (vgl. 3.1), so dass auch hier gesättigter oder annähernd gesättigter Fluss stattfindet. Der zunächst gleiche Frachtverlauf erklärt sich also aus den vergleichbaren Fließverhältnissen. Mit zunehmender applizierter Wassermenge steigt die Fracht bei kontinuierlichem Überstau dann aber langsamer weiter. Das liegt vermutlich daran, dass bei der Beregnung mit 78 mm/h eine Wassersättigung nicht ganz oder nicht durchgehend erreicht wurde. Da die Applikationsrate apparativ bedingt etwas schwankt, hätte man bei durchgehender Wassersättigung gelegentlich einen leichten Überstau beobachten müssen, was aber nicht der Fall

war. Es herrschte also ein nahe der Sättigung liegender, letztlich aber ungesättigter Wasserfluss. Da die Auswaschung bei ungesättigtem Fluss effektiver ist, steigt die Fracht hier mit der applizierten Wassermenge letztlich schneller an als bei kontinuierlichem Überstau.

In den in der Einleitung genannten Feldversuchen gelangten die Salze durch wiederholte Überstaubewässerung mit salzhaltigem Wasser in den Boden. Zwischen den Bewässerungen wurde dem Boden durch Pflanzen Wasser entzogen und die Salze wurden dadurch angereichert. Die daraus resultierende Salzverteilung als Funktion der Porengröße wurde nicht bestimmt. Die Ergebnisse unserer Überstauversuche decken sich mit denen dieser Feldversuche. Das legt nahe, dass das Salz dort auch in etwa proportional zur Wandfläche der Poren verteilt war, oder zumindest so, dass in den kleineren Poren mehr Salz akkumuliert wurde als in den großen, obwohl die Verteilung auf andere Mechanismen zurückzuführen ist.

Die Ergebnisse unserer Überstauversuche decken sich außerdem mit denen unserer Beregnungsversuche. Das bedeutet, die Ergebnisse von Beregnungsversuchen können qualitativ auf Überstauversuche übertragen werden und umgekehrt. Kontinuierlicher Überstau entspricht dabei einer Beregnungsrate, die zu Wassersättigung führt und unterbrochener Überstau Beregnungsraten, bei denen sich ein ungesättigter Wassergehalt einstellt. Dabei ist zu erwarten, dass die Applikationsrate, die zur gleichen Stoffauswaschung führt, umso geringer ist, je länger die Unterbrechung beim Überstau ist.

#### **4. Fazit**

Die drei zu prüfenden Thesen wurden bestätigt. Für die Praxis leitet sich daraus ab, dass nicht primär die Wassermenge bestimmt, wie viel Stoff ausgelaugt wird, sondern die Rate, mit der sie appliziert wird. Je kleiner die Rate, desto mehr Stoff kann mit einer bestimmten Wassermenge ausgelaugt werden. Folglich sind bei kleinen Applikationsraten die Stoffkonzentrationen im Sickerwasser höher als bei großen. Eine physikalisch begründete mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung wird in Hagenau und Borg (2003) gegeben. Damit können die Ergebnisse der o. g. Versuche erklärt und weitere Schlussfolgerungen für eine gezielte Auswaschung von Stoffen aus kontaminierten Böden gezogen werden.

Die Thesen treffen jedoch nur zu, wenn der auszuwaschende Stoff proportional zur Wandfläche der Poren verteilt ist, was bei vielen, aber nicht allen Kontaminationsherden der Fall ist.

#### **Literatur**

AG Boden (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung, 4. Auflage. Schweizerbart, Stuttgart.

Birecki, M., A. Kullmann, I. B. Revut, A. A. Rode (1967): Untersuchungsmethoden des Bodenstrukturzustandes. VEB Deutscher Landwirtschaftsverlag, Berlin.

- Hagenau, J., H. Borg (2003): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 112-119.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 43, 1100-1106.
- Klute, A., Ed. (1986): *Methods of soil analysis, Part 1: Physical and mineralogical methods*, 2<sup>nd</sup> ed. American Society of Agronomy Monograph No. 9, Madison.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. *J. Hydrol.* 32, 203-218.
- Lohmann, S. (1999): Theoretische Grundlagen, Bauanleitung und Bedienung eines Regensimulators zur Realisierung unterschiedlicher Niederschlagsintensitäten für Säulenversuche. Unveröffentlichter Bericht, Institut für Agrartechnik und Landeskultur, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Luthin, J. N., J. W. Biggar (1962): Drainage-salinity investigations in the Five Points, Tranquillity Area, Fresno County, California. Report to the Bureau of Reclamation, United States Department of the Interior.
- Miller, R. J., J. W. Biggar, D. R. Nielsen (1965): Chloride displacement in Panoche clay loam in relation to water movement and distribution. *Water Resour. Res.* 1, 63-73.
- Myers, R. J. K., C. A. Campbell, K. L. Weier (1982): Quantitative relationship between net nitrogen mineralization and moisture content of soils. *Can. J. Soil Sci.* 62, 111-124.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15-19.24.
- Reeve, R. C., A. F. Pillsbury, L. V. Wilcox (1955): Reclamation of a saline and high boron soil in the Coachella Valley of California. *Hilgardia* 4, 69-91.

Dieses Kapitel wurde in leicht veränderter Form veröffentlicht:

- Hagenau, J., H. Borg (2003): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 105-111.



### III. Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate

*Mathematical description of solute leaching from porous media as influenced by the amount of water applied and the application rate*

#### Zusammenfassung

Versuche haben gezeigt, dass die mit einer gegebenen Wassermenge aus einem porösen Medium (PM) ausgewaschene (Stoff)fracht bei niedrigen Wasserapplikationsraten größer ist als bei hohen. Weiterhin nimmt bei gleicher Applikationsrate die Fracht mit steigender applizierter Wassermenge degressiv zu und die Stoffkonzentration im Sickerwasser sinkt. Hier wird eine mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung hergeleitet, mit der die Versuchsergebnisse erklärt und der Einfluss von Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung qualitativ betrachtet werden können.

Stoffe lagern sich an Porenwände an. Bei gleicher Länge hat eine große Pore mehr Wandfläche als eine kleine. In einem PM überwiegen aber kleine Poren, so dass in den aus den kleineren Poren bestehenden 50% des Gesamtporenvolumens oft > 90% der auslaugbaren Stoffmenge zu finden sind. Eine gegebene Wassermenge verlagert daher mehr Stoffe, wenn viel davon durch kleine Poren fließt, also die Applikationsrate gering ist.

Die Wandfläche je Porenvolumen ist invers proportional zum Porenradius ( $r$ ). Für ein gegebenes Volumen enthält eine Pore daher umso mehr Stoffe, je kleiner ihr Radius ist. Bei Wasserfüllung stellen sich in kleinen Poren dann höhere Stoffkonzentrationen ein als in großen.

Da die Durchflussrate mit  $r^4$  steigt, wird die größte am Durchfluss beteiligte Pore zuerst ausgelaugt und dann immer kleinere Poren. Ausgelagte Poren liefern unbelastetes Wasser, so dass bei gleich bleibender Applikationsrate die Stoffkonzentration im Sickerwasser nach Auslaugung der ersten Pore ständig abnimmt. Gleichzeitig führt nun eine steigende applizierte Wassermenge zu einer immer geringeren Zunahme der Fracht.

#### Summary

Experiments have shown that a given amount of water leaches more solutes out of a porous medium at low rates of water application than at high ones. Furthermore, at a given application rate the solute load has been shown to increase progressively less and the solute concentration in the leachate to decrease progressively less with each unit increase in the amount of water applied. Here a mathematical description of solute leaching is derived,

which explains the experimental results and allows an analysis of the influence of the amount of water applied and the application rate on solute leaching.

Solutes attach themselves to pore walls. For a given length a large pore has more surface area than a small one. However, in porous media small pores usually dominate. As a result, the 50% of the total pore volume made up of the smaller pores often contain > 90% of all attached solutes. A given amount of water therefore leaches more solutes, if much of it flows through small pores. This is the case, if the application rate is low.

The pore surface area per pore volume is inversely proportional to the pore radius ( $r$ ). Hence, for a given volume a pore contains the more attached solutes, the smaller its radius is. When they are filled with water, the resulting solute concentration is higher in small pores than in large ones.

Since the flow rate increases with  $r^4$ , the largest pore participating in flow is leached out first, followed by ever smaller ones. Leached pores only yield clean water. At a constant application rate the solute concentration in the leachate therefore decreases steadily after the first pore has been leached out. At the same time each increase in the amount of water applied leads to a progressively smaller increase in the solute load.

## 1. Einleitung

Die Beeinträchtigung der Grundwasserqualität durch Stoffeinträge aus landwirtschaftlich genutzten oder kontaminierten Böden sowie aus anderen belasteten porösen Medien, z. B. Deponien oder Abraumhalden aus dem Bergbau, ist ein weit verbreitetes Problem.

Feldversuche zur Auswaschung von Salzen aus Böden (Reeve et al., 1955; Luthin und Biggar, 1962; Miller et al., 1965; Nielsen et al., 1966; Leffelaar und Pal Sharma, 1977; Jury et al., 1979) sowie eigene Laborversuche (Hagenau und Borg, 2003) haben gezeigt, dass:

- (1) mit einer gegebenen Wassermenge die ausgewaschene (Stoff)fracht bei geringer Wasserapplikationsrate größer ist, also weniger Wasser nötig ist, um die gleiche Stoffmenge auszulaugen als bei hoher,
- (2) bei gleicher Applikationsrate die Zunahme der Fracht mit steigender applizierter Wassermenge immer geringer wird,
- (3) bei gleicher Applikationsrate die Stoffkonzentration im Sickerwasser mit steigender applizierter Wassermenge abnimmt.

Miller et al. (1965) und Nielsen et al. (1966) nennen den Wassergehalt und die unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten in verschieden großen Poren als entscheidende Faktoren für

die Auswaschungseffektivität (Fracht pro Wassermenge), führen das aber nicht weiter aus. Anliegen dieser Arbeit ist es, eine physikalisch begründete mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung herzuleiten, mit der die Ergebnisse der o. g. Versuche erklärt und der Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien qualitativ betrachtet werden können. Hier wird also ein konzeptionelles Modell der Stoffauswaschung entwickelt, das einerseits zum besseren Verständnis von unkontrollierten Stoffausträgen durch Niederschläge und andererseits zur Optimierung einer gezielten Stoffauswaschung beitragen soll. Letzteres ist in Mitteleuropa zur Zeit von besonderem Interesse, da die Sanierung von etlichen Altlasten ansteht.

## **2. Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung**

### **2.1 Modellskizze**

Um die einzelnen Aspekte, die weiter unten beschrieben werden, besser einordnen zu können, wird das Modell zunächst kurz skizziert.

Ein poröses Medium (PM) wird hier vereinfacht als eine feste Matrix betrachtet, die senkrecht von geraden Röhrcchen (Poren) durchzogen wird, die nicht miteinander in Verbindung stehen. Der Radius einer Pore bleibt über deren gesamte Länge konstant, aber die einzelnen Poren haben unterschiedliche Radien. Allerdings können auch mehrere Poren den gleichen Radius haben. Die Verteilung der Radien wird aus der Wasserspannungskurve des PM abgeleitet.

Für Berechnungen mit dem Modell werden eine zu applizierende Wassermenge und eine Applikationsdauer gewählt. Die Division dieser Wassermenge durch die Applikationsdauer ergibt die Applikationsrate. Beginnend mit der kleinsten Pore wird nun mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung, in die der Porenradius eingeht, die Durchflussrate durch die jeweilige Pore berechnet. Die einzelnen Raten werden aufaddiert, bis die Summe der Applikationsrate entspricht. Die dazu nötigen Poren sind diejenigen, die am Durchfluss beteiligt sind. Es wird angenommen, dass sie schon zu Beginn der Berechnungen über ihre ganze Länge mit Wasser gefüllt sind und es für die ganze Applikationsdauer bleiben. Die übrigen Poren sind über die gesamte Zeit wasserfrei. Das Volumen der wassergefüllten Poren geteilt durch das Gesamtvolumen des PM ist der volumetrische Wassergehalt. Zu jeder Zeit und überall im PM liegt also der gleiche Wassergehalt vor. Damit ist auch das Matrixpotential immer und überall gleich, so dass nur die Schwerkraft die Wasserbewegung antreibt. Unter diesen Bedingungen ist die Durchflussrate gleich der Applikationsrate, die wiederum der hydraulischen Leitfähigkeit des PM beim vorliegenden Wassergehalt entspricht.

Stoffe benötigen Flächen, an die sie sich anlagern können. Daher wird angenommen, dass die anfangs im PM enthaltene Stoffmenge proportional zur Wandfläche der einzelnen Poren

verteilt ist. Innerhalb einer Pore ist die entsprechende Stoffmenge immer gleichmäßig verteilt, wobei sie in wasserfreien Poren an deren Wänden haftet und in wassergefüllten völlig im Porenwasser gelöst ist. Ein Sorptionsgleichgewicht zwischen Porenwand und Lösung wird hier also nicht berücksichtigt. Mit diesen Annahmen ist die Stoffkonzentration im Porenwasser proportional zur Wandfläche der Poren (porenspezifische Konzentration).

Das applizierte Wasser, dessen Stoffkonzentration Null gesetzt wird, schiebt das in den Poren enthaltene stoffbelastete Wasser vor sich her (piston flow; Jury et al., 1991). Die aus einer Pore ausgewaschene Stoffmenge (Fracht) errechnet sich als Durchflussrate x Zeit seit Beginn der Applikation x Stoffkonzentration des aus der Pore austretenden Wassers. Letztere entspricht solange der porenspezifischen Konzentration, bis eine Wassermenge durchgeflossen ist, die genau gleich dem Volumen der Pore ist. Danach ist die Pore ausgelaugt und liefert nur noch reines Wasser (Konzentration = 0).

Durch Summierung der Frachten aus den einzelnen Poren erhält man die Gesamtfracht. Teilt man sie durch die bis zum gleichen Zeitpunkt aus dem PM ausgetretene Wassermenge, ergibt sich die Durchschnittskonzentration im bisher angefallenen Sickerwasser. Die Stoffkonzentration im gerade aus dem PM austretenden Wasser (Momentankonzentration) ist der Quotient aus der darin enthaltenen Stoffmenge und der austretenden Wassermenge.

Mit dem Modell können Frachten und Konzentrationen in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate (oder dem dabei vorliegenden Wassergehalt) qualitativ betrachtet werden. Weiterhin kann untersucht werden, wie viel Fracht bei einer gegebenen Applikationsrate in einer bestimmten Zeit ausgewaschen wird.

## 2.2 Porenradius

Die Wasserspannungskurve für ein PM gibt den Wassergehalt bei einem bestimmten Matrixpotential (Saugspannung) an. (Im Folgenden wird immer der volumetrische Wassergehalt betrachtet.) Es gibt mehrere Gleichungen für ihre Beschreibung (z. B. Brooks und Corey, 1966; Campbell, 1974; van Genuchten, 1980). Die einfachste ist die von Gardner et al. (1970), die hier verwendet wird:

$$\Psi_m = a \theta^b \quad (1)$$

wobei  $\Psi_m$  = Matrixpotential (m), a (m) und b (dimensionslos) = vom PM abhängende empirische Faktoren,  $\theta$  = volumetrischer Wassergehalt ( $m^3/m^3$ ). Letzterer wird üblicherweise mit  $\theta_v$  bezeichnet, aber auf das v wird hier verzichtet, da  $\theta$  später noch mit anderen Subskripten versehen werden muss.

Durch Umstellung der kapillaren Aufstiegsleichung (Hartge und Horn, 1991) kann der Radius der jeweils größten wassergefüllten Pore ( $r_{\max}$  in m) für jedes  $\Psi_m$  berechnet werden:

$$r_{\max} = \frac{2\sigma}{\Psi_m \rho g} \cos \varphi \quad (2)$$

wobei  $\sigma$  = Oberflächenspannung des Wassers (N/m),  $\rho$  = Dichte des Wassers ( $\text{kg/m}^3$ ),  $g$  = Fallbeschleunigung ( $\text{m/s}^2$ ) und  $\varphi$  = Kontaktwinkel zwischen Wasser und Porenwand, der hier mit  $0^\circ$  angesetzt wird, so dass  $\cos \varphi = 1$ . Nach Einsetzen von Gleichung 1 in Gleichung 2 erhält man:

$$r_{\max} = \frac{2\sigma}{a \theta^b \rho g} \quad (3)$$

### 2.3 Durchflussrate und Flux

Für die Durchflussrate durch eine Pore mit Radius  $r_i$  ( $Q_i$  in  $\text{m}^3/\text{s}$ ) gilt nach der Hagen-Poiseuille-Gleichung:

$$Q_i = \frac{\rho g \pi r_i^4}{8\nu} \frac{d(\Psi_m + z)}{dz} \quad (4)$$

wobei  $\nu$  = dynamische Viskosität des Wassers ( $\text{kg/m/s}$ ) und  $z$  = Höhe des Betrachtungspunktes im PM über dem Referenzniveau (Gravitationspotential in m). Wie in der Modellskizze erläutert, wird davon ausgegangen, dass  $\Psi_m$  überall im PM gleich ist. Dann ist  $d\Psi_m/dz = 0$  und der Gradient  $d(\Psi_m + z)/dz = 1$ . Ein anderer Gradient ergibt andere Durchflussraten, führt aber zu den gleichen qualitativen Aussagen.

Teilt man Gleichung 4 mit dieser Annahme durch die Querschnittsfläche der Pore ( $A_i = \pi r_i^2$  in  $\text{m}^2$ ) erhält man die Durchflussrate pro Flächeneinheit (Flux,  $q_i$  in  $\text{m/s}$ ):

$$q_i = \frac{Q_i}{A_i} = \frac{\rho g r_i^2}{8\nu} \quad (5)$$

Um bezogen auf die Querschnittsfläche des PM (Poren + Matrix,  $A_g$  in  $\text{m}^2$ ) den Flux durch das gesamte PM ( $q$  in  $\text{m/s}$ ) zu erhalten, muss man  $q_i$  für jede am Fließgeschehen beteiligte Pore mit dem Flächenanteil dieser Pore an der Querschnittsfläche des PM, also  $A_i/A_g$ , multiplizieren und die Resultate summieren.

Die Verteilung der Porenradien in einem PM lässt sich durch eine Funktion  $f(r)$  beschreiben, die integriert über die Radien aller wassergefüllten Poren  $\theta$  ergibt (Childs und Collis-George, 1950; Campbell, 1974):

$$\theta = \int_0^r f(r) dr \quad (6)$$

Aus der Ableitung von Gleichung 6 nach r folgt:

$$d\theta = f(r) dr = A_i/A_g \quad (7)$$

Mit den Gleichungen 3, 5 und 7 erhält man dann in Integralform:

$$q = \int_{r_0}^r q_i f(r) dr = \int_{r_0}^r \frac{\rho g r_i^2}{8v} f(r) dr = \frac{\sigma^2}{2v \rho g a^2} \int_{\theta_0}^{\theta} \theta^{-2b} d\theta = \frac{\sigma^2}{2v \rho g a^2} \left( \frac{\theta^{-2b+1}}{-2b+1} - \frac{\theta_0^{-2b+1}}{-2b+1} \right) \quad (8)$$

In sehr kleinen Poren werden Wassermoleküle so fest an die Porenwände gebunden, dass sie durch in Böden natürlicherweise vorkommende Potentialgradienten nicht mehr bewegt werden können (Hillel, 1998). Der Radius, ab dem das eintritt, wird hier  $r_0$  genannt, der korrespondierende Wassergehalt  $\theta_0$ . Poren mit  $r < r_0$  nehmen nicht am Fließgeschehen teil. Dementsprechend wird in Gleichung 8 als Untergrenze der Integration  $r_0$  bzw.  $\theta_0$  eingesetzt. Für die Berechnungen hier wurde  $r_0 = 0,1 \mu\text{m}$  gesetzt, was  $\Psi_m = 150 \text{ m}$  (1,5 MPa) und nach AG Boden (1994) der Obergrenze des Totwasserbereichs entspricht. Im betrachteten Boden ist der dazu korrespondierende Wassergehalt  $\theta_0 = 4,3\%$ .

## 2.4 Stoffmenge und -konzentration im PM

Es wird davon ausgegangen, dass die anfangs im PM enthaltene Stoffmenge proportional zur Wandfläche der einzelnen Poren verteilt ist (vgl. 2.1). Diese Annahme ist realistisch, wenn der fragliche Stoff natürlicherweise schon in einer entsprechenden Verteilung vorliegt (z. B. in Abraumhalden aus dem Bergbau), durch Mischung gut verteilt wurde (z. B. in Deponeiekörpern, da Abfälle im Zuge des Sammelns, Transportes und Einbaus durchmischt werden), beim Eintrag gut verteilt wurde (z. B. durch Schäden in Tanks oder Leitungen kontaminierte Böden, wo alle Poren des PM von einer damit belasteten Flüssigkeit durchflossen wurden) oder lange genug Zeit hatte, sich durch Diffusion zu verteilen. Sie ist nicht gültig für Stoffe, die nur unter bestimmten Bedingungen im Boden gebildet werden, z. B. Nitrat, das vorwiegend in nicht wassergefüllten, also größeren Poren gebildet wird (Myers et al., 1982).

Da hier von geraden, senkrecht durch das PM laufenden Poren ausgegangen wird, haben alle die gleiche Länge, nämlich die des PM ( $L$  in m). Die Wandfläche einer Pore ergibt sich somit als  $A_{oi} = 2\pi r_i L$  ( $\text{m}^2$ ). Führt man einen Faktor  $\beta$  ( $\text{kg}/\text{m}^2$ ) ein, der die Stoffmenge angibt, die je Einheit Wandfläche angelagert werden kann, erhält man für die Stoffmenge in einer Pore ( $S_i$  in kg):

$$S_i = A_{oi} \beta = 2\pi r_i L \beta \quad (9)$$

Dabei hängt  $\beta$  vom Stoff und von den sorptiven Eigenschaften des PM ab. Teilt man Gleichung 9 durch  $A_i$ , erhält man die Stoffmenge pro Querschnittsfläche der Pore ( $s_i$  in  $\text{kg}/\text{m}^2$ ) als:

$$s_i = \frac{S_i}{A_i} = \frac{2 L \beta}{r_i} \quad (10)$$

Nach Gleichung 10 wird  $s_i$  umso größer, je kleiner  $r_i$  wird und geht gegen unendlich, wenn  $r_i$  gegen Null geht. In einem realen PM hat die kleinste Pore einen Radius  $> 0$ , so dass auch das entsprechende  $s_i$  einen finiten Wert hat. Analog zur Integration der  $q_i$  zu  $q$  ergibt sich die Stoffmenge je Einheit Querschnittsfläche des PM ( $s$  in  $\text{kg}/\text{m}^2$ ) aus den Gleichungen 3, 7 und 10 als:

$$s = \int_{r_0}^r s_i f(r) dr = \int_{r_0}^r \frac{2 L \beta}{r_i} f(r) dr = \frac{L \beta \rho g a}{\sigma} \int_{\theta_0}^{\theta} \theta^b d\theta = \frac{L \beta \rho g a}{\sigma} \left( \frac{\theta^{b+1}}{b+1} - \frac{\theta_0^{b+1}}{b+1} \right) \quad (11)$$

Aus Poren mit  $r < r_0$ , durch die kein Wasser fließen kann, können keine Stoffe durch Konvektion ausgewaschen werden, aber ein Austrag durch Diffusion ist möglich. Sie wird hier jedoch nicht berücksichtigt, so dass Stoffe in Poren mit  $r < r_0$  im Modell nicht verlagert werden können. Deshalb wird in Gleichung 11  $r_0$  bzw.  $\theta_0$  als Untergrenze der Integration eingesetzt und somit nur die Stoffmenge in den Poren berücksichtigt, durch die Wasser fließen kann.

Füllt sich eine mit Stoff besetzte Pore mit Wasser, stellt sich eine Konzentration ( $C_i$  in  $\text{kg}/\text{m}^3$ ) ein, die dem Verhältnis von  $S_i$  zum Porenvolumen ( $V_{pi} = \pi r_i^2 L$  in  $\text{m}^3$ ) entspricht:

$$C_i = \frac{S_i}{V_{pi}} = \frac{2\beta}{r_i} \quad (12)$$

## 2.5 Fracht im Sickerwasser

Die aus einer Pore  $i$  ausgewaschene Stoffmenge (Fracht,  $F_i$  in  $\text{kg}$ ) ist das Produkt aus dem Wasservolumen  $V_{wi}$  ( $\text{m}^3$ ), das in einem Zeitraum  $t$  (s) durch die Pore geflossen ist, und der Stoffkonzentration in diesem Volumen ( $C_i$ ). Die Gesamtfracht aus dem PM ( $F$  in  $\text{kg}$ ) ist die Summe der Frachten aus den einzelnen Poren:

$$F = \sum F_i = \sum (V_{wi} C_i) = \sum (Q_i t C_i) = \sum (q_i A_i t C_i) \quad (13)$$

Die Fracht je Einheit Querschnittsfläche des PM ( $f_{\emptyset}$  in  $\text{kg}/\text{m}^2$ ) ergibt sich dann als:

$$f_{\emptyset} = \frac{F}{A_g} = \sum \left( \frac{q_i A_i t C_i}{A_g} \right) = \sum (q_i t C_i f(r) dr) \quad (14)$$

Bei „piston flow“ ist eine Pore völlig ausgewaschen, wenn sie von einem Wasservolumen  $q_i A_i t \geq V_{pi}$  durchflossen wurde. Da  $A_i = \pi r_i^2$  und  $V_{pi} = \pi r_i^2 L$  ist das genau dann der Fall, wenn  $q_i t = L$ . Die Durchflussrate durch die Pore, die nach einer Zeit  $t$  gerade ausgelaugt ist, berechnet sich daraus als  $q_t = L / t$ . Durch Umstellung von Gleichung 5 kann damit zunächst der Radius dieser Pore ( $r_t$ ) berechnet werden und anschließend durch Umstellung von Gleichung 3 der dazu korrespondierende Wassergehalt  $\theta_t$ .

Nach einer Zeit  $t$  sind also Poren mit  $r < r_t$  nur teilweise ausgelaugt. Die Fracht je Einheit Querschnittsfläche des PM aus diesen Poren, die am Durchfluss beteiligt sind ( $f_1$  in  $\text{kg/m}^2$ ), erhält man dann durch Kombination der Gleichungen 3, 5, 7, 12 und 14:

$$f_1 = \int_{r_0}^{r_t} q_i C_i t f(r) dr = \frac{\beta \sigma}{2\nu a} t \int_{\theta_0}^{\theta_t} \theta^{-b} d\theta = \frac{\beta \sigma}{2\nu a} t \left( \frac{\theta_t^{-b+1}}{-b+1} - \frac{\theta_0^{-b+1}}{-b+1} \right) \quad (15)$$

Sofern sie am Durchfluss teilnehmen, sind Poren mit  $r \geq r_t$  nach einer Zeit  $t$  bereits völlig ausgelaugt. Die Fracht daraus entspricht der anfänglich in ihnen enthaltenen Stoffmenge. Bezogen auf die Querschnittsfläche des PM ergibt sich diese Fracht ( $f_2$  in  $\text{kg/m}^2$ ) daher aus Gleichung 11 integriert von  $\theta_t$  bis  $\theta$ :

$$f_2 = \frac{L\beta\rho g a}{\sigma(b+1)} (\theta^{b+1} - \theta_t^{b+1}) \quad (16)$$

Die gesamte im Zeitraum  $t$  ausgewaschene Stoffmenge ist  $f_g = f_1 + f_2$  ( $\text{kg/m}^2$ ).

## 2.6 Stoffkonzentration im Sickerwasser

Zu einem Zeitpunkt  $t$  ist die durchschnittliche Stoffkonzentration des Sickerwassers aus einem PM ( $C_D$  in  $\text{kg/m}^3$ ) der Quotient aus der gesamten Fracht, die bis dahin aus dem PM ausgewaschen wurde ( $F = f_g A_g$ ), und dem gesamten Wasservolumen, das es bis dahin durchflossen hat ( $V_w = Q t$ ):

$$C_D = \frac{f_g A_g}{Q t} = \frac{f_g A_g}{q A_g t} = \frac{f_g}{q t} \quad (17)$$

Stellt man in einem Diagramm  $f_g$  als Funktion von  $q t$  dar, so ist die Steigung dieser Beziehung die Stoffkonzentration im Sickerwasser, das zu einer Zeit  $t$  das PM verlässt (Momentankonzentration,  $C_t$  in  $\text{kg/m}^3$ ). Da  $q$  innerhalb einer Modellrechnung konstant bleibt, gilt:

$$C_t = \frac{\Delta f_g}{q \Delta t} \quad (18)$$



## 2.7 Berechnungen

Die o. g. Gleichungen wurden zu einem Computerprogramm zusammengefügt, mit dem die Stoffauswaschung aus einem PM als Funktion der applizierten Wassermenge ( $W_a = V_w / A_g$ ) und der Applikationsrate ( $q_{ap} = W_a / t$ ) berechnet werden kann. Zum besseren Verständnis wurden für die Erklärungen in der Modellskizze die Porenradien herangezogen. In den Berechnungen werden diese aber nicht explizit verwendet, sondern gehen indirekt über den Wassergehalt ein, wie es oben beschrieben wurde.

Als PM wurde ein Boden mit 88% Sand, 5% Schluff, 7% Ton und einer Lagerungsdichte von  $1,7 \text{ g/cm}^3$  betrachtet. Gemäß KA 4 (AG Boden, 1994) ist das ein schwach toniger Sand. Dieser Boden wurde in 19 cm langen Säulen in unseren Experimenten verwendet (Hagenau und Borg, 2003). Die folgenden Berechnungen wurden daher für einen Boden von 19 cm Mächtigkeit durchgeführt. Für seine Wasserspannungskurve gilt  $a = 8,8 \times 10^{-4} \text{ m}$  und  $b = -3,83$  (Bild 1). Rechnet man mit Gleichung 2  $\Psi_m$  in  $r_{\max}$  um, erhält man die Porengrößenverteilung (Bild 1, Einlage). Daraus kann man für ein beliebiges  $r_{\max}$  den Anteil der Poren mit  $r < r_{\max}$  am Gesamtporenvolumen des PM ablesen. Dieser entspricht dem volumetrischen Wassergehalt ( $\theta$ ).

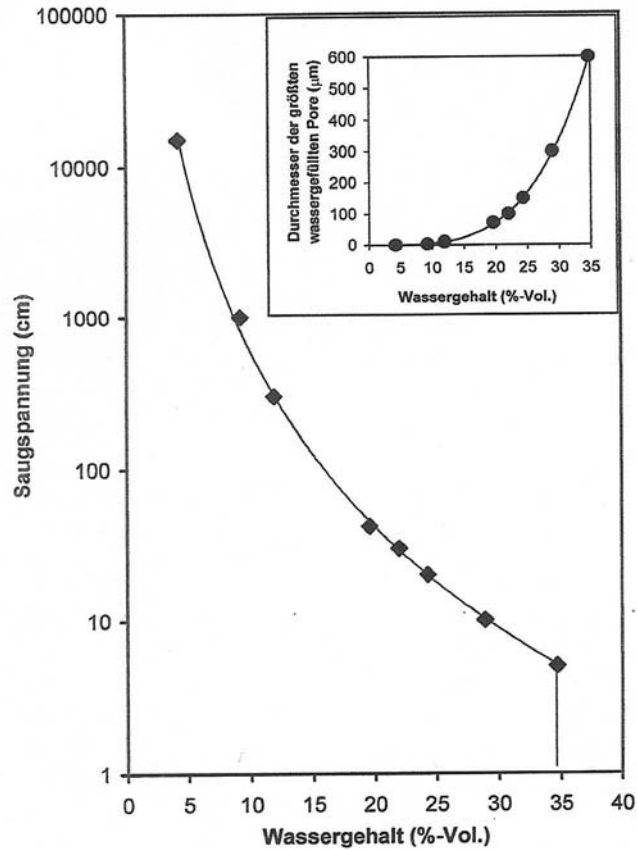
Für  $\sigma$ ,  $\rho$  und  $\nu$  wurden die Werte für  $20^\circ\text{C}$  eingesetzt. Der Wert für  $\beta$  wurde so gewählt, dass sich im hier betrachteten PM in den Poren mit  $r > r_0$  eine Stoffmenge von insgesamt 100 g ergab. Stoffmengen und -frachten werden im Folgenden immer in % davon angegeben.

## 3. Ergebnisse

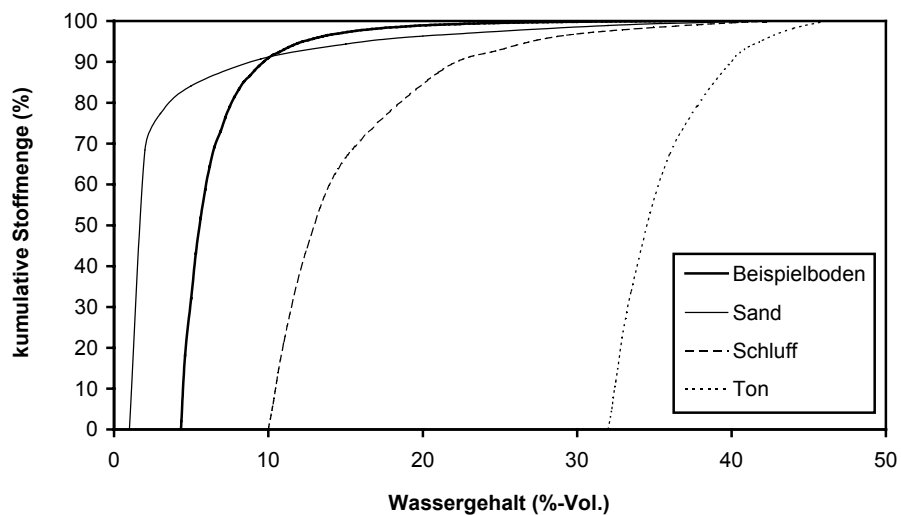
### 3.1 Stoffverteilung

Wie oben erläutert, werden bei der Berechnung der Stoffverteilung nur die Poren einbezogen, in denen Wasser fließen kann ( $r \geq r_0$  bzw.  $\theta \geq \theta_0$ ). Für  $\theta \leq 4,3\%$  bleibt die mit Gleichung 11 berechnete Stoffmenge im hier als Beispiel betrachteten Boden daher gleich Null (Bild 2). Danach nimmt sie zunächst rasch mit  $\theta$  zu, so dass die kleinsten 19% der Poren mit  $r \geq r_0$  ( $\theta = 10\%$ ) schon 90% der Stoffmenge im Boden enthalten. Anschließend steigt  $s$  dann nur noch wenig mit  $\theta$  an.

Zum Vergleich zeigt Bild 2 die berechnete Stoffverteilung für drei Böden aus Schachtschabel et al. (1992). Da der Anteil der Poren mit  $r < 0,1 \mu\text{m}$  mit zunehmender Feinkörnigkeit größer wird, steigt der Wassergehalt, bis zu dem kein konvektiver Stofftransport stattfindet, Sand ( $\theta_0 = 1\%$ ) über Schluff ( $\theta_0 = 10\%$ ) zum Ton ( $\theta_0 = 32\%$ ) an. Mit zunehmender Feinkörnigkeit sind die Porengrößen auch gleichmäßiger verteilt, so dass mehr Poren gebraucht werden,



**Bild 1:** Wasserspannungskurve und Porengrößenverteilung (Einlagebild) des betrachteten schwach tonigen Sandes.



**Bild 2:** Kumulative Stoffmenge (in % der insgesamt enthaltenen Stoffmenge) im betrachteten Boden (Beispielboden) und in drei Böden aus Schachtschabel et al. (1992) in Abhängigkeit vom volumetrischen Wassergehalt.

um einen bestimmten Anteil der Stoffmenge zu erfassen. Für 90% sind es beim Sand die kleinsten 18% ( $\theta = 8,5\%$ ), beim Schluff die kleinsten 32% ( $\theta = 22\%$ ) und beim Ton die kleinsten 37% ( $\theta = 40\%$ ) der Poren mit  $r \geq r_0$ .

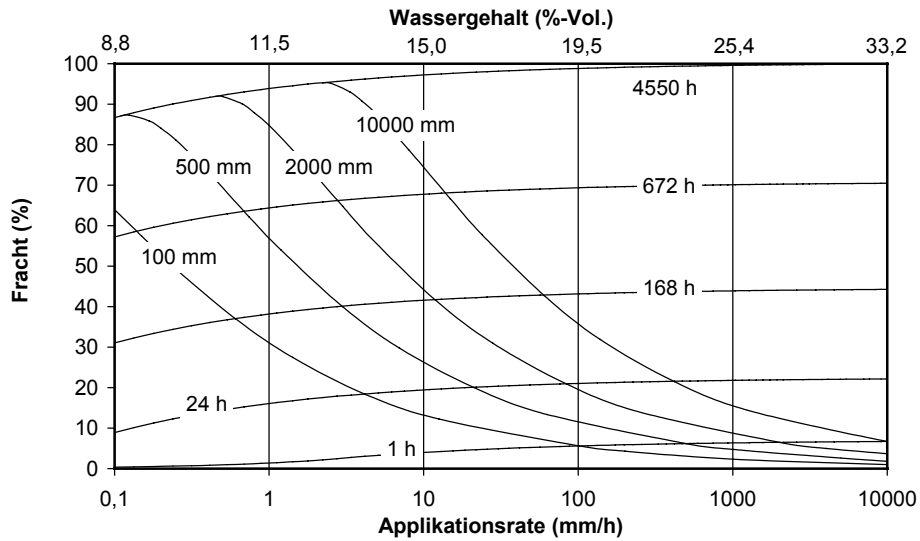
Bei gleicher Länge hat eine große Pore mehr Wandfläche als eine kleine (Gleichung 9), aber weniger als mehrere kleine, die zusammen die gleiche Querschnittsfläche und damit das gleiche Porenvolumen aufbringen, da der Querschnitt ( $A_i = \pi r_i^2$ ) mit  $r^2$  wächst, die Wandfläche ( $A_{oi} = 2\pi r_i L_i$ ) aber nur mit  $r$ . Eine Anzahl kleiner Poren, die nur wenig zum Porenvolumen des PM beiträgt, kann somit erhebliche Stoffmengen enthalten, wie hier beobachtet. Es ist daher zu erwarten, dass eine gegebene Wassermenge mehr Stoffe verlagert, wenn viel davon durch kleine Poren fließt, also die Applikationsrate gering ist.

### **3.2 Fracht und Konzentration als Funktion der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate**

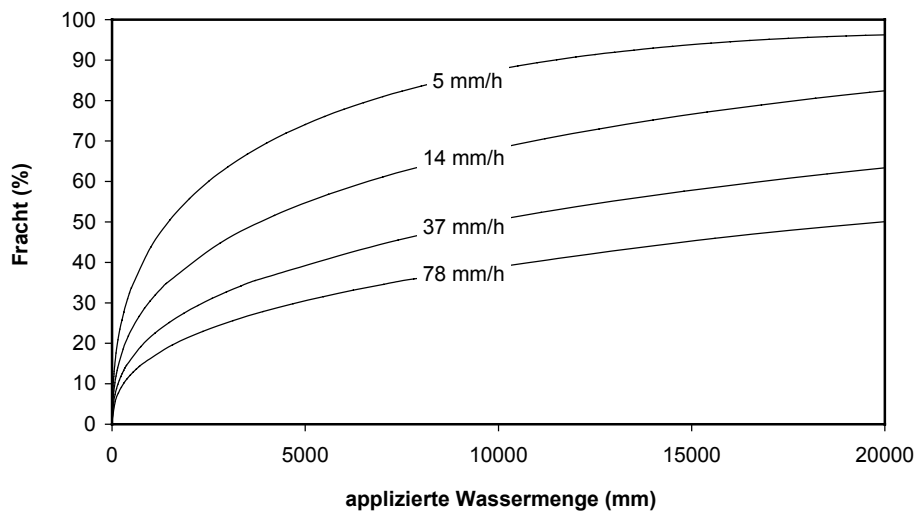
Betrachtet wurden mehrere Wassermengen und Applikationsdauern, woraus sich verschiedene Applikationsraten ergeben. Da angenommen wird, dass nur die Schwerkraft die Wasserbewegung treibt, ist die Durchflussrate gleich der Applikationsrate, also  $q = q_{ap}$ . Durch Umstellung von Gleichung 8 wird der mit  $q$  korrespondierende Wassergehalt ( $\theta$ ) berechnet. Die Frachten werden als Funktion der Applikationsrate und des Wassergehalts (Bild 3) bzw. der applizierten Wassermenge (Bild 4) dargestellt. Bild 3 zeigt außerdem, wie viel Fracht in einer bestimmten Zeit mit einer gegebenen Wassermenge bei verschiedenen Applikationsraten ausgewaschen wird. Zusammengefasst ergeben die Berechnungen Folgendes:

- Die Fracht, die mit einer gegebenen Wassermenge ausgewaschen werden kann, nimmt über einen weiten Bereich von  $q_{ap}$  mit steigender Applikationsrate ab (Bild 3).
- Unterhalb eines bestimmten  $q_{ap}$ , nimmt die Fracht mit fallender Applikationsrate ab (Bild 3). Die Rate, ab der das eintritt, nimmt mit der applizierten Wassermenge zu.
- Bei gleich bleibender Applikationsrate nimmt die Fracht mit der applizierten Wassermenge zu (Bild 3 und 4), aber die Zunahme ist degressiv (Bild 4).
- Wenig Wasser mit geringer Rate appliziert, kann die gleiche oder eine größere Fracht liefern wie viel Wasser bei entsprechend hoher Applikationsrate (Bild 3).
- Die Fracht, die in einer bestimmten Zeit ausgewaschen wird, steigt zwar mit der Applikationsrate, aber deutlich langsamer als diese (Bild 3).
- Bei gleicher Applikationsrate nimmt die Stoffkonzentration im Sickerwasser (sowohl  $C_D$  als auch  $C_t$ ) mit zunehmender applizierter Wassermenge ab (Bild 5).

- Bei gleicher applizierter Wassermenge nimmt die Durchschnittskonzentration ( $C_D$ ) mit steigender Applikationsrate ab (Bild 6).

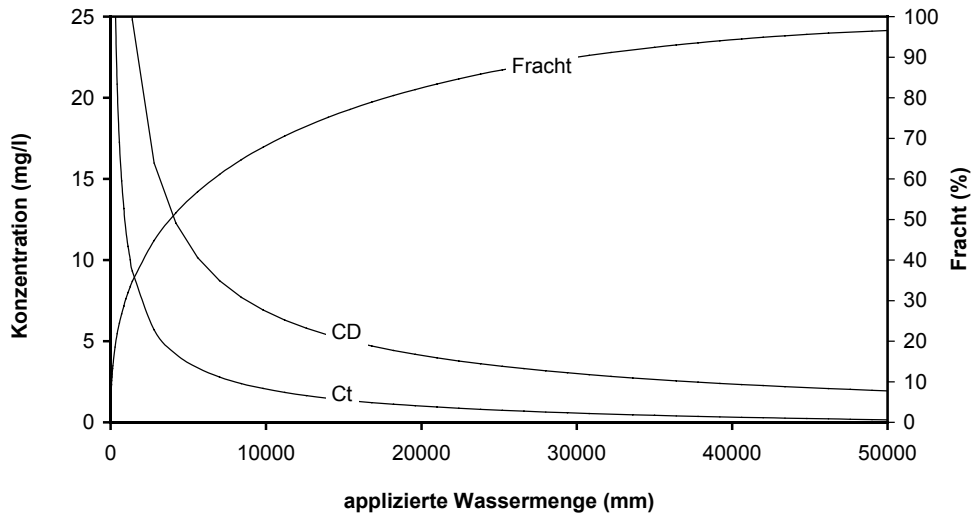


**Bild 3:** Fracht (in % der anfangs im Boden enthaltenen Stoffmenge) als Funktion der Applikationsrate und des volumetrischen Wassergehaltes für verschiedene applizierte Wassermengen. Dargestellt sind außerdem Linien gleicher Auswaschungsdauer.

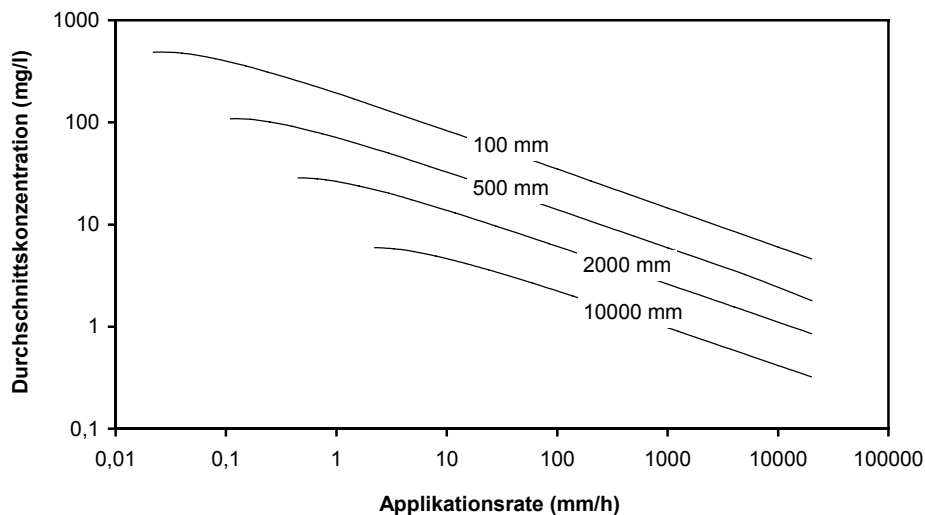


**Bild 4:** Fracht (in % der anfangs im Boden enthaltenen Stoffmenge) als Funktion der applizierten Wassermenge für verschiedene Applikationsraten.

Diese Aussagen decken sich mit den Ergebnissen der o. g. Versuche (Punkte 1 bis 3 in der Einleitung), abgesehen von denen im zweiten Anstrich, die in den Versuchen nicht beobachtet wurden, da die Applikationsraten dafür zu hoch waren.



**Bild 5:** Konzentration und Fracht (in % der anfangs im Boden enthaltenen Stoffmenge) als Funktion der applizierten Wassermenge bei einer Applikationsrate von 14 mm/h,  $C_D$  = Durchschnittskonzentration,  $C_t$  = Konzentration zur Zeit t.



**Bild 6:** Durchschnittskonzentration als Funktion der Applikationsrate für verschiedene applizierte Wassermengen.

$C_D$  kann auch aus Bild 3 entnommen werden, indem man die Fracht, die eine gegebene Wassermenge appliziert mit einer bestimmten Rate hervorbringt, auf der Ordinate abliest und dann durch diese Wassermenge teilt. Dabei ist zu beachten, dass hier 1% = 1 g Stoff / m<sup>2</sup> Querschnittsfläche des PM.

Unter der Annahme von „piston flow“ entspricht die Wassermenge, die zur Auslaugung einer Pore nötig ist, dem Volumen dieser Pore ( $V_{pi} = \pi r_i^2 L$ ). Da der Stoffgehalt in der Pore mit  $r$  (Gleichung 9),  $V_{pi}$  aber mit  $r^2$  wächst, ist die Auswaschungseffektivität (Fracht je Wasser-

menge) für eine Pore proportional zu  $1/r$ , d. h. sie fällt mit steigendem  $r$ . Je größer also die Applikationsrate und damit die am Durchfluss beteiligten Poren werden, desto geringer wird die Fracht, die mit einer gegebenen Wassermenge aus dem PM ausgewaschen werden kann (Bild 3). Folglich nimmt bei gleicher applizierter Wassermenge die Durchschnittskonzentration im Sickerwasser ( $C_D$ ) mit steigender Applikationsrate ab (Bild 6).  $C_D$  entspricht der auf das ganze PM bezogenen Auswaschungseffektivität.

Wenn ein Wasservolumen  $V_{pi}$  durch eine Pore geflossen ist, sind alle Stoffe aus ihr ausgewaschen und weiterer Durchfluss bringt keine Fracht mehr. Da die Fließgeschwindigkeit proportional zu  $r^2$  ist, wird die größte Pore am schnellsten durchflossen und somit als erste ausgelaugt, dann immer kleinere. Bis das Volumen  $V_{pi}$  durch die größte am Durchfluss beteiligte Pore geflossen ist, liefern alle Poren Fracht und diese steigt linear mit der applizierten Wassermenge. Mit zunehmender Dauer der Wasserapplikation ( $t$ ), und damit steigender applizierter Wassermenge ( $W_a = q_{ap} t$ ), wird danach für immer mehr (und kleinere) Poren das durchgeflossene Wasservolumen  $> V_{pi}$ . Sie liefern dann nur noch Wasser, so dass die Fracht nur noch degressiv mit der applizierten Wassermenge zunimmt (Bild 4). Das trägt auch dazu bei, dass die Auswaschungseffektivität fällt, wenn die Applikationsrate steigt.

Aus den eben genannten Gründen kann wenig Wasser mit geringer Rate appliziert (z. B. 100 mm bei 10 mm/h) die gleiche oder eine größere Fracht liefern wie viel Wasser bei entsprechend hoher Applikationsrate (z. B. 500 mm bei  $\geq 100$  mm/h; Bild 3).

Wasser braucht mehr Zeit, um durch kleine Poren zu fließen als durch große. Dementsprechend dauert es länger eine gegebene Wassermenge bei geringer Applikationsrate durch ein PM zu leiten, um kleine Poren auszulaugen, aber es ist effektiver. Wird die Applikationsrate allerdings so klein gewählt, dass von einer gegebenen Wassermenge mehr durch kleine Poren fließt als nötig ist, um sie auszulaugen, nehmen die Fracht und die Auswaschungseffektivität bei gleicher applizierter Wassermenge mit fallender Applikationsrate ab (Bild 3).

Mit steigender Applikationsrate werden mehr Poren und außerdem größere, die schneller durchströmt und damit auch schneller ausgelaugt werden, am Durchfluss beteiligt. Beides führt dazu, dass die Stoffmenge, die in einer bestimmten Zeit ausgetragen wird, mit der Applikationsrate ansteigt. Größere Poren werden aber auch schneller ausgewaschen und liefern für eine gegebene Wassermenge eine geringere Stoffmenge als kleinere. Daher steigt die Fracht, die in einer bestimmten Zeit ausgewaschen wird, zwar mit der Applikationsrate an, aber deutlich langsamer als diese (Bild 3).

Bei gleich bleibender Applikationsrate nimmt  $C_D$  mit steigender applizierter Wassermenge ab (Bild 5), weil mit der Zeit immer mehr Poren nur noch Wasser, aber keine Stoffe mehr liefern.

Bei gleicher applizierter Wassermenge nimmt  $C_D$  mit steigender Applikationsrate ab (Bild 6), weil dann ein größerer Teil der applizierten Wassermenge durch große Poren fließt, die bezogen auf das Porenvolumen weniger Stoffe beinhalten als kleine Poren. Diese Aussagen gelten auch für  $C_t$ .

#### 4. Diskussion

Mit der hier vorgestellten einfachen, aber physikalisch begründeten mathematischen Beschreibung der Stoffauswaschung aus einem PM konnten die Ergebnisse von Versuchen nachvollzogen und begründet werden. Die Berechnungsergebnisse können aber nur qualitativ interpretiert werden, da einige Vereinfachungen gemacht wurden. Eine quantitative Beschreibung war hier allerdings auch nicht das Ziel.

Es wurde angenommen, dass alle Poren gerade sind und über ihre gesamte Länge einen konstanten Radius haben. Beides ist in einem realen PM nicht der Fall. Der erste Punkt wirkt sich auf den Potentialgradienten aus, der über die lineare Distanz zwischen zwei Punkten, z. B. über die Länge des PM ( $L$ ) bestimmt wird, aber über die Länge des tatsächlichen Fließwegs ( $L_e$ ) auftritt. Wegen der Gewundenheit der Poren ist  $L_e > L$ . Das Verhältnis  $L_e : L$  wird Tortuosität genannt (Hillel, 1998). Der zweite Punkt ist wichtig, weil der Durchfluss von der engsten Stelle in einer Pore begrenzt wird. Beide Faktoren werden durch die o. g. Annahme nicht berücksichtigt, was im Vergleich zur Realität zunächst zu schnelleren Durchflussraten und kürzeren Auswaschungszeiten führt.

Ein nicht konstanter Radius wirkt sich auf die Stoffmenge bzw. -konzentration in einer Pore nicht wesentlich aus. Die Tortuosität hat auf die Stoffkonzentration in einer Pore ( $C_i$ ) keinen Einfluss, da sich die Porenlänge bei der Berechnung von  $C_i$  mit Gleichung 12 herauskürzt. Bei der Berechnung der auswaschbaren Stoffmenge im PM (Gleichung 11) gibt  $d\theta$  an, welches Volumen eines PM der Länge  $L$  von Poren mit Radius  $r_i$  eingenommen wird. Nun ergeben z. B. 10 gerade Poren der Länge  $L_i = L$  das gleiche Volumen wie 5 gewundene Poren der Länge  $L_i = 2 L$ . Das bedeutet, dass in Bezug auf das Porenvolumen die Tortuosität bereits in  $d\theta$  enthalten ist und in Gleichung 11 immer die Länge des PM verwendet werden kann.

Weiterhin wurde angenommen, dass die einzelnen Poren nicht miteinander verbunden sind. Unter dieser Annahme werden die in kleinen Poren befindlichen Stoffe nur in diesen Poren transportiert. Dort sind die Fließgeschwindigkeiten gering, so dass die Auswaschung nur langsam vonstatten geht. In einem realen PM stehen kleine Poren aber in Verbindung mit großen, so dass Stoffe aus kleinen in große gelangen können. Das kann z. B. durch Diffusion geschehen, oder durch Konvektion, wenn eine kleine in eine große Pore mündet. In der

großen Pore verläuft der Transport dann entsprechend schneller. Die Annahme nicht verbundener Poren führt also zu längeren Auswaschungszeiten.

Die Annahmen hier führen also einerseits zu kürzeren, andererseits zu längeren Auswaschungszeiten als sie in der Realität zu erwarten sind und heben sich damit in ihren Auswirkungen teilweise auf. Im Vergleich mit unseren Experimenten (Hagenau und Borg, 2003) liefern die Berechnungen aber dennoch um ein Vielfaches längere Auswaschungszeiten. Das liegt einerseits daran, dass in den Experimenten mit trockenen Säulen begonnen wurde. Dadurch wird die Wasserbewegung neben der Schwerkraft anfangs noch durch einen Gradienten im Matrixpotential angetrieben und verläuft somit viel schneller als in den Berechnungen. Da das in die Poren infiltrierende Wasser einen Teil der darin enthaltenen Stoffe vor sich herschiebt (der übrige Teil wird vom nachfolgenden Wasser transportiert), geht auch die Stoffauswaschung schneller voran. Andererseits haben die im Modell gemachten Vereinfachungen sicherlich auch einen Einfluss. Die Abhängigkeit der Auswaschung von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate sowie die Form des Auswaschungsverlaufs werden durch das Modell aber korrekt wiedergegeben.

Aus dem hier vorgestellten qualitativen Modell lassen sich einige interessante Schlüsse für die gezielte Auswaschung eines kontaminierten PM ziehen. Um die gesamte Stoffmenge in einem PM auszuwaschen, müssen alle Poren durchflossen und ausgelaugt werden. Um das mit möglichst wenig Wasser zu erreichen, muss der Auswaschungsprozess mit der kleinsten Applikationsrate begonnen werden, bei der die größte Pore noch am Durchfluss beteiligt ist. Wenn diese ausgelaugt ist, muss man  $q_{ap}$  so weit reduzieren, dass sie nicht mehr durchfließen wird. Mit der Zeit werden immer kleinere Poren ausgewaschen, so dass  $q_{ap}$  immer weiter reduziert werden muss. In der Praxis ist es nicht möglich, die Zeit für die Auslaugung einer Pore genau zu ermitteln. Man kann daher  $q_{ap}$  nicht kontinuierlich so reduzieren, dass die gerade ausgelaugte Pore nicht mehr durchfließen wird. Stattdessen sollte  $q_{ap}$  in mehreren Schritten verringert werden. Der Zeitpunkt für eine Reduktion ist so zu wählen, dass Poren, deren Radius größer als ein festgelegter Wert ( $r_q$ ) ist, mit Sicherheit schon ausgelaugt sind. Das neue  $q_{ap}$  ist so zu bemessen, dass es mit Sicherheit ausreicht, um alle Poren mit  $r < r_q$  zu durchfließen.

Je kleiner der Radius einer Pore ist, desto länger dauert es sie auszuwaschen. Mit der eben beschriebenen Strategie braucht man für die Auswaschung eines PM daher umso länger, je mehr seines Stoffgehaltes man entfernen will. Um z. B. aus 1 m Länge des hier betrachteten PM 50% bzw. 90% davon auszuwaschen, werden 0,5 bzw. 2,5 Jahre benötigt. Diese Zeitangaben gelten nur für Stoffe, die nicht an der Matrix des PM adsorbiert werden und sich daher mit dem Wasser bewegen. In der Regel ist das für Anionen der Fall. Abhängig von der Ad-



sorptionskapazität und dem Ionenbelag der Matrix sowie der chemischen Zusammensetzung des Porenwassers werden Kationen dagegen stark adsorbiert, so dass sie sich typischerweise > 100mal langsamer als Wasser bewegen. Polare und nicht geladene organische Verbindungen werden relativ schwach adsorbiert und verlagern sich in der Regel 2 - 5mal langsamer als Wasser. Die Auswaschungszeiten für die eben genannten Stoffgruppen sind entsprechend länger. Eine genaue Modellierung ihrer Auswaschung erfordert die Verwendung von Adsorptionsisothermen.

Die bisher beschriebene Strategie basiert auf der Auslaugung der größten Pore und dann immer kleinerer Poren. Alternativ kann man die großen Poren unberührt lassen und nur die kleinen auslaugen. Da sie bezogen auf ihr Porenvolumen mehr Stoffe enthalten als große, kann dann mit weniger Wasser die gleiche Fracht oder mit der gleichen Wassermenge mehr Fracht ausgewaschen werden, aber es dauert länger (Bild 3). Eine vollständige Auswaschung eines PM ist auf diese Weise allerdings nicht möglich.

Natürliche Niederschläge reichen meist nicht aus, um in einem PM gesättigten Durchfluss hervorzurufen. Folglich fließt Niederschlagswasser durch die kleineren Poren, wo die Stoffkonzentration hoch ist, so dass das entstehende Sickerwasser eine entsprechend hohe Konzentration aufweist. Werden dagegen bei Wassersättigung alle Poren eines PM durchströmt, kann man davon ausgehen, dass die Konzentration im Sickerwasser um ein Vielfaches geringer ist.

## **Literatur**

- AG Boden (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung, 4. Auflage. Schweizerbart, Stuttgart.
- Brooks, R. H., A. T. Corey (1966): Properties of porous media affecting fluid flow. J. Irrig. Drainage Div. Am. Soc. Civ. Eng. 92, 62-88.
- Campbell, G. S. (1974): A simple method for determining unsaturated conductivity from moisture retention data. Soil Sci. 117, 311-314.
- Childs, E. C., N. Collis-George (1950): The permeability of porous materials. Proc. Roy. Soc. London Ser. A 201, 392-405.
- Gardner, W. R., D. I. Hillel, Y. Benyamini (1970): Post irrigation movement of soil water. I. Redistribution. Water Resour. Res. 6, 851-861.
- Hagenau, J., H. Borg (2003): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 105-111.
- Hartge, K.-H., R. Horn (1991): Einführung in die Bodenphysik, 2. Auflage. Enke, Stuttgart.
- Hillel, D. (1998): Environmental soil physics. Academic Press, San Diego.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. Soil Sci. Soc. Am. J. 43, 1100-1106.
- Jury, W. A., W. R. Gardner, W. H. Gardner (1991): Soil Physics, 5<sup>th</sup> edition. John Wiley & Sons, New York.

- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. *J. Hydrol.* 32, 203-218.
- Luthin, J. N., J. W. Biggar (1962): Drainage-salinity investigations in the Five Points, Tranquillity Area, Fresno County, California. Report to the Bureau of Reclamation, United States Department of the Interior.
- Miller, R. J., J. W. Biggar, D. R. Nielsen (1965): Chloride displacement in Panoche clay loam in relation to water movement and distribution. *Water Resour. Res.* 1, 63-73.
- Myers, R. J. K., C. A. Campbell, K. L. Weier (1982): Quantitative relationship between net nitrogen mineralization and moisture content of soils. *Can. J. Soil Sci.* 62, 111-124.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15-19.24.
- Reeve, R. C., A. F. Pillsbury, L. V. Wilcox (1955): Reclamation of a saline and high boron soil in the Coachella Valley of California. *Hilgardia* 4, 69-91.
- Schachtschabel, P., H.-P. Blume, G. Brümmer, K.-H. Hartge, U. Schwerdtmann (1992): Scheffer/Schachtschabel - Lehrbuch der Bodenkunde, 13. Auflage. Enke, Stuttgart.
- van Genuchten, M. T. (1980): A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44, 892-898.

Dieses Kapitel wurde in leicht veränderter Form veröffentlicht:

- Hagenau, J., H. Borg (2003): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 112-119.

#### **IV. Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate**

##### ***Simulation of leaching of organic compounds, chloride and zinc from landfills in relation to the rainfall rate***

#### **Zusammenfassung**

Kontaminationsquellen, z. B. Deponien oder schadstoffbelastete Böden, können durch gezielte Auswaschung bereinigt werden. Soll der Stoffaustrag aus porösen Medien durch Bewässerung erwirkt werden, so bestimmt nicht allein die Menge des applizierten Wassers die Stoffkonzentrationen im Sickerwasser und damit die ausgewaschenen Frachten, sondern auch die Rate, mit der diese Menge appliziert wird. Diese Abhängigkeit war bereits vor mehreren Jahrzehnten bei Versuchen zur Entsalzung von Böden erkannt worden. Hier wird anhand von Säulenversuchen gezeigt, dass die Auswaschung von Stoffen auch aus Kompost bzw. einem Gemisch von Kompost und Sand bei geringen Raten effektiver vonstatten geht als bei höheren. Das Gemisch soll dabei Hausmüll in Hinblick auf den Organikgehalt simulieren. Der Grund für die höhere Effektivität kleinerer Raten liegt darin, dass sich der größte Teil der auslaugbaren Stoffe in den kleinen Poren befindet, da diese insgesamt den Großteil des Porenraums bilden. Bei geringen Raten und damit verbundenen niedrigen Wassergehalten werden nur diese kleinen Poren durchflossen. Wenn durch höhere Raten auch größere Poren am Fließgeschehen beteiligt werden, die insgesamt eine geringe Stoffmenge enthalten, reduziert sich die Sickerwasserkonzentration. Je Volumeneinheit Wasser wird somit weniger Fracht ausgewaschen.

#### **Summary**

Polluted areas such as landfill sites or contaminated soils can be cleaned up by controlled leaching. Already several decades ago leaching experiments with salt affected soils showed that the salt concentration of the seepage water and the total amount of salt removed depend not only on the amount of water applied but also on the rate it is applied at. Using column experiments it is demonstrated here that this also holds for the leaching of solutes from compost and a sand-compost-mixture. The latter was taken to represent household waste. Leaching is more effective at lower application rates, because smaller pores generally make up most of the total pore volume in a porous medium. Therefore, most of the amount of pollutants present in a porous medium resides in the smaller pores. It is these pores water passes through, if applied at a low rate. At higher application rates larger pores take part in the flow process. They contain a lesser amount of pollutants so that the solute concentration

of the seepage water decreases. Hence, a smaller amount of pollutants is leached per unit amount of water applied.

## 1. Einleitung

Die Belastung von Grund- und Oberflächenwasser durch Schadstoffeinträge aus Ablagerungen oder kontaminierten Böden stellt ein ernstes Umweltproblem dar. Eine wesentliche Quelle solcher Belastungen sind Mülldeponien. Auf dem Gebiet der ehemaligen DDR befinden sich viele Deponien, die nicht mit einer Basisabdichtung versehen sind, so dass Sickerwasser aus dem Deponiekörper umweltrelevante Stoffe in das Grundwasser tragen kann. Bei diesen Stoffen handelt es sich sowohl um anorganische als auch organische Verbindungen, die oftmals in ionischer Form auftreten. Genauere Beschreibungen der Zusammensetzung von Deponiesickerwasser sind in Arneth et al. (1989) sowie Krümpelbeck und Ehrig (2001) zu finden.

Die kritischsten Stoffe im Sickerwasser sind organische Verbindungen, da sie einerseits am häufigsten die vorgegebenen Grenzwerte überschreiten und sie andererseits längere Zeit als andere Stoffgruppen in bedenklichen Konzentrationen im Sickerwasser zu finden sind (Belevi und Baccini, 1989). Sie liegen in einem breiten Spektrum von organischen Säuren über halogenierte Kohlenwasserstoffe (AOX) bis hin zu Huminstoffen vor und werden mit dem Summenparameter CSB (chemischer Sauerstoffbedarf) erfasst. In den CSB gehen alle durch Oxidation abbaubaren organischen Stoffe ein. Die Zusammensetzung des CSB variiert daher stark (Andreottola und Cannas, 1992) und ist von der Art des abgelagerten Abfalls sowie vom Alter der Deponie abhängig (Krümpelbeck, 1999). Eine Unterteilung des CSB nach Abbaubarkeit und Abbaugeschwindigkeit ist somit sinnvoll, wobei das Verhältnis von BSB<sub>5</sub> (biologischer Sauerstoffbedarf in fünf Tagen) und CSB als ein Maß für die Abbaubarkeit der organischen Verbindungen herangezogen werden kann.

Die lösliche organische Substanz ist meist anionischer Natur und deshalb relativ mobil. Dennoch dauert es nach Abschluss des Betriebs einer Deponie noch mindestens mehrere Jahrzehnte, bis die CSB-Konzentration im Sickerwasser vertretbare Werte erreicht, die keine Reinigung mehr erfordern (Krümpelbeck und Ehrig, 2001). Das liegt hauptsächlich an Abbauprozessen, die die organische Substanz teilweise erst in wässrige Lösung gehen lassen.

Nicht nur organische Stoffe verschiedenster Art kommen in teilweise hohen Konzentrationen im Sickerwasser vor, sondern auch anorganische Anionen und Kationen. Anionen sind mobiler als organische Verbindungen und diese wiederum wesentlich mobiler als Kationen.

Eine Möglichkeit Kontaminationsquellen wie z.B. Deponien zu bereinigen, besteht darin, sie gezielt auszulaugen. Das ist grundsätzlich aber nur dann möglich, wenn eine Sickerwasser-

fassung vorhanden ist, damit ein Übertritt von kontaminiertem Sickerwasser ins Grundwasser vermieden wird. Bei der Auslaugung ist zu beachten, dass die Stoffauswaschung nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängt. Diese Abhängigkeit wurde von Hagenau und Borg (2003a) zunächst bei der Auswaschung von Chlorid aus Sand und Sandlöss durch Säulenversuche nachgewiesen und anschließend mit einem qualitativen Modell begründet (Hagenau und Borg, 2003b).

Hagenau und Borg griffen damit Erkenntnisse auf, die bei Versuchen zur Bodenentsalzung gewonnen wurden. So stellten Luthin und Biggar (1962), Miller et al. (1965), Nielsen et al. (1966), Leffelaar und Pal Sharma (1977) sowie Jury et al. (1979) fest, dass bei der Gabe von Wasser zur Entsalzung von Böden mit geringeren Applikationsraten (z.B. mit unterbrochenem Überstau) effektiver ausgelaugt wird (mehr Salz je Volumen Wasser) als mit hohen Raten (z.B. durchgehender Überstau). Diese Aussagen sowie die eigenen experimentellen Ergebnisse sind darauf zurückzuführen, dass der größte Teil der auslaugbaren Stoffe in den kleineren Poren enthalten ist, da diese insgesamt den Großteil des Porenraums bilden. Bei höherer Rate werden dann mehr größere Poren zum Wassertransport benötigt, die sehr viel Wasser leiten können aber wenig Stoff enthalten (da sie nur einen relativ kleinen Teil des Porenraums einnehmen) und daher relativ gering konzentrierte Lösung bringen.

In dieser Arbeit wird geprüft, ob die in Hagenau und Borg (2003a) aufgestellten und nachgewiesenen Thesen für die Auswaschung von Chlorid aus Mineralböden auch für die Auswaschung von verschiedenen Stoffgruppen aus Müllkörpern zutreffen, nämlich dass:

- sich die auslaugbaren Stoffmengen überwiegend in den kleineren Poren befinden,
- bei konstanter Applikationsrate die Stoffkonzentration im Drainagewasser im Verlauf des Auswaschungsereignisses sinkt und die Gesamtfracht somit nur degressiv zunimmt,
- mit geringen Applikationsraten bei gleicher Wassermenge mehr Stoffe ausgewaschen werden als mit höheren.

Dabei wurde der CSB als Maß für organische Verbindungen gewählt. Chlorid wurde als Vertreter der Anionen herangezogen, da es mit einfachen Mitteln zu analysieren ist. Zink wurde aus dem selben Grund als Vertreter der Schwermetalle untersucht. Außerdem weist es für Schwermetalle eine hohe Mobilität auf und ermöglicht deshalb überschaubare Versuchszeiten. Für die wichtigsten Stoffgruppen im Deponiesickerwasser wurde somit jeweils ein Vertreter oder Summenparameter zur Bestimmung herangezogen.

Da sich Hausmüll nicht für Säulenversuche im hier gewählten Maßstab eignet, wurde er durch ein Gemisch aus Kompost und Sand modelliert, welches ihm in seinen Anteilen von

organischen und mineralischen Stoffen nahe kommt. Besonders im Hinblick auf organische Substanz sollte somit die Auslaugung von Müllkörpern simuliert werden.

Erkenntnisse zur Stoffauswaschung aus Deponiekörpern als Funktion der Applikationsrate sind nötig, damit eine gezielte Auslaugung einerseits effektiv und damit kostengünstig und andererseits möglichst schnell durchgeführt werden kann. Letzteres dient dazu, die Zeitdauer der meist kostspieligen Nachsorge (besonders Sickerwasserfassung und -reinigung) auf ein Minimum zu reduzieren, bevor die Deponie dann „sich selbst überlassen“ werden kann.

Weiterhin ermöglichen diese Kenntnisse eine bessere Abschätzung der zu erwartenden Stoffausträge aus den eingangs erwähnten, unabgedichteten Deponien bzw. anderen Kontaminationsherden. Wie aus den Thesen folgt, hängen die ins Grundwasser oder in die Vorfluter gelangenden Stoffkonzentrationen und -frachten dabei nicht nur von der Niederschlagsmenge ab, sondern auch von der Intensität, mit der sie fallen. Beides ist von Region zu Region verschieden, so dass bei vergleichbaren Deponiekörpern verschiedene Sickerwasserkonzentrationen auftreten können.

## **2. Material und Methoden**

### **2.1 Allgemeine Vorgehensweise**

#### **2.1.1 Wasserzufuhr**

Die Wasserzufuhr erfolgte mit Hilfe einer an unserem Institut entwickelten Beregnungsapparatur (Lohmann, 1999). Sie besteht aus einer Mariotteschen Flasche und einem Beregnungskopf, die über einen Schlauch miteinander verbunden sind. Der Beregnungskopf hat einen Durchmesser von 10 cm und eine Höhe von 5 cm. An seinem Boden befinden sich 12 rasterförmig angeordnete Öffnungen, die entweder mit Kanülen bestückt oder verschlossen werden können. Durch die Mariottesche Wasserführung wird ein konstanter Wasserdruck und damit eine gleichbleibende Applikationsrate während der Beregnung gewährleistet. Unterschiedliche Raten können entweder durch Höhenverstellung des Beregnungskopfes gegenüber dem Wasserbehälter und damit einer Änderung des Druckes, Einsetzen von Kanülen mit anderem Durchmesser oder Änderung der Kanülenanzahl am Beregnungskopf erreicht werden. Dadurch können Werte zwischen 4 und 3.600 ml/h eingestellt werden. Da es jedoch schwierig ist, kleinere Werte mit dieser Apparatur konstant zu halten, wurde nur mit Raten  $\geq 20$  ml/h gearbeitet.

Durch die rasterförmige Anordnung der Kanülen wird eine gleichmäßige horizontale Verteilung des Wassers im Boden erreicht. Das wurde in Vorversuchen durch Wassergehaltsmessungen mit dem Thermolink<sup>®</sup>-Gerät (Decagon Devices, Pullman, Washington, USA) an ver-

schiedenen Stellen in gleicher Höhe in der Bodensäule sichergestellt. Um Verschlammung an den Aufprallstellen der Tropfen zu vermeiden, wurde zwischen Kanülen und Boden ein Abstand von nur etwa einem Zentimeter eingestellt.

### **2.1.2 Säulen, Substrat und Probenahme**

Alle Versuche wurden im Labor mit Säulen aus Glas oder PE-Rohr durchgeführt. Den unteren Abschluss der Säulen bildete ein aufgestecktes Plastiksieb, das mit einem Vlies ausgelegt war. Dadurch werden feine Substratteilchen zurückgehalten, während Drainagewasser abfließen kann. Aufgrund der Mannigfaltigkeit der verwendeten Substrate und den damit verbundenen Unterschieden in Wasserleitfähigkeit und Lufteintrittspotential wurde mit Säulen verschiedener Längen (30 und 70 cm) und Durchmesser (4,6 und 5 cm) gearbeitet, auf die bei der Beschreibung der einzelnen Versuche noch eingegangen wird. Das Material wurde so eingebaut, dass zwischen einem und drei Zentimeter am oberen Säulenrand frei blieben, um eventuell anfallendes Überstauwasser aufzunehmen.

Als Substrat diente zunächst Fertigungskompost (Rottegrad V, Ausgangsmaterial jeweils 50% Bioabfall und Grünschnitt) aus dem Kompostwerk der Stadtwirtschaft Halle GmbH, der durch eine einwöchige Intensivrotte in Rottetunneln mit anschließender zweimonatiger Nachrotte in offenen Mieten hergestellt wurde. Vor Versuchsbeginn wurde er auf eine maximale Korngröße von  $< 2$  mm gesiebt. Diese Maßnahme diente der Verringerung der sehr großen Heterogenität des Materials. Eine vorherige Trocknung des Kompostes verbessert die Handhabbarkeit und erhöht den Siebdurchgang, kann aber nach unseren Erfahrungen auch schon bei Trocknungstemperaturen von  $< 40$  °C zu starker Hydrophobie führen. Diese wasserabweisende Wirkung führte bei einer Kompostcharge sogar soweit, dass die Gesetze der Infiltration quasi außer Kraft gesetzt wurden und somit unvorhersehbare und nicht reproduzierbare Ergebnisse erzielt wurden (Hagenau et al., 2005).

Es wurden zunächst Versuche mit getrocknetem Kompost durchgeführt, um festzustellen, ob die Auswaschung bei diesem Substrat grundsätzlich nach den gleichen Gesetzmäßigkeiten abläuft wie bei einem mineralischen Boden. Bei weiteren Versuchen wurde dann ein Gemisch aus Sand und diesmal nicht getrocknetem gesiebt Kompost verwendet, womit letztlich simuliert werden sollte, dass ein Müllkörper aus mineralischen und (feuchten) organischen Komponenten besteht.

Das anfallende Sickerwasser wurde stets über einen Trichter in einen Messzylinder geleitet und nach jeweils einer definierten Menge angefallenen Wassers analysiert. Die Beregnung erfolgte immer mit destilliertem Wasser, um sicherzustellen, dass im Sickerwasser ausschließlich Substanzen erfasst wurden, die dem Substrat in der Säule entstammen.

Um die Konzentration des gerade austretenden Sickerwassers (Momentankonzentration) zu erfassen, müsste man den Zeitraum der Beprobung und damit das Probenvolumen unendlich klein halten, was aber technisch nicht möglich ist. Bei den hier angegebenen Konzentrationen handelt es sich deshalb um Mischungskonzentrationen, die immer dann ermittelt wurden, wenn eine Probe nach einer bestimmten Zeit bzw. einem bestimmten durchgeflossenen Volumen entnommen und analysiert wurde. Je kleiner man diese Volumina wählt, desto mehr nähert sich die Mischungskonzentration der Momentankonzentration.

Bei Versuchen mit hohen Raten nahe Sättigung traten geringfügige Mengen von Schwebeteilchen in der Lösung auf. Das war an abgesetzten Partikeln am Boden des Auffanggefäßes zu erkennen. Bei geringen Raten wurde das nicht beobachtet, weil die dabei durchflossenen kleineren Poren wahrscheinlich keine (sichtbaren) Partikel passieren lassen. In Vorversuchen war deshalb für alle analysierten Parameter untersucht worden, ob das Auftreten dieser Schwebeteilchen die CSB-, Cl- und Zn-Konzentrationen beeinflusst. Dazu wurden die Lösungen filtriert (Filter Sorte 4b, FILTRAK GmbH, Niederschlag, Deutschland) und die Messungen jeweils im unfiltrierten und im filtrierten Zustand durchgeführt. Es wurden jedoch keinerlei Unterschiede ermittelt, so dass im Folgenden keine Filtration mehr durchgeführt wurde.

Je nach Substrat, untersuchtem Parameter und Intensität lagen die Versuchszeiten, von Beginn der Bewässerung bis Entnahme der letzten Probe, zwischen 16 (trockener Kompost, CSB, höchste Rate) und 265 Stunden (Sand-Kompost-Gemisch, Zink, niedrige Rate).

### **2.1.3 CSB-Bestimmung**

Die Bestimmung des CSB erfolgte durch Küvettentests mit dem Spektralphotometer CADAS 100 (Dr. Bruno Lange GmbH & Co. KG, Düsseldorf, Deutschland). Dabei wurden Küvetten in zwei Messbereichen eingesetzt: Zum einen von 15 - 150 und zum anderen von 150 - 1.000 mg/l CSB. Teilweise traten wesentlich höhere Konzentrationen auf. Solche Proben wurden dann vor einer weiteren Messung mit destilliertem Wasser entsprechend verdünnt (hier maximal zehnfach).

Weiterhin war in Vorversuchen die (gelegentlich angezweifelte) Genauigkeit dieser Messmethode überprüft worden. Dazu wurden mehrere Lösungen bekannter Konzentration mit der Küvettentestmethode und zum Vergleich mit der Kaliumdichromatmethode nach DIN 38409 (1980) beprobt. In allen Fällen waren hier die Küvettentests genauer. Da auch die Entsorgung der Reagenzien bei diesen Tests besser zu handhaben ist, wurde diese Bestimmungsmethode gewählt.



#### **2.1.4 Bestimmung von Chlorid und Zink**

In allen Proben wurden neben dem CSB auch die Parameter Chlorid und Zink untersucht. Da im Kompost Chlorid in ausreichenden und damit gut erfassbaren Mengen vorkommt, musste das Substrat nicht wie bei den Versuchen von Hagenau und Borg (2003a) mit Chlorid versetzt werden. Die Messung erfolgte mit einer ionenselektiven Mess- und einer Referenzelektrode (Elektrode Cl 500 bzw. R 502, WTW, Weilheim, Deutschland).

Die Bestimmung von Zink erfolgte mit dem ICP-Gerät JY 70+ (Jobin Yvon, Paris, Frankreich), wobei das Zink in sämtlichen Formen erfasst wird, also vom Zink-Ion über Komplexe bis hin zu Zink-Oxiden. Zink ist ebenso wie Chlorid in solchen Mengen im Kompost vorhanden, dass bei der Auslaugung Lösungskonzentrationen entstehen, die deutlich im Messbereich des Analyseverfahrens liegen.

## **2.2 Spezielle Versuchsdurchführung**

### **2.2.1 Hydraulische Eigenschaften der Substrate**

Zur Festlegung der Säulenlängen bei den Versuchen ist die Ermittlung der Porosität, des Lufteintrittspotentials sowie des Wassergehaltes am oberen Ende der jeweiligen Säulen erforderlich. Die Säulenlängen müssen dann ausreichend groß gewählt werden, damit im oberen Bereich ein Wassergehalt herrscht, der gering genug ist, um die Einstellung von mehreren deutlich voneinander abweichenden Wassergehalten unterhalb der Sättigung zu ermöglichen, die sich bei unterschiedlichen ungesättigten Durchflussraten ergeben. Andererseits sollen gesättigte Verhältnisse nur in einem relativ kleinen Abschnitt der Säule herrschen. Dazu wurden die Wasserspannungskurven des Kompostes und des Sand-Kompost-Gemisches bestimmt (mittels TruPsi®-Gerät, Decagon Devices, Pullmann, Washington, USA sowie mittels Tensiometer). Aufgrund der Konsistenz und der durch unterschiedlich große Fasern und Pflanzenreste bedingten Heterogenität wiesen die erhaltenen Kurven relativ große Streuungen auf. Für die Bestimmung der o. g. Werte war die Genauigkeit aber ausreichend. Außerdem wurden noch die gesättigten Leitfähigkeiten nach Schönberg (Birecki et al., 1967) ermittelt. Die für die Versuche wichtigen Werte sind Tabelle 1 zu entnehmen. Die Werte für den Sand wurden aus Hagenau und Borg (2003a) entnommen. Die Ergebnisse werden an dieser Stelle schon gezeigt, da sie für die Versuchsplanung benötigt wurden und keine Ergebnisse bezüglich der eigentlichen Fragestellungen dieser Arbeit sind.

**Tabelle 1:** Hydraulische Parameter der verwendeten Substrate.

Parameter	Sand	Kompost	Sand-Kompost-Gemisch
Porosität	36%-Vol.	60%-Vol.	50%-Vol.
Luft Eintrittspotential	5 cm	14 cm	26 cm
Wassergehalt am oberen Säulenende	24% bei 19 cm	40% bei 29 cm	31% bei 67 cm
gesättigte Leitfähigkeit	75 mm/h	180 mm/h	125 mm/h

### 2.2.2 Versuche mit getrocknetem Kompost

Zunächst wurde mit getrocknetem Kompost gearbeitet. Die Trocknung hat den Vorteil, dass sich der Kompost danach besser sieben lässt und somit mehr Ausbeute beim Siebdurchgang bringt, da feine Teilchen, die im feuchten Zustand an groben Teilchen des Siebrückstandes verklebt sind, nach dem Trocknen frei sind und das Sieb passieren können. Außerdem werden durch die Trocknung die Abbauprozesse gestoppt und der Kompost somit stabilisiert. Das hat den Vorteil, dass eine Charge getrockneten Komposts über eine längere Zeitspanne für Versuche verwendet werden kann, ohne dass sich während der Lagerung die Eigenschaften ändern, z. B. durch einen weiteren Abbau von Inhaltsstoffen.

Ein Nachteil der Trocknung liegt in der Erhöhung der Hydrophobie. Sie kann zwar grundsätzlich schon während der Rotte durch die dabei auftretenden hohen Temperaturen entstehen, solange das Substrat aber noch einen ausreichenden Wassergehalt aufweist, wird die Benetzung und die Infiltration von Wasser nach unseren Beobachtungen nicht wesentlich gehemmt. Durch Trocknung wird die Hydrophobie jedoch verstärkt, was sich besonders bei der Wiederbenässung des trockenen Substrates zeigte.

Der Kompost wurde einem Großbehälter der Stadtwirtschaft Halle GmbH entnommen und in einem Plastikeimer gelagert. Das Ausgangsmaterial mit einer Trockenrohichte von ca.  $0,45 \text{ g/cm}^3$  und einer Porosität von etwa 60% (Teilchendichte dabei etwa  $1,1 \text{ g/cm}^3$ ) hatte einen volumetrischen Wassergehalt von 15%-Vol. (Der Wassergehalt wird in Verbindung mit den hier verwendeten Substraten im Folgenden immer in %-Vol. angegeben.) Es wurde bei  $40^\circ\text{C}$  bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und anschließend auf eine maximale Teilchengröße von 2 mm gesiebt, wobei der Siebdurchgang einen Anteil von 60%-Gew. ergab. Der Siebrückstand wurde nicht weiter betrachtet. Es kann davon ausgegangen werden, dass aus dem Ausgangsmaterial keine Bestandteile entfernt wurden, die für die hier vorliegende Betrachtung eine wichtige Rolle spielen.

Der gesiebte Kompost hatte eine Trockenrohddichte von ca. 0,50 bis 0,55 g/cm<sup>3</sup>, die Porosität lag zwischen 60 und 65%. Daraus resultiert eine mittlere Teilchendichte von etwa 1,4 g/cm<sup>3</sup>. Der Siebdurchgang weist wesentlich höhere Teilchendichten auf als der Siebrückstand, weil der Großteil der mineralischen Bestandteile das Sieb passiert, während die besonders leichten Bestandteile wie Holzreste und Pflanzenfasern aufgrund ihrer Größe zurückgehalten werden.

Das Substrat wurde in 30 cm lange Glassäulen mit einem Innendurchmesser von 5 cm eingebaut. (Die Infiltration des Wassers und die Benetzung des Kompostes konnte mit dieser Art der Säule zumindest an der Wandfläche gut verfolgt werden.) Der Einbau erfolgte in fünf Lagen. Durch leichtes Aufstauchen auf den Boden wurde der Kompost von der o. g. Ausgangsdichte auf ca. 0,6 g/cm<sup>3</sup> verdichtet. Für eine Befüllung bis auf etwa 29 cm Höhe wurden 350 g Kompost je Säule benötigt. Vorher durchgeführte Schüttelversuche zur Komplettauswaschung mit destilliertem Wasser bei einem Feststoff-Lösungsverhältnis von 1:10 hatten auslaugbare CSB-Gehalte zwischen 22.000 und 25.000 mg pro kg Kompost ergeben. Somit war jede Säule mit einer CSB-Menge zwischen 7.700 und 8.750 mg besetzt. Die analog ermittelte Chloridmenge lag bei 4.000 mg/kg, also bei 1.350 mg pro Säule.

Die Beregnung erfolgte mit drei verschiedenen Intensitäten, nämlich 250, 100 und 40 ml/h; beim vorliegenden Säulenquerschnitt sind das 125, 50 und 20 mm/h. Bei diesen Raten wurden in Vorversuchen Wassergehalte von 58, 52 und 46% am oberen Säulenende ermittelt. Die höchste Rate kommt der gesättigten Wasserleitfähigkeit nahe, die aber von Säule zu Säule aufgrund der immer noch vorhandenen Heterogenität und geringfügiger Dichteunterschiede durch den Einbau etwas verschieden sein kann.

Weil die durch Schütteln herausgelöste Menge mit Säulenversuchen erst nach einem sehr langen Zeitraum zu erzielen ist, wurde nur solange beregnet, bis sich die Konzentrationen im Sickerwasser nur noch geringfügig änderten, also sich bei der Gesamtfracht nur noch ein sehr geringer Ertragszuwachs einstellte. Beim ersten Versuch dieser Serie (mit 250 ml/h) war dies nach einer Drainagemenge von 4.000 ml der Fall. Daraufhin wurde auch bei den anderen Intensitäten solange beregnet, bis die insgesamt abgelaufene Drainagemenge 4.000 ml betrug. Bis dahin wurde maximal die Hälfte der in den Säulen befindlichen Fracht herausgelöst.

Zunächst wurde nach jeweils 100 ml (= 50 mm) Drainagemenge eine Probe genommen. Schon in den Vorversuchen zeichnete sich ab, dass die Konzentrationen aller untersuchten Parameter im Sickerwasser anfangs sehr stark abfallen und im weiteren Verlauf immer weniger abnehmen. Daher wurde jeweils nach der fünften 100 ml-Probe, also nach 500 ml Gesamtdrainagemenge, der Beprobungsrhythmus geändert. Weil die Stoffkonzentration im Sik-

kerwasser von der Probemenge beeinflusst wird (Fehse, 2004), wurde sie hier weiterhin in 100 ml-Proben bestimmt. Diese wurden aber erst nach längeren Intervallen genommen, die bis auf 1.900 ml (= 950 mm) ausgedehnt wurden. Das Sickerwasser zwischen einzelnen 100 ml-Proben wurde dennoch erfasst und analysiert, um die Gesamtfrachten errechnen zu können.

Während die Bestimmung von CSB und Chlorid in der gleichen Probe erfolgte, wurden für die Zinkbestimmung neue Versuche angesetzt. Zink wird vom Medium stärker sorbiert und bewegt sich damit langsamer, so dass eine wesentlich größere Gesamtapplikationsmenge nötig ist, um 50% des im Medium enthaltenen Zinks auszuwaschen und größere Probenintervalle ausreichen. Bei diesen Versuchen wurde die erste Probe zur Darstellung des Konzentrationsverlaufs auch nach 100 ml genommen, die weiteren dann jedoch zwischen 900 und 1.000, 1.900 und 2.000 ml usw., bis zur letzten Probe zwischen 9.900 und 10.000 ml. Die dazwischenliegenden Mengen, also zwischen 100 und 900, 1.000 und 1.900 ml usw. wurden ebenfalls gesammelt, aber nur für die Frachtbestimmung analysiert.

Die Zinkversuche erfolgten mit dem gleichen Ausgangsmaterial, dem gleichen Säulenaufbau und den entsprechenden Intensitäten wie bei den Versuchen zur Bestimmung von CSB und Chlorid. Die Ermittlung der Gesamtzinkmenge wurde auf die gleiche Weise durchgeführt wie beim Gesamt-CSB und ergab etwa 10 mg Zink/kg Kompost. Damit war mit etwa 3,5 mg Zink pro Säule zu rechnen.

### **2.2.3 Versuche mit Sand-Kompost-Gemisch**

Organische Bestandteile nehmen nur einen Teil des Deponiekörpers ein. Dieser Anteil ist abhängig von der Art des Mülls (in DDR-Deponien ist der Organik-Anteil aufgrund des größeren Ascheanteils relativ gering), von eventueller Vorbehandlung wie Vergärung oder Kompostierung sowie vom Alter der Deponie selbst. Der Anteil wird bei Thome-Kozmiensky (1995) mit einer Schwankungsbreite von 30 - 70 %-Gew. angegeben. Bilitewski et al. (1994) geben den Gehalt an organischen Stoffen mit 40 - 50 %-Gew. an, bei Emberger (1993) werden 25 - 50 %-Gew. genannt. Alle hier genannten Gewichtsprozentage beziehen sich auf die Feuchtmasse.

Genauere Wassergehaltsmessungen im Müllkörper sind aufgrund seiner Struktur und der Heterogenität schwierig und äußerst fehlerbehaftet (Spillmann und Collins, 1986). Die Angabe des Wassergehaltes ist jedoch erforderlich, um auf die für diese Betrachtung wichtige Zusammensetzung des Mülls hinsichtlich Trockenmassen (statt wie üblich Feuchtmassen) zu schließen. Er ist wiederum von der Zusammensetzung abhängig, von der Jahreszeit (sowohl der aktuellen als auch der beim Einbau), von den klimatischen Bedingungen sowie der Ein-

bautechnik. In verschiedenen Schichten oder Abschnitten einer Deponie gibt es dabei erhebliche Wassergehaltsunterschiede. Hierzu ist aber anzumerken, dass sich ein Gleichgewicht in der Deponie nicht nach Wassergehalt, sondern nach der Wasserspannung einstellt. Diese ist im Müllkörper jedoch ebenfalls schwer zu erfassen. In der Literatur wird der durchschnittliche Wassergehalt von Deponiekörpern mit rund 30 %-Gew. (Bilitewski et al., 1994) angegeben. Bei einer Trockendichte von etwa  $1 \text{ g/cm}^3$ , wie sie für Müllkörper angegeben wird, sind das auch 30 %-Vol.; beim organischen Anteil wird beim selben Autor von 50 - 60 %-Gew. Wassergehalt ausgegangen.

Unter Berücksichtigung der eben aufgeführten Werte wurden für die folgenden Experimente Kompost und, als nicht organische Komponente, Sand in einem Verhältnis gemischt, welches den Organik-Gehalt eines Deponiekörpers mit etwa einem Drittel der Trockenmasse repräsentiert. Das Gemisch wurde dementsprechend mit 60 %-Gew. lufttrockenem Sand und 40 %-Gew. nicht getrocknetem gesiebttem Kompost angefertigt. Werden der Wassergehalt und der mineralische Anteil des Kompostes berücksichtigt, ergibt sich damit der oben genannte Organikanteil. Dass diesmal mit ungetrocknetem Kompost gearbeitet wurde, ist eine weitere Veränderung gegenüber der vorherigen Versuchsreihe. Damit sollte berücksichtigt werden, dass in eine Deponie keine getrocknete Substanz eingebaut wird.

Der Kompost (aus dem gleichen Werk wie der in 2.2.1, aber aus einer anderen Charge; Wassergehalt des Siebdurchganges 15%-Vol.) wurde dazu mit Sand aus dem C-Horizont einer Braunerde von einem Feldrand westlich von Bitterfeld gemischt. Er besteht aus 88%-Gew. Sand, 5%-Gew. Schluff sowie 7%-Gew. Ton und ist damit gemäß KA 4 (AG Boden, 1994) ein schwach toniger Sand (St2). Es handelt sich dabei um das Substrat, welches schon bei den Versuchen von Hagenau und Borg (2003a) verwendet wurde.

Bei den unterschiedlichen Teilchendichten ( $2,65 \text{ g/cm}^3$  bzw.  $1,4 \text{ g/cm}^3$ ) ergibt das beim Volumen ein Verhältnis von 44% Sand zu 56% Kompost. Das Gemisch hatte eine Porosität von rund 50% bei einer Lagerungsdichte von  $1,1 \text{ g/cm}^3$ . Der Wassergehalt betrug etwa 11%, wozu der Sand mit seinem Ausgangswassergehalt von unter 2% nur wenig beisteuerte. Die Wasserspannungskurve ist etwas flacher als die des Sandes, das Lufteintrittspotential liegt mit rund 26 cm jedoch etwas höher.

Wegen des höheren Lufteintrittspotentials musste mit längeren Säulen als bei reinem Kompost gearbeitet werden. Es wurden Säulen von 70 cm Länge und einem Durchmesser von 4,6 cm (Querschnittsfläche dabei  $16,6 \text{ cm}^2$ ) in etwa zehn Lagen befüllt und wiederum durch Aufstauchen verdichtet.

Die langen PE-Rohre wurden jeweils mit 1.200 g des feuchten Gemischs befüllt. Bei dem o. g. Durchmesser und der entsprechenden Dichte reicht das Substrat dabei in der Säule bis in 67 cm Höhe. Darin sind dann 480 g ungetrockneter Kompost enthalten. Schüttelversuche zur Komplettauswaschung hatten hier auslaugbare CSB-Gehalte zwischen 7.000 und 8.000 mg pro kg Gemisch ergeben. Somit war jede Säule mit einer CSB-Menge zwischen 8.400 und 9.600 mg besetzt. Die Chloridmenge lag bei 800 mg pro kg Gemisch, also 960 mg pro Säule. Das durch Schütteln ausgewaschene Zink belief sich auf 7 mg pro kg Gemisch, woraus ein Besatz von 8,4 g pro Säule folgt.

Bei dieser Versuchsreihe wurde nur mit zwei Raten berechnet, nämlich 180 und 40 ml/h (108 und 24 mm/h). Dabei stellten sich Wassergehalte von 48 bzw. 40% ein. Die Beprobung erfolgte nach dem gleichen Prinzip wie in 2.2.2 beschrieben.

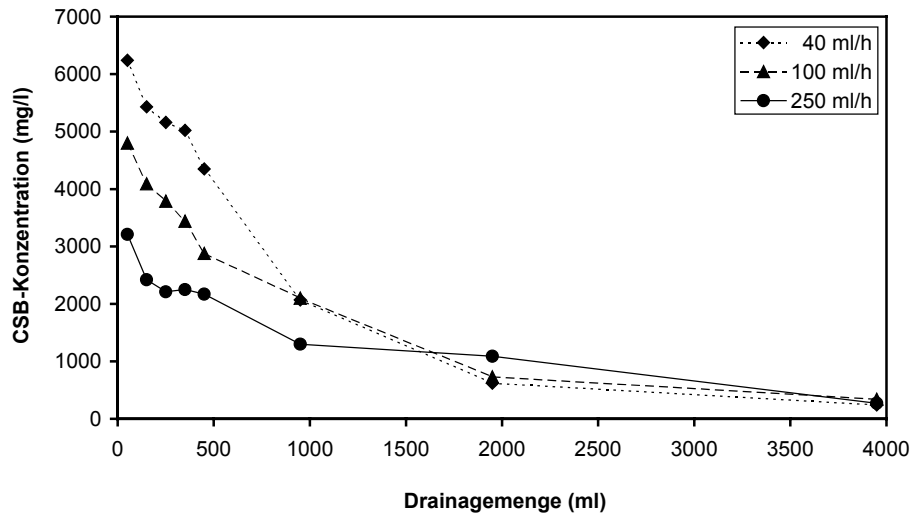
### **3. Ergebnisse**

#### **3.1 Getrockneter Kompost**

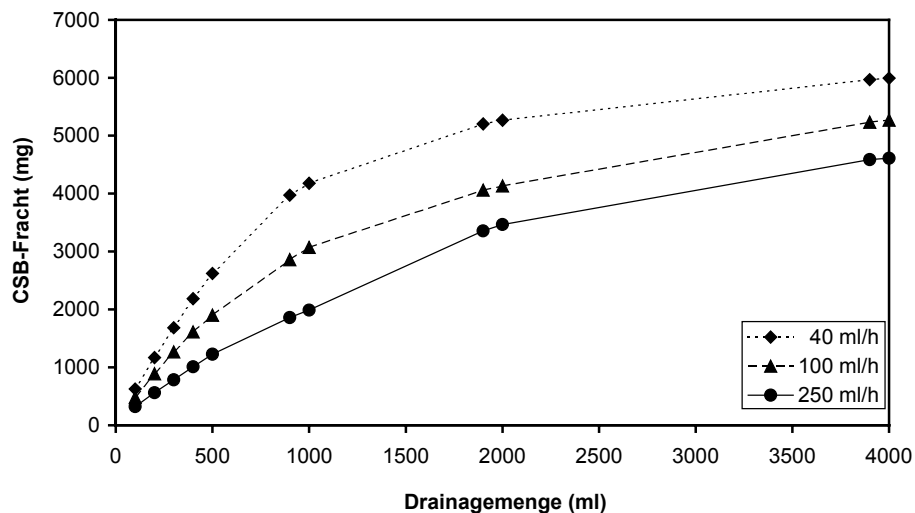
Bild 1 zeigt die Konzentrationsverläufe des CSB für die drei Intensitäten. Es zeigt sich, dass die Konzentrationen bei der kleinsten Rate zunächst weit höher sind als bei der mittleren und jene wiederum höher als bei der hohen Rate. Bei allen drei Intensitäten ist die Konzentration sofort nach Beginn der Entwässerung am höchsten und nimmt dann kontinuierlich ab, wobei die Abnahme immer geringer wird. Bei der kleinsten Rate ist die Konzentrationsabnahme insgesamt am größten, gefolgt von der mittleren. Deshalb kommt es im weiteren Verlauf zum Überschneiden der Graphen. Beim Verlauf der Gesamtfrachten ist dementsprechend ein abnehmender Ertragszuwachs zu erkennen (Bild 2). Es wird deutlich, dass mit der geringsten Rate (im betrachteten Drainagemengenbereich) die meisten organischen Stoffe je Einheit Wasser ausgewaschen werden und mit der höchsten die wenigsten.

Der bei allen Raten anfangs etwas holprige Verlauf der Konzentration lässt sich mit Hydrophobie erklären, die besonders am Anfang der Versuche zu erkennen war: Es kam zu Blasenbildung und das Wasser infiltrierte erst nach einigen Minuten. Eine vollständige Durchfeuchtung (Benetzung) der Oberfläche war bei der kleinen Intensität erst nach mehreren Stunden erfolgt. Dennoch war die Hydrophobie nicht so groß, dass sie das Fließgeschehen entscheidend beeinflusste. Das zeigt sich einerseits an den o. g. Ergebnissen, andererseits war das Substrat nach Beendigung der Versuche und Entnahme aus der Säule in allen Fällen gleichmäßig durchfeuchtet.

Beim Chlorid sehen die Konzentrationsverläufe ähnlich aus wie beim CSB (Bild 3). Bild 4 zeigt die Chloridfrachten für alle drei Intensitäten und bestätigt eindeutig die höhere Effektivität kleinerer Raten.

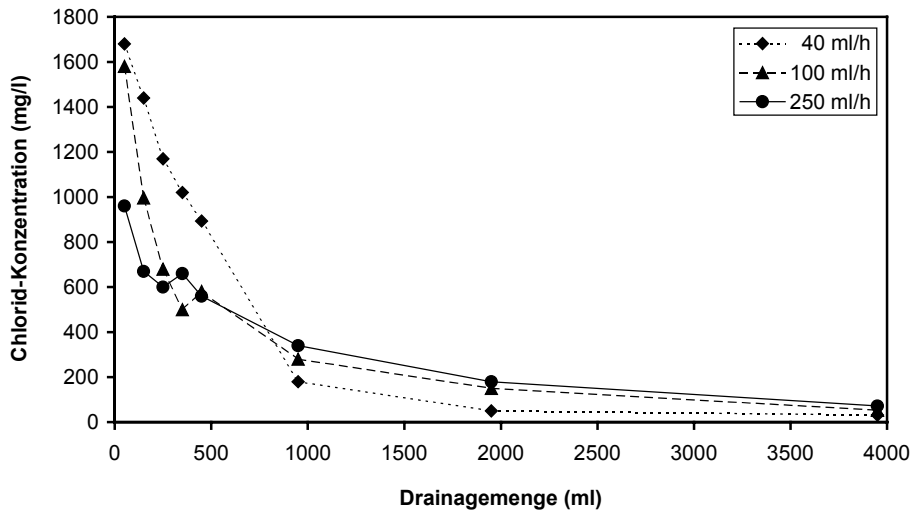


**Bild 1:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).

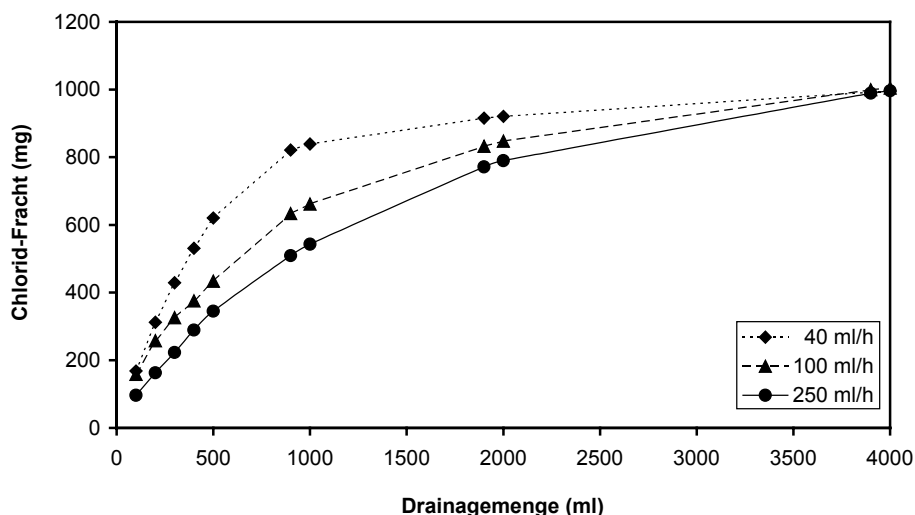


**Bild 2:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).

In Bild 4 ist zu erkennen, dass sich alle drei Kurven immer mehr annähern und sich letztendlich schneiden. Diese Tendenz zeichnet sich in Bild 2 auch für den CSB ab, während man diesen Fakt beim immobileren Zink nur erahnen kann (s. u.). Würde man die Beregnung über einen längeren Zeitraum fortsetzen, also mehr Wasser applizieren, käme es bei allen drei Parametern zum Zusammentreffen und schließlich zu einem Überschneiden der drei Kurven. Letztendlich würde mit der höchsten (gesättigten) Rate immer die meiste Stoffmen-



**Bild 3:** Verlauf der Chlorid-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).



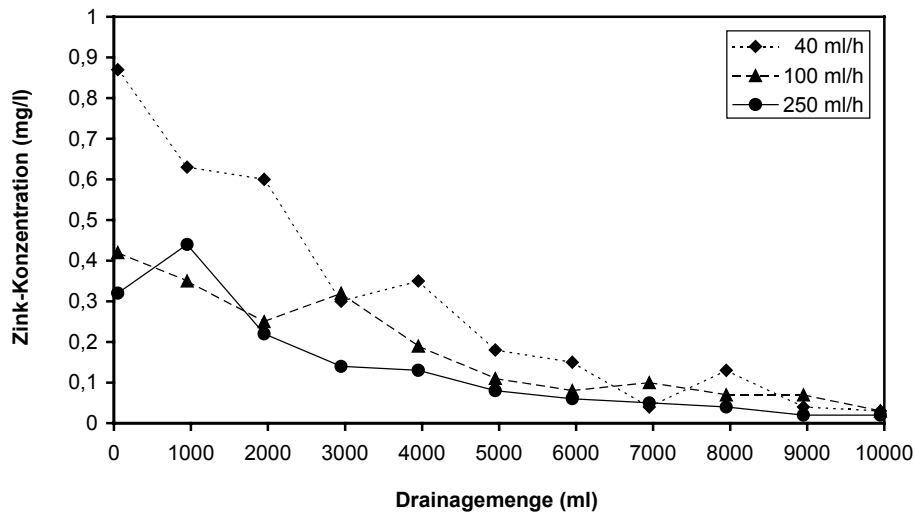
**Bild 4:** Verlauf der Chlorid-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).

ge ausgewaschen werden, weil dabei, im Gegensatz zu niedrigen Raten, der Inhalt nahezu aller Poren ausgewaschen werden würde. Das Erreichen dieses Endzustandes ist aber bei gezielter Auswaschung i. d. R. nicht das Ziel, weil dafür immense Wassermengen erforderlich wären.

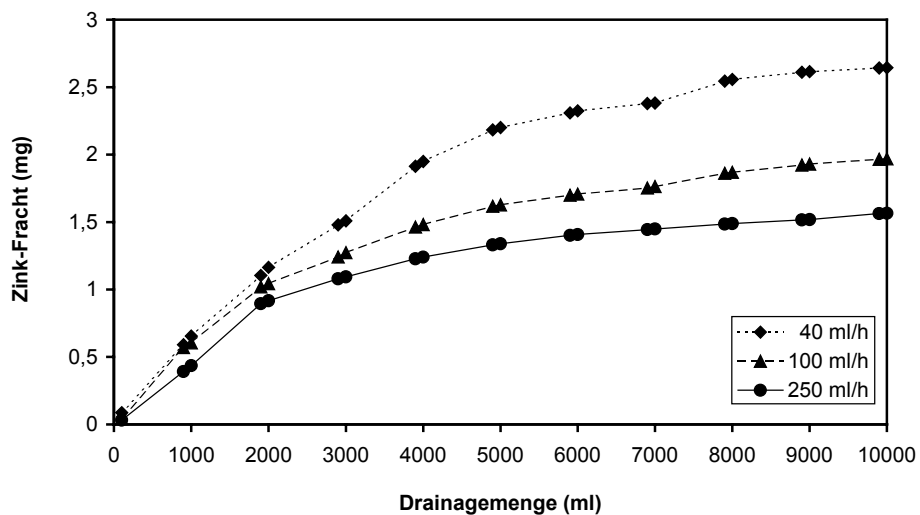
Bild 5 stellt den Konzentrationsverlauf für Zink bei allen drei Intensitäten dar. Die Konzentrationen verlaufen zwar grundsätzlich fallend, weisen aber bei allen Intensitäten zum Teil star-



ke „Holprigkeiten“ auf, die auf Hydrophobie aber auch auf das Auftreten von Zinkverbindungen unterschiedlicher Mobilität deuten. (Auf letzteres wird später näher eingegangen.) In allen Phasen der Auswaschung sind die Konzentrationen bei niedrigen Raten höher. Bild 6 zeigt den Verlauf der Gesamtfracht. Auch für Zink zeigt sich die höhere Auswaschungseffektivität bei geringerer Rate. Das sich beim CSB andeutende und bei Chlorid deutlich erkennbare Annähern der Frachten bei den verschiedenen Raten mit zunehmender Drainagemenge ist hier (noch) nicht zu sehen.



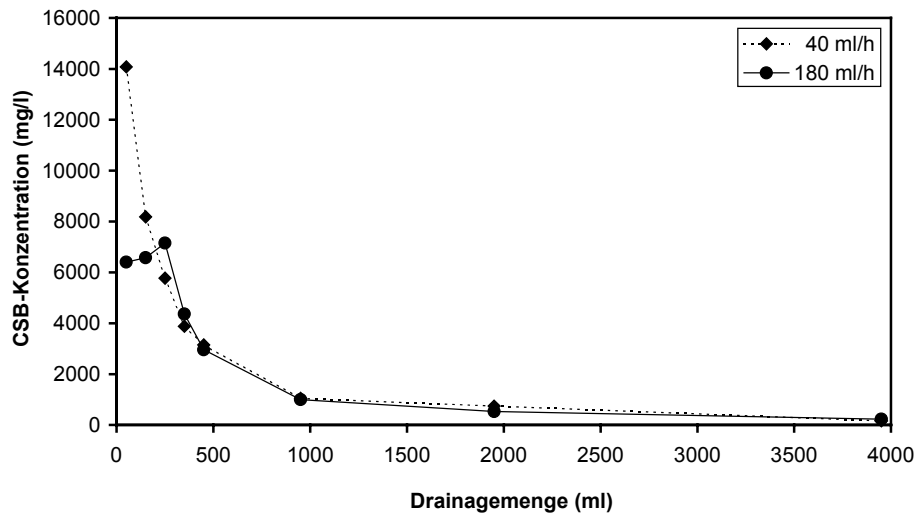
**Bild 5:** Verlauf der Zink-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).



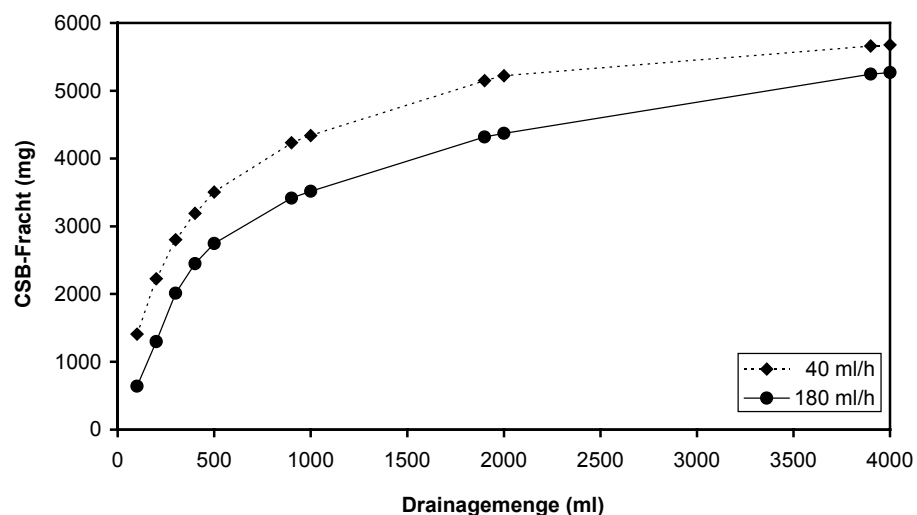
**Bild 6:** Verlauf der Zink-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von getrocknetem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40, 100 und 250 ml/h).

### 3.2 Sand-Kompost-Gemisch

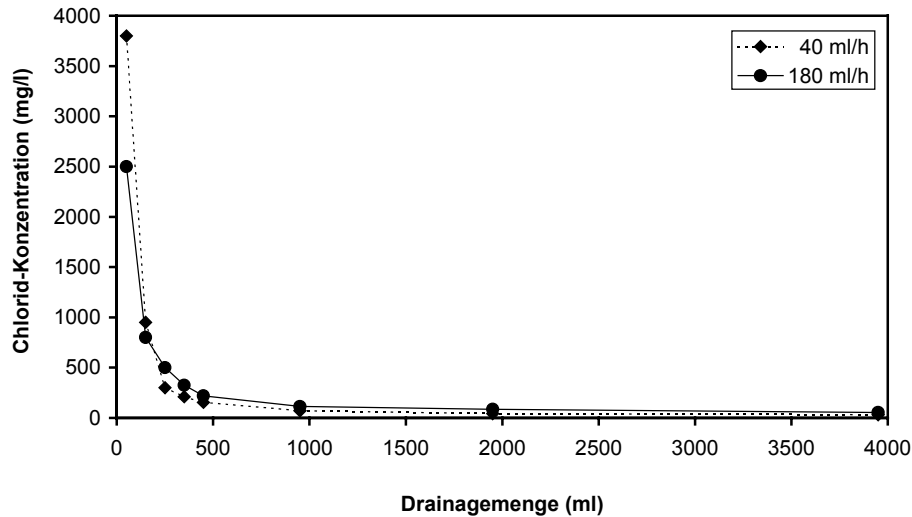
Bei Konzentrationsverlauf und Gesamtfracht sind sowohl für CSB (Bild 7 und 8) als auch für Chlorid (Bild 9 und 10) nicht so große Unterschiede zwischen den Intensitäten wie beim reinen Kompost zu erkennen (vgl. Bild 1 und 2 bzw. 3 und 4). Das liegt daran, dass die Stoffbeladung je Gramm Substrat insgesamt geringer ist, weil das Substrat ja nur zu 40%-Gew. aus Kompost besteht. In den Versuchen zeigte sich aber erneut, dass mit der geringen Intensität die höhere CSB- und Chloridfracht pro Drainagemenge ausgewaschen wird.



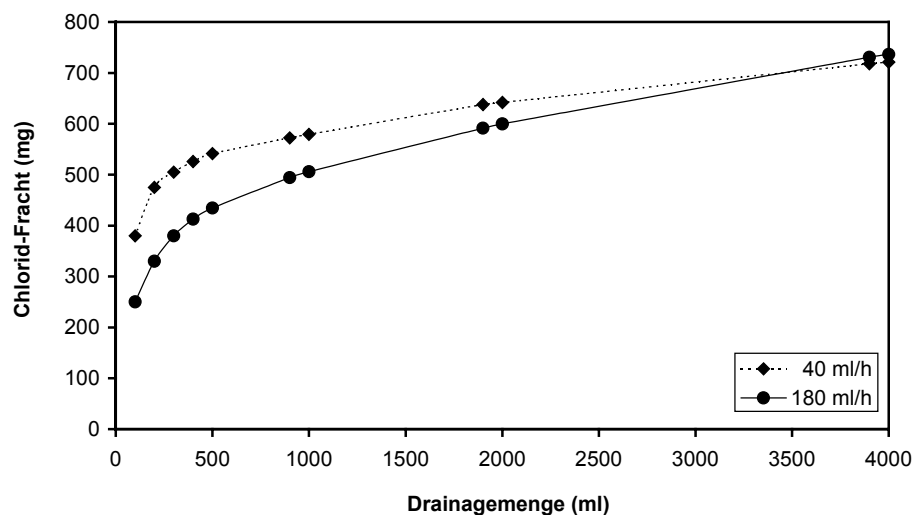
**Bild 7:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).



**Bild 8:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).



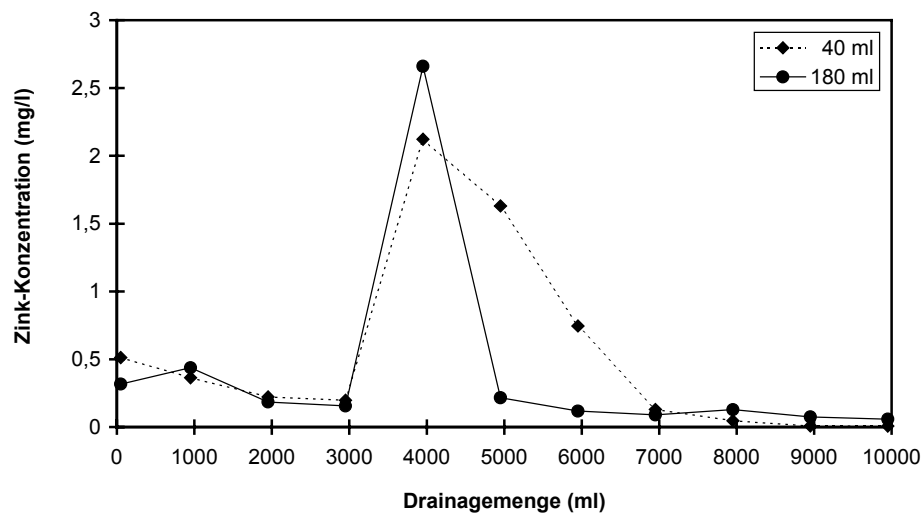
**Bild 9:** Verlauf der Chlorid-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).



**Bild 10:** Verlauf der Chlorid-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).

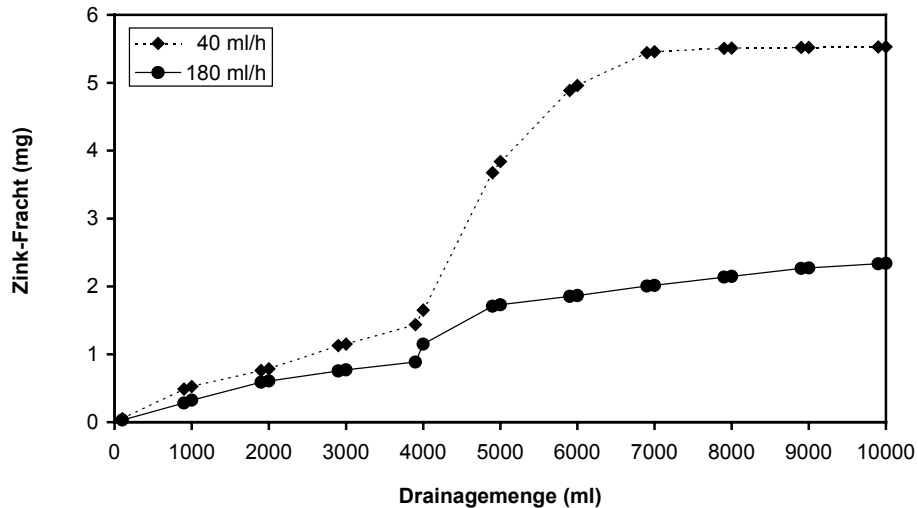
Bei den Sand-Kompost-Gemischen wurde selbst zu Beginn der Versuche kaum Hydrophobie beobachtet. Die Erklärung wird darin gesehen, dass durch die Mischung mit Sand die Oberfläche der Säulenfüllung nur zum Teil aus wasserabweisendem Kompost besteht. Die Anwesenheit von (nicht wasserabweisenden) Sandbestandteilen sorgt dafür, dass das Matrixpotential des Mediums (bedingt durch die Saugspannung der Poren) schon am Anfang der Beregnung die Fließbedingungen bestimmt und weniger die Hydrophobie.

Bei Zink ist kein harmonischer Verlauf der Konzentrationen erkennbar (Bild 11). Bei beiden Intensitäten kommt es erst nach etwa 4.000 ml zum Auftreten der Konzentrationsspitzen. Demzufolge steigt die Fracht bis dahin relativ langsam, ab dann kommt es zu plötzlich wieder zunehmenden Ertragszuwächsen (Bild 12). Diese Ereignisse treten bei beiden Raten nach der gleichen abgelaufenen Drainagemenge auf, was zeigt, dass es sich nicht um Messfehler oder Zufall handelt. Mit der kleineren Rate wird auch hier über den ganzen Verlauf effektiver ausgewaschen. Nach den angesprochenen „Knicken“ wird die höhere Effektivität der geringen Rate noch deutlicher.



**Bild 11:** Verlauf der Zink-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).

Warum es zu diesen ungewöhnlichen Konzentrations- und Frachtverläufen kommt, ist noch unklar. Denkbar wäre als Ursache neben den unterschiedlich mobilen Bindungsformen des Zinks auch die Länge der Säule. Während bei den 30 cm-Säulen der Versuche mit reinem Kompost mehrere relativ geringfügige Richtungswechsel des Verlaufs der Zinkkonzentrationen auftraten, kann davon ausgegangen werden, dass sich die unterschiedlichen und sich mit unterschiedlicher Fließgeschwindigkeit bewegendenden Konzentrationsspitzen innerhalb der wesentlich längeren Säule „einholen“ und kumulieren. Außerdem ist beim Auswaschen von Stoffen, die von der Matrix sorbiert werden, grundsätzlich mit einem verzögerten Auftreten der Konzentrationsspitze zu rechnen. Je größer die Sorption und damit der Retardationskoeffizient, desto später die Spitze, wobei hier „später“ im Sinne von mehr Drainagemenge gemeint ist. Mit Hilfe von Stofftransportmodellen sollte es möglich sein, diese Konzentrationsverläufe nachzuvollziehen, worauf hier jedoch nicht näher eingegangen wird.



**Bild 12:** Verlauf der Zink-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (40 und 180 ml/h).

Weiterhin war bei der letzten Versuchsreihe (Sand-Kompost-Gemisch/Zink) zu erkennen, dass sich nach sieben Litern Drainagemenge nicht nur die Konzentrationskurven ein letztes Mal überschritten (Bild 11) und danach die kleinere Rate geringer belastete Lösung brachte, sondern dass auch augenscheinlich deutlich klareres Wasser aus der entsprechenden Säule lief. Diese Beobachtung ist besonders im Hinblick auf die Einleitewerte für Gewässer von Belang. Nach den abgelaufenen zehn Litern war die letzte 100 ml-Mischungskonzentration mit 0,06 mg/l bei der höheren Rate rund acht mal so hoch wie die entsprechende Konzentration bei der geringen Rate (0,007 mg/l). Im weiteren Verlauf von Konzentration und Fracht und unter Berücksichtigung der vorher ermittelten auswaschbaren Gesamtzinkmenge ist bei der geringen Rate auch nicht mit einem nochmaligen deutlichen Anstieg der Konzentration zu rechnen, was bei der hohen Rate jedoch nicht auszuschließen ist. In Bild 12 ist folglich auch zu erkennen, dass die Gesamtfracht bei der höheren Rate am Ende des Versuchs im Gegensatz zur geringen Rate noch im Steigen begriffen ist. Es ist abzusehen, dass noch mehrere zehn Liter Wasser nötig wären, um mit der hohen Rate soviel Zink auszuwaschen, wie mit zehn Litern bei der kleinen Rate.

#### 4. Fazit

Insgesamt lässt sich also schlussfolgern, dass die am Anfang aufgestellten und für die Auswaschung von Salzen aus Mineralböden belegten Thesen (Hagenau und Borg, 2003a und 2003b) auch für die Auswaschung von organischen Verbindungen sowie Chlorid und Zink aus Komposten und einem Sand-Kompost-Gemisch und daraus abgeleitet für Hausmüll gelten, zumindest solange keine zu starke Hydrophobie auftritt. Für die Praxis ergibt sich

daraus, dass auch bei der Auslaugung von Müllkörpern nicht primär die Wassermenge bestimmt, wie viel Stoff ausgelaugt wird, sondern die Rate, mit der sie appliziert wird. Je kleiner die Rate, desto mehr Stoff kann mit einer bestimmten Wassermenge ausgelaugt werden. Folglich sind bei kleinen Applikationsraten die Stoffkonzentrationen im Sickerwasser höher als bei großen.

Die Thesen treffen jedoch nur zu, wenn der auszuwaschende Stoff proportional zur Wandfläche der Poren verteilt ist, was zwar nicht bei allen Kontaminationsherden der Fall ist, bei Müll aber durch das mehrmalige Bewegen und damit verbundene Durchmischen beim Sammeln, Transport und Einbau zu erwarten ist.

Wie oben bereits angedeutet, kann es in bestimmten Segmenten von Müllkörpern durch Austrocknung oder besonders hohe Rottetemperaturen zu so starker Hydrophobie kommen, dass die Infiltration von Wasser stark gehemmt oder gar verhindert wird. Auf diese Erscheinungen wird in Hagenau et al. (2005) eingegangen.

Ein weiteres Indiz für die Gültigkeit der höheren Auswaschungseffektivität geringer Applikationsraten war bei allen einzelnen Versuchen beobachtet worden, worauf hier am Ende eingegangen werden soll: Das Drainagewasser, welches nach Abstellen der Beregnung und damit nach der jeweils letzten regulären Probe noch ablief, wurde immer noch 24 Stunden gesammelt und dann beprobt. Es fiel, je nach vorheriger Rate, in unterschiedlichen Mengen an. Außer beim Chlorid, welches nahezu komplett ausgelaugt war, wiesen diese Proben teilweise wesentlich höhere Werte auf, als die letzten regulären Proben. Daraus lässt sich schließen, dass sich nach einer, in diesem Fall durch das Beregnungsende erzwungenen, Verringerung der Durchflussrate und der damit verbundenen Absenkung des Wassergehaltes und Verlegung des Fließgeschehens in kleinere Poren die Konzentrationen und damit die Fracht pro Wassermenge erhöhen.

Diese Erkenntnis könnte angewendet werden, indem bei Auslaugungen mit anfänglich hoher und dann gezielt reduzierter Rate gearbeitet wird. Damit würden zunächst auch die größeren Poren durchflossen und entfrachtet, was beim Vorgehen mit ausschließlich kleiner Rate nicht erfolgt. Durch mehrfaches Absenken der Beregnungsintensität würden dann schrittweise immer mehr die kleineren Poren durchflossen und somit die Effektivität der Auslaugung erhöht. Im Idealfall verläuft dann die Konzentrationskurve nicht degressiv fallend, wie in den hier gezeigten Beispielen, sondern durchgängig ansteigend. Ein ähnlicher Effekt wird erreicht, wenn mit einer relativ hohen Rate (bis hin zum Überstau) aber mit mehreren Unterbrechungen gearbeitet wird, so wie es bei den in der Einleitung zitierten Arbeiten der Fall war.

## Literatur

- AG Boden (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung, 4. Auflage. Schweizerbart, Stuttgart.
- Andreottola, G., P. Cannas (1992): Chemical and biological characteristics of landfill leachate. Pages 65-88 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Landfilling of waste: leachate. Elsevier Applied Science, London [u.a.].
- Arneth, J.-D., G. Milde, H. Kerndorff, R. Schleyer (1989): Waste deposit influences on groundwater quality as a tool for waste type and site selection for final storage quality. Pages 399-415 in: Baccini, P. (ed.): The landfill - reactor and final storage. Lecture Notes in Earth Sciences 20. Springer, Berlin [u.a.].
- Belevi, H., P. Baccini (1989): Water and element fluxes from sanitary landfills. Pages 391-397 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Sanitary landfilling: process, technology and environmental impact. Academic Press, London [u.a.].
- Bilitewski, B., G. Härdtle, K. Marek (1994): Abfallwirtschaft, 2. Auflage. Springer, Berlin [u.a.].
- Birecki, M., A. Kullmann, I. B. Revut, A. A. Rode (1967): Untersuchungsmethoden des Bodenstrukturzustandes. VEB Deutscher Landwirtschaftsverlag, Berlin.
- DIN 38409, Teil 41 (1980): Bestimmung des Chemischen Sauerstoffbedarfs (CSB) im Bereich über 15 mg/l. Beuth, Berlin.
- Emberger, J. (1993): Kompostierung und Vergärung. Vogel, Würzburg.
- Fehse, K.-U. (2004): Zur Sorption von Zink-Ionen an natürliche und technische Sorbentien unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses. Dissertation, Landwirtschaftliche Fakultät, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. Müll und Abfall 37, 148-153.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. Soil Sci. Soc. Am. J. 43, 1100-1106.
- Krümpelbeck, I. (1999): Untersuchungen zum langfristigen Verhalten von Siedlungsabfalldeponien. Dissertation, Fachbereich Bauingenieurwesen, Bergische Universität - Gesamthochschule Wuppertal.
- Krümpelbeck, I., H.-J. Ehrig (2001): Sickerwasser aus Hausmülldeponien - Menge und Zusammensetzung. In: Hösel, G., Schenkel, W., Schnurer, H. (Hrsg.): Müll-Handbuch, KZ4587. Schmidt, Berlin.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. J. Hydrol. 32, 203-218.
- Lohmann, S. (1999): Theoretische Grundlagen, Bauanleitung und Bedienung eines Regensimulators zur Realisierung unterschiedlicher Niederschlagsintensitäten für Säulenversuche. Unveröffentlichter Bericht, Institut für Agrartechnik und Landeskultur, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Luthin, J. N., J. W. Biggar (1962): Drainage-salinity investigations in the Five Points, Tranquillity Area, Fresno County, California. Report to the Bureau of Reclamation, United States Department of the Interior.

- Miller, R. J., J. W. Biggar, D. R. Nielsen (1965): Chloride displacement in Panoche clay loam in relation to water movement and distribution. *Water Resour. Res.* 1, 63-73.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15 - 19.24.
- Spillmann, P., H.-J. Collins (1986): Physikalische Untersuchungen zum Wasser- und Feststoffhaushalt. In: Spillmann, P. (Hrsg.): *Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkung auf Gewässer*. VCH, Weinheim [u.a.].
- Thome-Kozmiensky, K. J. (1995): *Biologische Abfallbehandlung*. EF-Verlag für Energie- und Umwelttechnik, Berlin.

Dieses Kapitel wurde in leicht veränderter Form veröffentlicht:

Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. *Müll und Abfall* 37, 82-90.



## V. Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern

### *Hydrophobia during leaching of organic compounds from simulated landfills*

#### **Zusammenfassung**

Kontaminationsquellen (z. B. Deponien) können durch gezielte Auswaschung bereinigt werden. In vorangegangenen Arbeiten wurde gezeigt, dass dabei nicht nur die applizierte Wassermenge bestimmt, wie viel Fracht ausgewaschen wird, sondern auch die Rate, mit der diese Menge appliziert wird. Mit geringeren Beregnungsraten wird mehr Fracht je Wassermenge ausgewaschen als mit höheren.

Bei Substraten mit einem hohen Anteil an organischer Substanz kann es jedoch durch das Auftreten starker Hydrophobie dazu kommen, dass die Infiltration gehemmt und damit die Auslaugung des Substrates behindert wird. Da mit größeren Beregnungsraten die Hydrophobie teilweise überwunden werden kann, wird mit diesen nun mehr Fracht je Wassermenge ausgewaschen. Bei hydrophoben Substraten ist bei hoher Beregnungsrate teilweise mit einem erhöhten Aufkommen von Schwebeteilchen im Sickerwasser zu rechnen.

Hydrophobie konnte zwar durch den Einsatz eines Tensides überwunden werden, die ausgewaschene Fracht wurde dadurch jedoch nicht gesteigert. Letzteres kann daran liegen, dass für diese Versuche nur noch schwach hydrophober Kompost zur Verfügung stand.

Weiterhin wurde gezeigt, dass die Hydrophobie vom Substrat ausgeht und nicht von den löslichen organischen Stoffen.

#### **Summary**

Polluted sites (e. g. landfills) can be cleaned up by controlled leaching. In previous studies it was shown that not only the amount of water used, but also the rate it is applied at determine the mass of solute leached. With lower application rates more solutes are removed per unit amount of water than with higher ones.

However, in substrates with a high organic matter content strong hydrophobia may occur, which hinders infiltration and, thus, leaching. Because hydrophobia can be partially overcome by higher application rates, they now yield a bigger solute load for a given amount of water than lower rates.

In hydrophobic substrates an increased amount of suspended solids may occur in the seepage water in some cases, if high application rates are used.

Hydrophobia can be overcome by employing a tenside. In our experiments this did not increase the solute load, though. This may be due to the fact that only weakly hydrophobic compost was available for our trials.

Furthermore it was demonstrated that hydrophobia arises from the organic matrix and not from soluble organic compounds.

## **1. Einleitung**

In einer vorangegangenen Arbeit haben Hagenau et al. (2005) beschrieben, wie Kontaminationsquellen, z. B. Deponien oder kontaminierte Böden, durch gezielte Auswaschung von Schadstoffen entfrachtet werden können. Dabei ist die Stoffauswaschung nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängig. Dieses Erkenntnis wurde schon vor Jahrzehnten bei Versuchen zur Entsalzung von Mineralböden gewonnen und von Hagenau und Borg (2003a und 2003b) experimentell bestätigt und formal begründet. Daraus wurden folgende Thesen abgeleitet, deren Gültigkeit in der anfangs zitierten Arbeit durch Säulenversuche auch für die Auswaschung von Stoffen aus Kompost und, stellvertretend für Hausmüll, einem Sand-Kompost-Gemisch belegt wurde:

- Auslaugbare Stoffmengen befinden sich überwiegend in den kleineren Poren.
- Bei konstanter Applikationsrate sinkt die Stoffkonzentration im Drainagewasser im Verlauf des Auswaschungsereignisses und die Gesamtfracht nimmt somit nur degressiv zu.
- Mit geringen Raten werden bei gleicher Wassermenge mehr Stoffe ausgewaschen als mit höheren.

Für die Versuche von Hagenau et al. (2005) wurde immer Fertigkompost aus dem Kompostwerk der Stadtwirtschaft Halle verwendet. Eine Charge konnte aber jeweils nur für eine begrenzte Zeit verwendet werden, da sich durch fortschreitenden Abbau der organischen Substanz die Eigenschaften des Kompostes verändern, insbesondere der CSB. Daher wurde mit verschiedenen Chargen gearbeitet, die im Abstand von einigen Wochen zu unterschiedlichen Zeiten aus dem Kompostwerk geholt wurden.

In der ersten Charge, die für die Versuche beschafft und im Labor bei 40°C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet worden war, trat sehr starke Hydrophobie auf. Das führte dazu, dass die Gesetze der Infiltration und der Wasserbewegung durch poröse Medien mehr oder weniger außer Kraft gesetzt wurden und somit die zweite und dritte These ihre Gültigkeit verloren. Bei einem Versuch mit hoher Beregnungsrate und daraus folgender Wassersättigung wurden aus einem mit hydrophobem Kompost hergestellten Gemisch mit Sand außerdem große Mengen an Schwebeteilchen ausgespült. Bei analogen Versuchen nur mit hydro-

phobem Kompost war das erstaunlicherweise nicht der Fall, ebenso wenig wie mit geringeren Berechnungsraten bei beiden Substraten.

Dass in der ersten Charge die Hydrophobie so ausgeprägt war, könnte daran liegen, dass sie während des sehr heißen Sommers 2003 entstand. Hydrophobie kann als Folge von hohen Temperaturen während der Rotte und der damit verbundenen Austrocknung der organischen Substanz entstehen. Solange das Substrat noch einen ausreichenden Wassergehalt aufweist, wird seine Benetzung und damit die Infiltration und Bewegung von Wasser nicht wesentlich gehemmt. Mit zunehmender Trocknung wird die Hydrophobie jedoch stärker und zeigt sich dann bei der Wiederbenässung des trockenen Substrates. Bei allen später verwendeten Kompost-Chargen trat keine so starke Hydrophobie mehr auf, selbst wenn sie bei 80°C getrocknet worden waren. Eine gewisse Hydrophobie war zwar in den meisten Fällen zu beobachten, wirkte sich aber nicht auf die Gültigkeit der o. g. Thesen aus.

Es ist auch möglich, dass die erste Charge lediglich aus einem ungewöhnlichen Ausgangsmaterial entstand. Mit einem Wassergehalt von 13,4 %-Vol. bei Abholung war sie zwar die trockenste aller beschafften Chargen, aber einige andere hatten auch nur wenig höhere Wassergehalte ohne deshalb stark hydrophob zu sein.

Das Auftreten der starken Hydrophobie in unseren Versuchen war unbeabsichtigt und unerwartet. Es weist aber darauf hin, dass sie zumindest in Teilbereichen von Deponiekörpern nicht völlig auszuschließen ist. Auch wenn davon nur mehrere Zentimeter mächtige Schichten betroffen sein sollten, kann es dort zu einer Veränderung des Wasserflusses mit entsprechenden Konsequenzen für die Stoffauswaschung kommen, z. B. zu weniger Infiltration und demzufolge mehr Oberflächenabfluss oder zu veränderten Fließwegen im Deponiekörper. (Davon wären auch darunterliegende Schichten betroffen, selbst wenn diese an sich nicht wasserabweisend sind.) Deshalb sollen hier die in unseren Versuchen beobachteten Auswirkungen der Hydrophobie auf die Auswaschung von Stoffen aus Kompost und Sand-Kompost-Gemischen dargelegt werden.

Aus den Beobachtungen ergaben sich einige Fragen, denen wir dann in gezielten Versuchen nachgegangen sind, die hier ebenfalls vorgestellt werden. Hydrophobie kann durch Senkung der Oberflächenspannung des Wassers überwunden werden. Das kann durch den Zusatz bestimmter Chemikalien, z. B. eines Tensides, erfolgen. Wir haben den Einfluss eines Tensides auf die Hydrophobie in Kompost untersucht. In weiteren Experimenten wurde geprüft, ob Hydrophobie von der organischen Matrix oder von den löslichen organischen Stoffen ausgeht.

## **2. Material und Methoden**

Der Aufbau der hier vorgestellten Versuche entspricht im Wesentlichen dem in Hagenau et al. (2005) und wurde dort ausführlich beschrieben. Deshalb wird hier nur eine Kurzfassung wiedergegeben und dabei speziell auf Besonderheiten gegenüber den Versuchen in der o. g. Arbeit eingegangen.

### **2.1 Wasserzufuhr; Säulen, Substrat und Probenahme; CSB-Bestimmung**

Die Wasserzufuhr erfolgte mit Hilfe einer an unserem Institut entwickelten Beregnungsapparatur, die schon in den bisherigen Versuchen (Hagenau und Borg, 2003a; Hagenau et al., 2005) Verwendung fand.

Alle Versuche wurden im Labor mit Säulen aus Glas oder PE-Rohr durchgeführt, mit dem gleichen Versuchsaufbau wie bei Hagenau et al. (2005). Es wurde wiederum mit Säulen verschiedener Länge (20 cm, 30 cm und 70 cm) und Durchmesser (7 cm, 5 cm und 4,6 cm) gearbeitet, auf die bei der Beschreibung der einzelnen Versuche noch eingegangen wird.

Als Substrat diente zunächst Fertigkompost des gleichen Herstellers und Herstellungsverfahrens wie bei Hagenau et al. (2005), der hier durch Trocknen bei 40°C und anschließendes Sieben vorbereitet worden war.

Die Erfassung des Sickerwassers sowie die Bestimmung des CSB (Küvettestests mit dem Spektralphotometer CADAS 100; Dr. Bruno Lange GmbH & Co. KG, Düsseldorf, Deutschland) erfolgten unter den gleichen Maßgaben wie bei Hagenau et al. (2005).

### **2.2 Spezielle Versuchsdurchführung**

#### **2.2.1 Versuche mit hydrophobem Kompost**

Sowohl beim Ausgangsmaterial als auch beim getrockneten und gesiebten Substrat gab es hinsichtlich Trockenrohichte, Porosität, Teilchendichte sowie der Anteile von Siebdurchgang und Siebrückstand keine nennenswerten Unterschiede zu den in Hagenau et al. (2005) benutzten Chargen.

Der im trockenen Zustand gesiebte hydrophobe Kompost wurde in 20 cm lange Säulen mit einem Durchmesser von 7 cm eingebaut. Der Einbau erfolgte in fünf Lagen; durch leichtes Aufstauchen auf den Boden wurde der Kompost auf ca. 0,6 g/cm<sup>3</sup> verdichtet. Bei einer Befüllung der Säulen bis auf 19 cm Höhe wurden 460 g Kompost je Säule eingebaut. Der auslaugbare CSB lag zwischen 18.000 und 20.000 mg pro kg, pro Säule also zwischen 8.300 und 9.200 mg. Es wurde wie bei den späteren Versuchen (Hagenau et al., 2005) so lange beregnet, bis die Drainagemenge 4.000 ml (1.000 mm) betrug.

Die drei Intensitäten, mit denen berechnet wurde, waren hier 450 (nahe der gesättigten Wasserleitfähigkeit), 200 und 100 ml/h; beim vorliegenden Säulenquerschnitt sind das 117, 52 und 26 mm/h. Die Raten in mm/h sind damit in etwa genauso groß, wie die beim nicht hydrophoben Kompost in Hagenau et al. (2005).

Weil die Experimente mit der ersten Kompost-Charge als Vorversuche für die späteren Auswaschungsversuche angelegt worden waren, wurden Chlorid und Zink noch nicht betrachtet. Außerdem erfolgte noch keine Erfassung der CSB-Konzentration mit gleichen Probenmengen. Da die Konzentration im Sickerwasser anfangs steil abfällt und sich im weiteren Verlauf aber nicht mehr sehr verringert, wurde zunächst mit einem relativ geringen Probenvolumen von 25 ml (= 6,5 mm) begonnen. Nachdem die Mischungskonzentration deutlich gesunken war und sich nur noch geringfügig änderte, wurden die Probegrößen dann auf maximal 1.000 ml (= 260 mm) ausgedehnt. Dies erlaubt zwar nur eine ungefähre Darstellung des Konzentrationsverlaufes, der kumulative Frachtverlauf kann aber auf diese Weise richtig gezeigt werden.

### **2.2.2 Versuche mit einem Gemisch aus Sand und hydrophobem Kompost**

Als Substrat diente ein Gemisch mit 90 %-Gew. des in Hagenau et al. (2005) benutzten schwach lehmigen Sandes und 10 %-Gew. des getrockneten hydrophoben Komposts. Der geringe Kompostanteil wurde mit der Absicht gewählt, dass bei diesem Gemisch das Infiltrationsverhalten vom nicht hydrophoben Sand bestimmt und somit die Hydrophobie der organischen Substanz überwunden wird.

Wegen des höheren Lufteintrittspotentials musste mit längeren Säulen als bei reinem Kompost gearbeitet werden. Es wurden Säulen von 70 cm Länge und einem Durchmesser von 4,6 cm (Querschnittsfläche 16,6 cm<sup>2</sup>) in etwa zehn Lagen befüllt und wiederum durch Aufstauchen verdichtet. Es wurden jeweils 1.500 g des trockenen Gemischs verwendet. Bei dem o. g. Durchmesser und der beim Einbau erzielten Dichte reichte diese Substratmenge in der Säule bis in 67 cm Höhe. Darin waren dann 150 g trockener Kompost und damit etwa 2.700 mg auslaugbarer CSB enthalten.

Als höchste Beregnungsrate wurden 100 ml/h (60 mm/h) eingestellt, da bei dieser Rate bereits ein geringer Überstau als Zeichen der Sättigung auftrat. Die kleinere bei diesem Gemisch betrachtete Beregnungsrate betrug 15 ml/h (9 mm/h).

Um den Einfluss von in ersten Testläufen aufgetretenen Schwebeteilchen auf die CSB-Fracht zu untersuchen, wurde der CSB der ausgetretenen Lösung zunächst im unfiltrierten und dann im filtrierten Zustand (Filter Sorte 4b, FILTRAK GmbH, Niederschlag, Deutschland) gemessen. Die Probegrößen betragen zu Beginn der Auswaschung 200 ml und wurden am Ende auf 500 ml ausgedehnt.

### **2.2.3 Versuche mit einem Tensid zur Überwindung der Hydrophobie im Kompost**

Zum Zeitpunkt dieser Versuchsreihe war kein stark hydrophober Kompost mehr vorhanden und aus dem verfügbaren Kompost selbst durch Tocknung bei hohen Temperaturen nicht herzustellen. Daher konnte nur mit schwach hydrophobem Kompost gearbeitet werden, der sich bezüglich seines Auslaugungsverhaltens gemäß der o. g. Thesen verhielt. Das ist bei den Ergebnissen dieser Versuche zu berücksichtigen.

Hydrophobie kann durch Senkung der Oberflächenspannung des Wassers überwunden werden. Dabei sollten Chemikalien (Additive) zum Einsatz kommen, die selbst keine Schadstoffe sind und erwünschte Prozesse wie z. B. Stoffabbau nicht negativ beeinflussen. Die angestrebte Wirkung muss schon bei geringen Konzentrationen eintreten, denn die Verwendung eines Additivs stellt einen Stoffeintrag dar, der unter Umständen zu einem erhöhten Aufwand bei der Sickerwasserreinigung führen kann. Erprobte Additive sind u. a. Tenside (Cuypers et al., 2002; Sobisch et al., 2000) sowie Aceton und Äthanol (Lee et al., 2001).

Für die Versuchsreihe hier wurde ein Tensid in Form eines handelsüblichen Spülmittels verwendet („fit“, fit-GmbH, Hirschfelde, Deutschland), das gut abbaubar ist und schon in geringen Konzentrationen wirkt. Auch Thomanetz (2004) benutzte ein handelsübliches Spülmittel, um die Wasserbenetzung von Pyrolyseabfällen zu verbessern. Mit Hilfe eines einfachen Versuches zum kapillaren Aufstieg wurde zuvor festgestellt, dass sich die Oberflächenspannung bei einer Lösung mit 1 ml fit pro 1 l Wasser gegenüber reinem Wasser auf die Hälfte reduziert. Die Benetzungshemmung des getrockneten Kompostes war bei Anwendung der Lösung um ein Vielfaches geringer als ohne fit-Zusatz.

Es wurden 30 cm lange Glassäulen mit einem Innendurchmesser von 4,6 cm mit 400 g des trockenen hydrophoben Kompostes befüllt. Die Befüllung und auch die Beprobung erfolgten analog zu den Versuchen in Hagenau et al. (2005). Die Beregnungsintensitäten lagen hier bei 250 und 50 ml/h (125 und 15 mm/h). Es wurde je einmal mit destilliertem Wasser und je einmal mit einer fit-Lösung der o. g. Konzentration beregnet.

Zur Bestimmung der CSB-Konzentration wurden bei diesen Versuchen immer 100 ml Proben herangezogen. Nach den ersten 5 Proben, also insgesamt 500 ml Drainage, wurden weitere Proben dafür erst wieder zwischen 900 und 1.000, 1.900 und 2.000 sowie 3.900 und 4.000 ml Durchfluss genommen. Die dazwischenliegenden Drainagemengen wurden aber ebenfalls gesammelt und zur Berechnung der Fracht analysiert.

#### **2.2.4 Versuche mit Sand, der mit organischen Verbindungen aus hydrophobem Kompost versetzt wurde**

Mit diesen Versuchen sollte geprüft werden, ob Hydrophobie auf die organische Matrix oder auf die löslichen organischen Stoffe zurückzuführen ist.

Zunächst wurden 2 kg lufttrockener hydrophober Kompost aus der ersten Charge mit fünf Liter 30 °C warmem Wasser vermengt und 12 Stunden stehen lassen. Anschließend wurde dieser Sud gesiebt und filtriert. Es ergab sich eine tiefschwarze aber relativ schwebstofffreie Lösung mit einem hohen CSB. Der schon in früheren Experimenten verwendete schwach lehmige Sand wurde in einer flachen Schale bis zur Sättigung mit dieser Lösung versetzt und unter gelegentlichem Rühren über mehrere Tage bei 30 °C getrocknet. Auf diese Weise war schon in Hagenau und Borg (2003a) Sand mit Chlorid versetzt und damit eine Verteilung der Stoffe proportional zur Oberfläche der Sandpartikel erreicht worden, die sich später in der Säule als Stoffverteilung proportional zur Porenoberfläche niederschlägt. (Bei Kompost und damit hergestellten Gemischen mit Sand ist dies durch das Material gegeben.) Ohne oder bei nur schwacher Hydrophobie müsste nun die Auswaschung der organischen Verbindung bei geringen Beregnungsraten effektiver verlaufen, wie theoretisch in Hagenau und Borg (2003b) begründet und experimentell in Hagenau und Borg (2003a) und Hagenau et al. (2005) nachgewiesen.

Für die Versuche hier wurden wiederum Säulen von 7 cm Durchmesser verwendet, diesmal mit einer Länge von 30 cm. Vor jedem Versuch wurden die Säulen mit 1.800 g des trockenen Sandes bis in 28 cm Höhe gefüllt. Das geschah in jeweils sechs Lagen, wobei zwischendurch mittels Aufstauchen verdichtet wurde (auf 1,7 g/cm<sup>3</sup>).

Mit einem Schüttelversuch über 12 Stunden waren aus dem Inhalt einer Säule 500 mg CSB herausgelöst worden. Der versetzte Sand wurde mit drei unterschiedlichen Intensitäten (300, 80 und 20 ml/h, also 78, 20 und 5 mm/h) beregnet, wobei sich diesmal bereits bei spätestens 1.600 ml (400 mm) Drainagemenge nur noch geringfügige Konzentrationsänderungen zeigten. Nach dieser Wassermenge lagen die ausgelaugten CSB-Frachten zwischen 250 und 300 mg und die Versuche wurden wegen des nur noch sehr geringen Ertragszuwachses bei der Fracht beendet. Die Beprobung erfolgte anfangs alle 100 ml, später wurde sie auf maximal 400 ml ausgedehnt. Auf die Entnahme von Proben nach gleichen Durchflussmengen wurde hier verzichtet, da es bei dieser Versuchsserie hauptsächlich um die Darstellung der Frachten ging.

### **3. Ergebnisse**

#### **3.1 Hydrophober Kompost**

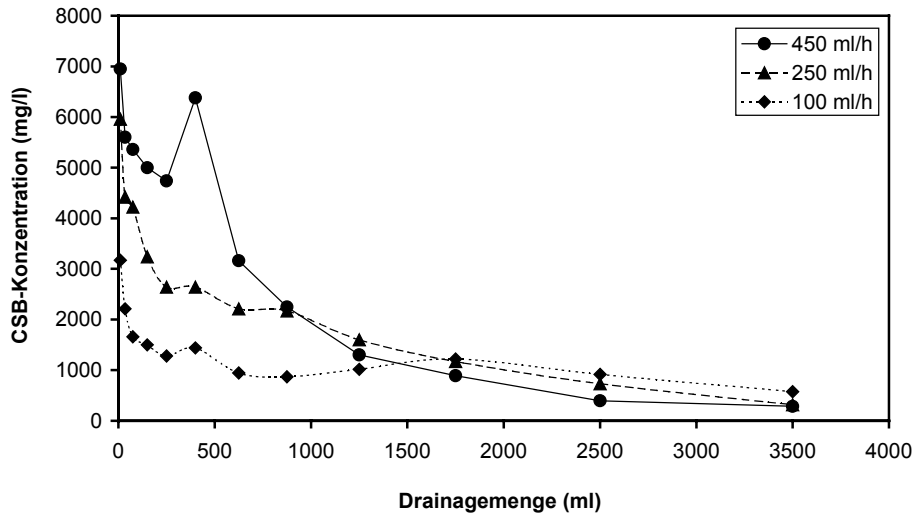
Bild 1 zeigt die Konzentrationsverläufe für die drei Intensitäten, Bild 2 die entsprechenden kumulativen Frachten. Grundsätzlich verlaufen die Konzentrationen zwar degressiv fallend und die Frachten entsprechend steigend, aber an den holprigen Konzentrationskurven kann man erkennen, dass keine gleichförmige Auslaugung wie bei nicht hydrophobem Kompost stattfindet (vgl. Hagenau et al., 2005). Außerdem ist hier die Wirkung der Applikationsrate genau andersherum als bisher beobachtet und erwartet: Mit der höchsten Rate werden nun die meisten organischen Stoffe ausgewaschen, mit der geringsten die wenigsten. Die Ursache dafür zeigte sich, als nach den Versuchen das Substrat aus den Säulen entfernt wurde. Nur bei der größten Rate war der gesamte Kompost durchfeuchtet. Bei der mittleren und besonders bei der kleinsten Rate war zu sehen, dass das Wasser nur an einigen Stellen die Säule durchflossen hatte (man könnte von bevorzugten Fließwegen sprechen) und große Teile des Substrates völlig trocken geblieben waren. Dies ist mit Hydrophobie des Kompostes zu erklären, die schon durch das Auftreten von Wasserblasen an der Substratoberfläche bei der Infiltration offensichtlich wurde. Sie war bei diesem Substrat so stark, dass die Gesetzmäßigkeiten der Infiltration und der Wasserbewegung in porösen Medien nicht mehr zutrafen. Für stark hydrophoben Kompost gilt der Grundsatz der größeren Auswaschungseffektivität bei geringeren Beregnungsraten also nicht, so dass die zweite und dritte der o. g. Thesen ihre Gültigkeit verlieren. Die Erklärung für die hier größere Effektivität der höheren Rate wird darin gesehen, dass damit ein höherer Wassergehalt verbunden ist, der zu einer Verringerung der Hydrophobie führt.

Wie oben bereits angedeutet, trat bei allen später erhältlichen Kompost-Chargen keine so starke Hydrophobie mehr auf und war auch durch Trocknen bei hohen Temperaturen nicht zu erzeugen. Die eben vorgestellten Ergebnisse konnten daher von uns nicht reproduziert werden. Mit allen anderen Kompostmaterialien wurde selbst bei augenscheinlich vorhandener (aber schwächerer) Hydrophobie mit geringeren Raten immer effektiver ausgelaugt als mit hohen.

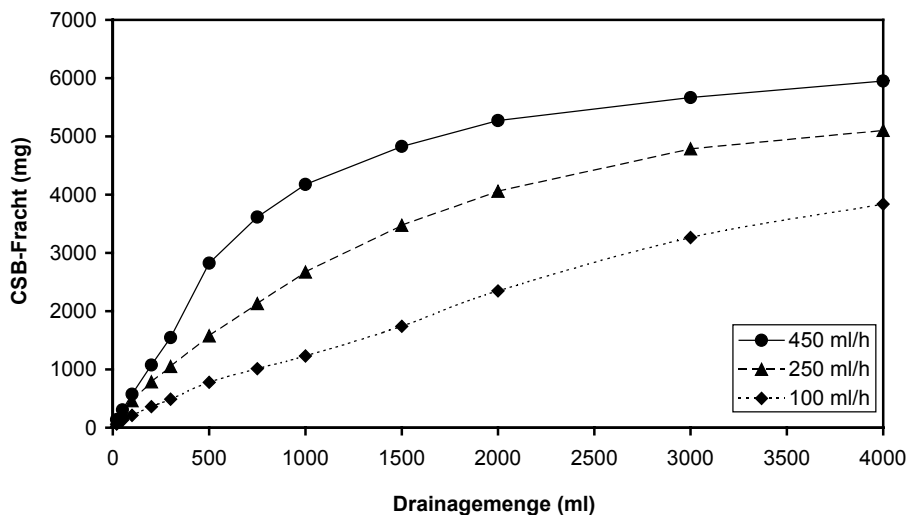
#### **3.2 Gemisch aus Sand und hydrophobem Kompost**

Die Konzentrationsverläufe (Bild 3) sind hier gleichmäßiger und ähneln denen von nicht hydrophobem Kompost (Hagenau et al., 2005). Das liegt vermutlich daran, dass bei dem verwendeten Mischungsverhältnis von 90 %-Gew. nicht hydrophobem Sand und 10 %-Gew. hydrophobem Kompost die Fließbedingungen weitestgehend vom Sand bestimmt werden, was sich nach Abschluss der Versuche darin zeigte, dass die Säulen bei beiden Raten



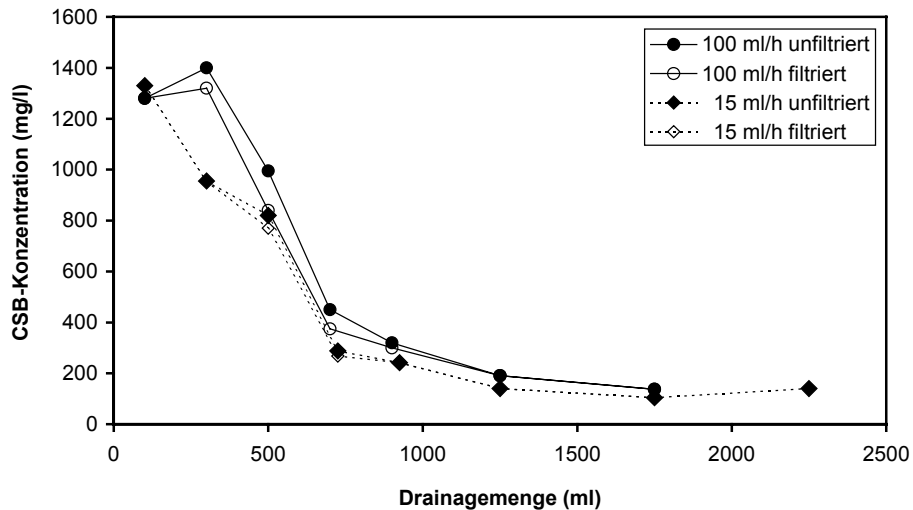


**Bild 1:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von hydrophobem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (450, 250 und 100 ml/h).

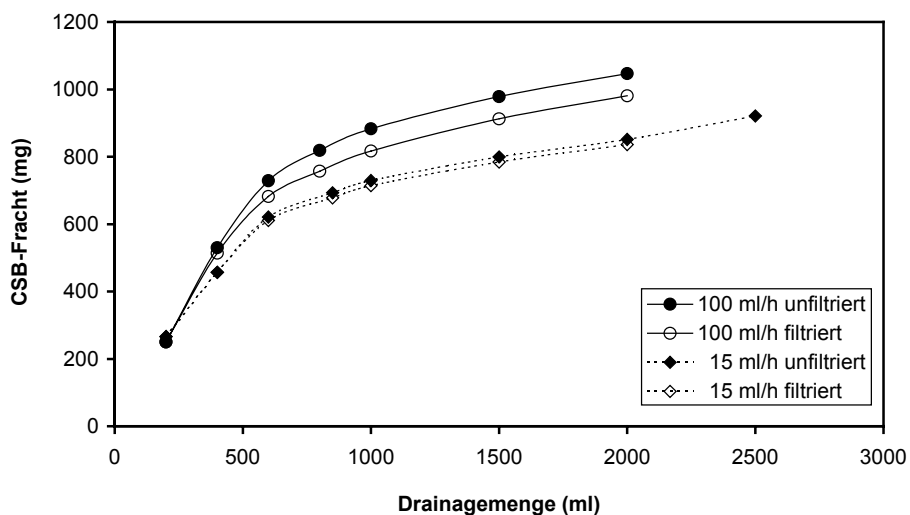


**Bild 2:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von hydrophobem Kompost mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (450, 250 und 100 ml/h).

gleichmäßig durchfeuchtet waren. Die starke Hydrophobie des eingesetzten Kompostes verhinderte aber, dass er vollständig benetzt wurde. Eine höhere Beregnungsrate und ein damit verbundener höherer Wassergehalt fördern jedoch die Benetzung und somit die Überwindung der Hydrophobie, so dass, wie beim hydrophoben Kompost, mit der hohen Intensität mehr CSB-Fracht pro Drainagemenge ausgewaschen wurde (Bild 4).



**Bild 3:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von hydrophobem Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (100 und 15 ml/h, unfiltriert und filtriert).



**Bild 4:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von hydrophobem Sand-Kompost-Gemisch mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (100 und 15 ml/h, unfiltriert und filtriert).

Bild 3 und 4 zeigen die Konzentrations- und Frachtverläufe für beide Raten jeweils filtriert und unfiltriert. Bei der hohen Rate ist ein deutlicher Unterschied zwischen beiden Varianten zu erkennen, bei der geringen Rate ist er unwesentlich. Auch mit Filtration werden bei der hohen Applikationsrate mehr Stoffe ausgewaschen als bei der kleinen. Um aus dem mit niedriger Rate beregneten Substrat weitere Schwebeteilchen herauszuspülen, wurde am Ende dieses Versuches die Intensität auf den annähernd gesättigten Wert von rund 100 ml/h erhöht. Wie in Bild 3 zu sehen ist, erhöht sich die CSB-Konzentration noch einmal, wenn

auch nur unwesentlich. Das ist mit der o. g. Überwindung der Hydrophobie zu erklären. Zu der erwarteten Erhöhung des Partikelauflommens kam es jedoch nicht.

In feuchtem Kompost werden in der Regel mehrere kleinere Partikel durch Wassermenisken in größeren Aggregaten zusammengehalten. Durch starkes Austrocknen zerfallen sie wieder, so dass der Anteil der kleinen (und dann wahrscheinlich oft hydrophoben) Partikel im Substrat zunimmt und es bei dessen Durchsickerung zum vermehrten Auftreten von Schwebeteilchen kommen kann. Das ist vor allem bei hohen Fließgeschwindigkeiten zu erwarten, weil dann auch große Poren durchströmt werden, die für Schwebeteilchen leichter passierbar sind. Weiterhin ist dann die Zeit, um Partikel aus der Säule auszuspülen unter Umständen kürzer als die Zeit, die nötig wäre, um die hydrophoben Partikel wieder zu befeuchten und Aggregate zu bilden. Bei niedrigen Beregnungsraten und den resultierenden geringen Fließgeschwindigkeiten bleibt mehr Zeit zum Befeuchten der Partikel und zur Aggregatbildung, so dass eine spätere Erhöhung der Rate nicht unbedingt zur Erhöhung des Schwebstoffaufkommens führt.

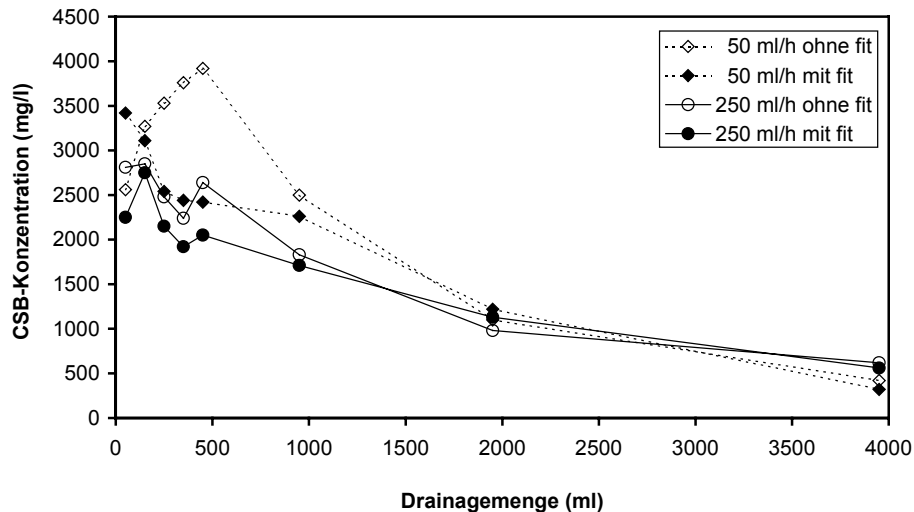
Das ist eine mögliche Erklärung für unsere Beobachtungen beim Sand-Kompost-Gemisch. Warum bei der Auslaugung von reinem hydrophoben Kompost keine Schwebeteilchen auftraten, vor allem nicht bei der höchsten Beregnungsrate, ist unklar. Da selbst bei ihr keine Schwebeteilchen auftraten, wurden die mittlere und niedrige Rate am Ende des Versuchs nicht erhöht, um weitere Teilchen auszuspülen.

### **3.3 Einsatz eines Tensides zur Überwindung der Hydrophobie**

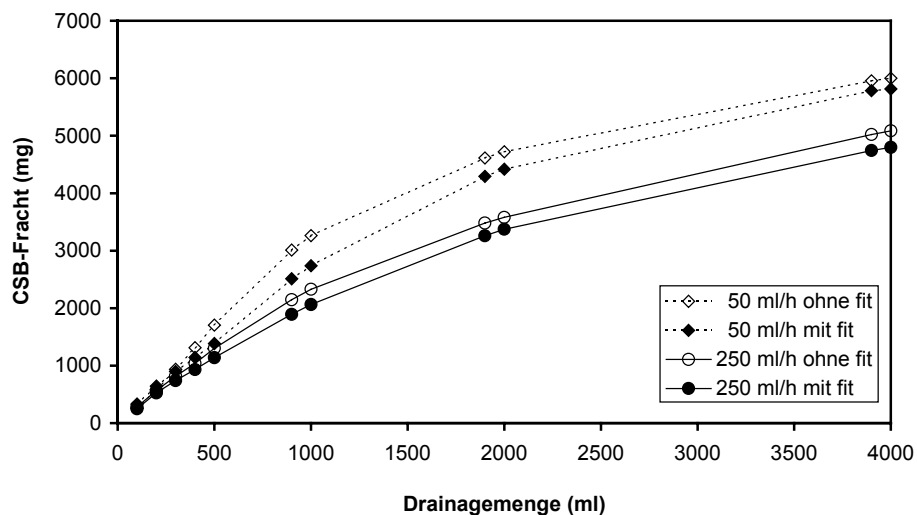
Wie bereits erwähnt, stand uns in dieser Phase der Versuche kein stark hydrophober Kompost mehr zur Verfügung und konnte auch nicht hergestellt werden.

Bei der Ermittlung des auslaugbaren CSB durch zwölfstündiges Schütteln ergaben sich keine Unterschiede zugunsten der fit-Lösung. Hier war die Ausbeute nach Abzug des Eigen-CSB der Lösung (rund 300 mg/l) nicht höher als bei der Variante mit destilliertem Wasser. Denkbar wäre hier jedoch, dass allein durch das Schütteln schon eine sehr gute Benetzung der Matrix erwirkt wurde und so die Wirkung des Tensides nicht ins Gewicht fiel.

Bei den Säulenversuchen mit dem hier verwendeten Substrat wurde auch ohne Additivzusatz wieder die in Hagenau et al. (2005) gezeigte höhere Auswaschungseffektivität geringerer Raten beobachtet (Bild 5 und 6). Bei beiden Intensitäten fand eine komplette Durchfeuchtung mit und ohne fit statt. Obwohl die sichtbare Hydrophobie durch den fit-Zusatz stark reduziert wurde, was am ungehemmten Eindringen der Lösung in das Substrat er-



**Bild 5:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Kompost mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (250 und 50 ml/h, jeweils ohne und mit Spülmittel fit).



**Bild 6:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von Kompost mit zwei verschiedenen Beregnungsintensitäten (250 und 50 ml/h, jeweils ohne und mit Spülmittel fit).

kennbar war, wurde bei beiden Raten mit der fit-Lösung sogar etwas weniger CSB ausgewaschen als mit Wasser. Außerdem kam es auch bei den fit-Varianten zu unregelmäßigen und holprigen Konzentrationsverläufen (Bild 5).

Folgende Erklärungen erscheinen als möglich für die nicht feststellbare Wirkung des Additivs auf die Auswaschung organischer Verbindungen: Zum einen war die hier eingesetzte Kompostcharge deutlich weniger hydrophob als die in den Versuchen in den Abschnitten 3.1 und

3.2, so dass sich eine vollständige und gleichmäßige Durchfeuchtung auch bei der Variante ohne Tensid vollzog. Zum anderen wird durch die Reduzierung der Oberflächenspannung des Wassers auch das Matrixpotential des Substrates verringert. Dadurch wird dessen Einfluss auf die Wasserbewegung im Substrat relativ zur Schwerkraft herabgesetzt, was zu weniger horizontalem und gleichzeitig mehr vertikalem Fluss führt. Die horizontale Ausbreitung der Lösung in der Säule und damit ihre gleichmäßige Verteilung wird so eher behindert als gefördert.

Das Anliegen der hier vorgestellten Versuchsreihe war die Herabsetzung der Oberflächenspannung des Wassers, um die Benetzung der hydrophoben Matrix zu verbessern. Das wurde mit fit als Additiv auch erreicht, selbst wenn damit aus den hier verwendeten nur schwach hydrophoben Substraten nicht mehr Stoffe ausgewaschen wurden als ohne.

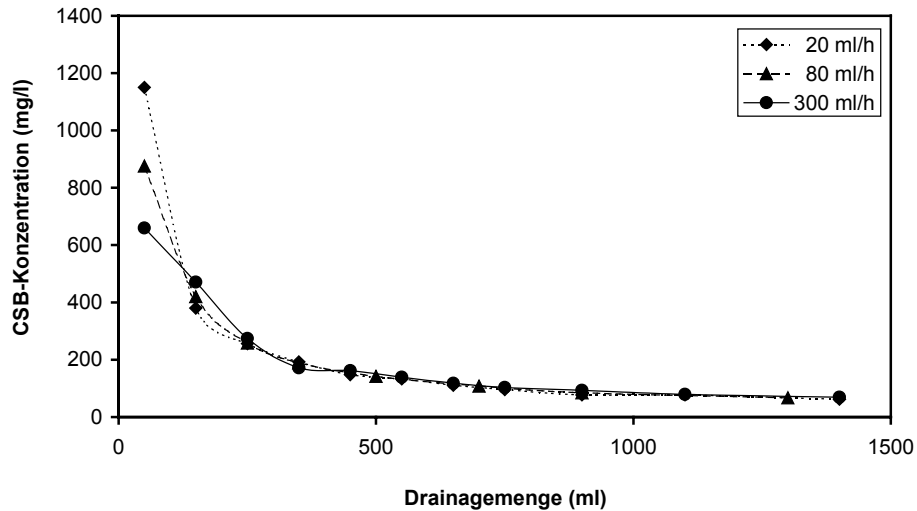
Bestimmte Additive können daneben auch die Mobilität von organischen Verbindungen erhöhen. Für Tenside gilt dabei, dass ihre Wirkung umso geringer wird, je hochmolekularer die Verbindungen sind. Bei der Auswaschung von Hausmüllkörpern sind sie dafür weniger geeignet, weil darin vorwiegend hochmolekulare humusartige Verbindungen vorkommen.

Es erscheint uns sinnvoll, in neuen Versuchen mit stark hydrophobem Kompost der Frage nach einem geeigneten Additiv nachzugehen, dass beide Wirkungen in hohem Maße zeigt.

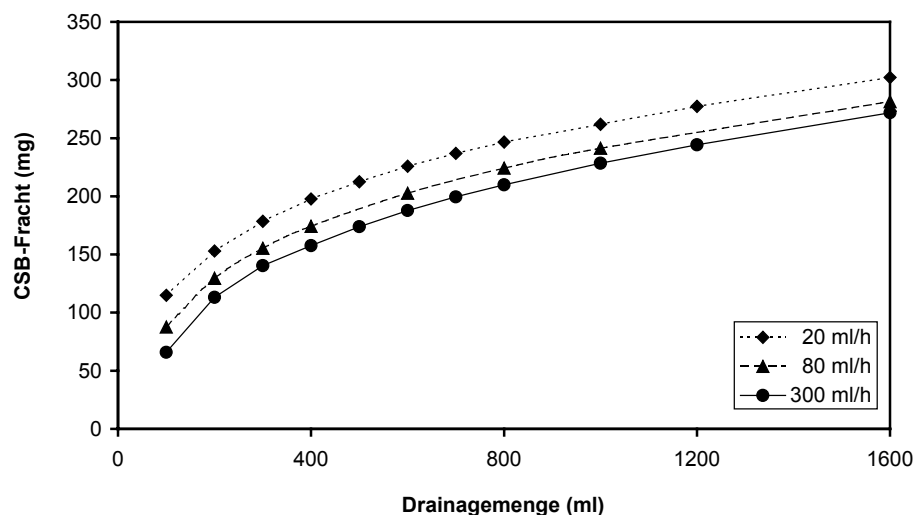
#### **3.4 Sand, der mit organischen Verbindungen aus hydrophobem Kompost versetzt wurde**

In Bild 7 und 8 sind die Verläufe von CSB-Konzentration und Gesamtfracht dargestellt. Am Anfang sind die Konzentrationen deutlich verschieden; bei geringer Beregnungsrates ist sie am höchsten, bei hoher Rate am geringsten. Später verlaufen sie bei allen drei Raten nahezu auf einer Linie. Ihr gleichmäßiger Verlauf ohne jegliche „Holprigkeiten“, wie z. B. in Abschnitt 3.1, lässt auf eine Auswaschung ohne Hydrophobie schließen. Die geringste Rate wäscht hier die größte Stoffmenge aus, mit der höchsten Rate wird am wenigsten ausgetragen.

Diese Ergebnisse entsprechen denen für die Auswaschung von Chlorid aus Sand (Hagenau und Borg, 2003a) und von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus geringfügig hydrophobem Kompost und Sand-Kompost-Gemisch (Hagenau et al., 2005). Eine Wiederbenässung des versetzten Sandes findet ungehindert statt. Die organischen Bestandteile, die an seinen Teilchen sorbiert sind, behindern den Wasserfluss also nicht oder zumindest nicht wesentlich. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die Hydrophobie von der organischen Grundsubstanz ausgeht (hier Kompost) und bei einmal herausgelösten organischen Verbindungen nicht auftritt.



**Bild 7:** Verlauf der CSB-Konzentration als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von mit organischen Verbindungen versetztem Sand mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (20, 80 und 300 ml/h).



**Bild 8:** Verlauf der CSB-Gesamtfracht als Funktion der Drainagemenge bei der Auslaugung von mit organischen Verbindungen versetztem Sand mit drei verschiedenen Beregnungsintensitäten (20, 80 und 300 ml/h).

Betrachtet man die Art und Weise, wie der Sand mit organischen Verbindungen versetzt wurde (vgl. 2.2.4), folgert aus den Ergebnissen dieser Versuchsreihe auch, dass sie sich während des Transports durch ein poröses Medium an mineralische Teilchen anlagern können. Wenn dann eine Austrocknung des Mediums stattfindet, können die mit organischen Verbindungen behafteten Teilchen später wieder benässt werden, ohne dass Hydrophobie auftritt und die Verbindungen wieder gelöst werden.

#### 4. Fazit

Zusammenfassend lässt sich für die ersten beiden Versuchskomplexe sagen, dass für stark hydrophoben Kompost und ein damit hergestelltes Gemisch mit Sand die eingangs aufgeführte zweite und dritte These für die Auswaschung löslicher organischer Verbindungen nicht gelten. Da mit größeren Beregnungsraten die Hydrophobie teilweise überwunden werden kann, wird mit diesen bei hydrophoben Substraten mehr Fracht je Wassermenge ausgewaschen als mit niedrigen Raten.

Bei hydrophoben Substraten ist mit einer Disaggregation und damit einem erhöhten Aufkommen von Schwebeteilchen im austretenden Wasser zu rechnen, wenn mit hohen Beregnungsraten gearbeitet wird, bei denen auch große Poren durchflossen werden. Im Hinblick auf die schnelle Entfrachtung einer Deponie könnte daraus vorschnell geschlussfolgert werden, dass wegen der Schwebeteilchen das „Durchspülen“ eines (hydrophoben) Müllkörpers bei Sättigung erhebliche Vorteile gegenüber einer ungesättigten Auswaschung mit geringen Beregnungsraten mit sich bringt. Dies ist aber nicht so, da starke Hydrophobie sowie ein erhöhtes Aufkommen an Schwebeteilchen eher selten sind und Schwebeteilchen zu keiner wesentlichen Erhöhung der Stofffrachten (zumindest beim CSB) führen.

Der Einsatz eines Tensides führte hier zwar zu einer Verbesserung der Infiltration in das Substrat und seiner Durchfeuchtung, zu einer Erhöhung des Stoffaustrages kam es jedoch nicht. Letzteres lag wahrscheinlich daran, dass für diese Versuche nur noch schwach hydrophober Kompost zur Verfügung stand. Weitere Versuche mit stark hydrophobem Material sind notwendig, um das zu klären.

Die Hydrophobie geht vom Substrat aus und nicht von den löslichen organischen Stoffen selbst. Sind diese einmal herausgelöst, lassen sie sich auch nach einem zwischenzeitlichen Anlagern an die Matrix und deren Austrocknung problemlos weiterverlagern.

#### Literatur

- Cuypers, C., T. Pancras, T. Grotenhuis, W. Rulkens (2002): The estimation of PAH bioavailability in contaminated sediments using hydroxypropyl-beta-cyclodextrin and Triton X-100 extraction techniques. *Chemosphere* 46, 1235-1245.
- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. *Müll und Abfall* 37, 82-90.
- Lee, P. H., S. K. Ong, J. Golchin, G. L. Nelson (2001): Use of solvents to enhance PAH biodegradation of coal-tar contaminated soils. *Water Res.* 35, 3941-3949.

Sobisch, T., H. Heß, H. Niebelschütz, U. Schmidt (2000): Effect of additives on biodegradation of PAH in soils. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* 162, 1-14.

Thomanetz, E. (2004): Universität Stuttgart, Institut für Siedlungswasserbau, Wassergüte- und Abfallwirtschaft. Persönliche Kommunikation.

Dieses Kapitel wurde in leicht veränderter Form veröffentlicht:

Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. *Müll und Abfall* 37, 148-153.



## **VI. Ermittlung eines Dispersivitätsfaktors beim Chloridtransport - Abhängigkeit von Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit**

### ***Determination of a dispersivity factor for chloride transport - its dependence on substrate, layer thickness and mean flow velocity***

#### **Zusammenfassung**

Stofftransport in porösen Medien lässt sich mit der Advektions-Dispersions-Gleichung beschreiben. Sie enthält einen Dispersionskoeffizienten, der als Produkt eines Dispersivitätsfaktors ( $f$ ), der Länge der durchströmten Schicht und der mittleren Fließgeschwindigkeit ausgedrückt werden kann. Die Schichtlänge kann gemessen, die Fließgeschwindigkeit aus messbaren Größen berechnet werden. Hier wurde untersucht, ob letzteres auch für  $f$  möglich ist. Da keine Abhängigkeiten bekannt sind, kann es zurzeit nur ermittelt werden, indem man verschiedene Werte in die o. g. Gleichung einsetzt, bis berechnete und experimentelle Daten übereinstimmen.

Dazu wurden zwölf Stofftransportversuche (zwei Substrate x zwei Säulenlängen x drei Fließgeschwindigkeiten) mit Chlorid durchgeführt. Anschließend wurde, wie eben skizziert, der  $f$ -Wert ermittelt, der jeweils zur größten Übereinstimmung führte, und den Versuchsvariablen gegenübergestellt. Er lag zwischen 0,02 und 0,05, wobei 0,025 immer eine gute und in neun Fällen die beste Übereinstimmung erbrachte. Eine Abhängigkeit von den genannten Variablen bestand nicht. Das legt nahe, dass  $f$  eine Konstante ist.

#### **Summary**

Solute transport in porous media can be described with the advection-dispersion-equation. It contains a dispersion coefficient, which can be expressed as the product of a dispersivity factor ( $f$ ), layer thickness and mean flow velocity. The thickness can be measured and the velocity calculated from measurable parameters. Here we investigated, if the latter is possible for  $f$ , too. Since no dependencies are known, it can presently only be determined by substituting different values into the above equation, until computed and experimental data agree.

Hence, twelve solute transport studies (two substrates x two column lengths x three flow velocities) with chloride were conducted. Then the  $f$ -value leading to the best agreement for each case was evaluated as outlined above and related to the experimental variables. It ranged from 0.02 to 0.05, while 0.025 always produced good and in nine cases in the best agreement. There was no dependence on the aforementioned variables. This suggest that  $f$  is a constant.

## 1. Einleitung

Die Belastung von Grund- und Oberflächenwasser durch Schadstoffeinträge aus Ablagerungen oder kontaminierten Böden stellt ein ernstes Umweltproblem dar. Die Stoffverlagerung in porösen Medien, wie z. B. Böden oder Grundwasserleitern, kann mit der vielfach angewandten und erprobten Advektions-Dispersions-Gleichung beschrieben werden, die u. a. in Lapidus und Amundson (1952), Freeze und Cherry (1979) und Wang und Anderson (1995) näher erläutert wird. In ihrer eindimensionalen Form lautet sie:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial z} + (D_h + D_d) \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\rho_t}{\theta} \frac{\partial S_a}{\partial t} + Z - E \quad (1)$$

wobei  $C$  = Stoffkonzentration im Wasser,  $t$  = Zeit,  $v$  = mittlere Fließgeschwindigkeit,  $z$  = Entfernung in Fließrichtung,  $D_h$  = Dispersionskoeffizient,  $D_d$  = Diffusionskoeffizient,  $\rho_t$  = Trockendichte des Mediums,  $\theta$  = volumetrischer Wassergehalt,  $S_a$  = adsorbierte Stoffmenge,  $Z$  = Stoffzufuhr aus internen Quellen,  $E$  = Stoffentnahme durch interne Senken. Dispersions- und Diffusionskoeffizient werden in der Regel als  $D = D_h + D_d$  zusammengefasst.

Der Dispersionskoeffizient ( $D_h$ ) berechnet sich als das Produkt eines als Dispersivität ( $\alpha$ ) bezeichneten Proportionalitätsfaktors und der mittleren Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) des Wassers im porösen Medium (Bear, 1972):

$$D_h = \alpha v \quad (2)$$

Die Dispersivität wiederum kann als das Produkt aus einem dimensionslosen Proportionalitätsfaktor, der im Folgenden Dispersivitätsfaktor ( $f$ ) genannt wird, und der Länge der durchströmten Schicht ( $L$ ) ausgedrückt werden (Gelhar et al., 1985):

$$\alpha = f L \quad (3)$$

Der Dispersionskoeffizient ergibt sich somit letztlich als:

$$D_h = f L v \quad (4)$$

Der Wert von  $f$  und welche Faktoren ihn beeinflussen, wurde bisher noch nicht umfassend untersucht. Es ist daher noch unklar, ob er aus messbaren Größen abgeleitet werden kann. Zurzeit kann er nur ermittelt werden, indem verschiedene  $f$  in die Advektions-Dispersions-Gleichung eingesetzt werden, bis die Berechnungen mit den experimentellen Daten übereinstimmen.

Beim Transport eines Stoffs durch ein poröses Medium spielen das Substrat, die Länge der durchströmten Schicht und die Fließgeschwindigkeit des Wassers eine wichtige Rolle. Um zu

prüfen, ob und wie diese Parameter den Dispersivitätsfaktor beeinflussen, wurden Säulenversuche mit zwei verschiedenen Substraten in je zwei verschiedenen langen Säulen und mit je drei verschiedenen Fließgeschwindigkeiten und Chlorid als Tracer durchgeführt. Anschließend wurde mit Hilfe der Advektions-Dispersions-Gleichung auf die eben skizzierte Weise der Wert für  $f$  ermittelt, der jeweils zur größten Übereinstimmung mit den Versuchsdaten führte, und den eben genannten Parametern zur Prüfung eventueller Abhängigkeiten gegenübergestellt.

## **2. Material und Methoden**

### **2.1 Säulen und Substrat**

Alle Versuche wurden im Labor mit Säulen aus PE-Rohr durchgeführt. Den unteren Abschluss der Säulen bildete ein aufgestecktes Plastiksieb, das mit einem Vlies ausgelegt war. Dadurch werden feine Substratteilchen zurückgehalten, während Sickerwasser abfließen kann. Die Länge der durchströmten Schicht wurde durch unterschiedlich lange Säulen (23 und 70 cm) variiert, deren Durchmesser 4,6 (lange Säule) bzw. 7 cm (kurze Säule) betragen.

Das Substrat wurde in mehreren Lagen eingebaut und zwischendurch durch Aufstauchen verdichtet. Es wurden drei Zentimeter am oberen Säulenrand frei gelassen, um gegebenenfalls anfallendes Überstauwasser aufzunehmen.

Bei den Substraten handelte es sich zum einen um einen schwach tonigen Sand (im Folgenden als Sand bezeichnet) und einen schluffigen Sand (Sandlöss), die auch schon von Hagenau und Borg (2003) benutzt worden waren. Der Sand wurde beim Befüllen der Säulen auf rund  $1,7 \text{ g/cm}^3$  verdichtet, woraus eine Porosität von 36% resultiert. Sein Lufteintrittspotential ( $\Psi_e$ ) beträgt dann etwa 5 cm. Der Sandlöss weist nach Einbau folgende Werte auf: Dichte =  $1,4 \text{ g/cm}^3$ ; Porosität = 47%;  $\Psi_e = 35 \text{ cm}$ . Aufgrund des Lufteintrittspotentials ergibt sich, dass bei den Versuchen mit Sandlöss in der kurzen Säule immer Wassersättigung vorlag.

### **2.2 Wasserzufuhr**

Zur Einstellung unterschiedlicher Fließgeschwindigkeiten wurde den Säulen Wasser in unterschiedlichen Raten zugeführt. Die Wasserzufuhr erfolgte mit Hilfe einer an unserem Institut entwickelten Beregnungsapparatur (Lohmann, 1999). Sie besteht aus einer Mariotteschen Flasche und einem Beregnungskopf, die über einen Schlauch miteinander verbunden sind. Der Beregnungskopf hat einen Durchmesser von 10 cm und eine Höhe von 5 cm. An seinem Boden befinden sich 12 rasterförmig angeordnete Öffnungen, die entweder mit Kanülen bestückt oder verschlossen werden können. Durch die Mariottesche Wasserführung

wird ein konstanter Wasserdruck und damit eine gleichbleibende Applikationsrate während der Beregnung gewährleistet. Unterschiedliche Raten können entweder durch Höhenverstellung des Beregnungskopfes gegenüber dem Wasserbehälter und damit einer Änderung des Druckes, Einsetzen von Kanülen mit anderem Durchmesser oder Änderung der Kanülenanzahl am Beregnungskopf erreicht werden. Dadurch können Werte zwischen 4 und 3600 ml/h eingestellt werden. Da es jedoch schwierig ist, kleinere Werte mit dieser Apparatur konstant zu halten, sollte nur mit Raten  $\geq 20$  ml/h gearbeitet werden.

Durch die rasterförmige Anordnung der Kanülen wird eine gleichmäßige horizontale Verteilung des Wassers im Substrat erreicht. Das wurde in Vorversuchen durch Wassergehaltsmessungen mit dem Thermolink<sup>®</sup>-Gerät (Decagon Devices, Pullman, Washington, USA) an verschiedenen Stellen in gleicher Höhe in der Säule sichergestellt. Um Verschlammungswirkungen an den Aufprallstellen der Tropfen zu vermeiden, wurde zwischen Kanülen und Substratoberfläche ein Abstand von nur etwa einem Zentimeter eingestellt.

### **2.3 Versuchsdurchführung und Probenahme**

Die Beregnung erfolgte für jede Substrat-Säulenlängen-Kombination mit drei deutlich unterschiedlichen Raten, wobei sich bei der höchsten Rate immer kontinuierlicher Überstau einstellte. Bei zwei Substraten a zwei Säulenlängen und je drei Beregnungsraten ergibt sich ein Gesamtumfang von 12 Experimenten. Tabelle 1 zeigt eine Übersicht über alle Versuche mit den genauen Beregnungsraten und den sich dabei einstellenden Wassergehalten. Auf den Parameter  $f$  wird im Ergebnisteil eingegangen.

Zu Beginn eines jeden Versuchs wurde das lufttrocken in die Säulen eingebrachte Substrat zunächst solange mit destilliertem Wasser beregnet, bis die Drainagerate am unteren Ende der Säule der oben angesetzten Applikationsrate entsprach. Der Wassergehalt im Substrat veränderte sich dann nicht mehr. Die Beregnung mit destilliertem Wasser wurde anschließend noch solange fortgesetzt, bis das natürlicherweise im Substrat vorhandene Chlorid ausgewaschen war. In unseren Versuchen galt das als erreicht, wenn die Chloridkonzentration im Drainagewasser unter 2 mg/l fiel.

Danach erfolgte bei gleichbleibender Beregnungsrate die Gabe einer Chloridlösung mit einer Konzentration von 100 mg/l. Das austretende Sickerwasser wurde über einen Trichter in einen Messzylinder geleitet und seine Chloridkonzentration nach einer vorher festgelegten angefallenen Wassermenge bestimmt (je nach Beregnungsrate zwischen 38 und 80 ml).

Wenn bei den Versuchen mit Sand die Chloridkonzentration im Drainagewasser 90 mg/l

**Tabelle 1:** Kennwerte der durchgeführten Versuche (Ü = Überstau).

Substrat	Länge der durchströmten Schicht (cm)	Beregnungsrate (ml/h)	Beregnungsrate (mm/h)	Wassergehalt (%-Vol.)	f (dimensionslos)
Sand	20	115	30	29	0,025
		340	88	30	0,025
		1000	260 (Ü)	35	0,025
	67	42	25	29	0,050
		150	90	30	0,025
		320	193 (Ü)	35	0,025
Sandlöss	20	100	26	47	0,025
		250	65	47	0,025
		672	175 (Ü)	47	0,025
	67	40	24	41	0,040
		100	60	44	0,020
		250	150 (Ü)	47	0,025

überschritt, wurde die Beregnung wieder auf destilliertes Wasser umgestellt. Bei den Versuchen mit Sandlöss geschah das schon bei Konzentrationen > 50 mg/l. Vorversuche hatten gezeigt, dass die Chloridkonzentration im Drainagewasser anschließend immer noch bis auf nahezu 100 mg/l ansteigt, bevor eine Konzentrationsabnahme einsetzt. Die vorzeitige Umstellung erfolgte, um die gesamte Versuchsdauer möglichst kurz zu halten.

Dem Stoffeintrag folgte also ein Stoffaustrag, so dass alle Konzentrationsverläufe mit auf- und absteigendem Ast dargestellt werden konnten. Nach der Umstellung auf destilliertes Wasser wurde beregnet, bis die Konzentration im Sickerwasser wieder unter 2 mg/l sank.

Mit dieser Vorgehensweise ergaben sich Gesamtversuchszeiten zwischen etwa einer Stunde (Sand, kurze Säule, Überstau) und über 30 Stunden (Sandlöss, lange Säule, geringste Rate).

#### 2.4 Bestimmung von Chloridkonzentration und Wassergehalt

In allen Proben wurde der Chloridgehalt mit einer ionenselektiven Mess- und einer Referenzelektrode (Elektrode Cl 500 bzw. R 502, WTW, Weilheim, Deutschland) gemessen. Für diese Methode ist ein Volumen von mindestens 35 ml erforderlich, was in allen Proben gegeben war (s. o.).

Der Wassergehalt, der für die Berechnung der mittleren Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) gebraucht wird (s. u.), die in die Advektions-Dispensions-Gleichung eingeht, wurde gravimetrisch in den oberen fünf Zentimetern des Substrats in der Säule bestimmt und dann in volumetrischen Wassergehalt umgerechnet.

## **2.5 Darstellung der Versuchsergebnisse**

Um die Konzentration des gerade austretenden Sickerwassers (Momentankonzentration) zu erfassen, müsste man den Zeitraum der Beprobung und damit das Probevolumen unendlich klein halten, was aber technisch nicht möglich ist. Bei den hier angegebenen Konzentrationen handelt es sich deshalb um Mischungskonzentrationen, die immer dann ermittelt werden, wenn eine vorher festgelegte Sickerwassermenge angefallen ist und analysiert wird. Je kleiner man diese Volumina wählt, desto mehr nähert sich die Mischungskonzentration der Momentankonzentration. Dabei ist anzumerken, dass für eine korrekte Darstellung des Konzentrationsverlaufs die Probemengen während eines Versuchs konstant sein müssen (Fehse, 2004).

Die grafische Darstellung der Konzentrationsverläufe erfolgt als Funktion der Zeit. Da abgesehen von kleinen Schwankungen die Beregnungs- und Entwässerungsrate in den jeweiligen Versuchen konstant war, ergibt sich für jeden Zeitschritt etwa die gleiche Drainagemenge. Aus dem oben gesagten folgt, dass die Konzentration einer Probe nicht die Momentankonzentration des Entnahmezeitpunktes ist, sondern die Mischungskonzentration zwischen zwei Entnahmen. Deshalb wird bei der Darstellung des Konzentrationsverlaufs die gemessene Konzentration nicht der Entnahmezeit gegenübergestellt, sondern der mittleren Zeit zwischen zwei Entnahmen: Bei einer Probe, die z. B. zwischen 30 und 60 Minuten angefallen ist, also der Zeit von 45 Minuten.

Um von einer Beregnung mit Chloridlösung auf eine Beregnung mit destilliertem Wasser umzustellen, muss die Wasserzufuhr an der Beregnungsapparatur ausgewechselt werden. Dadurch kommt es zu einer technisch bedingten Beregnungsunterbrechung von bis zu fünf Minuten. Die Dauer der Unterbrechung ist in der Darstellung der Ergebnisse berücksichtigt, indem auf der x-Achse nur die Zeit abgetragen ist, in der tatsächlich eine Beregnung stattfand.

Für den Versuchsverlauf bedeutet die Unterbrechung der Beregnung nicht, dass sämtliche Fließprozesse inklusive Drainage angehalten werden und danach sofort mit der eingestellten Intensität weiterlaufen. Vielmehr kommt es zu einem vorübergehenden Rückgang der Drainagerate sowie der Wassergehalte und Fließgeschwindigkeiten innerhalb der Säule, die erst einige Zeit nach Fortsetzung der Beregnung wieder die ursprünglichen Werte erreichen. Da-

durch können beim absteigenden Ast des Konzentrationsverlaufs Ungenauigkeiten in Hinblick auf den Beginn des Konzentrationsabfalls und dessen Steilheit auftreten.

## 2.6 Berechnung der Konzentrationsverläufe

Der Diffusionskoeffizient für Chlorid in einem porösen Medium liegt etwa bei  $D_d = 5 \times 10^{-10}$  m<sup>2</sup>/s (Schneider und Göttner, 1991). Unter den Verhältnissen in unseren Experimenten (Tabelle 1) ist er damit um einige Größenordnungen kleiner als der Dispersionskoeffizient (Gleichung 4) und kann deshalb vernachlässigt werden. Chlorid wird in den hier verwendeten Substraten nicht zurückgehalten, so dass der Sorptionsterm entfällt. Außerdem gibt es keine Chloridquellen und -senken in den Substraten. Gleichung 1 reduziert sich somit zu:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial z} + D_h \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (5)$$

Für unsere Versuche gelten außerdem folgende Bedingungen:

- Das poröse Medium ist homogen, so dass  $v$  und  $D_h$  sowie die Parameter  $\theta$  und  $f$ , die in ihre Berechnung eingehen, überall gleich sind.
- Die Beregnungsrate  $q$  bleibt über den Betrachtungszeitraum konstant, so dass auch  $v$ ,  $\theta$  und  $D_h$  konstant bleiben.
- Vor Beginn der Chloridapplikation ist die Chloridkonzentration überall im porösen Medium null.
- Während der Chloridapplikation ist die Chloridkonzentration im Beregnungswasser konstant und hat den Wert  $C_0$ , davor und danach ist sie null.

Um unter diesen Versuchsbedingungen den zeitlichen Verlauf der Chloridkonzentration am unteren Ende der Säule zu berechnen, muss die flux-gemittelte Lösung von Gleichung 5 für die Anfangs- und Randbedingungen:

$$C(z, t) = 0 \quad \text{für } t \leq t_0 \quad (6a)$$

$$C(0, t) = 0 \quad \text{für } t \leq t_0 \text{ und } t > t_e \quad (6b)$$

$$C(0, t) = C_0 \quad \text{für } t_0 < t \leq t_e \quad (6c)$$

$$\frac{\partial C(\infty, t)}{\partial z} = 0 \quad \text{für alle } t \quad (6d)$$

herangezogen werden, die z. B. in Parker und van Genuchten (1984) gegeben ist als:

$$C(L, t) = C_0 B(L, t) \quad \text{für } t_0 < t \leq t_e \quad (7a)$$

$$C(L, t) = C_0 B(L, t) - C_0 B(L, t - t_e) \quad \text{für } t > t_e \quad (7b)$$

wobei  $C(z, t)$  = Chloridkonzentration an einer beliebigen Position  $z$  zur Zeit  $t$  ( $z = 0$  = oberer Säulenrand;  $z = L$  = unterer Säulenrand;  $z = \infty$  = Position in großer Entfernung vom oberen Säulenrand),  $t_0$  = Zeit zu Beginn der Chloridapplikation, die gleich Null gesetzt wird,  $t_e$  = Zeit am Ende der Chloridapplikation und:

$$B(L, t) = \frac{1}{2} \left[ \operatorname{erfc} \left( \frac{L - vt}{2\sqrt{D_h t}} \right) + \exp \left( \frac{vL}{D_h} \right) \operatorname{erfc} \left( \frac{L + vt}{2\sqrt{D_h t}} \right) \right] \quad (7c)$$

Wie bei Gleichung 3 definiert, ist  $L$  = Länge der durchströmten Schicht, die der Mächtigkeit des Substrats in der Säule entspricht.

Für die Berechnungen mit Gleichung 7a-c werden die mittlere Fließgeschwindigkeit des Wassers ( $v$ ) sowie der Dispersionskoeffizient ( $D_h$ ) für Chlorid im porösen Medium gebraucht. In den Dispersionskoeffizienten gehen der oben eingeführte Dispersivitätsfaktor ( $f$ ), die Länge der durchströmten Schicht ( $L$ ) und die mittlere Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) ein (Gleichung 4).

Die mittlere Fließgeschwindigkeit wird als Quotient der messbaren Größen Durchflussrate ( $q$  = durchgeflossenes Wasservolumen je Flächen- und Zeiteinheit) und volumetrischer Wassergehalt ( $\theta$ ) berechnet:

$$v = \frac{q}{\theta} \quad (8)$$

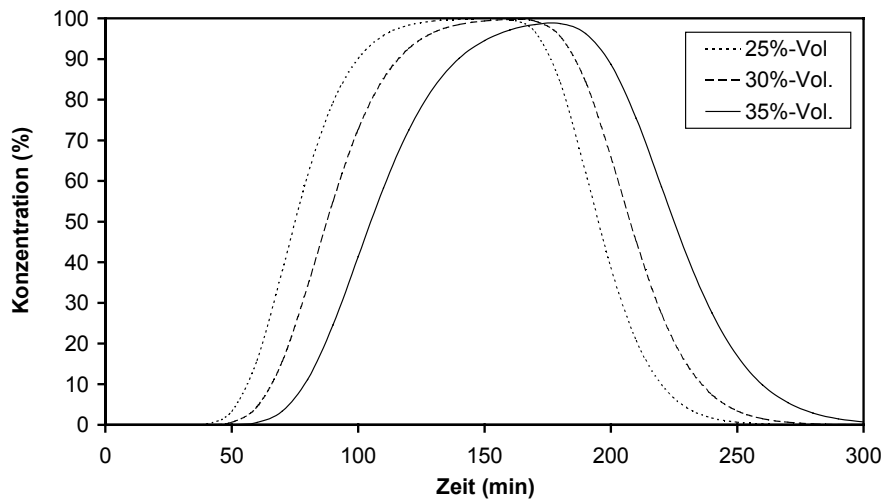
Während die Durchflussrate sehr exakt bestimmt werden kann, ist die Messung des Wassergehalts in der Säule mit größeren Ungenauigkeiten verbunden. Ein zu hoher Wert führt zu einer kleineren mittleren Fließgeschwindigkeit und damit zu einer Verschiebung des Konzentrationsverlaufs nach rechts (späterer Konzentrationsanstieg und -abfall) in Verbindung mit einem flacheren Anstieg und Abfall. Ein zu geringer Wassergehalt führt zum gegenteiligen Effekt: Erhöhung der mittleren Fließgeschwindigkeit und dadurch Verschiebung des Konzentrationsverlaufs nach links (früherer Konzentrationsanstieg und -abfall) sowie ein steilerer Anstieg und Abfall. Das ist in Bild 1a beispielhaft dargestellt.

Der Dispersivitätsfaktor  $f$  wirkt sich auf den Anstieg aus. Ein kleinerer Wert für  $f$  führt zu einem späteren, aber steileren Anstieg der Konzentration und das Maximum wird eher erreicht. Nach der Abschaltung des Stoffeintrages und Beginn der Auswaschung erfolgt dann der Konzentrationsabfall entsprechend später, aber wiederum steiler (Bild 1b).

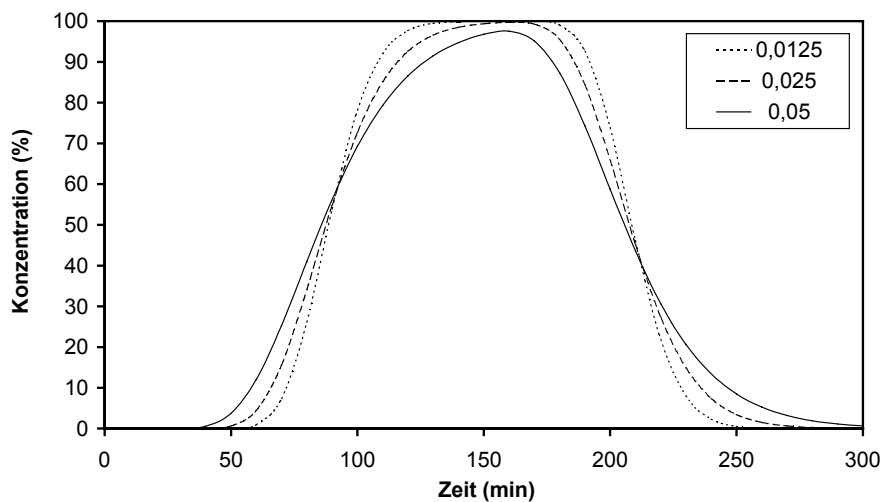
Wie bereits erwähnt, wurde der beste  $f$ -Wert ermittelt, indem  $f$  in der Advektions-Dispersions-Gleichung variiert wurde, bis die größte Übereinstimmung zwischen gemessene-



a)



b)



**Bild 1:** Auswirkung verschiedener a) Wassergehalte und b) f-Werte auf den Verlauf der Stoffkonzentration (in % der Eingangskonzentration) am unteren Rand eines porösen Mediums. Länge der durchströmten Schicht: 50 cm, Berechnungsrate: 100 mm/h, Umstellung der Beregnung auf destilliertes Wasser nach 120 Minuten. Bei a)  $f = 0,025$ , bei b) Wassergehalt = 30%-Vol.; Wassergehalte von 25, 30 und 35%-Vol. resultieren in mittleren Fließgeschwindigkeiten von 400, 333 und 286 mm/h.

nem und berechnetem Konzentrationsverlauf auftrat. Aus den oben genannten Gründen wurde dem ansteigenden Ast des Verlaufs dabei eine größere Bedeutung zugemessen als dem absteigenden.

Für  $f$  wurde zunächst ein Wert von 0,0125 in die Berechnung eingesetzt und dann schrittweise bis auf maximal 0,1 verdoppelt, um den Bereich für den besten  $f$ -Wert aufzuzeigen. Innerhalb dieses Bereichs wurde  $f$  anschließend durch Einsetzen weiterer Werte in einer Schritt-

weite von 0,005 noch weiter optimiert. Die Qualität der Übereinstimmung wurde visuell eingeschätzt.

Die so ermittelten besten  $f$ -Werte für die 12 Versuche wurden dann den Parametern Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittleren Fließgeschwindigkeit gegenübergestellt, um zu erkunden, ob es eine Abhängigkeit gibt.

### **3. Ergebnisse**

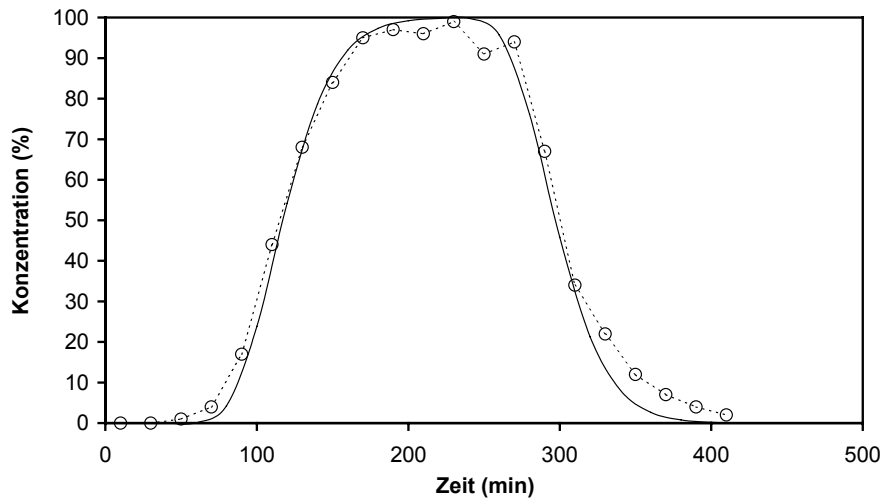
Die Bilder 2a-c bis 5a-c zeigen die Konzentrationsverläufe als Funktion der Zeit für alle hier betrachteten Kombinationen von Substraten, Säulenlängen und Beregnungsraten. Die unterbrochenen Linien stellen jeweils den experimentell ermittelten und die durchgehenden Linien den am besten passenden berechneten Verlauf dar. Auf eine Betrachtung der Einzelversuche wird hier verzichtet, sie werden als Gesamtheit im Hinblick auf die anfangs aufgeführte Fragestellung erörtert.

Bei den meisten Kurven sind im Bereich des Konzentrationsmaximums kurzfristige Konzentrationsrückgänge zu sehen. Diese treten immer einige Zeit nach der Umstellung von der Beregnung mit Chloridlösung auf destilliertes Wasser auf. Wie oben beschrieben, sind sie darauf zurückzuführen, dass bei dieser Umstellung eine Beregnungspause von bis zu fünf Minuten nicht zu vermeiden ist. In dieser Zeit kommt es zur teilweisen Entwässerung der Säule und dann zum erneuten Aufsättigen. Die Konzentrationsrückgänge sind bei den Versuchen mit Sandlöss in der kurzen Säule (Bild 4a-c) am wenigsten ausgeprägt, da hier das Lufteintrittspotential größer ist als die Säulenlänge und es damit auch bei längeren Beregnungspausen zu keiner Entwässerung kommt.

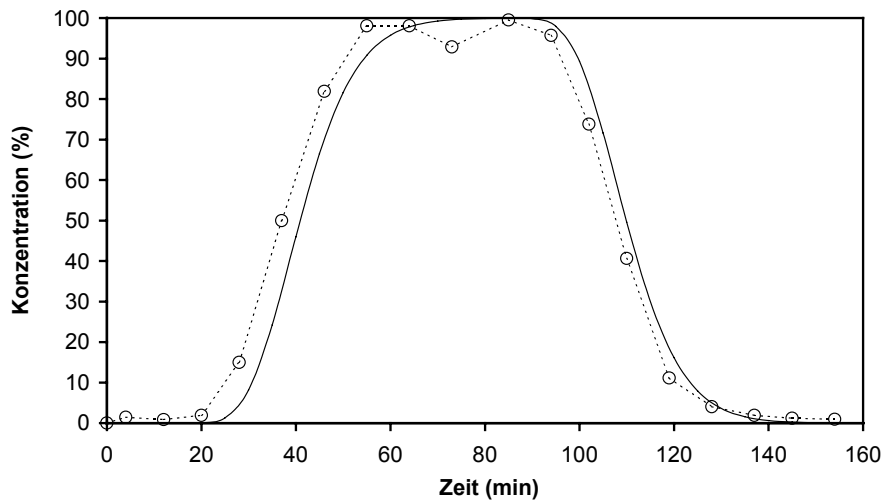
Mit Hilfe der Advektions-Dispersions-Gleichung einen zuverlässigen Wert für  $f$  zu ermitteln, setzt voraus, dass die hier erzielten experimentellen Ergebnisse gut mit ihr beschrieben werden können. Wie die Bilder zeigen, ist das für alle zwölf Versuche der Fall. Es gibt keine größeren Abweichungen zwischen gemessenen und berechneten Werten und keine systematischen Fehler. Das gilt bei den verschiedenen Substraten, Säulenlängen sowie Fließgeschwindigkeiten und Wassergehalten (beides erzeugt durch unterschiedliche Beregnungsraten), sowohl unter gesättigten als auch ungesättigten Bedingungen.

Sofern größere Differenzen zwischen den experimentell ermittelten und den berechneten Daten auftreten (z. B. Bild 4b), handelt es sich meist um Parallelverschiebungen des gesamten Konzentrationsverlaufs, die in der Regel auf Ungenauigkeiten bei der Wassergehaltsmessung und daraus resultierende ungenaue Fließgeschwindigkeiten zurückzuführen sind (Bild 1a).

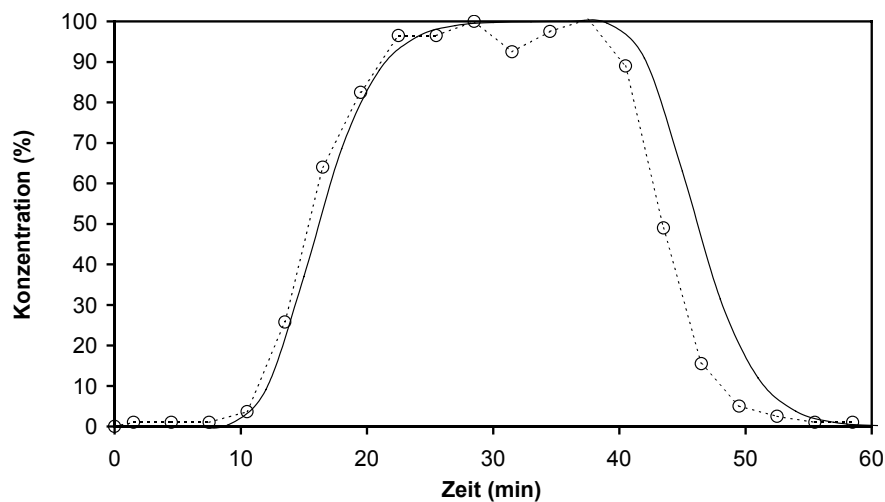
a)



b)

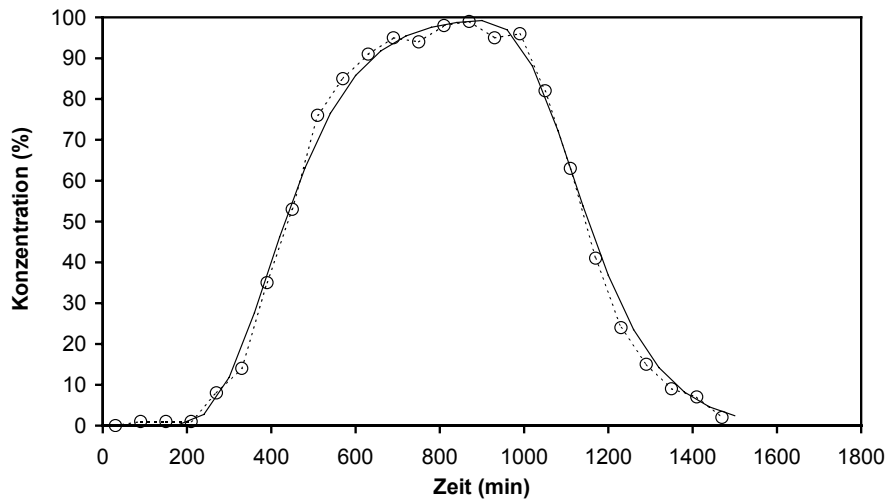


c)

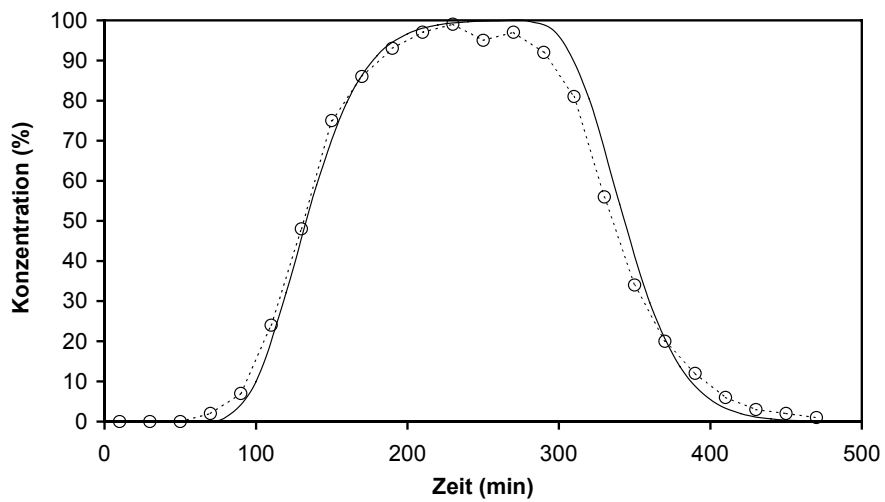


**Bild 2:** Chloridkonzentration (in % der Eingangskonzentration) am unteren Ende einer Säule als Funktion der Zeit. - - - experimenteller Verlauf, — berechneter Verlauf mit a)  $f = 0,025$ , b)  $f = 0,025$ , c)  $f = 0,025$ , Substrat: Sand, Länge der durchströmten Schicht: 20 cm, Beregnungsrate: a) 30, b) 88, c) 260 mm/h, Umstellung von Chloridlösung auf destilliertes Wasser nach a) 180, b) 69, c) 30 min.

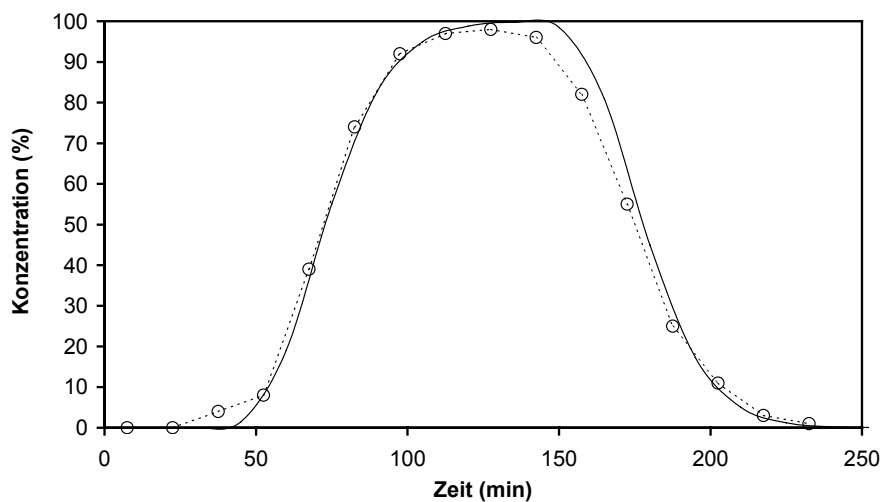
a)



b)

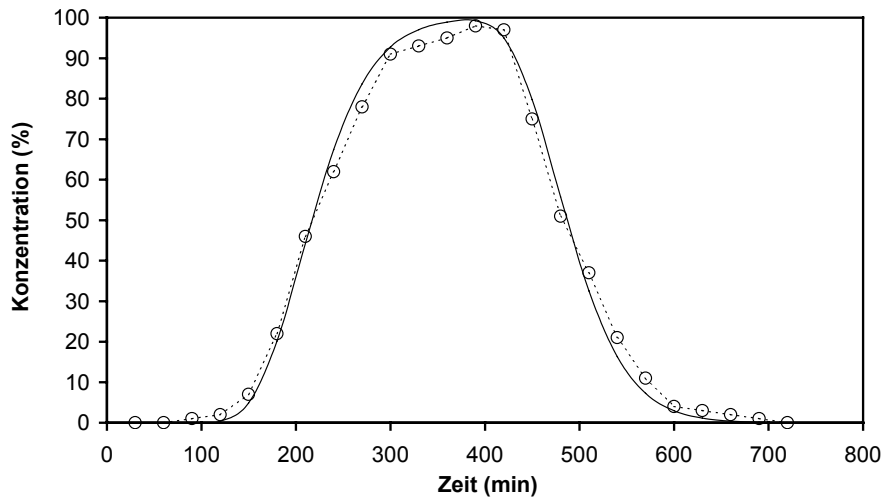


c)

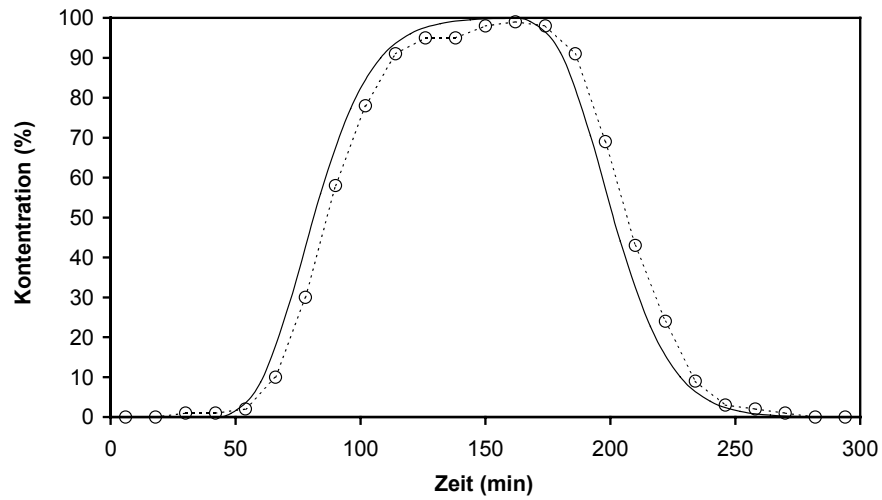


**Bild 3:** Chloridkonzentration (in % der Eingangskonzentration) am unteren Ende einer Säule als Funktion der Zeit. - - - experimenteller Verlauf, — berechneter Verlauf mit  
a)  $f = 0,05$ , b)  $f = 0,025$ , c)  $f = 0,025$ , Substrat: Sand, Länge der durchströmten Schicht: 67 cm, Beregnungsrate: a) 25, b) 90, c) 193 mm/h, Umstellung von Chloridlösung auf destilliertes Wasser nach a) 720, b) 210, c) 105 min.

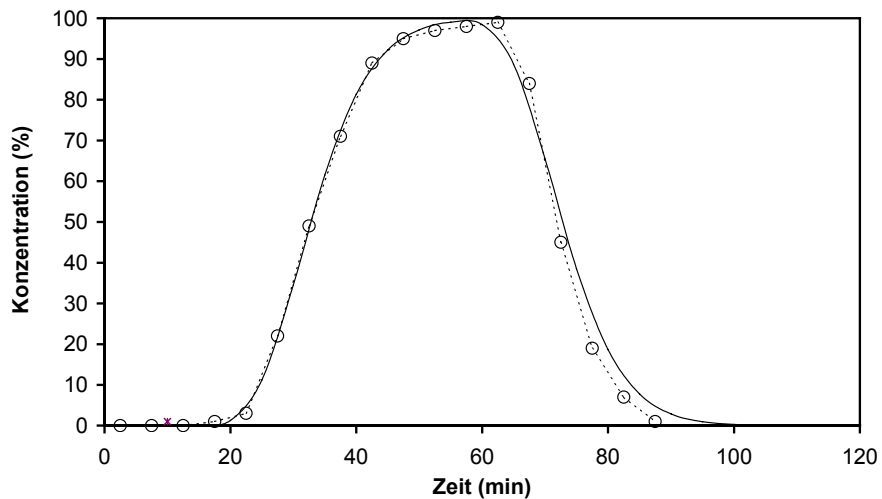
a)



b)

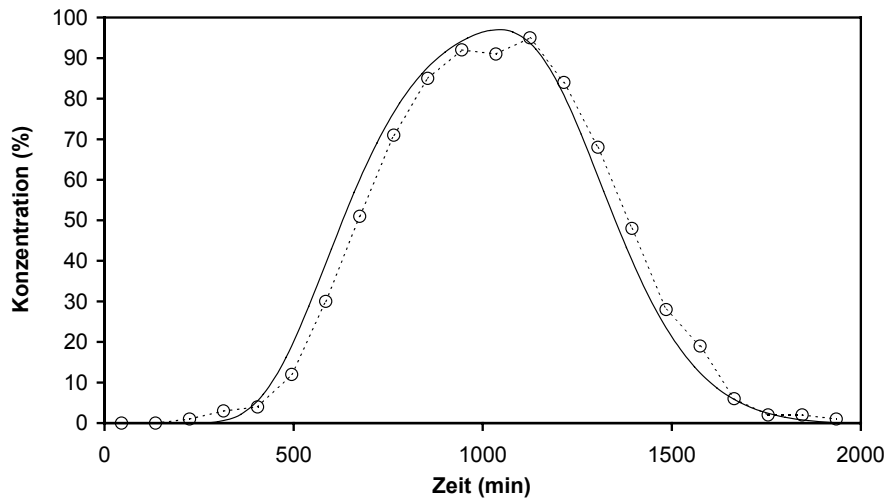


c)

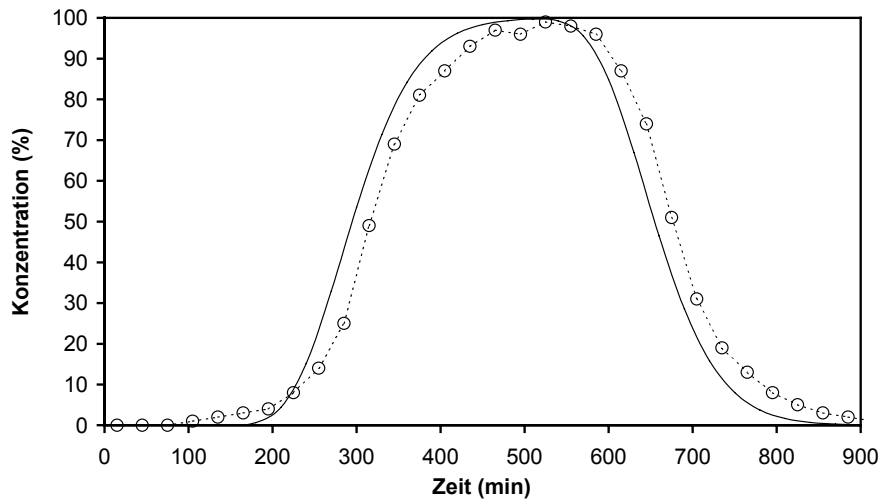


**Bild 4:** Chloridkonzentration (in % der Eingangskonzentration) am unteren Ende einer Säule als Funktion der Zeit. - - - experimenteller Verlauf, — berechneter Verlauf mit a)  $f = 0,025$ , b)  $f = 0,025$ , c)  $f = 0,025$ , Substrat: Sandlöss, Länge der durchströmten Schicht: 20 cm, Beregnungsrate: a) 26, b) 65, c) 175 mm/h, Umstellung von Chloridlösung auf destilliertes Wasser nach a) 270, b) 120, c) 40 min.

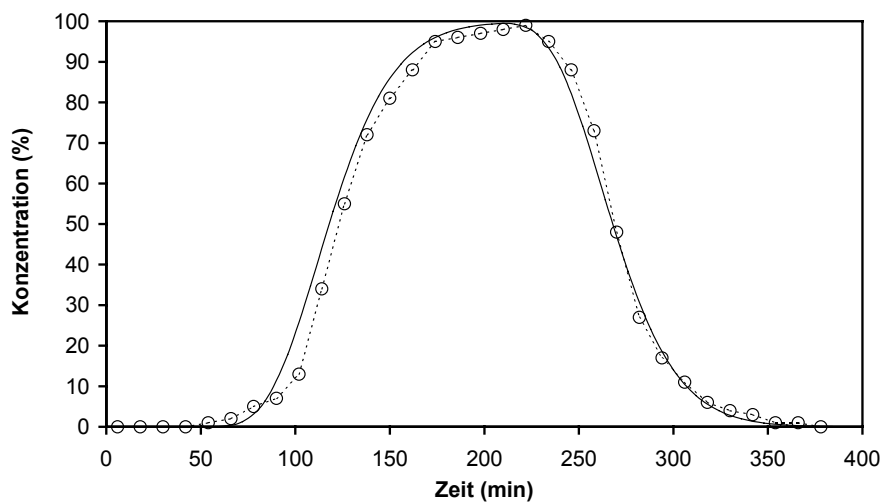
a)



b)



c)



**Bild 5:** Chloridkonzentration (in % der Eingangskonzentration) am unteren Ende einer Säule als Funktion der Zeit. - - - experimenteller Verlauf, — berechneter Verlauf mit a)  $f = 0,04$ , b)  $f = 0,02$ , c)  $f = 0,025$ , Substrat: Sandlöss, Länge der durchströmten Schicht: 67 cm, Beregnungsrate: a) 24, b) 60, c) 150 mm/h, Umstellung von Chloridlösung auf destilliertes Wasser nach a) 720, b) 360, c) 150 min.

Die hier mit Hilfe der Advektions-Dispersions-Gleichung ermittelten Werte für  $f$  sind in Tabelle 1 aufgeführt. In den meisten Fällen wird die größte Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Konzentrationsverläufen mit  $f = 0,025$  erzielt. In zwei Fällen ist das beste  $f$  größer (0,05 bzw. 0,04; Bild 3a und 5a), einmal ist es kleiner (0,02; Bild 5b). Allerdings ist in diesen drei Versuchen auch mit  $f = 0,025$  noch eine gute Übereinstimmung gegeben. Insgesamt liegen die Werte von  $f$  in einer geringen Bandbreite. Ein Zusammenhang zwischen  $f$  und den Parametern Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit ist nicht zu erkennen.

#### 4. Diskussion

Die Ergebnisse der Säulenversuche und der damit einhergehenden Berechnungen mit der Advektions-Dispersions-Gleichung zeigen, dass hier der Dispersivitätsfaktor  $f$  innerhalb einer geringen Bandbreite zwischen 0,02 und 0,05 liegt und nicht vom Substrat, der Länge der durchströmten Schicht oder der mittleren Fließgeschwindigkeit des Wassers abhängt. Ein Wert von  $f = 0,025$  erbrachte in allen hier betrachteten Fällen eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten Konzentrationsverläufen und in neun von zwölf Fällen die beste.

Wie eingangs schon gesagt, gibt es bisher kaum Untersuchungen zum Dispersivitätsfaktor ( $f$ ). Gelhar et al. (1992) haben Dispersionskoeffizienten ( $D_n$ ) und andere relevante Daten aus 59 verschiedenen Versuchen in Grundwasserleitern zusammengetragen und dann die Dispersivität ( $\alpha$ ) in Beziehung zur Länge der durchströmten Schicht ( $L$ ) gesetzt. Die Steigung dieser Beziehung ist der hier so bezeichnete Dispersivitätsfaktor  $f$  (Gleichung 3). Durch Umstellung dieser Gleichung zu  $f = \alpha / L$  haben wir aus den Daten in Gelhar et al. (1992)  $f$ -Werte für die einzelnen dort aufgeführten Untersuchungen bestimmt. Mit wenigen Ausnahmen liegen sie zwischen 0,01 und 0,26, der Mittelwert beträgt 0,08. Eine Abhängigkeit von  $f$  von den Parametern Substrat, Länge der durchströmten Schicht ( $L$ ) oder mittlere Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) konnten wir auch in den entsprechend aufgearbeiteten Gelhar-Daten nicht feststellen.

Im Hinblick auf die nicht vorhandenen Abhängigkeiten stimmen die Erkenntnisse aus den in Gelhar et al. (1992) aufgeführten und unseren Daten überein. Des Weiteren fallen unsere  $f$ -Werte mit 0,02 bis 0,05 in die Bandbreite der Gelhar-Daten, der Mittelwert ist mit 0,028 allerdings deutlich niedriger. Diesbezüglich ist jedoch zu berücksichtigen, dass in den Gelhar-Daten selbst bei nahezu gleichen experimentellen Bedingungen der Wert von  $f$  manchmal um einen Faktor zehn oder mehr verschieden ist. Der Unterschied im Mittelwert für  $f$  zwischen unseren und den Gelhar-Daten sollte daher nicht überbewertet werden. Er weist aber darauf hin, dass weitere Untersuchungen nötig sind, um genauere Angaben zum Dispersivi-

tätsfaktor machen zu können. Unsere Ergebnisse legen nahe, dass er einen konstanten Wert hat.

## Literatur

- Bear, J. (1972): Dynamics of fluids in porous media. Dover, New York.
- Fehse, K.-U. (2004): Zur Sorption von Zink-Ionen an natürliche und technische Sorbentien unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses. Dissertation, Landwirtschaftliche Fakultät, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Freeze, R. A., J. A. Cherry (1979): Groundwater. Prentice Hall, Englewood Cliffs.
- Gelhar, L. W., A. Mantoglou, C. Welty, K. R. Rehfeldt (1985): A review of field-scale physical solute transport processes in saturated and unsaturated porous media. Electrical Power Research Institute (EPRI), Report EA-4190, Palo Alto, California.
- Gelhar, L. W., C. Welty, K. R. Rehfeldt (1992): A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. Water Resour. Res. 28, 1955-1974.
- Hagenau, J., H. Borg (2003): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 105-111.
- Lapidus, L., N. R. Amundson (1952): Mathematics of adsorption in beds. VI. The effect of longitudinal diffusion in ion exchange and chromatographic columns. J. Phys. Chem. 56, 984-988.
- Lohmann, S. (1999): Theoretische Grundlagen, Bauanleitung und Bedienung eines Regensimulators zur Realisierung unterschiedlicher Niederschlagsintensitäten für Säulenversuche. Unveröffentlichter Bericht, Institut für Agrartechnik und Landeskultur, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Parker, J. C., M. Th. van Genuchten (1984): Flux-averaged and volume-averaged concentrations in continuum approaches to solute transport. Water Resour. Res. 20, 866-872.
- Schneider, W., J. J. Göttner (1991): Schadstofftransport in mineralischen Deponieabdichtungen und natürlichen Tonschichten. Geologisches Jahrbuch, Reihe C, Heft 58. Schweizerbart, Stuttgart.
- Wang, H. F., M. P. Anderson (1995). Introduction to groundwater modeling. Academic Press, San Diego.



## **VII. Eine verbesserte mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate**

*An improved mathematical description of solute leaching from porous media as influenced by the amount of water applied and the application rate*

### **Zusammenfassung**

Verschiedene Versuche haben gezeigt, dass bei der Auswaschung von Stoffen aus porösen Medien (PM) die Konzentration im Sickerwasser und die ausgewaschene Fracht nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängt. Mit einer gegebenen Wassermenge wird bei niedrigen Raten mehr Stoff ausgewaschen als bei hohen. Bei gleicher Rate nimmt die Fracht mit der applizierten Wassermenge degressiv zu, da die Stoffkonzentration im Sickerwasser sinkt.

Hier wird ein mathematisches Modell hergeleitet, mit dem der Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung modelliert werden kann. Damit können die o. g. Versuchsergebnisse erklärt sowie grundsätzliche Betrachtungen zum Stofftransport, z. B. zu effektiven Auswaschungsstrategien, angestellt werden.

Das Modell basiert auf der Berechnung der Wasserdurchflussrate durch eine Pore mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung und deren Verknüpfung mit der Verteilung der Porengrößen in einem PM, die mit Hilfe der kapillaren Aufstiegsleichung aus der Wasserspannungskurve für das PM abgeleitet werden kann. Es ist die Weiterentwicklung eines früheren qualitativen Modells der Autoren, in dem einige Schwachstellen behoben wurden. So wird nun berücksichtigt, dass Poren gewunden sind, nicht den gleichen Radius über ihre gesamte Länge aufweisen und miteinander in Verbindung stehen. Letzteres ermöglicht eine Mischung der Stoffströme aus den einzelnen Poren. Wie auch das ursprüngliche Modell, ist es zunächst nur für homogene PM anwendbar und eindimensional.

Ein Vergleich dieses verbesserten Modells mit einem etablierten Modell und Versuchsdaten erfolgt in einer weiteren Veröffentlichung.

### **Summary**

Various experiments have shown that when leaching solutes out of a porous medium (PM) their concentration in the leachate not only depends on the amount of water applied, but also on the rate of water application. With a given amount of water more solutes can be leached with a low application rate than with a high one. At the same application rate the solute load

increases with the amount of water applied, but at a declining rate, because the solute concentration in the leachate decreases.

Here a mathematical model is derived, which can describe the influence of the amount of water applied and its application rate on solute leaching. It is able to explain the experimental results mentioned above and can be applied to address solute transport problems in general, e. g. to find the most effective leaching strategy for a particular situation.

The model is based on the calculation of water flow through a pore with the Hagen-Poiseuille-equation and its combination with the pore size distribution of the PM under study. With the help of the capillary rise equation the latter can be derived from the PM's moisture retention curve. The model is an extension of an earlier qualitative one by the authors with some weak points removed. It now considers that pores are tortuous, do not have the same radius throughout their course and are interconnected. The latter enables mixing of the solutions in the individual pores. Like the original model it is only applicable to a homogeneous PM and one dimensional so far.

A comparison of this improved model with an established one and experimental data will be presented in a separate paper.

## **1. Einleitung**

In mehreren experimentellen Arbeiten haben Hagenau und Borg (2003a) sowie Hagenau et al. (2005a und 2005b) gezeigt, dass bei der Stoffauswaschung aus porösen Medien (PM) die Stoffkonzentration im Sickerwasser und die ausgewaschene Fracht nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Intensität ihrer Gabe abhängt. Dabei wurden Ergebnisse von Untersuchungen zur Bodenentsalzung aufgegriffen, die bereits vor einigen Jahrzehnten durchgeführt worden waren (Nielsen et al., 1966; Leffelaar und Pal Sharma, 1977; Jury et al., 1979). In allen Fällen stellte sich heraus, dass mit einer gegebenen Wassermenge immer um so mehr eines Stoffs ausgelaugt wird, je geringer die Rate ist, mit der das Wasser appliziert wird.

Die Erklärung für die Intensitätsabhängigkeit liegt darin, dass sich der größere Teil der auswaschbaren Stoffe in den kleineren Poren befindet (Hagenau und Borg, 2003b). Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, dass kleinere Poren den größten Anteil des Porenraumes einnehmen. Zum anderen haben kleine Poren mehr Wandfläche je Porenvolumen als große. Da sich Stoffe an den Wandflächen anlagern, ist in kleinen Poren die Stoffmenge je Porenvolumen und damit letztlich die Stoffkonzentration größer. Geringere Wasserapplikationsraten sind somit effektiver, weil sie einen niedrigen Wassergehalt zur Folge haben und deshalb das Wasser durch kleinere Poren fließt, in denen sich viel Stoff befindet. Bei höheren Raten

werden dann größere Poren zum Wassertransport benötigt, die sehr viel Wasser leiten können, aber relativ wenig Stoff enthalten.

Hagenau und Borg (2003b) entwickelten ein eindimensionales Stofftransportmodell, in dem porengrößenabhängige Stoffkonzentrationen in einem PM berücksichtigt werden können und mit dem dann der Einfluss der applizierten Wassermenge und deren Applikationsrate auf die Stoffauswaschung qualitativ nachvollzogen werden kann. Das Modell weist jedoch einige Schwachstellen auf, die letztlich dafür verantwortlich sind, dass nur qualitative Betrachtungen durchgeführt werden können. So beachtet es u. a. nicht, dass Poren gewunden sind (Tortuosität) und nicht den gleichen Radius über ihre gesamte Länge aufweisen. Das hat bei einem gegebenen Wassergehalt zu hohe Durchflussraten im Vergleich zur Realität und daher zu kurze Durchflusszeiten zur Folge. Weiterhin wird nicht berücksichtigt, dass die Poren miteinander in Verbindung stehen. Eine Vermischung der Stoffströme aus den einzelnen Poren ist daher nicht möglich. Das führt wiederum dazu, dass die Zeit bis zur kompletten Auslaugung stark überschätzt wird, und zwar um so mehr, je kleiner eine Pore ist. Somit werden rechnerisch auch erheblich höhere Wassermengen zur Auswaschung benötigt als in der Realität.

Hier wird nun ein verbessertes (weiterhin eindimensionales) Modell vorgestellt, das auf dem gleichen grundlegenden Ansatz basiert, aber in dem sowohl die Tortuosität berücksichtigt wird, als auch, dass Poren keinen gleichbleibenden Radius haben und miteinander verbunden sind. Wie auch das ursprüngliche Modell, ist es zunächst nur für homogene PM anwendbar. Für grundsätzliche Betrachtungen zur Stoffauswaschung bei unterschiedlichen Beregnungsraten ist das aber keine wesentliche Einschränkung.

Ein Vergleich dieses verbesserten Modells mit einem etablierten Modell und Versuchsdaten erfolgt in einer weiteren Veröffentlichung (Hagenau und Borg, 2006).

## **2. Herleitung des Modells**

### **2.1 Grundlegender Ansatz**

Wie auch schon im ursprünglichen Modell von Hagenau und Borg (2003b), beruht der grundlegende Ansatz auf der Berechnung der Wasserdurchflussrate durch eine Pore mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung und deren Verknüpfung mit der Verteilung der Porengrößen in einem PM, die mit Hilfe der kapillaren Aufstiegsleichung aus der Wasserspannungskurve für das Medium abgeleitet werden kann.

Im ersten Schritt der Modellherleitung werden die Poren im zu betrachtenden Medium als ein Bündel gerader, nicht miteinander verbundener Röhrchen angesehen, deren Querschnittsflächen kreisrund und über den gesamten Verlauf jeweils gleich groß sind.

Die Wasserspannungskurve für ein PM gibt das Matrixpotential bei einem bestimmten Wassergehalt an. (Im Folgenden wird immer der volumetrische Wassergehalt betrachtet.) Es gibt mehrere Gleichungen für ihre Beschreibung (z. B. Brooks und Corey, 1966; Campbell, 1974; van Genuchten, 1980). Die einfachste ist die in Gardner et al. (1970) aufgeführte, die im Folgenden verwendet wird:

$$\Psi_m = a \theta^b \quad \text{für} \quad \Psi_m > \Psi_e \quad (1a)$$

$$\Psi_m = a \theta_s^b \quad \text{für} \quad \Psi_m \leq \Psi_e \quad (1b)$$

wobei  $\Psi_m$  = Matrixpotential (m) und  $\Psi_e$  = Lufteintrittspotential (m), die beide hier als Saugspannung angegeben werden, also als positive Werte,  $a$  (m) und  $b$  (dimensionslos) = vom PM abhängige Parameter,  $\theta$  = volumetrischer Wassergehalt ( $\text{m}^3/\text{m}^3$ ) und  $\theta_s$  = volumetrischer Wassergehalt bei Sättigung ( $\text{m}^3/\text{m}^3$ ).

Der Parameter  $b$  reflektiert die Porengrößenverteilung im Medium. Je kleiner  $|b|$ , desto gleichmäßiger sind die Porengrößen im PM. Wenn alle Poren gleich groß sind, ist  $b = 0$ . Mit zunehmender Ungleichheit wird  $|b|$  immer größer. Typische Werte sind  $b = -2$  für Sand und  $b = -15$  für ein sehr toniges PM. Weitere Informationen zu dem Parameter  $b$  sind in den Kapiteln 2 und 5 von Campbell (1985) zu finden.

Mit der kapillaren Aufstiegsgleichung (Hartge und Horn, 1991) kann für jedes  $\Psi_m$  der Radius der jeweils größten wassergefüllten Pore ( $r_{\max}$  in m) berechnet werden. Umgestellt nach  $r_{\max}$  lautet sie:

$$r_{\max} = \frac{2\sigma}{\rho g \Psi_m} \cos \varphi \quad (2)$$

wobei  $\sigma$  = Oberflächenspannung des Wassers (N/m),  $\rho$  = Dichte des Wassers ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),  $g$  = Fallbeschleunigung ( $\text{m}/\text{s}^2$ ) und  $\varphi$  = Kontaktwinkel zwischen Wasser und Porenwand, der hier mit  $0^\circ$  angesetzt wird, so dass  $\cos \varphi = 1$ . Für  $\rho$  und alle später noch aufgeführten temperaturabhängigen Parameter werden hier stets die Werte für  $20^\circ\text{C}$  angesetzt. Nach Einsetzen von Gleichung 1a in Gleichung 2 erhält man:

$$r_{\max} = \frac{2\sigma}{\rho g a \theta^b} \quad (3)$$

womit  $r_{\max}$  in Beziehung zum Wassergehalt gesetzt werden kann.

Für die Durchflussrate durch eine Pore mit Radius  $r_i$  ( $Q_i$  in  $\text{m}^3/\text{s}$ ) gilt nach der Hagen-Poiseuille-Gleichung:

$$Q_i = \frac{\rho g \pi r_i^4}{8\nu} \frac{d\Psi}{dz} \quad (4)$$

wobei  $\nu$  = dynamische Viskosität des Wassers (kg/m/s),  $\Psi$  = Wasserpotential (m), wiederum ausgedrückt als Saugspannung, und  $z$  = Entfernung (m). Zur Vereinfachung wird im Folgenden angenommen, dass der Wasserfluss ausschließlich von der Schwerkraft angetrieben wird und daher  $d\Psi/dz = 1$  ist. In einem PM sind Poren in der Regel nicht rund. Unter  $r$  ist daher hier ein „äquivalenter Radius“ zu verstehen, d. h. der Radius einer runden Pore, die unter sonst gleichen Bedingungen den gleichen Durchfluss zulässt wie die tatsächliche Pore.

Teilt man Gleichung 4 mit  $d\Psi/dz = 1$  durch die Querschnittsfläche der Pore ( $A_i = \pi r_i^2$  in  $m^2$ ) erhält man die Durchflussrate pro Flächeneinheit (Flux,  $q_i$  in m/s):

$$q_i = \frac{Q_i}{A_i} = \frac{\rho g r_i^2}{8\nu} \quad (5)$$

Um den Flux durch die wassergefüllten Poren des PM ( $q$  in m/s) bezogen auf die Querschnittsfläche des PM (Poren + Matrix,  $A_g$  in  $m^2$ ) zu erhalten, muss man  $q_i$  für jede am Fließgeschehen beteiligte Pore mit dem Flächenanteil dieser Pore an der Querschnittsfläche des PM, also  $A_i/A_g$ , multiplizieren und die Resultate summieren.

$$q = \sum q_i = \sum \left( \frac{\rho g r_i^2}{8\nu} \frac{A_i}{A_g} \right) \quad (6)$$

Die Verteilung der Porenradien in einem PM lässt sich durch eine Funktion  $f(r)$  beschreiben, die integriert über die Radien aller wassergefüllten Poren den entsprechenden volumetrischen Wassergehalt  $\theta$  ergibt (Childs und Collis-George, 1950; Campbell, 1974):

$$\theta = \int_0^r f(r) dr \quad (7)$$

Aus der Ableitung von Gleichung 7 nach  $r$  folgt:

$$d\theta = f(r) dr = A_i/A_g \quad (8)$$

Mit den Gleichungen 3, 5 und 8 erhält man dann in Integralform:

$$q = \int_{r_0}^{r_{\max}} q_i f(r) dr = \int_{r_0}^{r_{\max}} \frac{\rho g r_i^2}{8\nu} f(r) dr = \frac{\sigma^2}{2\nu \rho g a^2} \int_{\theta_0}^{\theta} \theta^{-2b} d\theta = \frac{\sigma^2}{2\nu \rho g a^2} \frac{1}{-2b+1} (\theta^{-2b+1} - \theta_0^{-2b+1}) \quad (9)$$

In sehr kleinen Poren werden Wassermoleküle aufgrund so genannter elektroviskoser Effekte so fest gebunden, dass sie durch in einem PM natürlicherweise vorkommende Potenti-

algradienten nicht mehr bewegt werden können (Low, 1961). Der Radius, ab dem das eintritt, wird hier  $r_0$  genannt, der korrespondierende Wassergehalt  $\theta_0$ . Poren mit  $r < r_0$  nehmen also nicht am Fließgeschehen teil. Dementsprechend wird in Gleichung 9 als Untergrenze der Integration  $r_0$  bzw.  $\theta_0$  eingesetzt. Nach Miller und Low (1963) ist  $r_0 \leq 3 \cdot 10^{-9}$  m. Der dazugehörige Wert von  $\theta_0$  für das PM kann durch Umstellung von Gleichung 3 berechnet werden. In den späteren Betrachtungen wird  $r_0 = 3 \cdot 10^{-9}$  m verwendet.

## 2.2 Tortuosität und nicht konstante Porenradien

Gleichung 9 gilt für gerade Poren, die über ihre gesamte Länge den gleichen (äquivalenten) Radius haben. In einem natürlichen PM, z. B. einem Boden, sind die Poren aber nicht gerade, sondern gewunden und ihr Radius ist nicht konstant. Die Gewundenheit der Poren wird Tortuosität genannt und als das Verhältnis von tatsächlichem Fließweg zwischen zwei Punkten zu direkter Entfernung zwischen diesen Punkten definiert (Hillel, 1998).

Nach Childs und Collis-George (1950) gibt der Ausdruck  $f(r)dr$  in Gleichung 7 bzw. 8 die Wahrscheinlichkeit an, eine Pore mit Radius  $r$  anzutreffen. Wenn man ein PM durchschneidet, gibt also  $f(r)dr$  die Wahrscheinlichkeit an, auf der einen Schnittseite eine Pore mit Radius  $r$  anzutreffen. Die Wahrscheinlichkeit eine Pore mit gleichem Radius auf der anderen Schnittseite anzutreffen ist ebenfalls  $f(r)dr$ . Die Wahrscheinlichkeit eine Pore mit durchgehendem Radius anzutreffen ist daher das Produkt  $f(r)dr f(r)dr$ . Wird das in Gleichung 9 berücksichtigt, erhält man:

$$\begin{aligned}
 q &= \int_{r_0}^{r_{\max}} \int_{r_0}^{r_{\max}} q_i f(r)dr f(r)dr = \int_{r_0}^{r_{\max}} \int_{r_0}^{r_{\max}} \frac{\rho g r_i^2}{8v} f(r)dr f(r)dr = \frac{\sigma^2}{2v \rho g a^2} \int_{\theta_0}^{\theta} \int_{\theta_0}^{\theta} \theta^{-2b} d\theta d\theta \\
 &= \frac{\sigma^2}{2v \rho g a^2} \frac{1}{(-2b+1)(-2b+2)} (\theta^{-2b+2} - \theta_0^{-2b+2}) \quad (10)
 \end{aligned}$$

Eine Gegenüberstellung mit der Darcy-Gleichung ( $q = k d\Psi/dz$ ) zeigt, dass bei einem Gradienten von  $d\Psi/dz = 1$ , wie hier angenommen, Gleichung 10 die hydraulische Leitfähigkeit ( $k$ ) eines porösen Mediums bei einem Wassergehalt von  $\theta$  berechnet, da in diesem Fall  $q = k$ .

Childs und Collis-George (1950) und später Campbell (1974) glaubten auf die eben gezeigte Weise nicht nur Variationen im Radius einer Pore, sondern auch deren Gewundenheit, also ihre Tortuosität erfasst zu haben. Ein von uns durchgeführter Vergleich von gemessenen und mit Gleichung 10 berechneten hydraulischen Leitfähigkeiten für 40 verschiedene PM ergab jedoch, dass die Tortuosität in 31 der 40 PM erst dann gänzlich erfasst ist, wenn die Exponenten der Wassergehalte in Gleichung 10 um 1 erhöht werden. Damit erhält man:

$$q = \frac{\sigma^2}{2\nu \rho g a^2} \frac{1}{(-2b+1)(-2b+2)} (\theta^{-2b+3} - \theta_0^{-2b+3}) \quad (11)$$

Setzt man typische Werte für  $b$  und  $\theta_0$  für verschiedene PM ein, zeigt sich, dass der  $\theta_0$ -Term sich erst dann nennenswert auf  $q$  auswirkt, wenn  $\theta < \theta_0 + 0,001$  bei einem grobkörnigen PM ( $b = -2$ ,  $\theta_0 = 0,001$ ) bzw.  $\theta < \theta_0 + 0,02$  bei einem sehr feinkörnigen PM ( $b = -15$ ,  $\theta_0 = 0,26$ ). Bei diesen Wassergehalten ist der Durchfluss aber bereits vernachlässigbar gering. Bei höheren Wassergehalten ist der  $\theta_0$ -Term um mehrere Zehnerpotenzen kleiner als der  $\theta$ -Term. Aus diesen Gründen wird er im Folgenden gleich Null gesetzt.

Gleichung 11 wird im Modell verwendet, um für eine Berechnungsrate  $q_{ap}$ , die in das Modell eingegeben werden muss, den Wassergehalt zu berechnen, der sich bei dieser Rate letztlich im PM einstellt ( $\theta_{ap}$ ).

Die Ableitung von Gleichung 11 nach  $\theta$  ergibt den Flux  $q_i$  durch eine (oder mehrere) Pore(n) mit Radius  $r$  an der betrachteten Schnittfläche, der später für die Berechnung von Durchflusszeiten durch einzelne Poren(größen) gebraucht wird.

$$q_i = \frac{\sigma^2}{2\nu \rho g a^2} \frac{(-2b+3)}{(-2b+1)(-2b+2)} \theta^{-2b+2} \Delta\theta \quad (12)$$

### 2.3 Durchmischung

Bisher wurden die Poren in allen Gleichungen als durchgängig und nicht miteinander verbunden betrachtet. In einem realen Medium sind sie aber nicht immer durchgängig und es gibt Verbindungen zwischen den einzelnen Poren. Die Verbindungen ermöglichen einen Stofftransport zwischen den Poren durch Diffusion und Massenfluss. Letzteres tritt u. a. dann in Erscheinung, wenn die senkrechte Wasserbewegung (und damit verbunden der Stofftransport) in einer Pore durch eine Verengung behindert ist (oder die Pore endet) und es einen leichter gangbaren Weg in nicht senkrechter Richtung gibt. Je häufiger ein Stofftransport zwischen Poren stattfindet, desto mehr werden die Stoffströme in den verschiedenen großen Poren gemischt und desto geringer sind die Dispersion und damit die Konzentrationsunterschiede über den Verlauf der Fließstrecke. Mit zunehmender Durchmischung dauert es länger, bis es zu einer Konzentrationserhöhung am unteren Säulenende kommt. Wenn sie dann eintritt, ist sie aber um so deutlicher.

Um die Durchmischung zu simulieren, wird das PM hier in mehrere gleich lange Abschnitte aufgeteilt. Die Festlegung der Anzahl der Abschnitte, die im Folgenden Mischungszahl  $z_m$  genannt wird, wird in Hagenau und Borg (2006) näher betrachtet. Für jeden Abschnitt werden dann Berechnungen für ganzzahlige Vielfache eines Zeitschritts  $\Delta t_m$  durchgeführt. Dabei

wird für  $\Delta t_m$  die Zeit zugrunde gelegt, ab der sich nach Beginn des Stoffeintrags eine Konzentrationsänderung am unteren Ende des Abschnitts zeigt. Das ist die Zeit, die das Wasser in der größten am Durchfluss beteiligten Pore braucht, um vom oberen zum unteren Ende des Abschnitts zu gelangen.

Die Zeit  $\Delta t_m$  ergibt sich demnach als der Quotient aus Durchflussgeschwindigkeit  $v_i$  und Länge  $L_i$  dieser Pore, d. h. als  $\Delta t_m = L_i/v_i$ . Da  $v_i = q_i/\Delta\theta$ , kann diese Zeit als Funktion des Wassergehaltes geschrieben werden. Unter Verwendung von Gleichung 12 für  $q_i$  erhält man:

$$\Delta t_m = \frac{L_i}{v_i} = \frac{\Delta\theta}{q_i} L_i = \frac{2v \rho g a^2}{\sigma^2} \frac{(-2b+1)(-2b+2)}{(-2b+3)} \theta^{2b-2} L_i \quad (13)$$

Die Stoffkonzentration des zu Beginn eines Zeitschritts in einem Abschnitt vorhandenen Wassers wird mit  $C_{vor}$  bezeichnet, die des im Laufe dieses Zeitschritts eingetragenen Wassers mit  $C_{ein}$ . Es wird zunächst angenommen, dass zu Beginn des Stoffeintrags am oberen Ende des betrachteten PM in jedem Abschnitt bereits der Wassergehalt  $\theta$  vorliegt, der sich bei der gewählten Berechnungsrate einstellt ( $\theta = \theta_{ap}$ ).

Über einen Zeitraum  $\Delta t_m$  infiltriert bei konstanter Berechnungsrate  $q$  eine Wassermenge  $V_{ein}$  (in  $m^3/m^2$  PM) mit einer Stoffkonzentration  $C_{ein}$  in einen Abschnitt. Dadurch wird eine gleich große Wassermenge mit der Stoffkonzentration  $C_{vor}$  aus diesem Abschnitt in den darunterliegenden verdrängt usw., bis zum letzten Abschnitt, nach dem das Wasser das betrachtete PM verlässt. Die Konzentration der verdrängten Lösung ( $C_{vor}$ ) ist gleichzeitig die Konzentration der in den nächsten Abschnitt infiltrierenden Lösung ( $C_{ein}$ ). Es wird angenommen, dass sich die eingetragene Lösung über den Zeitraum  $\Delta t_m$  völlig mit der noch in dem Abschnitt verbliebenen ursprünglichen Lösung vermischt und eine neue Mischungskonzentration ( $C_{lm}$ ) entsteht, die überall im Abschnitt gleich ist. Für den nächsten Zeitschritt stellt sie das neue  $C_{vor}$  für einen Abschnitt bzw. das neue  $C_{ein}$  für den darunterliegenden Abschnitt dar. Für den obersten ( $n = 0$ ) wird davon ausgegangen, dass  $C_{ein}$  der Konzentration der applizierten Lösung ( $C_0$ ) entspricht. (Der Index  $l$  in  $C_{lm}$  soll anzeigen, dass es sich hier um die Mischung gelöster Stoffe handelt. Wie im Abschnitt Retardation noch dargelegt werden wird, können auch gebundene Stoffe auftreten.)

Die über den Zeitraum  $\Delta t_m$  in einen Abschnitt eingetragene Stoffmenge ist das Produkt aus der bis dato infiltrierten Wassermenge  $V_{ein} = q \Delta t_m$  und der Stoffkonzentration in der infiltrierenden Lösung  $C_{ein}$ . Zur Berechnung von  $q$  kann Gleichung 11 und von  $\Delta t_m$  Gleichung 13 herangezogen werden. Bei der Multiplikation der beiden Gleichungen kürzen sich die Konstanten im jeweils ersten Bruch vollständig heraus und von den  $b$ -Termen im jeweils zweiten



Bruch bleibt nur  $1/(-2b+3)$  übrig. Wird der  $\theta_0$ -Term gleich Null gesetzt (siehe oben), verbleibt von den Wassergehaltstermen lediglich ein  $\theta$  und für  $V_{\text{ein}}$  ergibt sich:

$$V_{\text{ein}} = \frac{1}{-2b+3} \theta L_a \quad (14)$$

Die insgesamt in einem Abschnitt vorhandene Wassermenge  $V_g$  ist das Produkt des Wassergehaltes ( $\theta$ ) und der Länge des Abschnitts ( $L_a$ ), so dass  $V_g = \theta L_a$ . Teilt man Gleichung 14 durch diesen Ausdruck erhält man den relativen Anteil eingetragener Lösung mit der Stoffkonzentration  $C_{\text{ein}}$  an der gesamten Wassermenge im Abschnitt, im Folgenden  $F_{\text{ein}}$  genannt:

$$F_{\text{ein}} = \frac{V_{\text{ein}}}{V_g} = \frac{V_{\text{ein}}}{\theta L_a} = \frac{1}{-2b+3} \quad (15)$$

Für den relativen Anteil an Wasser mit der Konzentration  $C_{\text{vor}}$  ( $F_{\text{vor}}$ ) gilt dann:

$$F_{\text{vor}} = 1 - F_{\text{ein}} = 1 - \frac{1}{-2b+3} = \frac{-2b+2}{-2b+3} \quad (16)$$

da die Summe der beiden Anteile genau 1 ergeben muss.

Die Stoffkonzentration in einem Abschnitt nach dem Zeitraum  $\Delta t_m$  (Mischungskonzentration  $C_{\text{Im}}$ ) wird dann wie folgt berechnet:

$$C_{\text{Im}} = F_{\text{ein}} C_{\text{ein}} + (1 - F_{\text{ein}}) C_{\text{vor}} \quad (17)$$

Die Gleichungen 15 und 16 besagen, dass nach der Zeit  $\Delta t_m$  die Anteile von  $F_{\text{ein}}$  und  $F_{\text{vor}}$  innerhalb eines Abschnitts ausschließlich von der Porengrößenverteilung abhängig sind, die im Parameter  $b$  zum Ausdruck kommt. Es ist also völlig unerheblich, welcher Wassergehalt vorliegt, wie groß die Beregnungsrate oder ein Abschnitt ist, die Anteile sind immer gleich. Weiterhin besagen die beiden Gleichungen, dass mit einem steigenden  $|b|$ , also zunehmender Feinkörnigkeit des Mediums,  $F_{\text{ein}}$  kleiner und  $F_{\text{vor}}$  entsprechend größer wird. Zum Beispiel ergibt sich bei  $b = -2$ , dass  $F_{\text{ein}} = 1/7$  und  $F_{\text{vor}} = 6/7$ , bei  $b = -10$  folgt  $F_{\text{ein}} = 1/23$  und  $F_{\text{vor}} = 22/23$ .

Die Größe von  $F_{\text{ein}}$  reflektiert den Grad der Dispersion im PM: Je mehr Dispersion, desto kleiner ist  $F_{\text{ein}}$ . Wie aus den o. g. Werten hervorgeht, nimmt sie mit zunehmender Feinkörnigkeit des Mediums zu.

Dispersion entsteht durch unterschiedlich lange Fließwege, da Poren meist verschieden stark gewunden sind, durch unterschiedliche mittlere Fließgeschwindigkeiten, da Poren unterschiedliche Radien haben, die zudem innerhalb einer Pore variieren können, sowie durch

die höheren Fließgeschwindigkeiten in der Mitte der Poren im Vergleich zum Rand, wobei letzteres nur sehr wenig zur Dispersion insgesamt beiträgt. Selbst in einem Medium, in dem alle Poren den gleichen Radius ( $b = 0$ ) haben und der darin auf gleiche Weise variiert, gibt es demnach Dispersion. Das ist aus Gleichung 15 ersichtlich, wo für  $b = 0$  dann  $F_{\text{ein}} = 1/3$  resultiert. Die Ursache für Dispersion liegt in einem solchen Medium im Wesentlichen in der unterschiedlichen Gewundenheit der Poren (Tortuosität), die in die Überlegungen eingeflossen ist, die letztlich in Gleichung 15 münden.

Wenn die Poren nicht nur den gleichen Radius (und die gleiche Radiusvariation) haben, sondern auch gerade (oder gleich gewunden) sind, gibt es keine nennenswerte Dispersion. Die unterschiedliche Geschwindigkeitsverteilung innerhalb einer Pore ist zwar immer noch vorhanden, so dass es Dispersion gibt, aber sie fällt nicht ins Gewicht (s. o.). Wären die Betrachtungen, die in Gleichung 15 münden, mit der anfangs benutzten Annahme fortgesetzt worden, dass alle Poren gerade sind und über ihren gesamten Verlauf jeweils einen konstanten Radius haben, hätte Gleichung 15 letztlich  $F_{\text{ein}} = 1/(-2b+1)$  gelautet. Daraus resultiert für  $b = 0$  der Wert  $F_{\text{ein}} = 1$ , was auch mathematisch zum Ausdruck bringt, dass in einem PM mit in jeder Hinsicht gleichen Poren keine (nennenswerte) Dispersion auftritt.

Der Zeitschritt für die Berechnungen mit dem hier vorgestellten Modell kann nicht willkürlich gewählt werden, sondern muss für korrekte Ergebnisse immer gleich der Durchflusszeit für die größte Pore im Abschnitt sein ( $\Delta t_m$ ). Die Anteile von  $F_{\text{ein}}$  und  $F_{\text{vor}}$  ändern sich in einem homogenen PM nicht mit der Zeit und sind außerdem für jeden Abschnitt gleich. Sie müssen daher nur einmal berechnet werden. Mit jedem Zeitschritt ändern sich aber die Konzentrationen in einem Abschnitt. Gemäß den oben gemachten Ausführungen entspricht die Stoffkonzentration der Lösung, die nach  $t$ -Zeitschritten in einen Abschnitt  $n$  infiltriert, der Mischungskonzentration, die sich nach  $t-1$ -Zeitschritten im darüberliegenden Abschnitt  $n-1$  ausgebildet hat, also  $(C_{\text{ein}})_n^t = (C_{\text{lm}})_{n-1}^{t-1}$ . Die Stoffkonzentration, die nach  $t$ -Zeitschritten in einem Abschnitt  $n$  vorliegt, entspricht der Mischungskonzentration, die sich nach  $t-1$ -Zeitschritten im Abschnitt  $n$  eingestellt hat, also  $(C_{\text{vor}})_n^t = (C_{\text{lm}})_n^{t-1}$ . Damit wird aus Gleichung 17:

$$(C_{\text{lm}})_n^t = F_{\text{ein}}(C_{\text{lm}})_{n-1}^{t-1} + (1 - F_{\text{ein}})(C_{\text{lm}})_n^{t-1} \quad (18)$$

Da beim Austreten der Lösung aus dem untersten betrachteten Abschnitt ( $n_u$ ) des PM keine Vermischung mehr stattfindet, gilt für die Drainagelösung  $(C_{\text{lm}})_{\text{Dr}}^t = (C_{\text{lm}})_{n_u}^{t-1}$ .

## 2.4 Porengrößenabhängige Stoffkonzentration

Wie schon im Ansatz von Hagenau und Borg (2003b), wird davon ausgegangen, dass die anfangs im PM enthaltene Stoffmenge proportional zur Wandfläche der einzelnen Poren verteilt ist. Diese Annahme ist realistisch, wenn der fragliche Stoff natürlicherweise schon in einer entsprechenden Verteilung vorliegt (z. B. in Abraumhalden aus dem Bergbau), durch Mischung gut verteilt wurde (z. B. in Deponiekörpern, da Abfälle im Zuge des Sammelns, Transportes und Einbaus durchmischt werden), beim Eintrag gut verteilt wurde (z. B. durch Schäden in Tanks oder Leitungen kontaminierte Böden, wo alle Poren des PM von einer damit belasteten Flüssigkeit durchflossen wurden) oder lange genug Zeit hatte, sich durch Diffusion zu verteilen. Sie ist nicht gültig für Stoffe, die nur unter bestimmten Bedingungen im PM gebildet werden, z. B. Nitrat im Boden, das vorwiegend in nicht wassergefüllten, also größeren Poren gebildet wird (Myers et al., 1982).

Die Wandfläche einer Pore ( $A_{oi}$ ) ist das Produkt aus Umfang ( $2\pi r_i$ ) und Länge der Pore. Wie in Hagenau und Borg (2003b) erläutert, werden durch Tortuosität bedingte Unterschiede in der Länge der einzelnen Poren bereits in der Wasserspannungskurve erfasst. Für alle Poren muss daher die gleiche Länge, nämlich die des PM ( $L$ ) bzw. die Länge des Abschnitts ( $L_a$ ) verwendet werden. Führt man einen Faktor  $\beta$  ( $\text{kg/m}^2$ ) ein, der die Stoffmenge angibt, die je Einheit Wandfläche angelagert werden kann, erhält man für die Stoffmenge in einer Pore ( $S_i$  in kg):

$$S_i = A_{oi} \beta = 2\pi r_i L \beta \quad (19)$$

Dabei hängt  $\beta$  vom Stoff und von den sorptiven Eigenschaften des PM ab. Teilt man Gleichung 19 durch  $A_i = \pi r_i^2$  erhält man die Stoffmenge pro Querschnittsfläche der Pore ( $s_i$  in  $\text{kg/m}^2$ ) als:

$$s_i = \frac{S_i}{A_i} = \frac{2L\beta}{r_i} \quad (20)$$

Nach Gleichung 20 wird  $s_i$  umso größer, je kleiner  $r_i$  wird. Stoffe können aber nur in Poren angelagert werden, in die sie auch eindringen können. Dazu muss der Radius der Pore größer sein als der des Stoffs. Der Radius der kleinsten Pore, in die ein Stoff eindringen kann, wird im Folgenden mit  $r_{\min}$  bezeichnet. Analog zur Integration der  $q_i$  zu  $q$  ergibt sich mit  $r_{\min}$  die Stoffmenge je Einheit Querschnittsfläche des PM ( $s$  in  $\text{kg/m}^2$ ) aus den Gleichungen 3, 8 und 20 als:

$$s = \int_{r_{\min}}^r s_i f(r) dr = \int_{r_{\min}}^r \frac{2L\beta}{r_i} f(r) dr = \frac{L\beta\rho g a}{\sigma} \int_{\theta_{\min}}^{\theta} \theta^b d\theta = \frac{L\beta\rho g a}{\sigma} \left( \frac{\theta^{b+1}}{b+1} - \frac{\theta_{\min}^{b+1}}{b+1} \right) \quad (21)$$

Da verschiedene Stoffe auch unterschiedlich groß sind, gibt es kein  $r_{\min}$  das für alle zutrifft. Viele haben Radien zwischen  $1 \cdot 10^{-10}$  und  $1 \cdot 10^{-9}$  m. Berücksichtigt man, dass für eine behinderungsfreie Stoffbewegung der Radius der Pore deutlich größer sein sollte als der des Stoffs, ist  $r_{\min} = 3 \cdot 10^{-9}$  m ein realistischer Wert. Das entspricht dem Wert für  $r_0$ , was die Modellbetrachtungen dahingehend vereinfacht, dass alle Poren, die diese Stoffe enthalten können, auch durchströmt werden können.

Bei  $\theta = \theta_s$  wird mit Gleichung 21 die gesamte Stoffmenge in einem PM ( $s_g$ ) berechnet, bei geringeren Wassergehalten eine entsprechend kleinere Stoffmenge ( $s$ ). Mit  $L = L_a$  gilt das Gleiche für einen Abschnitt des PM.

Bild 1 zeigt die Gesamtstoffmenge als Funktion der Porengröße, dargestellt anhand der entsprechenden Wassergehalte, für zwei PM mit verschiedenen  $b$ -Werten (-2 und -3), aber sonst gleichen Eigenschaften ( $r_{\min} = 3 \cdot 10^{-9}$  m,  $L = 1$  m,  $\beta = 0,1$  mg Stoff /  $m^2$  Porenwandfläche,  $a = 1$  cm,  $\theta_s = 0,5$ ). Die den Porengrößen entsprechenden Wassergehalte wurden durch Umstellung von Gleichung 3 berechnet. Der niedrigere  $|b|$  hat aufgrund des geringeren Anteils kleinerer Poren eine kleinere Gesamtstoffmenge zur Folge ( $95 \text{ g/m}^2$  gegenüber  $422,7 \text{ g/m}^2$ ). Des Weiteren ist  $\theta_{\min}$  (berechnet mit nach  $\theta$  umgestellter Gleichung 3) beim kleineren  $|b|$  geringer, so dass die Kurve weiter links auf der  $x$ -Achse beginnt. In beiden PM sind in der Hälfte des Porenraums ( $\theta = 0,25$ ) mit  $94,75$  bzw.  $421,9 \text{ kg/m}^2$  schon  $99,7$  bzw.  $99,8\%$  der gesamten Stoffmenge enthalten. Bei  $\theta = 0,125$  sind es noch  $94,2$  bzw.  $418,6 \text{ g/m}^2$  und damit  $99,1$  bzw.  $99\%$ .

Für grundsätzliche Betrachtungen mit dem Modell, z. B. in Hinblick auf seine eigentliche Intention, die Effektivität der Stoffauswaschung in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und Applikationsrate zu ergründen, ist die genaue Stoffmenge im PM nicht entscheidend. Man kann daher einen Wert für  $\beta$  annehmen, der realistische Stoffmengen im PM zur Folge hat.

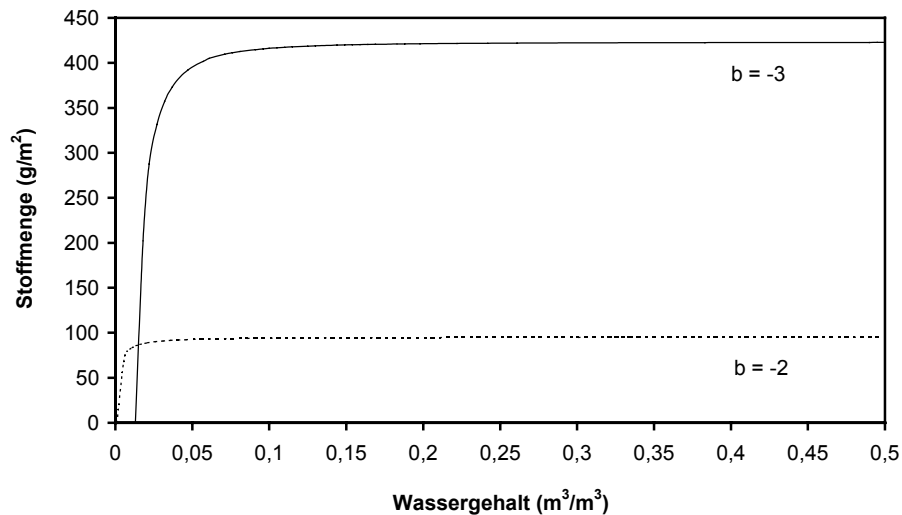
Alternativ kann man einen Wert für  $s_g$  annehmen (oder für ein konkretes PM experimentell bestimmen) und dann die Stoffmenge als Funktion von  $\theta$  wie folgt berechnen: Das Verhältnis von  $s$  zu  $s_g$  wird als  $s_{\text{rel}} = s/s_g$  ausgedrückt. Dann wird für  $s$  Gleichung 21 und für  $s_g$  Gleichung 21 mit  $\theta = \theta_s$  eingesetzt wird. Daraus ergibt sich:

$$s_{\text{rel}} = \frac{s}{s_g} = \frac{\theta^{b+1} - \theta_{\min}^{b+1}}{\theta_s^{b+1} - \theta_{\min}^{b+1}} \quad (22)$$

Umgestellt nach  $s$  folgt daraus:

$$s = s_{\text{rel}} s_g = \frac{\theta^{b+1} - \theta_{\text{min}}^{b+1}}{\theta_s^{b+1} - \theta_{\text{min}}^{b+1}} s_g \quad (23)$$

Diese Gleichung hat den Vorteil, dass sich sämtliche Konstanten, die in Gleichung 21 enthalten sind, ebenso wie  $L$  bzw.  $L_a$  herauskürzen. Durch Umstellen von Gleichung 21 kann dann rückwirkend  $\beta$  bestimmt werden.



**Bild 1:** Gesamtstoffmenge als Funktion der Porengröße, dargestellt anhand der entsprechenden Wassergehalte, für zwei PM mit verschiedenen  $b$ -Werten aber sonst gleichen Eigenschaften. Die den Porengrößen entsprechenden Wassergehalte wurden durch Umstellung von Gleichung 3 berechnet.

Liegt im PM bzw. einem Abschnitt davon nun ein Wassergehalt  $\theta$  vor, ergibt sich die durchschnittliche Stoffkonzentration in den wassergefüllten Poren darin als Quotient der Stoffmenge ( $s$ ) und der Wassermenge ( $\theta L_a$ ) im Abschnitt:

$$(C_{\text{Im}})_n^0 = C_{\text{vor}} = \frac{s}{\theta L_a} \quad (24)$$

Dieser Ausdruck gilt für alle Abschnitte bis zum Zeitpunkt, an dem eine Stoffverlagerung beginnt oder sich der Wassergehalt ändert. Es wird hier zunächst (bis zum Abschnitt 2.6) noch angenommen, dass sich in jedem Abschnitt nach dem Lösen der in den wassergefüllten Poren angelagerten Stoffe und nach deren Vermischung eine Konzentration einstellt, die in all diesen Poren gleich groß ist.

Für das feinkörnigere Medium in Bild 1 ( $b = -3$ ) ergibt sich bei Wassersättigung ( $\theta_s = 0,5$ ) nach Gleichung 24  $C_{\text{vor}} = 845,4 \text{ mg/l}$ . Ist der Wassergehalt geringer, wird zwar eine kleinere Stoffmenge gelöst (Gleichung 21 und Bild 1), aber die Verringerung der gelösten Stoffmenge

ist wesentlich kleiner als die Verringerung des Wassergehaltes. Bei  $\theta = 0,25$  werden z. B. noch 99,8% der Gesamtstoffmenge gelöst, aber in nur der Hälfte der Wassermenge. Dementsprechend ergibt sich nach Gleichung 24 nun  $C_{\text{vor}} = 1.687 \text{ mg/l}$ , also eine fast doppelt so hohe Konzentration. Bei  $\theta = 0,125$ , wobei genau 99% der Gesamtstoffmenge gelöst werden (Bild 1), ist sie mit  $C_{\text{vor}} = 3.348 \text{ mg/l}$  noch wesentlich höher. Diese Aussagen gelten analog für Medien mit anderen  $b$ -Werten. Diese Berechnungen deuten schon an, dass geringere Berechnungsraten, die kleinere Wassergehalte zur Folge haben, eine höhere Auswaschungseffektivität bewirken.

## 2.5 Retardation

In einem PM kann die Lösung oder Verlagerung eines Stoffs durch verschiedene Prozesse behindert werden, z. B. Absorption, Adsorption, Fällung oder Ionenaustausch. Sie können einerseits dazu führen, dass nur ein Teil der nach Gleichung 24 theoretisch löslichen Stoffmenge in einer Pore tatsächlich in Lösung geht. Andererseits können sie belastetem Wasser auch Stoff entziehen, so dass weniger davon weiterverlagert wird. Letzteres hat zur Folge, dass sich eine Stoffmenge, die gleichzeitig mit einer Wassermenge einem PM zugegeben wurde, langsamer verlagert als das Wasser.

Der Grad der Behinderung (Retardation) wird durch den so genannten Retardationskoeffizienten ( $R$ ) ausgedrückt. Er wird üblicherweise als das Verhältnis der mittleren Verlagerungsgeschwindigkeit von Wasser zu Stoff definiert.  $R = 1$  bedeutet, dass der Stoff genauso schnell wie das Wasser verlagert wird,  $R = 100$ , dass dies 100mal langsamer geschieht.  $R$  kann aber auch als das Verhältnis der insgesamt in einer Pore vorhandenen ( $S_g$ ) zur darin gelösten Stoffmenge ( $S_l$ ) verstanden werden, was später in Hagenau und Borg (2006) noch nachgewiesen werden wird. Es gilt dann:

$$R = \frac{S_g}{S_l} = \frac{S_l + S_a}{S_l} = 1 + \frac{S_a}{S_l} \quad (25)$$

wobei  $S_a$  = von der Matrix des PM zurückgehaltene (retardierte) Stoffmenge. Die Einheiten der  $S$ -Terme in Gleichung 25 sind  $\text{kg Stoff} / \text{kg PM}$ . Multipliziert man sie mit der Trockendichte des PM ( $\rho_t$  in  $\text{kg PM} / \text{m}^3 \text{ PM}$ ) und dividiert gleichzeitig durch den Wassergehalt ( $\theta$  in  $\text{m}^3 \text{ Wasser} / \text{m}^3 \text{ PM}$ ), wird die Stoffmenge auf die gerade im PM enthaltene Wassermenge bezogen. Man erhält also eine „Konzentration“  $C$  (in  $\text{kg Stoff} / \text{m}^3 \text{ Wasser}$ ):

$$C = S \frac{\rho_t}{\theta} \quad (26)$$

Im Falle von  $S_l$  erhält man durch diese Transformation die Masse gelösten Stoffs je Volumen Wasser ( $C_l$ ), was der üblichen Definition von Konzentration entspricht. Dagegen ergibt sich bei  $S_a$  die Masse des an die Matrix gebundenen Stoffs je Volumen Lösung ( $C_a$ ), was keine Konzentration im üblichen Sinn darstellt.  $C_g$  gibt die Summe der gelösten und an der Matrix gebundenen Stoffmenge im PM, bezogen auf das gerade vorliegende Lösungsvolumen ( $\theta_{ap}$ ) an. Verwendet man Gleichung 26 in Gleichung 25, erhält man:

$$R = \frac{C_g}{C_l} = \frac{C_l + C_a}{C_l} = 1 + \frac{C_a}{C_l} \quad (27)$$

Der Retardationskoeffizient kann also auch anhand von Konzentrationen definiert werden. Sie werden hier immer auf das gesamte Wasservolumen bezogen, obwohl Stoffe nur im Wasser in Poren mit einem Radius  $> r_{min}$  enthalten sind ( $\theta > \theta_{min}$ ). Diese Vorgehensweise wurde gewählt, da der Wert von  $r_{min}$  noch unklar und außerdem je nach Stoff verschieden ist. Wie gleich gezeigt wird, handelt es sich bei  $C_g$  um eine Mischung von zwei verschiedenen gelösten und einer gebundenen Konzentrationen, und bei  $C_l$  um eine Mischung von zwei verschiedenen gelösten Konzentrationen. Um das zum Ausdruck zu bringen, erhalten beide Variablen im Folgenden zusätzlich den Index m. Es gilt also  $C_g = C_{gm}$  und  $C_l = C_{lm}$ .

In die Berechnung der Gesamtkonzentration in einem Abschnitt zur Zeit t ( $C_{gm}$ , also der gesamten Stoffmenge darin bezogen auf  $\theta$ ) geht bei Stoffen, die retardiert werden, neben den gelösten Konzentrationen  $C_{ein}$  und  $C_{vor}$  noch die retardierte Konzentration  $C_a$  ein.  $C_{ein}$  und  $C_{vor}$  haben die Einheiten Masse gelöster Stoff / Gesamtvolumen Wasser im betrachteten Abschnitt. Weil aber jeweils nur ein Teil des gesamten Wasservolumens eine Konzentration von  $C_{ein}$  bzw.  $C_{vor}$  hat, müssen sie mit  $F_{ein}$  bzw.  $F_{vor} = 1 - F_{ein}$  multipliziert werden.  $C_a$  ist die Masse des an die Matrix gebundenen Stoffs, bezogen auf das gesamte Wasservolumen, also auf  $F_{ein} + F_{vor} = 1$ . Somit ergibt sich:

$$C_{gm} = F_{ein} C_{ein} + (1 - F_{ein}) C_{vor} + C_a \quad (28)$$

Eine Umstellung von Gleichung 27 ergibt  $C_a = (R - 1) C_{lm}$ . Außerdem entspricht dieses  $C_{lm}$  der gelösten Konzentration im betrachteten Abschnitt ( $C_{vor}$ ). Das Einsetzen dieser Beziehungen in Gleichung (28) resultiert in:

$$C_{gm} = F_{ein} C_{ein} + (1 - F_{ein}) C_{vor} + (R - 1) C_{vor} = F_{ein} C_{ein} + (R - F_{ein}) C_{vor} \quad (29)$$

Da nur gelöste Stoffe transportiert werden, braucht man letztlich einen Ausdruck für die gelöste Mischungskonzentration  $C_{lm}$ . Eine andere Umstellung von Gleichung 27 führt zu  $C_{lm} = C_{gm}/R$ . Damit wird aus Gleichung 29:

$$C_{\text{lm}} = \frac{C_{\text{g}}}{R} = \frac{F_{\text{ein}} C_{\text{ein}} + (R - F_{\text{ein}}) C_{\text{vor}}}{R} = \frac{F_{\text{ein}}}{R} C_{\text{ein}} + \left(1 - \frac{F_{\text{ein}}}{R}\right) C_{\text{vor}} \quad (30)$$

Mit Indizes für den betrachteten Abschnitt und die Zeit erhält man abschließend:

$$(C_{\text{lm}})_n^t = \frac{F_{\text{ein}}}{R} (C_{\text{lm}})_{n-1}^{t-1} + \left(1 - \frac{F_{\text{ein}}}{R}\right) (C_{\text{lm}})_n^{t-1} \quad (31)$$

Vergleicht man die Gleichungen (30) und (31) mit den äquivalenten Gleichungen (17) und (18) für Stoffe, die nicht retardiert werden, zeigt sich, dass die Retardation letztlich einfach durch das Teilen von  $F_{\text{ein}}$  durch  $R$  berücksichtigt wird. Eine Erhöhung von  $R$  führt dazu, dass die gelösten Konzentrationen ( $C_{\text{lm}}$ ) langsamer ansteigen und somit das Maximum später erreichen bzw., dass sie langsamer abfallen.

Wenn der fragliche Stoff von der Matrix retardiert wird, ist nie seine gesamte Menge in einer Pore in Lösung. Bei einer Auswaschung nimmt die gelöste Mischungskonzentration  $C_{\text{lm}}$  in einem Abschnitt mit der Zeit ab. Da  $C_{\text{a}} = (R - 1) C_{\text{lm}}$  verringert sich nach jedem Zeitschritt auch die retardierte Konzentration  $C_{\text{a}}$ . Somit kommt es letztlich zu einer Auslaugung der gesamten Stoffmenge in den wassergefüllten und stoffhaltigen Poren, sofern die Wasserapplikation lange genug andauert.

Wenn vor Beginn der Auswaschung in einem Abschnitt eine Stoffmenge  $s$  und ein Wassergehalt  $\theta$  vorliegen, dann gilt für einen Stoff, der im PM retardiert werden kann, analog zu Gleichung 24:

$$(C_{\text{lm}})_n^0 = C_{\text{vor}} = \frac{s}{\theta L_{\text{a}} R} \quad (32)$$

Es wird dann also nur der  $R$ -te Teil der Stoffmenge gelöst, die ohne Retardation in Lösung gehen würde. Mit Retardation gibt es daher gelöste und gebundene Stoffmengen bzw. Konzentrationen, ohne Retardation dagegen nur gelöste. Gleichung 32 gilt für alle Abschnitte bis zum Zeitpunkt, an dem eine Stoffverlagerung beginnt oder sich der Wassergehalt ändert.

Verwendet man Gleichung 24 (oder Gleichung 32 mit  $R = 1$ ) für einen retardierten Stoff, wird damit die gelöste plus gebundene Gesamtkonzentration  $C_{\text{gm}}$  berechnet.

## 2.6 Stoffverlagerung während der Aufsättigung eines PM

Bisher wurde davon ausgegangen, dass zu Beginn der Beregnung überall im PM bereits der Wassergehalt vorliegt, der sich bei der gewählten Beregnungsrate einstellen würde ( $\theta_{\text{ap}}$ ) und somit in allen Abschnitten die gleiche Stoffkonzentration vorliegt. Das ist in der Realität im Allgemeinen nicht zu erwarten. Der vorliegende Wassergehalt wird meist geringer sein und



nach Beginn der Beregnung allmählich auf  $\theta_{ap}$  ansteigen. Diese Aufsättigung beginnt am oberen Ende des PM und pflanzt sich dann in immer tiefer liegende Bereiche fort. Damit gehen dann auch schon Stoffverlagerungen von oben nach unten einher.

Rechnerisch wird die Verlagerung während der Aufsättigung wie folgt berücksichtigt: Die Infiltration in einen Abschnitt startet erst dann, wenn sich im darüberliegenden der Wassergehalt  $\theta_{ap}$  eingestellt hat. Die Zeit für die Aufsättigung eines Abschnitts ( $t_a$ ) errechnet sich als Quotient der Abschnittslänge  $L_a$  und der mittleren Fließgeschwindigkeit  $v = q/\theta_{ap}$ , so dass:

$$t_a = \frac{L_a}{v} = \frac{\theta_{ap} L_a}{q} \quad (33)$$

Teilt man  $t_a$ , mit Gleichung 11 für  $q$ , durch  $\Delta t_m$ , gegeben durch Gleichung 13, erhält man mit  $\theta = \theta_{ap}$  und  $L_i = L_a$  (s. o.):

$$\frac{t_a}{\Delta t_m} = \frac{\theta_{ap} L_a}{q} \frac{q_i}{\Delta \theta L_a} = -2b + 3 \quad (34)$$

Daraus folgt, dass  $t_a = (-2b+3) \Delta t_m$  und es somit  $-2b+3$  Zeitschritte dauert, bis ein Abschnitt bis zum Wassergehalt  $\theta_{ap}$  aufgesättigt ist. In unserem Modell werden Berechnungen für einen Abschnitt immer nur nach ganzzahligen Vielfachen von  $\Delta t_m$  durchgeführt, das berechnete  $t_a$  wird aber fast immer eine Dezimalzahl sein. Da gemäß dem Modellansatz die Aufsättigung eines Abschnitts erst abgeschlossen sein muss, bevor Wasser in den darunterliegenden infiltriert, wird dieser erst ab dem nächsten ganzzahligen Vielfachen von  $\Delta t_m$  in die Berechnungen einbezogen. Zum Beispiel wird bei  $t_a = 5,6 \Delta t_m$  der zweite Abschnitt nach  $6 \Delta t_m$ , der dritte nach  $2 \times 5,6 = 11,2$  also  $12 \Delta t_m$  und der vierte nach  $3 \times 5,6 = 16,8$  also  $17 \Delta t_m$  berücksichtigt.

Die in jedem Zeitschritt  $\Delta t_m$  dieser Phase aus dem vorigen Abschnitt eingetragenen Stoffmengen ( $S_{ein} = V_{ein} C_{ein}$ ) werden summiert. Dazu wird noch die ursprünglich im Abschnitt vorkommende mit Gleichung 21 bzw. 23 errechnete Ausgangsstoffmenge hinzugerechnet. Die Gesamtstoffkonzentration  $C_{gm}$ , die am Ende der Aufsättigungsphase vorliegt, wird dann mit Gleichung 24 ermittelt. Nach erfolgter Aufsättigung eines Abschnitts beginnt der Eintrag von Wasser mit der eben berechneten Stoffkonzentration in den darunterliegenden Abschnitt.

Für jeden Abschnitt gibt es also drei Phasen im Beregnungs- bzw. Auswaschungsprozess:

- die Zeit bis zum Beginn der Aufsättigung, also bis zum Wassereintrag aus dem vorigen Abschnitt;  $t \leq t_a * (n-1)$

- Aufsättigung;  $t_a * (n-1) < t \leq t_a * n$

- Auswaschung;  $t > t_a * n$

Für den obersten Abschnitt ( $n = 1$ ) entfällt die erste Phase. Die Aufsättigung für das gesamte Medium ist abgeschlossen, wenn der unterste Abschnitt aufgesättigt ist und zu entwässern beginnt, also nach  $t = t_a z_m$ .

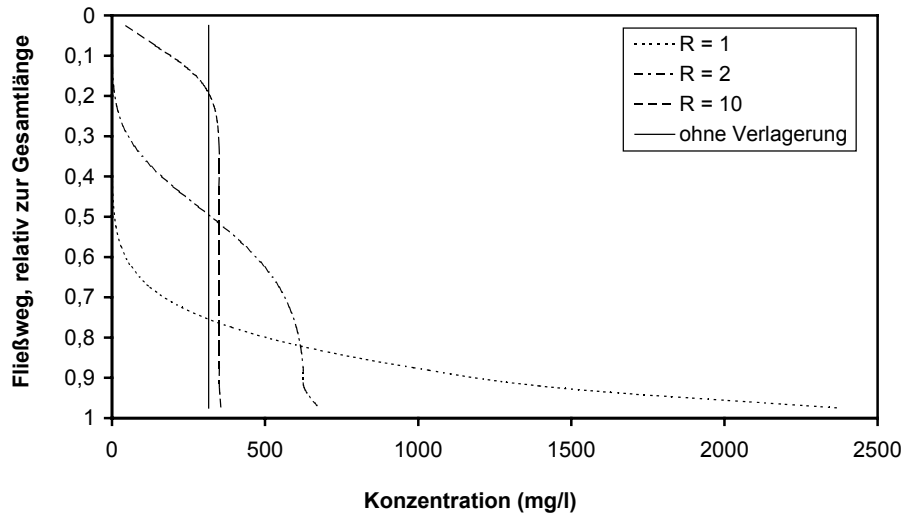
Bild 2 zeigt die Tiefenverteilung der Gesamtkonzentration  $C_{gm}$  für drei verschiedene Stoffe ( $R = 1$ ,  $R = 2$  und  $R = 10$ ) nach Aufsättigung eines anfänglich trockenen PM auf  $\theta_{ap}$  mit der gleichen ursprünglichen Stoffmenge in jedem Abschnitt unter sonst gleichen Bedingungen ( $r_{min} = r_0 = 3 \cdot 10^{-9}$  m,  $L = 1$  m,  $\beta = 0,1$  mg/m<sup>2</sup>,  $a = 1$  cm,  $b = -3$ ,  $q_{ap} = 100$  mm/h,  $\theta_{ap} = 0,438$ ,  $\theta_s = 0,5$ ). Die senkrechte Linie stellt den  $C_{gm}$ -Wert dar, der sich nach Gleichung 24 (bzw. 32 mit  $R = 1$ ) ergibt, wenn die anfangs vorhandene Stoffmenge in einer Wassermenge  $\theta_{ap}$  gelöst wird ohne dabei verlagert zu werden. Ohne Retardation ( $R = 1$ ) liegt die Stoffkonzentration im oberen Teil deutlich unter dem Wert ohne Verlagerung, in den unteren Abschnitten liegt sie dagegen um ein Vielfaches darüber. Während der Wasserbewegung von einem Abschnitt in den nächsten treten also schon so erhebliche Stoffverlagerungen auf, dass ein großer Teil der ursprünglichen Stoffmenge aus den oberen Abschnitten ausgelaugt und in die unteren verlagert wird, bevor der unterste Abschnitt entwässert. Mit zunehmender Retardation nähert sich die Konzentrationsverteilung derjenigen nach Gleichung 24. Wenn der Retardationskoeffizient sehr hoch ist ( $R \geq 100$ ), kommt es während der Aufsättigung außer im obersten Abschnitt nicht zu nennenswerten Stoffverlagerungen.

### 3. Diskussion

Ziel des hier vorgestellten verbesserten Modells ist es, die Auslaugung eines PM mit einer gegebenen Stoffbeladung bei unterschiedlichen applizierten Wassermengen und Applikationsraten als Funktion der Zeit bzw. der Drainagemenge nun quantitativ möglichst genau zu beschreiben. Die erreichbare Genauigkeit wird in Hagenau und Borg (2006) anhand eines Vergleichs mit einem anderen Modell und Versuchsdaten betrachtet werden.

Unabdingbare Voraussetzung für die Anwendung unseres Modells ist eine Wasserspannungskurve für das betrachtete PM und deren Beschreibung mit einer mathematischen Funktion. Die darauf aufbauenden Modellgleichungen sind mit der hier verwendeten Potenzfunktion am einfachsten. Grundsätzlich kann aber auch eine andere Funktion verwendet werden, solange sie die Wasserspannungskurve gut beschreibt.

Zur Berücksichtigung der Tortuosität wurde der Ansatz von Childs und Collis-George (1950)



**Bild 2:** Tiefenverteilung der Gesamtkonzentration ( $C_{gm}$ ) für drei verschiedene Stoffe ( $R = 1$ ,  $R = 2$  und  $R = 10$ ) nach Aufsättigung eines anfänglich trockenen PM auf  $\theta_{ap}$  mit der gleichen ursprünglichen Stoffmenge in jedem Abschnitt unter sonst gleichen Bedingungen. Die senkrechte Linie stellt den  $C_{gm}$ -Wert dar, der sich nach Gleichung 24 ergibt, wenn die anfangs vorhandene Stoffmenge in einer Wassermenge  $\theta_{ap}$  gelöst wird ohne dabei verlagert zu werden.

herangezogen. Es zeigte sich jedoch, dass er die Tortuosität meist erst nach einer Modifizierung gänzlich erfasst. Den genauen Gründen dafür bzw. der Entwicklung eines besseren Ansatzes wird in einer gesonderten Arbeit nachgegangen werden.

In einem realen PM haben sich die Stoffströme in den unterschiedlich großen Poren in einem Abschnitt nach einer bestimmten Zeit nach Beginn des Stoffeintrags vermischt, so dass überall die gleiche Konzentration vorliegt. Dafür wird im Modell die Zeit angesetzt, die das Wasser in der größten am Durchfluss beteiligten Pore benötigt, um durch einen Abschnitt zu strömen. Im Gegensatz zu allen anderen Aspekten im Modell wurde diese Vorgehensweise empirisch gefunden. Vergleiche mit Berechnungen aus erprobten Modellen sowie mit experimentellen Daten zeigten, dass damit die besten Ergebnisse erzielt werden. Eine mathematische Begründung dafür steht noch aus.

Mit dem Modell lässt sich eine Stoffkonzentration nicht für jede beliebige Zeit berechnen, sondern nur für ganzzahlige Vielfache des Zeitintervalls  $\Delta t_m$ . Verbindet man jedoch die berechneten Punkte miteinander, entsteht ein kontinuierlicher Konzentrationsverlauf, der eine Interpolation von Werten für andere Zeiten ermöglicht. Die Verbindung der nach einem Zeitintervall  $\Delta t_m$  für die einzelnen Abschnitte berechneten (oder für dazwischen liegende Zeiten interpolierten) Konzentrationen ergibt deren Tiefenverteilung. Letztlich lassen sich mit dieser Vorgehensweise also sowohl der Konzentrationsverlauf in jedem Abschnitt als auch die Tiefenverteilung der Konzentration als Funktion der Zeit darstellen.

Für die Berechnung der porengrößenspezifischen Stoffverteilung mit Gleichung 21 wird als Untergrenze der Integration der Radius der kleinsten Pore gebraucht, in die der betrachtete Stoff noch eindringen kann ( $r_{\min}$ ). Dafür gibt es keinen allgemeingültigen Wert, da nicht alle Stoffe gleich groß sind. Rein rechnerisch kann ein Stoff bereits in eine Pore eindringen, wenn ihr Radius geringfügig größer ist als der Radius des Stoffs ( $r_{\text{Stoff}}$ ). Ein ungehinderter Stofftransport setzt aber voraus, dass  $r_{\min}$  wesentlich größer ist als  $r_{\text{Stoff}}$ . Um wie viel größer und damit die Frage, welches  $r_{\min}$  für welchen Stoff zu verwenden ist, bedarf noch einer näheren Untersuchung. Vermutlich liegt  $r_{\min}$  für viele Stoffe in der gleichen Größenordnung wie  $r_0$ , für sehr große organische Verbindungen ist dagegen von  $r_{\min} \gg r_0$  auszugehen. Für grundlegende Betrachtungen mit dem Modell ist der genaue  $r_{\min}$ -Wert nicht entscheidend. Das gilt im Übrigen auch für  $\beta$  und alle anderen Parameter.

## Literatur

- Brooks, R. H., A. T. Corey (1966): Properties of porous media affecting fluid flow. J. Irrig. Drainage Div. Am. Soc. Civ. Eng. 92, 62-88.
- Campbell, G. S. (1974): A simple method for determining unsaturated conductivity from moisture retention data. Soil Sci. 117, 311-314.
- Campbell, G. S. (1985): Soil Physics with QBASIC. Developments in Soil Science 14. Elsevier Science, Amsterdam.
- Childs, E. C., N. Collis-George (1950): The permeability of porous materials. Proc. Roy. Soc. London Ser. A 201, 392-405.
- Gardner, W. R., D. I. Hillel, Y. Benyamini (1970): Post irrigation movement of soil water. I. Redistribution. Water Resour. Res. 6, 851-861.
- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005a): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. Müll und Abfall 37, 82-90.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005b): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. Müll und Abfall 37, 148-153.
- Hagenau, J., H. Borg (2006): Test eines verbesserten Modells zur Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Hartge, K.-H., R. Horn (1991): Einführung in die Bodenphysik, 2. Auflage. Enke, Stuttgart.
- Hillel, D. (1998): Environmental soil physics. Academic Press, San Diego.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. Soil Sci. Soc. Am. J. 43, 1100-1106.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. J. Hydrol. 32, 203-218.

- Low, P. F. (1961): Physical chemistry of clay - water interaction. *Advances in Agronomy* 13, 269-327.
- Miller, R. J., P. F. Low (1963): Threshold gradient for water flow in clay systems. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 27, 605-609.
- Myers, R. J. K., C. A. Campbell, K. L. Weier (1982): Quantitative relationship between net nitrogen mineralization and moisture content of soils. *Can. J. Soil Sci.* 62, 111-124.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15 - 19.24.
- 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.

## **VIII. Test eines verbesserten Modells zur Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate**

*Test of an improved model to describe solute leaching from porous media as influenced by the amount of water applied and the application rate*

### **Zusammenfassung**

In einer vorangegangenen Arbeit wurde ein verbessertes mathematisches Modell hergeleitet, mit dem der Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus einem porösen Medium (PM) simuliert werden kann. Es ist die Weiterentwicklung eines früheren Modells der Autoren und basiert auf der Berechnung der Wasserdurchflussrate durch eine Pore mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung und deren Verknüpfung mit der Porengrößenverteilung in einem PM, die mit Hilfe der kapillaren Aufstiegsleichung aus der Wasserspannungskurve für das PM abgeleitet wird.

Hier werden Berechnungen mit diesem Modell mit Berechnungen mit der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) sowie experimentellen Daten verglichen, um die physikalische Richtigkeit des Modells und seine Genauigkeit bei der Simulation von Stofftransport- und Auswaschungsprozessen zu überprüfen. Weiterhin wird in einer Sensitivitätsanalyse untersucht, wie stark sich verschiedene Variablen im Modell auf das Ergebnis auswirken.

Berechnungen mit unserem Modell stimmen sehr gut mit denen mit der ADG überein. Ergebnisse aus Laborversuchen zum Stofftransport, bei denen ein stofffreies PM mit chloridbeladenem Wasser beregnet wurde, konnten mit unserem Modell ebenfalls sehr gut nachvollzogen werden. Das Gleiche gilt für Ergebnisse aus Versuchen, bei denen ein mit Chlorid bzw. organischen Verbindungen belastetes PM in unterschiedlichen Raten mit reinem Wasser beregnet wurde, um diese Stoffe auszuwaschen.

Die Sensitivitätsanalyse ergab, dass das Modell am sensibelsten auf Parameter aus der Wasserspannungskurve sowie den Retardationskoeffizienten für den betrachteten Stoff reagiert. Insgesamt ist eine korrekte Wasserspannungskurve die wichtigste Voraussetzung für die Anwendung des Modells.

### **Summary**

In a previous paper an improved mathematical model to describe the effect of the amount of water applied and the application rate on solute leaching was presented, which is the extension of an earlier model of the authors. It is based on the computation of water movement

through a pore with the Hagen-Poiseuille-equation and its combination with the pore size distribution in a porous medium (PM). The latter can be derived from the moisture retention curve for the PM with the help of the capillary rise equation.

Here we compare calculations with this model to calculations with the advection-dispersion-equation (ADG) and experimental data to test the physical correctness of our model and its precision in the simulation of solute transport and leaching. Furthermore, in a sensitivity analysis we assess how strongly variations in different variables affect model results.

Calculations with our model agree well with those with the ADG. Results from laboratory experiments on solute transport, where a solute-free PM was irrigated with chloride-loaded water, could also be described well with our model. The same holds for results from experiments, where a PM containing chloride or organic compounds was irrigated with pure water at different rates to leach these substances out.

The sensitivity analysis revealed that the model is most sensitive to parameters of the moisture retention curve and the retardation coefficient for the substance in question. In the end a correct moisture retention curve is the most important prerequisite for the application of the model.

## **1. Einleitung**

Verschiedene Versuche haben gezeigt, dass bei der Auswaschung von Stoffen aus einem porösen Medium (PM) die Konzentration im Sickerwasser und die ausgewaschene Fracht nicht nur von der applizierten Wassermenge, sondern auch von der Applikationsrate abhängen (Nielsen et al., 1966; Leffelaar und Pal Sharma, 1977; Jury et al., 1979; Hagenau und Borg, 2003a; Hagenau et al., 2005a und b). Mit einer gegebenen Wassermenge wird bei niedrigen Raten mehr Stoff ausgewaschen als bei hohen. Bei gleicher Rate nimmt die Fracht mit der applizierten Wassermenge degressiv zu, da die Stoffkonzentration im Sickerwasser sinkt.

Die Erklärung für die Intensitätsabhängigkeit liegt darin, dass sich der größere Teil der auswaschbaren Stoffe in den kleineren Poren befindet (Hagenau und Borg, 2003b). Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, dass kleinere Poren den größten Anteil des Porenraumes einnehmen. Zum anderen haben sie mehr Wandfläche je Porenvolumen als große. Da sich Stoffe an den Wandflächen anlagern, ist in kleinen Poren die Stoffmenge je Porenvolumen und damit letztlich die Stoffkonzentration im Porenwasser größer. Geringere Wasserapplikationsraten sind somit effektiver, weil sie einen niedrigen Wassergehalt zur Folge haben und deshalb das Wasser durch kleinere Poren fließt, in denen sich viel Stoff befindet. Bei höhe-

ren Raten werden dann größere Poren zum Wassertransport benötigt, die sehr viel Wasser leiten können, aber relativ wenig Stoff enthalten.

Hagenau und Borg (2006b) haben ein verbessertes mathematisches Modell hergeleitet, mit dem der Einfluss der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus einem porösen Medium (PM) simuliert werden kann. Es ist die Weiterentwicklung eines früheren Modells der Autoren und basiert auf der Berechnung der Wasserdurchflussrate durch eine Pore mit der Hagen-Poiseuille-Gleichung und deren Verknüpfung mit der Verteilung der Porengrößen in einem PM, die mit Hilfe der kapillaren Aufstiegsleichung aus der Wasserspannungskurve für das PM abgeleitet wird. Wie auch das ursprüngliche Modell ist es zunächst nur für homogene PM anwendbar und eindimensional.

Hier werden nun Berechnungen mit diesem Modell mit Berechnungen mit einem erprobten Stofftransportmodell sowie experimentellen Daten verglichen, um die physikalische Richtigkeit unseres Modells und die damit erreichbare Genauigkeit bei der Simulation von Auswaschungsprozessen zu überprüfen.

Das Problem mit dem Modellvergleich ist, dass es nach unserer Kenntnis zur Zeit außer dem hier vorgestellten kein anderes Modell gibt, mit dem porengrößenabhängige Stoffkonzentrationen berücksichtigt werden können. Andererseits muss unser Modell aber auch dann anwendbar sein, wenn solche Konzentrationen nicht auftreten. Das ist zum Beispiel der Fall, wenn Lösung mit einer konstanten Stoffkonzentration appliziert wird und dann durch das Medium strömt. Dieser Vorgang ist häufig Gegenstand von Untersuchungen zum Stofftransport in porösen Medien und kann in der Regel gut mit der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) beschrieben werden.

Im Folgenden wird daher mit der ADG, die im nächsten Abschnitt erläutert wird, und unserem Modell der zeitliche Verlauf der Konzentration eines Stoffs im Sickerwasser am unteren Rand einer Bodensäule berechnet, welcher ihr am oberen Rand mit dem Beregnungswasser in konstanter Konzentration und mit konstanter Rate zugeführt wurde. Dabei werden verschiedene PM und Beregnungsraten betrachtet. Die Ergebnisse aus beiden Berechnungswegen werden dann miteinander verglichen. Da schon vielfach nachgewiesen wurde, dass die ADG für diesen Fall realistische Ergebnisse liefert, würde eine gute Übereinstimmung belegen, dass unser Modellansatz grundsätzlich korrekt ist und damit eine gute Basis, um porengrößenabhängige Stoffkonzentrationen zu modellieren.

Anschließend erfolgt eine Gegenüberstellung von Berechnungen mit unserem Modell und Ergebnissen aus eigenen Laborversuchen zur Stoffverlagerung. Dabei handelt es sich einerseits um Versuche, bei denen ein stofffreies PM mit stoffbeladenem Wasser beregnet wurde



(Hagenau und Borg, 2006a), und andererseits um solche, bei denen ein stoffbelastetes PM in unterschiedlichen Raten mit reinem Wasser beregnet wurde, um die im PM enthaltenen Stoffe auszuwaschen (Hagenau und Borg, 2003a; Hagenau et al., 2005a und b).

Letztlich wird in einer Sensitivitätsanalyse geprüft, wie empfindlich unser Modell auf einzelne Eingabeparameter reagiert.

Die hier für die Berechnungen verwendeten Computerprogramme sind als Anhang 1 beigelegt.

## 2. Vergleichsgrundlagen

### 2.1 Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG)

In ihrer eindimensionalen Form und in Abwesenheit von internen Stoffquellen und -senken, wovon hier ausgegangen wird, lautet die ADG:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial z} + (D_h + D_d) \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\rho_t}{\theta} \frac{\partial S_a}{\partial t} \quad (1)$$

wobei  $C$  = Stoffkonzentration im Wasser ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),  $t$  = Zeit (s),  $v$  = mittlere Fließgeschwindigkeit ( $\text{m}/\text{s}$ ),  $z$  = Entfernung in Fließrichtung (m),  $D_h$  = Dispersionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $D_d$  = Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $\rho_t$  = Trockendichte des PM ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ),  $\theta$  = volumetrischer Wassergehalt ( $\text{m}^3/\text{m}^3$ ) und  $S_a$  = sorbierte Stoffmenge ( $\text{kg}/\text{kg}$ ). Dispersions- und Diffusionskoeffizient werden in der Regel als  $D = D_h + D_d$  zusammengefasst. Unter dem Begriff Sorption werden hier alle Vorgänge zusammengefasst, die die Verlagerung eines Stoffs behindern, u. a. Absorption, Adsorption, Fällung und Ionenaustausch.

Die mittlere Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) wird als Quotient der Rate, mit der Wasser durch das PM fließt ( $q$  = durchgeflossenes Wasservolumen je Flächen- und Zeiteinheit) und dem sich dabei einstellenden Wassergehalt ( $\theta$ ) berechnet:

$$v = \frac{q}{\theta} \quad (2)$$

Der Dispersionskoeffizient ( $D_h$ ) ist das Produkt eines als Dispersivität ( $\alpha$ ) bezeichneten Proportionalitätsfaktors und der mittleren Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) des Wassers im PM (Bear, 1972):

$$D_h = \alpha v \quad (3)$$

Die Dispersivität wiederum kann als das Produkt aus einem dimensionslosen Proportionalitätsfaktor, der im Folgenden Dispersivitätsfaktor (f) genannt wird, und der Länge des durchströmten Mediums (L) ausgedrückt werden (Gelhar et al., 1985):

$$\alpha = f L \quad (4)$$

Der Dispersionskoeffizient ergibt sich somit letztlich als:

$$D_h = f L v \quad (5)$$

Der Diffusionskoeffizient für Stoffe in einem porösen Medium liegt etwa bei  $D_d = 5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  (Schneider und Göttner, 1991). Außer bei sehr geringen Fließgeschwindigkeiten, bei denen nur noch sehr wenig Stoffauswaschung stattfindet, ist er damit um einige Größenordnungen kleiner als der Dispersionskoeffizient (Gleichung 5) und kann deshalb vernachlässigt werden.

Hier wird angenommen, dass für die Sorption von Stoffen an der Matrix des PM eine lineare Sorptionsisotherme (auch Henry-Isotherme genannt) gilt.

$$S_a = k_h C \quad (6)$$

wobei  $k_h$  = Verteilungskoeffizient des Stoffs zwischen Lösung und Matrix ( $\text{m}^3/\text{kg}$ ). Setzt man diese Beziehung in Gleichung 1 ein und bringt den  $S_a$ -Term auf die linke Seite, ergibt sich mit  $D = D_h + D_d$ :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho_t k_h}{\theta} \frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial z} + D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (7)$$

Die linke Seite lässt sich weiter vereinfachen zu:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho_t k_h}{\theta} \frac{\partial C}{\partial t} = \left(1 + \frac{\rho_t k_h}{\theta}\right) \frac{\partial C}{\partial t} = R \frac{\partial C}{\partial t} \quad (8)$$

wobei  $R = 1 + \frac{\rho_t k_h}{\theta}$  = Retardationskoeffizient (dimensionslos). Er gibt das Verhältnis der mittleren Verlagerungsgeschwindigkeit von Wasser zu Stoff an.  $R = 1$  bedeutet, dass der Stoff genauso schnell wie das Wasser verlagert wird,  $R = 100$ , dass dies 100mal langsamer geschieht.

Zusammenführen der Gleichungen 7 und 8 ergibt:

$$R \frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial z} + D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (9)$$

Für die Berechnungen (und die weiter unten herangezogenen Versuche) wird von folgenden Bedingungen ausgegangen:

- Das PM ist homogen, so dass  $v$ ,  $D_h$  und  $R$  sowie die Parameter  $\theta$ ,  $f$ ,  $\rho_t$ ,  $k_h$ , die in ihre Berechnung eingehen, überall gleich sind.
- Dem PM wird Wasser mit einer Rate  $q$  zugeführt, die über den ganzen Betrachtungszeitraum konstant bleibt, so dass auch  $v$ ,  $\theta$  und  $D_h$  über die Zeit konstant bleiben.
- Vor Beginn der Stoffapplikation ist die Konzentration des fraglichen Stoffs überall im PM konstant und hat den Wert  $C_{init}$ .
- Während der Stoffapplikation ist die Konzentration des fraglichen Stoffs im Beregnungswasser konstant und hat den Wert  $C_0$ , davor und danach ist sie null.

Um unter diesen Bedingungen den zeitlichen Verlauf der Stoffkonzentration am unteren Ende der Säule zu berechnen, muss die flux-gemittelte Lösung von Gleichung 9 für die Anfangs- und Randbedingungen:

$$C(z, t) = C_{init} \quad \text{für } t \leq t_0 \quad (10a)$$

$$C(0, t) = 0 \quad \text{für } t \leq t_0 \text{ und } t > t_e \quad (10b)$$

$$C(0, t) = C_0 \quad \text{für } t_0 < t \leq t_e \quad (10c)$$

$$\frac{\partial C(\infty, t)}{\partial z} = 0 \quad \text{für alle } t \quad (10d)$$

herangezogen werden. Sie lautet:

$$C(L, t) = C_{init} + (C_0 - C_{init}) B(L, t) \quad \text{für } t_0 < t \leq t_e \quad (11a)$$

$$C(L, t) = C_{init} + (C_0 - C_{init}) B(L, t) - C_0 B(L, t - t_e) \quad \text{für } t > t_e \quad (11b)$$

wobei  $C(z, t)$  = Stoffkonzentration an einer beliebigen Position  $z$  zur Zeit  $t$  ( $z = 0$  = oberer Rand des PM,  $z = L$  = unterer Rand des PM,  $z = \infty$  = Position in großer Entfernung vom oberen Rand des PM),  $t_0$  = Zeit zu Beginn der Stoffapplikation, die gleich Null gesetzt wird,  $t_e$  = Zeit am Ende der Stoffapplikation und:

$$B(L, t) = \frac{1}{2} \left[ \operatorname{erfc}\left(\frac{L - v't}{2\sqrt{D't}}\right) + \exp\left(\frac{vL}{D}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{L + v't}{2\sqrt{D't}}\right) \right] \quad (11c)$$

mit  $v' = v/R$  und  $D' = D/R$ .

Die eben gegebene Lösung wird z. B. von Parker und van Genuchten (1984) diskutiert, allerdings nur für den speziellen Fall, dass  $C_{\text{init}} = 0$  und  $R = 1$ .

## 2.2 Eingabe- und Berechnungsgrößen in den Modellen

Tabelle 1 zeigt die wichtigsten Eingabeparameter für die ADG und unser Modell sowie die wichtigsten Größen, die damit berechnet werden. Es werden weitgehend die gleichen oder ähnliche Parameter benötigt.

**Tabelle 1:** Eingabeparameter und die wichtigsten damit berechneten Größen (fett gedruckt) für die Advektions-Dispersions-Gleichung und das Modell von Hagenau und Borg (2006b). Die aufgeführten Variablen sind im Text erläutert.

<b>Advektions-Dispersions-Gleichung</b>	<b>Modell von Hagenau und Borg (2006b)</b>	<b>Vorgang/Größe</b>
$v(q, a, b, \theta_{\text{ap}})$	$\theta_{\text{ap}}(q, a, b)$	Advektion
$D_h(f, L, v)$	$z_m$ $\Delta t_m(L, a, b, \theta_{\text{ap}})$	Dispersion
$D_d$	$D_d$	Diffusion
-	$t_a(L, a, b, \theta_{\text{ap}})$	Aufsättigung
$C_{\text{init}}$	$C_{\text{vor}}(s, \theta_{\text{ap}}, L, R)$ $s(s_g, \theta_{\text{ap}}, \theta_{\text{min}}, \theta_s)$	Ausgangskonzentration
$C_0$ $t_e$	$C_0$ $t_e$	Stoffeintrag
$R(k_h, \rho_t, \theta)$	$R(k_h, \rho_t, \theta)$	Retardation

Zur Berechnung der Advektion wird in beide Modelle die Applikationsrate  $q = q_{\text{ap}}$  eingegeben. Mit Hilfe der Wasserspannungskurve, erfasst über die Parameter  $a$  und  $b$ , wird dann in beiden der sich damit einstellende Wassergehalt  $\theta = \theta_{\text{ap}}$  berechnet. In unserem Modell wird die Advektion direkt über  $\theta_{\text{ap}}$  beschrieben, in der ADG geschieht dies über die mittlere Fließgeschwindigkeit  $v$ , die nach Gleichung (2) aus  $q_{\text{ap}}$  und  $\theta_{\text{ap}}$  berechnet wird.

Zunächst scheint es, als ob in der ADG für die Beschreibung der Dispersion außer  $L$  andere Parameter benötigt werden als im neuen Ansatz. Wie im nächsten Abschnitt noch genauer ausgeführt wird, besteht jedoch eine enge Beziehung zwischen  $f$  und der Mischungszahl  $z_m$ , die in Abschnitt 3.1 definiert wird. Wie oben erläutert, gehen in  $v$  die Parameter  $a$ ,  $b$  und  $\theta_{\text{ap}}$  ein, die in unserem Ansatz zur Berechnung der Mischungszeit  $\Delta t_m$  gebraucht werden. (Das ist die Zeit, die das Wasser in der größten am Durchfluss beteiligten Pore braucht, um vom oberen zum unteren Ende eines Abschnitts zu gelangen und nach der die Stoffinhalte in den wassergefüllten Poren in einem Abschnitt als völlig vermischt angesehen werden.) Es wer-

den letztlich also die gleichen Parameter verwendet, aber auf unterschiedliche Weise. In der ADG gehen sie in einen Dispersionskoeffizienten  $D_h$  ein, in unserem Ansatz dagegen in eine Mischungszeit  $\Delta t_m$ .

Ein diffusiver Stofftransport wird in den folgenden Betrachtungen nicht berücksichtigt, da er im Vergleich zu Advektion und Dispersion in den meisten Fällen nur eine untergeordnete Rolle spielt. Der Vollständigkeit halber wird Diffusion in Tabelle 1 dennoch erwähnt. In beiden Ansätzen wird dazu der Diffusionskoeffizient  $D_d$  benötigt, der in der ADG zum Dispersionskoeffizienten  $D_h$  addiert wird, in unserem Modell dagegen in die Berechnung der Mischungszahl eingeht (siehe Diskussion).

Unser Ansatz erlaubt es, die Aufsättigung eines anfangs trockenen PM auf den Wassergehalt  $\theta_{ap}$  und die damit einhergehende Stoffverlagerung zu beschreiben. Der wichtigste dafür benötigte Parameter ist die Zeit bis zur Aufsättigung eines Anschnitts ( $t_a$ ). Mit der analytischen Lösung der ADG ist das nicht möglich. In eine numerische Lösung könnte dieser Aspekt eingebaut werden, aber bisher wurde es nicht umgesetzt.

Die in der ADG verwendete Anfangskonzentration  $C_{init}$  entspricht  $C_{vor}$  in unserem Modell. Während  $C_{init}$  in der ADG aber stets als Eingabeparameter vorgegeben werden muss, kann  $C_{vor}$  in unserem Modell entweder vorgegeben oder mit Hilfe der Parameter  $\theta_{ap}$ ,  $L$  und  $R$  aus der in den wassergefüllten Poren vorhandenen Stoffmenge ( $s$ ) berechnet werden. Diese kann wiederum aus der in allen Poren insgesamt vorhandenen Stoffmenge  $s_g$  über die Parameter  $\theta_{ap}$ ,  $\theta_{min}$  (reflektiert den Radius der kleinsten Pore, in die ein betrachteter Stoff noch eindringen kann) und  $\theta_s$  (Wassergehalt bei Sättigung) ermittelt werden. Dazu muss  $s_g$  zwar bekannt sein, aber auf die Weise können wassergehaltsabhängige Ausgangskonzentrationen berücksichtigt werden und in  $C_{vor}$  einfließen. Das ist in der ADG nicht möglich, aber man kann porengrößenabhängige Konzentration separat berechnen und sie über  $C_{init}$  in die ADG einbringen.

Zur Beschreibung des Stoffeintrags in das PM und der Retardation von Stoffen im PM werden in beiden Modellansätzen die gleichen Parameter verwendet. Der Retardationskoeffizient  $R$  soll an dieser Stelle noch einmal kurz (und in Anhang 2 etwas ausführlicher) beleuchtet werden.

Wie aus Gleichung 8 folgt, ergibt sich der Retardationskoeffizient auf Basis einer linearen Sorptionsisotherme (Gleichung 6) als:

$$R = 1 + \frac{\rho_t k_h}{\theta} \quad (12)$$

Die Konzentration  $C$  in Gleichung 6 kann analog zu Gleichung 26 in Hagenau und Borg (2006a) als Funktion der gelösten Stoffmenge  $S_l$  (in kg/kg) beschrieben werden:

$$C = \frac{S_l}{\theta} \rho_t \quad (13)$$

Stellt man Gleichung 12 nach  $k_h = (R-1)\theta/\rho_t$  um und setzt diesen Ausdruck ebenso wie Gleichung 13 in Gleichung 6 ein, so ergibt sich:

$$S_a = (R-1) \frac{\theta}{\rho_t} S_l \frac{\rho_t}{\theta} \quad (14)$$

Umgestellt nach  $R$  ergibt sich dann:

$$R = 1 + \frac{S_a}{S_l} = \frac{S_a + S_l}{S_l} \quad (15)$$

Das entspricht Gleichung 25 aus Hagenau und Borg (2006a), was belegt, dass  $R$  auch als das Verhältnis von Gesamtstoffmenge ( $S_a + S_l$ ) zu gelöster Stoffmenge  $S_l$  angesehen werden kann. Dabei spielt es keine Rolle, ob  $S_a$  und  $S_l$  in Einheiten von kg Stoffmenge / kg Medium oder, wie im neuen Ansatz, in kg Stoffmenge / m<sup>2</sup> Medium gegeben ist, da sich die Einheiten in jedem Falle herauskürzen.

Nach Gleichung 12 ergibt sich eine Erhöhung von  $R$  bei Verringerung des Wassergehaltes, wenn  $\rho_t$  und  $k_H$  dabei gleich bleiben. Während man bei  $\rho_t$  davon ausgehen kann, lässt sich aus der Arbeit von Fehse (2004) ableiten, dass bei Böden und anderen Substraten der Verteilungskoeffizient  $k_h$  keineswegs konstant ist, sondern mit dem Wassergehalt  $\theta$  steigt ( $k_h \sim \theta$ ). Das hat zur Folge, dass  $R$  bei allen Wassergehalten gleich ist.

Im neuen Ansatz werden weiterhin die durchflussbeeinflussenden Größen Fallbeschleunigung  $g$ , Viskosität  $\nu$ , Oberflächenspannung  $\sigma$  und Dichte  $\rho$  der Lösung verwendet. Für die späteren Berechnungen wurden dabei die Werte bei 20 C° eingesetzt.

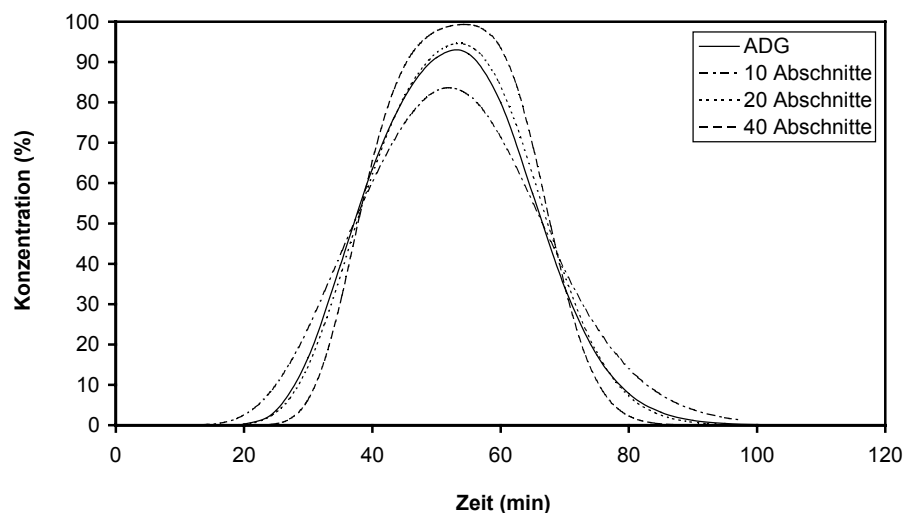
### 3. Vergleich von Berechnungen mit unserem Ansatz und der ADG

#### 3.1 Ermittlung der Mischungszahl

Zunächst gilt es die Frage zu klären, in welche Anzahl von Abschnitten (Mischungszahl  $z_m$ ) das Medium in Fließrichtung geteilt werden muss, damit Berechnungen mit unserem Ansatz gut mit denen der ADG übereinstimmen. Dafür wurde ein PM mit folgenden Eigenschaften zugrunde gelegt:  $a = 1$  cm,  $b = -2$ ,  $\theta_s = 0,5$  und  $L = 20$  cm. Für die Stoff- und Wasserapplikation gilt:  $q = 100$  mm/h,  $f = 0,025$ ,  $D_d = 0$ ,  $C_0 = 100$  mg/l,  $t_e = 30$  min und  $R = 1$ . Die  $a$ - und  $b$ -

Werte sind typisch für ein grobkörniges PM. Der Wert  $f$  von 0,025 wurde bei Hagenau und Borg (2006a) als derjenige ermittelt, mit dem die dort betrachteten 12 experimentellen Datensätze am besten mit der ADG simuliert werden konnte.

Die Mischungszahl  $z_m$  wurde nun so lange variiert, bis die beste Übereinstimmung (hier und im Folgenden immer visuell eingeschätzt) zwischen Berechnungen mit unserem Modell und denen der ADG erreicht wurde. Zunächst wurde mit  $z_m = 10, 20$  und  $40$  gerechnet. Dabei ergab sich bei einer Unterteilung des Mediums in 20 Abschnitte die vorerst größte Übereinstimmung, jedoch war der Konzentrationsverlauf steiler und der Maximalwert lag etwas über dem der ADG. Mit  $z_m = 40$  war der Verlauf noch steiler und der Maximalwert noch weiter darüber, mit  $z_m = 10$  dagegen deutlich flacher bzw. darunter (Bild 1). Deshalb wurde  $z_m$  dann zwischen 15 und 20 variiert, was letztlich den am besten passenden Verlauf bei  $z_m = 17$  aufzeigte. Er ist in Bild 1 nicht dargestellt, da er bei diesem Bildmaßstab kaum von dem mit der ADG berechneten Konzentrationsverlauf zu unterscheiden ist.



**Bild 1:** Konzentrationsverläufe für die Referenzbedingungen, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit drei verschiedenen  $z_m$  (Anzahl von Abschnitten).

### 3.2 Abhängigkeit der Mischungszahl von verschiedenen Modellparametern

Um zu prüfen, ob und wie das Verhältnis von  $z_m$  zu  $f$  von anderen Parametern abhängt, wurden einige der o. g. Werte in unserem Modell variiert. Es wurde immer nur ein Parameter geändert und die anderen beibehalten, soweit das möglich war (siehe unten). Konkret wurden folgende Bereiche untersucht:  $b = -2$  bis  $-15$ ,  $L = 0,1$  bis  $50$  m,  $q = 1$  bis  $2500$  mm/h und  $R = 1$  bis  $200$ .

Ein  $b$ -Wert von  $-2$  ist typisch für Sand,  $b = -15$  für Ton. Die verwendeten Schichtmächtigkeiten reichen von  $10\text{ cm}$  für sehr kurze Säulen, wie sie häufig in Laborversuchen verwendet werden, bis  $50\text{ m}$ , was für die Mächtigkeit von Deponiekörpern nicht ungewöhnlich ist. Die angenommenen Applikations- bzw. Niederschlagsraten zwischen  $1\text{ mm/h}$  und  $2500\text{ mm/h}$  entsprechen gesättigtem Wasserfluss bei einem sehr feinkörnigen bzw. sehr grobkörnigen PM. Für den Retardationskoeffizienten wurden Werte bis  $200$  eingesetzt, die von Schwermetallen in Böden durchaus erreicht oder gar überschritten werden. Für organische Verbindungen liegt  $R$  im Bereich von  $1$  bis  $20$ . Bei  $R = 1$  findet keine Retardation statt.

Da sich ihre Variation nur geringfügig ( $a$ ) oder gar nicht ( $\theta_s$ ) auswirkt, wie später noch gezeigt wird, wurden diese Parameter wie im Ausgangsbeispiel belassen. Außerdem wurde weiterhin  $D_d = 0$  verwendet. Die Abstellzeit  $t_e$  wurde in Abstimmung mit den sonstigen Bedingungen immer so gewählt, dass sich der Konzentrationsanstieg am unteren Ende der Säule immer noch auf mindestens  $90\%$  von  $C_0$  fortsetzt, ehe der Konzentrationsrückgang einsetzt. In der ADG wurde weiterhin  $f = 0,025$  gesetzt und  $z_m$  in unserem Ansatz dann wieder solange variiert bis die beste Übereinstimmung erzielt wurde

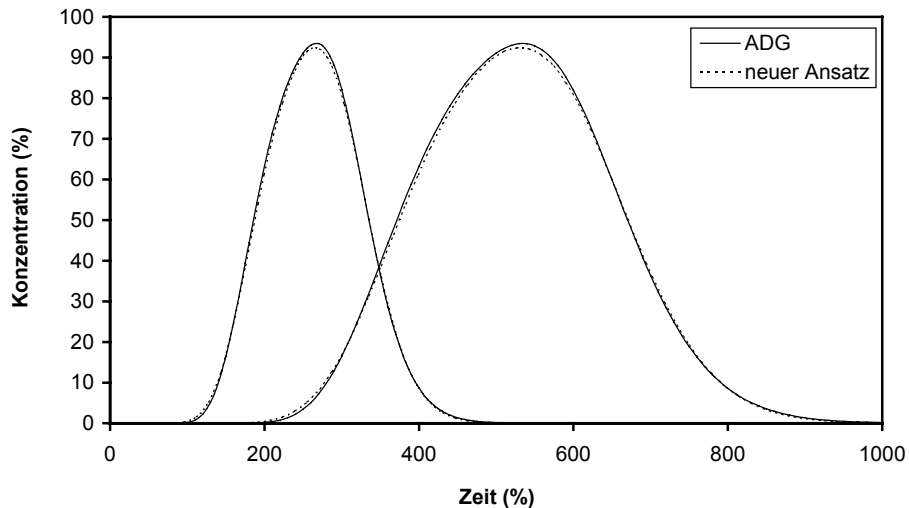
Mit dieser Vorgehensweise wurde gleichzeitig untersucht, ob die gute Übereinstimmung beider Modelle auch bei variierenden Eingabegrößen gegeben ist.

In den folgenden Bildern 2 bis 4 sind nur die Konzentrationsverläufe dargestellt, die sich ausgehend von dem in Abschnitt 3.1 aufgeführten Basiswerten für  $L$ ,  $q$  und  $R$  bei sonst gleichen Bedingungen bei einer Variation des jeweils genannten Parameters um den Faktor  $5$  bzw.  $10$  ergeben. Bei größeren Faktoren ist eine sinnvolle Darstellung der Ergebnisse auf einer gemeinsamen arithmetischen Skala nicht mehr möglich. Der Konzentrationsverlauf für die in Abschnitt 3.1 aufgeführten Werte (Referenzverlauf) ist in Bild 1 zu sehen.

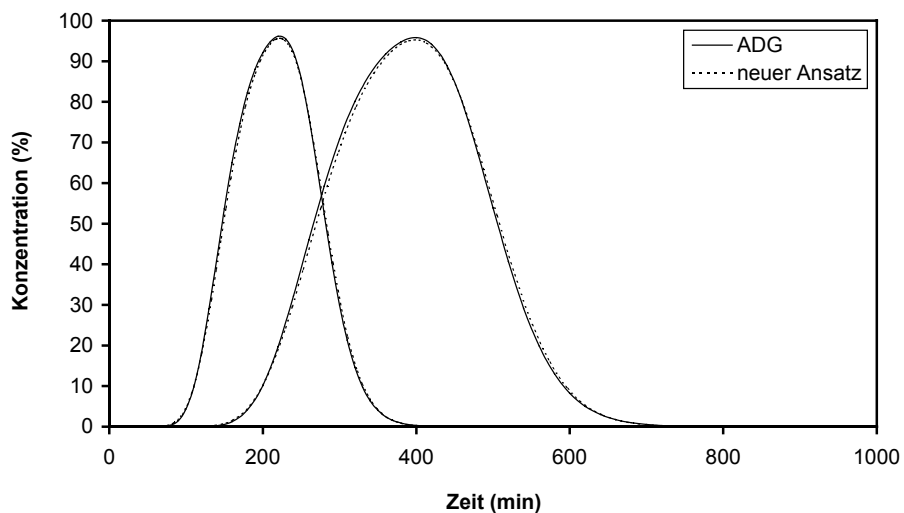
Da poröse Medien mit höheren  $|b|$  geringere Leitfähigkeiten aufweisen, muss mit steigendem  $|b|$  eine niedrigere Applikationsrate angesetzt werden, um Überstau zu vermeiden. Dadurch werden die Zeiten zum Erreichen von  $90\%$  von  $C_0$  am unteren Säulenende sehr lang, so dass für Bild 5 der Ausgangswert von  $|b|$  aus Gründen der Darstellbarkeit lediglich um den Faktor  $2$  bzw.  $3$  erhöht wurde. Für das PM mit  $b = -6$  ist  $q = 1\text{ mm/h}$  die maximal mögliche Beregnungsrate ohne Überstau. Sie wurde auch für das Medium mit  $b = -4$  verwendet. Da für den Referenzverlauf in Bild 1  $q = 100\text{ mm/h}$  beträgt, kann er nicht mit den Verläufen in Bild 5 verglichen werden.

Für alle Variationen von  $L$  (Bild 2),  $q$  (Bild 3) und  $b$  (Bild 5), auch für die hier nicht in den Bil-



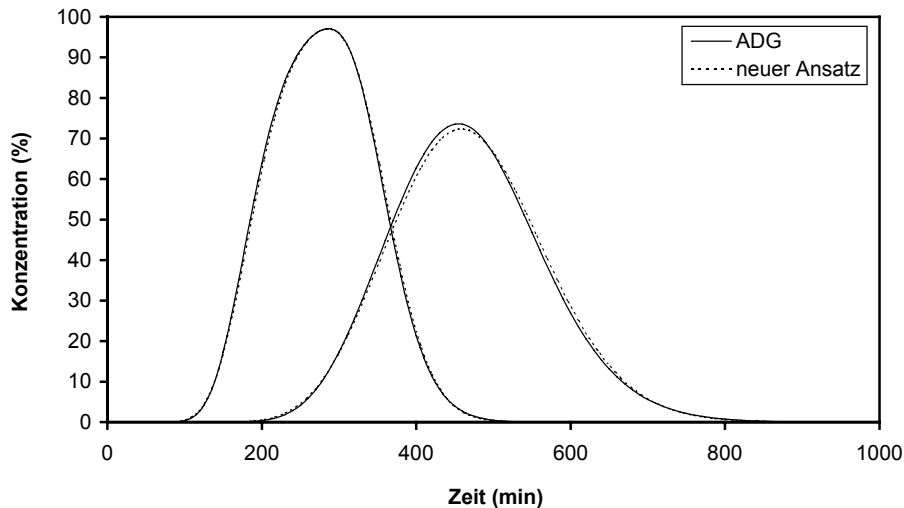


**Bild 2:** Konzentrationsverläufe bei  $L = 100$  cm mit  $t_e = 150$  min (links) und  $L = 200$  cm mit  $t_e = 300$  min (rechts) unter sonst gleichen Bedingungen wie für Bild 1, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit  $z_m = 17$ .

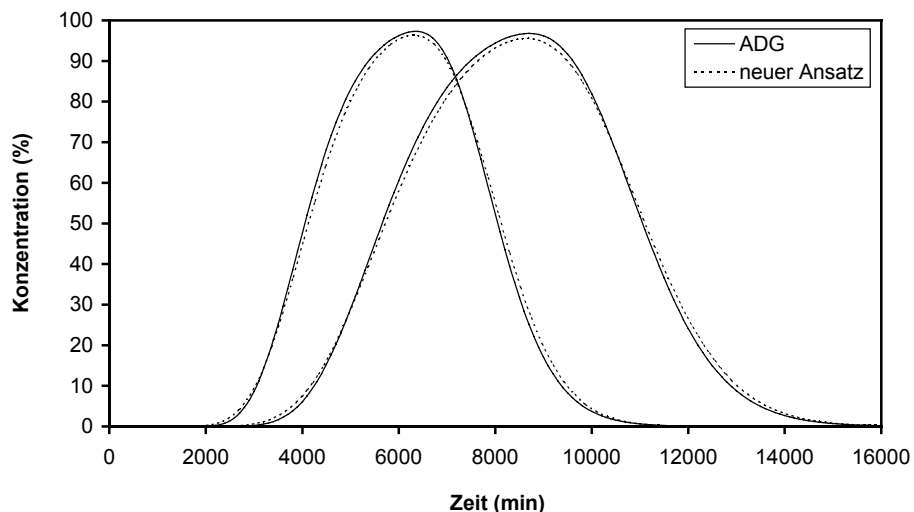


**Bild 3:** Konzentrationsverläufe bei  $v = 20$  mm/h mit  $t_e = 135$  min (links) und  $v = 10$  mm/h mit  $t_e = 240$  min (rechts) unter sonst gleichen Bedingungen wie für Bild 1, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit  $z_m = 17$ .

dem gezeigten, wurde mit  $z_m = 17$  in unserem Ansatz ein Konzentrationsverlauf errechnet, der mit dem mit  $f = 0,025$  in der ADG berechneten am Besten übereinstimmt. Daraus lässt sich der Schluss ziehen, dass  $z_m$  nicht von der Länge des Fließwegs ( $L$ ), der Berechnungsrate ( $q$ ), die letztlich die Fließgeschwindigkeit ( $v$ ) bestimmt (Gleichung 2), und der Porengrö-



**Bild 4:** Konzentrationsverläufe bei  $R = 5$  (links) und  $R = 10$  (rechts) mit jeweils  $t_e = 180$  min unter sonst gleichen Bedingungen wie für Bild 1, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit  $z_m = 20$ .



**Bild 5:** Konzentrationsverläufe bei  $b = -4$  mit  $t_e = 4000$  min (links) und  $b = -6$  mit  $t_e = 5400$  min (rechts) mit jeweils  $q = 1$  mm/h unter sonst gleichen Bedingungen wie für Bild 1, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit  $z_m = 17$ .

ßenverteilung im PM ( $a, b, \theta_s$ ) abhängt. Weiterhin zeigen die Bilder, dass Stofftransportberechnungen mit dem hier vorgestellten Modell für eine große Bandbreite von Werten gute Ergebnisse erbringen, da sie sehr gut mit Berechnungen mit der ADG übereinstimmen.

Bei allen  $R \geq 2$  zeigte sich die genaueste Übereinstimmung allerdings nicht mit  $z_m = 17$ , sondern bei einer Unterteilung in 20 Abschnitte. Weiterhin wurde festgestellt, dass die errechneten Konzentrationsverläufe mit dem neuen Ansatz nur dann mit denen der ADG überein-

stimmen, wenn die Abstellzeit für den Stoffeintrag  $t_e$  so gewählt wird, dass die Konzentration vor dem Abfall  $> 90\%$  von  $C_0$  erreicht. Wird dieser Prozentsatz nicht erreicht, liegt das Konzentrationsmaximum unter dem mit der ADG berechneten, und zwar umso weiter, je kleiner  $t_e$  und damit dieser Prozentsatz ist. Ein Grund dafür wurde bisher nicht gefunden.

### 3.3 Beziehung zwischen $f$ und $z_m$

Für den Dispersivitätsfaktor  $f$  ergeben sich aus Gelhar et al. (1992) Werte zwischen 0,01 und 0,26. Eigene Arbeiten (Hagenau und Borg 2006a) ergaben eine Bandbreite von 0,02 bis 0,05, wobei mit  $f = 0,025$  insgesamt die beste Übereinstimmung zwischen gemessenen und mit der ADG berechneten Werten erzielt wurde. Auch wenn dieser Wert sehr wahrscheinlich für alle PM verwendet werden kann, soll im Folgenden geprüft werden, wie sich  $z_m$  ändert, wenn andere  $f$ -Werte verwendet werden.

Dazu wurden mit fünf verschiedenen  $f$  zwischen 0,0125 und 0,05 in der ADG Konzentrationsverläufe errechnet und dann  $z_m$  in unserem Ansatz wieder solange variiert, bis die beste Übereinstimmung zwischen beiden Berechnungsmethoden gefunden wurde. Das wurde mit unterschiedlichen Kombinationen der übrigen Parameter durchgeführt. Die dabei erzielten Ergebnisse fasst Tabelle 2 zusammen.

**Tabelle 2:** Vergleich zwischen dem Dispersivitätsfaktor  $f$  in der ADG und der Mischungszahl  $z_m$  in unserem Ansatz.

vorgegebenes $f$	bestes $z_m$	mögliche Spanne für $z_m$
0,00625	65	60 - 70
0,0125	33	32 - 34
0,025	17	-
0,05	9	-
0,1	5	-

Für das kleinste  $f$  von 0,00625 gibt es eine Spanne möglicher  $z_m$ -Werte, mit denen praktisch die gleichen Ergebnisse erzielt werden. Beim nächst kleineren  $f$  von 0,0125 gibt es auch noch eine Spanne, die aber deutlich geringer ist. Bei  $f = 0,025$  gibt es dann nur noch einen passenden Wert. Bei noch höheren  $f$ -Werten gibt es auch nur einen passenden  $z_m$ -Wert, aber die Übereinstimmung beider Modelle wird mit steigendem  $f$  zunehmend schlechter. Für  $f > 0,1$  ist sie nicht mehr zufriedenstellend. Nach Gelhar et al. (1992) sind solche Werte aber auch sehr selten.

Aus den Werten in Tabelle 2 leitet sich folgender Zusammenhang ab:

$$z_m = \frac{0,4}{f} + 1 \quad (16)$$

Da eine große Anzahl von Abschnitten und die daraus resultierende starke Durchmischung wenig Dispersion zur Folge haben, ist die umgekehrte Proportionalität von  $z_m$  und  $f$  nicht überraschend.

Aus dem oben Gesagten lässt sich ableiten, dass die Mischungszahl  $z_m$  in Abwesenheit von Retardation ausschließlich an den Dispersivitätsfaktor  $f$  gekoppelt ist und ebenso wie dieser keinen erkennbaren Einflüssen von Medienbeschaffenheit, Fließgeschwindigkeit oder Fließstrecke unterliegt. Für den Faktor  $f$  waren diese (nicht feststellbaren) Zusammenhänge bei Hagenau und Borg (2006a) untersucht worden; ebenso sind auch in den Daten in Gelhar et al. (1992) keinerlei Abhängigkeiten des Faktors  $f$  von diesen Größen festzustellen. Warum das so ist und wieso letztlich der in Gleichung 16 dargestellte Zusammenhang zwischen  $f$  und  $z_m$  gilt, kann an dieser Stelle nicht abschließend geklärt werden. Bei Anwesenheit von Retardation ist  $z_m$  etwas größer, als es sich aus der Beziehung zu  $f$  ergeben würde.

### **3.4 Tiefenverteilung**

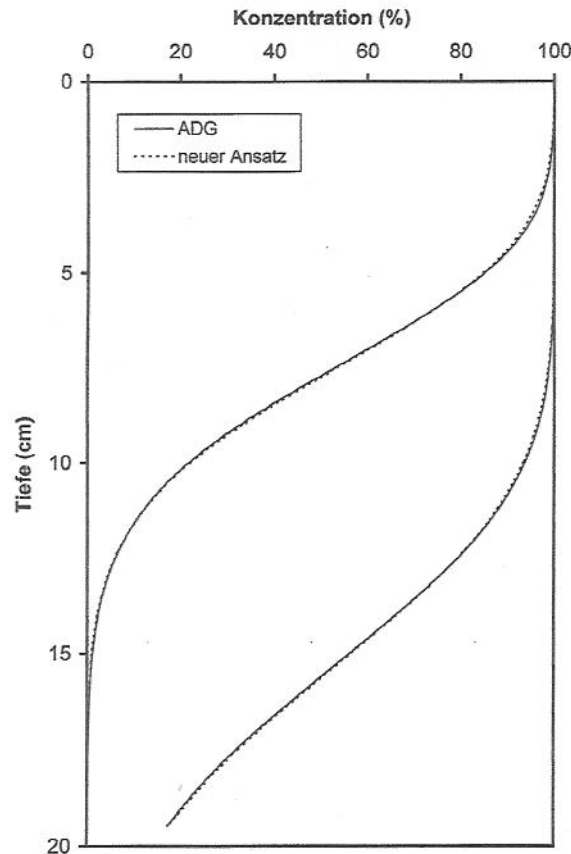
Es wurde auch untersucht, ob neben dem Konzentrationsverlauf über die Zeit auch die mit dem neuen Ansatz berechnete Tiefenverteilung der Konzentration zu einer bestimmten Zeit mit Berechnungen der ADG übereinstimmt. Auch dies konnte mit Erfolg nachgewiesen werden. Beispielhaft belegt das Bild 6, in dem die Tiefenverteilung der Konzentration für das Ausgangsbeispiel in Abschnitt 3.1 (mit  $f = 0,025$  und  $z_m = 17$ ) nach 15 bzw. 30 Minuten dargestellt ist.

Hier sei noch angemerkt, dass für die ADG in diesem Fall im Gegensatz zur bisher verwendeten flux-gemittelten Lösung (Gleichung 11) die ebenfalls in Parker und van Genuchten (1984) beschriebene volumen-gemittelte Lösung gilt, auf die hier jedoch nicht weiter eingegangen werden soll.

## **4. Vergleich von Versuchsergebnissen mit Berechnungen mit dem verbesserten Modell**

### **4.1 Stoffeintrag und -verlagerung durch Berechnung eines stofffreien PM mit stoffbeladenem Wasser**

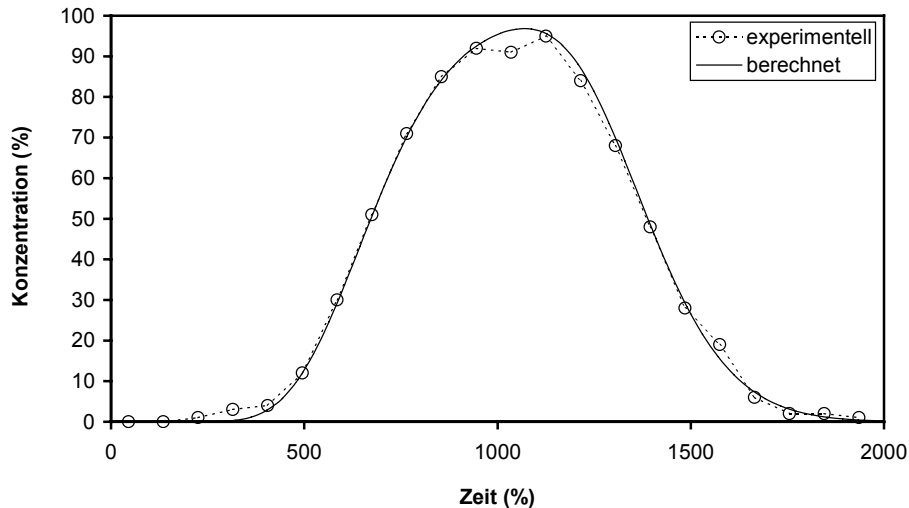
Hierzu wurde auf Versuche von Hagenau und Borg (2006a) zurückgegriffen, bei denen zwei verschiedene Substrate in jeweils zwei unterschiedlich langen Säulen mit je drei verschiede-



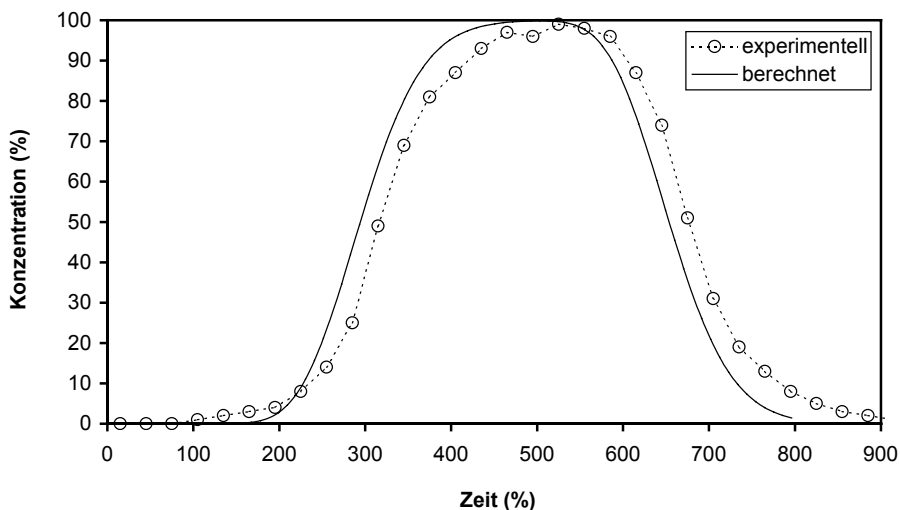
**Bild 6:** Tiefenverteilung der Konzentration nach 15 (oben) und 30 min (unten) für die Referenzbedingungen, berechnet mit der ADG und dem neuen Ansatz mit  $z_m = 17$ .

nen Raten mit stoffbelastetem Wasser beregnet wurden. Von diesen insgesamt 12 Versuchen werden zwei mit Sandlöss in langer Säule hier gezeigt, die übrigen 10 sind in Anhang 3 zu finden. Es handelt sich dabei um den Versuch, der mit unserem Modell am besten (Bild 7) und um den, der damit am wenigsten passend (Bild 8) simuliert werden konnte. Die Modellparameter  $a$  und  $b$  wurden aus gemessenen Wasserspannungskurven abgeleitet,  $q$ ,  $L$ ,  $C_0$  und  $t_e$  ergaben sich aus den experimentellen Bedingungen,  $z_m$  wurde angepasst.

Die in der zitierten Arbeit gezeigten Konzentrationsberechnungen mittels ADG wurden dabei durch Berechnungen mit dem neuen Ansatz ersetzt. Dabei stellte sich selbst bei Bild 8, welches das schlechteste Simulationsergebnis zeigt, noch eine relativ gute Übereinstimmung heraus. Da in diesen zwei Versuchen schon  $f$  vom meist passenden Wert von 0,025 abwich, liegt es auf der Hand, dass nun auch die  $z_m$ , die zum besten Ergebnis führten, nicht 17 betragen.



**Bild 7:** Experimentelle und mit unserem Ansatz berechnete Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 24 mm/h, Abstimmung des Stoffeintrags nach 720 min,  $z_m = 15$ .



**Bild 8:** Experimentelle und mit unserem Ansatz berechnete Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 60 mm/h, Abstimmung des Stoffeintrags nach 360 min,  $z_m = 25$ .

## 4.2 Stoffverlagerung durch Beregnung eines stoffbeladenen PM mit stofffreiem Wasser

### 4.2.1 Vorbemerkungen

Die gute Übereinstimmung der Berechnungen mit unserem Modell mit denen der ADG bzw. den im vorigen Abschnitt angesprochenen Versuchen belegen seine physikalische Korrektheit und damit seine grundsätzliche Tauglichkeit zur Beschreibung des Stofftransports. Hier

wird dieses Modell nun hinsichtlich seiner eigentlichen Intention geprüft, nämlich der Beschreibung der Auswaschung von Stoffen, die sich an den Porenwänden eines PM angelagert haben.

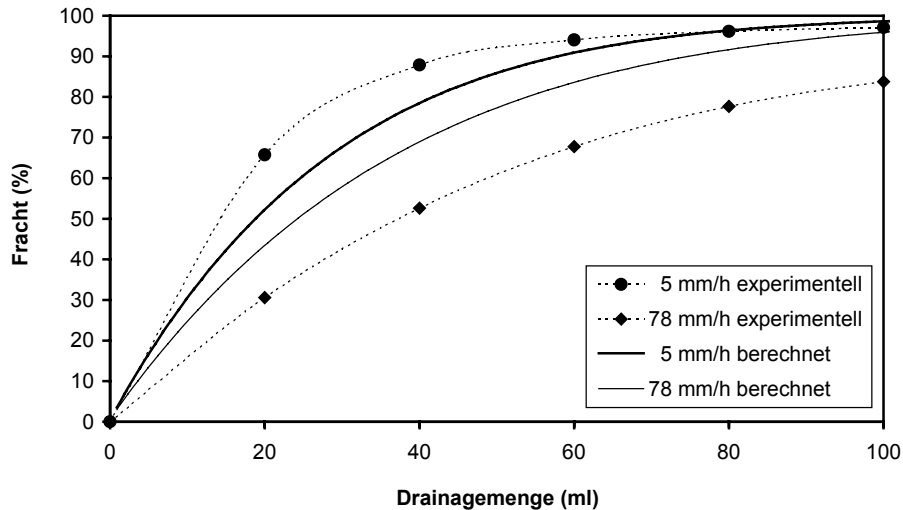
Anhand eigener Versuchsergebnisse (Hagenau und Borg, 2003a; Hagenau et al. 2005a und b) soll hier gezeigt werden, dass bei der Auswaschung von porösen Medien, in denen sich die Stoffe porengrößenabhängig angelagert haben, eine quantitative Berechnung der Konzentrationen und Frachten möglich ist und somit eine relativ genaue Beschreibung der experimentell ermittelten Ergebnisse erfolgen kann. Dabei wird bei den Vergleichen stets der Verlauf der Gesamtfracht als Funktion der Wassermenge  $V = q A t$  herangezogen, wobei  $A$  die Querschnittsfläche der Säulen ist. Auf die Darstellung der Konzentrationsverläufe wird aufgrund ihrer für die Auswaschungseffektivität nicht so hohen Aussagekraft verzichtet.

Für die Stoffmenge  $s$  wurde immer der Wert der Gesamtfracht eingesetzt, die letztlich aus der im jeweiligen Experiment verwendeten Säule ausgewaschen wurde. Das ist die Fracht, nach deren Erreichen bei weiterer Berechnung keine messbaren Konzentrationen und damit Teilfrachten mehr ermittelt wurden. Als  $r_{\min}$  wurde bei allen Berechnungen der in Hagenau und Borg (2006b) erläuterte Wert von  $3 \cdot 10^{-9}$  m eingesetzt.

#### **4.2.2 Auswaschung von Chlorid aus Sand**

Bild 9 zeigt den Verlauf der Frachten bei der Auswaschung von Chlorid aus einem schwach tonigen Sand bei zwei verschiedenen Berechnungsintensitäten, so wie er sich in der Arbeit von Hagenau und Borg (2003a) ergeben hat. Zusätzlich dazu sind die mit dem Modell errechneten Kurven für diese Raten abgebildet. Das poröse Medium ist gekennzeichnet durch folgende Werte aus der Wasserspannungskurve:  $a = 0,088$  cm,  $b = -3,83$  und  $\theta_s = 0,36$ . Es wurde wieder mit der Mischungszahl  $z_m = 17$  gearbeitet, sofern nicht anders vermerkt. Da Chlorid vom Medium nicht zurückgehalten wird, ist  $R = 1$ . Die Substratmächtigkeit betrug 19 cm bei einem Säulendurchmesser von 7 cm. Die ausgewaschene Stoffmenge pro Säule lag bei 350 mg. Die Darstellung der Fracht erfolgt hier, so wie in der o. g. Arbeit, als % der Gesamtfracht.

Aufgrund der fehlenden Retardation kommt es in diesem Fall bei allen Raten gleich bei Beginn der Entwässerung zu sehr hohen Konzentrationen und damit zu einer hohen Fracht. Das ist darauf zurückzuführen, dass schon während der Aufsättigungsphase der größte Teil der Stoffe an das untere Ende des Mediums verlagert wird (Hagenau und Borg, 2006b, Abschnitt 2.6).



**Bild 9:** Experimentelle und mit unserem Ansatz berechnete Auswaschkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 19 cm, Beregnungsraten 5 bzw. 78 mm/h.

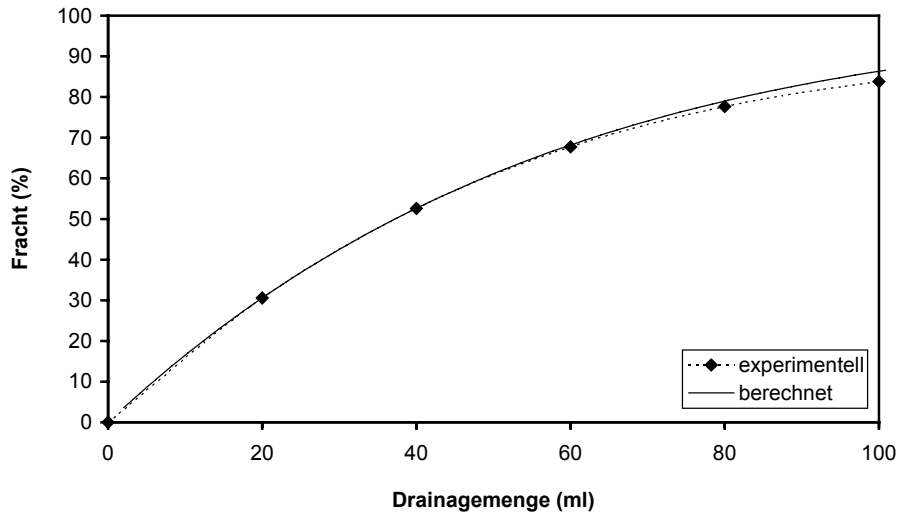
Mit den genannten Parametern ergibt sich nur eine tendenzielle Übereinstimmung der berechneten und experimentell ermittelten Verläufe. Für jedes einzelne Auswaschungsereignis ist es jedoch möglich, durch Anpassung von Modellparametern, z. B.  $a$ ,  $b$  oder  $z_m$ , den berechneten Verlauf mit dem gemessenen in Einklang zu bringen. Dies ist in Bild 10 beispielhaft für die höhere Rate aus Bild 9 dargestellt. Hier wurden Werte von  $b = -4,5$  und  $z_m = 11$  eingesetzt. Dieser  $b$ -Wert liegt dabei durchaus in der möglichen Schwankungsbreite, die bei der Ermittlung von Wasserspannungskurven für das verwendete Substrat auftreten kann. Die Mischungszahl von 11 entspricht einem  $f$  von 0,04. Dieser Wert liegt in der Schwankungsbreite, die in Hagenau und Borg (2006a) auftrat.

Andererseits bedeutet der Umstand, dass sich hier schon mit den gemessenen Parametern, also ohne Anpassung, ein tendenziell richtiger Frachtverlauf ergibt, dass man mit für das Substrat typischen, aber nicht optimierten Eingabeparametern zumindest die Tendenzen, sprich die beste Vorgehensweise bei einer gezielten Auswaschung bzw. die Konsequenzen unterschiedlicher natürlicher Niederschlagsraten ermitteln kann.

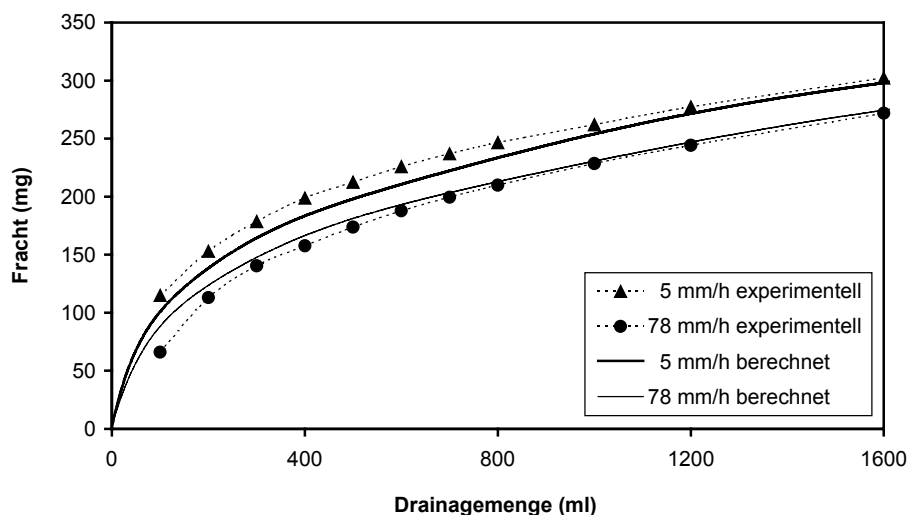
#### 4.2.3 Auswaschung von organischer Substanz aus Sand

In Bild 11 ist der Verlauf der Auswaschung von organischen Verbindungen aus dem gleichen Substrat wie im vorigen Abschnitt bei zwei Intensitäten dargestellt. Die Substratmächtigkeit betrug diesmal aber 30 cm beim gleichen Säulendurchmesser von 7 cm. Der Sand war für eine Arbeit von Hagenau et al. (2005b) mit einer sehr organikreichen, aus Kompost gewonnenen Lösung versetzt, getrocknet und anschließend mit den unterschiedlichen Raten be-





**Bild 10:** Experimentelle und mit unserem Ansatz mit  $b = -4,5$  und  $z_m = 11$  berechnete Auswaschkurven für die höhere Beregnungsrate (78 mm/h) aus Bild 9.



**Bild 11:** Experimentelle und mit unserem Ansatz berechnete Auswaschkurven für organische Verbindungen (erfasst durch den CSB). Sand, Säulenlänge 30 cm, Beregnungsraten 5 bzw. 78 mm/h,  $z_m = 20$ .

regnet worden. Die Quantifizierung der organischen Verbindungen erfolgte über den Parameter chemischer Sauerstoffbedarf (CSB). Zusätzlich zu den experimentell ermittelten Frachtkurven sind die errechneten für beide Raten abgebildet. Für  $z_m$  wurde aufgrund der Retardation 20 eingesetzt (vgl. 3.2),  $s$  war auch hier 350 mg / Säule.

Aufgrund der Mannigfaltigkeit der mit dem CSB erfassten Stoffe, gibt es für sie auch eine Spanne unterschiedlicher Retardationskoeffizienten ( $R$ ). Für die hier getätigten Berechnungen wurde mit fünf verschiedenen  $R$  gerechnet; jedem  $R$  wurde ein Anteil von 20% an der

Gesamtstoffmenge zugeordnet. Dazu wurden die jeweils errechneten Frachten durch 5 geteilt und die fünf Frachtkurven anschließend addiert. Nach mehreren Anpassungen ergab sich mit  $R = 1, 2, 5, 8$  und  $12$  die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen Daten und Modellrechnungen. Mit nur einem Wert für  $R$  konnte der CSB-Frachtverlauf nicht simuliert werden.

Wie Bild 11 zeigt, verlaufen die errechneten Linien nah bei den jeweiligen experimentell ermittelten. Durch Anpassen anderer Eingabeparameter, wie im vorigen Abschnitt, hätte die Übereinstimmung noch verbessert werden können. Darauf wurde hier verzichtet, da das Bild auch ohne weitere Parameteranpassung eine zufriedenstellende Übereinstimmung zeigt und damit schon hinreichend belegt, dass das vorliegende Modell die Auswaschung von organischen Verbindungen gut simulieren kann.

Für den Vergleich der Versuchsdaten mit den Modellrechnungen wäre es wünschenswert gewesen, die genauen Anteile aller hier im CSB erfassten Stoffe und deren jeweiliges  $R$  zu kennen. Das hätte aber einen immensen experimentellen Aufwand erfordert. Für die Zielstellung dieses Abschnittes, nämlich den Nachweis, dass die Auswaschung von im CSB erfassten organischen Verbindungen mit unserem Modell simuliert werden kann, ist die hier verwendete Herangehensweise ausreichend.

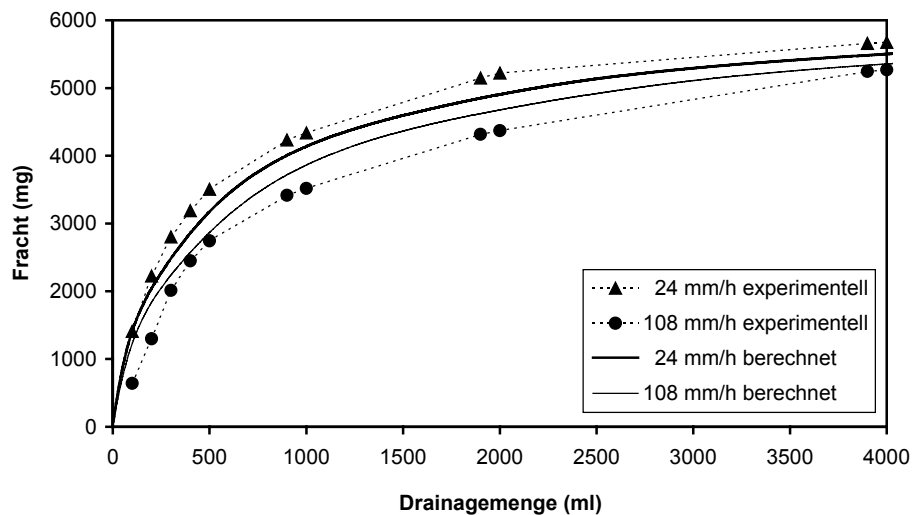
#### **4.2.4 Auswaschung von organischer Substanz aus einem Sand-Kompost-Gemisch**

Hierzu diente als Vergleich ein Versuch aus Hagenau et al. (2005a) bei dem die vorhandene lösliche organische Substanz aus einem Gemisch aus dem bisher verwendeten Sand und Kompost ausgewaschen werden sollte. Das Gemisch diente der Simulation eines Deponiekörpers unter Berücksichtigung der Tatsache, dass es sich hierbei ebenfalls um eine Mischung aus mineralischen und organischen Komponenten handelt. In die Berechnung gingen folgende Werte ein:  $a = 6$  cm,  $b = -2$ ,  $\theta_s = 55\%$  und  $z_m = 20$ , wobei die Standardabweichung von  $a$  und  $b$  für dieses Substrat sehr hoch war. Die Säulenlänge und damit Substratmächtigkeit lag bei  $67$  cm, ihr Durchmesser war  $4,6$  cm. Entsprechend der auswaschbaren Gesamtfracht ging ein  $s$  von  $6000$  mg / Säule in die Berechnung ein.

Die Berechnungen erfolgten in Hinblick auf  $R$  mit der gleichen Verfahrensweise wie im vorigen Abschnitt. Da aber die CSB-bestimmenden löslichen Stoffe im Falle des Kompostes sowohl anders zusammengesetzt als auch anders in der Matrix gebunden sind als beim Sand, mussten andere Werte für  $R$  eingesetzt werden. Die Anpassung ergab die besten Simulationsergebnisse mit  $R$  von  $1, 2, 4, 6$  und  $15$  (für je  $20\%$  der Gesamtfracht).

Bild 12 zeigt wiederum die experimentell ermittelten sowie die berechneten Frachtverläufe. Die Schlussfolgerungen für dieses Kapitel entsprechen denen der vorangegangenen: Mit der

niedrigeren Rate wird effektiver ausgewaschen als mit der höheren. Bemerkenswert ist hier die relativ gute Übereinstimmung von Versuch und Berechnung trotz der, wie oben gesagt, relativ unsicheren Werte von  $a$  und  $b$ . Wie auch in zuvor betrachteten Fällen, hätte sie durch eine Anpassung von Modellparametern noch verbessert werden können.



**Bild 12:** Experimentelle und mit unserem Ansatz berechnete Auswaschkurven für organische Verbindungen (erfasst durch den CSB). Sand-Kompost-Gemisch, Säulenlänge 67 cm, Applikationsraten 24 bzw. 108 mm/h,  $z_m = 20$ .

## 5. Sensitivitätsanalyse für den verbesserten Ansatz

Im Folgenden soll geklärt werden, inwieweit sich Variationen von Modellparametern auf die Ergebnisse auswirken. Dabei müssen die Parameter betrachtet werden, die sich experimentell nicht mit letzter Genauigkeit ermitteln lassen. Das sind in unserem Modell  $a$ ,  $b$ ,  $z_m$ ,  $R$ ,  $s$ ,  $r_{\min}$  und  $\theta_s$ . Die Sensitivität wird anhand des Frachtverlaufs als Funktion der Applikationsmenge gezeigt.

Es wurde dazu ein PM mit folgenden Eigenschaften zugrunde gelegt:  $a = 1$  cm,  $b = -4$ ,  $r_{\min} = 3 \cdot 10^{-9}$  m,  $\theta_s = 50\%$  und  $L = 1$  m. Für den Auswaschvorgang gelten außerdem folgende Bedingungen:  $q = 1$  mm/h,  $z_m = 17$ ,  $s = 100$  g/m<sup>2</sup> und  $R = 5$ . Der resultierende Wassergehalt  $\theta_{ap}$  beträgt dabei 35%,  $\theta_{\min}$  liegt, ausgehend von  $r_{\min} = 3 \cdot 10^{-9}$  m, bei 3,2%. Von den o. g. Parametern wurde jeder unter Erhaltung sonst gleicher Bedingungen um jeweils 20% erhöht und verringert, um die Abweichungen von der Ausgangslage in beide Richtungen zu erfassen.

Tabelle 3 zeigt die Auswirkung der angesprochenen Variationen der betrachteten Parameter auf den Frachtverlauf. Hierfür wurden die größten absoluten Abstände der Frachtverläufe mit veränderten Parametern vom Referenzverlauf ermittelt. In der Tabelle sind dann stets die

prozentuale Abweichung vom Ausgangsverlauf und die Applikationsmenge angegeben, bei der diese Abweichung auftritt.

**Tabelle 3:** Maximale Abweichung der Fracht vom Referenzverlauf bei der Variation des jeweiligen Parameters um  $\pm 20\%$ .

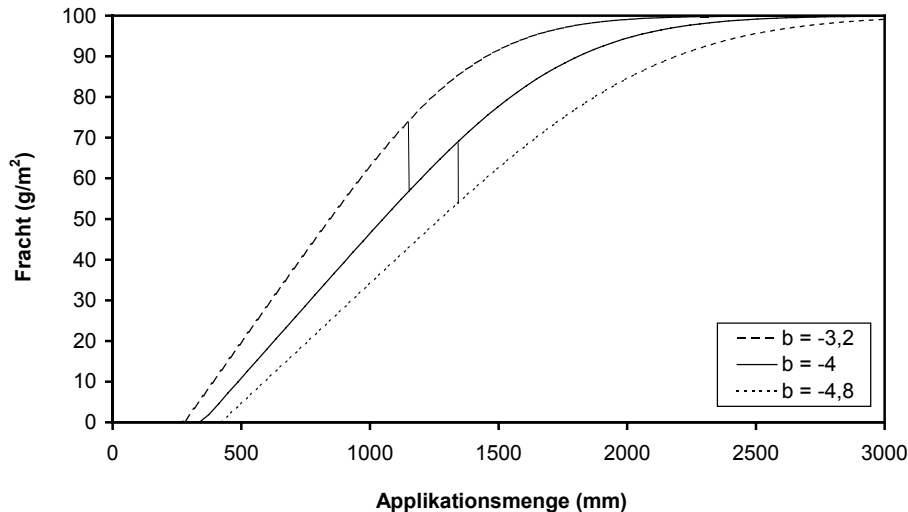
Parameter	Abweichung bei -20% bei (mm)	Abweichung bei +20% bei (mm)
a	+6% (1200)	-4% (1400)
b	+29% (1200)	-17% (1400)
$z_m$	-1% (1800)	+0,8% (1800)
$r_{\min}$	< +0,1%	< -0,1%
$\theta_s$	< +0,1%	< -0,1%
s	-20% (gesamter Verlauf)	+20% (gesamter Verlauf)
R	+26% (1225)	-17% (1475)

Bild 13 zeigt exemplarisch für b die Auswirkungen einer Parameterveränderung auf den Frachtverlauf. Neben dem Referenzverlauf sind dabei die Verläufe für  $b = -3,2$  und  $b = -4,8$  dargestellt. Die vertikalen Linien zeigen die größten Abstände zum Ausgangsverlauf. Entsprechende Bilder für die anderen Parameter befinden sich in Anhang 4. Da sich  $\theta_{ap}$  bei einem gegebenen q ändert, wenn |b| verändert wird, beginnen die Kurven hier nach unterschiedlichen Applikationsmengen, also auf verschiedenen Punkten auf der x-Achse.

Änderungen von a haben analoge, aber wesentlich geringere Verlaufsverschiebungen zur Folge. Wie bereits angesprochen, ist eine genaue Wasserspannungskurve eine der wichtigsten Voraussetzungen zur Anwendung des Modells. Während a und b für die korrekte Zuweisung von  $\theta_{ap}$  und  $\Delta t_m$  bei einem gegebenen q benötigt werden, fließt b auch noch in die Berechnung der Stoffmenge s und damit der Konzentrationen  $C_{\text{ein}}$  und  $C_{\text{vor}}$  ein.

Eine Variation von  $z_m$  in der angegebenen Schwankungsbreite hat sehr geringe Auswirkungen. Da die Stoffverteilungsfunktion (Gleichung 21 - 23 in Hagenau und Borg, 2006b) auf Veränderungen von  $r_{\min}$  (und damit letztlich von  $\theta_{\min}$ ) und  $\theta_s$  relativ unsensibel reagiert, wie ebenda schon gezeigt, führt eine Variation dieser Parameter um  $\pm 20\%$  zu keinen nennenswerten Konsequenzen für den Frachtverlauf.

Bei s hat eine Abweichung vom Ausgangswert eine proportionale Abweichung im Frachtverlauf zur Folge. Somit beträgt z. B. die ausgewaschene Fracht bei einem s von  $120 \text{ g/m}^2$



**Bild 13:** Auswirkung von unterschiedlichen  $b$ -Werten auf den berechneten Frachtverlauf unter sonst gleichen Bedingungen; die vertikalen Linien zeigen die größten Abstände zum Ausgangsverlauf ( $b = -4$ ).

zu jedem Zeitpunkt das 1,2fache der Fracht bei einem  $s$  von  $100 \text{ g/m}^2$ . Ungenaue  $s$ -Werte wirken sich somit zwar auf die absoluten Werte aus, nicht aber auf deren Relation zueinander. Für Untersuchungen zur besten Auswaschungsstrategie ist ein genaues  $s$  daher nicht erheblich. Für Stoffe, die nicht retardiert werden, gilt die o. g. Proportionalität immer, für solche die retardiert werden allerdings nur, wenn eine lineare Sorptionsisotherme zugrunde gelegt wird. Bei einer nicht-linearen Isotherme muss daher die Sensitivität gegenüber  $s$  neu bewertet werden.

Änderungen von  $R$  wirken sich ebenfalls sehr deutlich aus, und zwar ähnlich stark wie bei  $b$ .

Nach den Ergebnissen aus Tabelle 3 reagiert das Modell am sensibelsten auf die Parameter  $b$ ,  $R$  und  $s$ . Auf die anderen Parameter reagiert es sehr viel weniger sensibel. Einige davon kann man aber auch nur sehr ungenau bestimmen. Daher wird im Folgenden noch geprüft, wie groß die Abweichungen vom Referenzverlauf sind, wenn man die Bandbreite der Bestimmungsgenauigkeit zugrunde legt (Tabelle 4).

Bei  $a$  muss eine Unsicherheit um den Faktor 5 angesetzt werden, während bei  $b \pm 30\%$  selten überschritten wird. Für  $z_m$  wird angenommen, dass es sich in einem Bereich von 9 und 33 bewegt, was bei  $f$  einer Spanne von 0,0125 bis 0,05 entspricht. Bei  $r_{\min}$  sind Unterschiede um zwei Zehnerpotenzen schon aufgrund der differierenden Molekülgrößen möglich. Für  $R$  wird von einer möglichen Über- oder Unterschätzung um 50% ausgegangen.

**Tabelle 4:** Maximale Abweichung der Fracht vom Referenzverlauf bei Variation der jeweiligen Parameter um charakteristische Bestimmungsgenauigkeiten.

Parameter	Bestimmungsgenauigkeit des Parameters	maximale Abweichung der Fracht
a	*5; ÷5	-30%; +43%
b	+30%; -30%	-23%; +55%
$z_m$	*2; ÷2	+5%; -6%
$r_{min}$	*100; ÷100	-2%; < +0,1%
R	+50%; -50%	-33%; +113%

Bei  $\theta_s$  ist die Bestimmungsgenauigkeit besser als  $\pm 20\%$ . Da diese Spanne oben bereits betrachtet wurde, ist dieser Parameter in Tabelle 4 nicht aufgeführt. Da ein genauer Wert für die Auswaschungsstrategie nicht erheblich ist, erscheint s dort ebenfalls nicht.

Auch bei der Berücksichtigung der größten Spanne sind b und R die kritischsten Parameter, allerdings hat sich nun a wegen der großen Ungenauigkeit bei seiner Bestimmung dazugesellt. Dagegen wirken sich auch größere Spannbreiten von  $z_m$  und  $r_{min}$  nicht wesentlich auf das Modellergebnis aus.

## 6. Diskussion

In den vorherigen Abschnitten wurde gezeigt, dass sowohl der Eintrag eines Stoffs in ein PM durch belastetes Wasser und seine anschließende Verlagerung, als auch die Auslaugung eines bereits im PM vorhandenen Stoffs mit dem neuen Ansatz sehr gut dargestellt werden kann. Das gilt sowohl für äußerst mobile Stoffe wie Chlorid als auch für solche, die im Medium retardiert werden.

Der wesentliche Vorteil des neuen Ansatzes gegenüber der ADG liegt in seiner Fähigkeit den Stofftransport auch dann zu modellieren, wenn sich in einem Medium porengrößenabhängige Stoffkonzentrationen eingestellt haben, sowie der Möglichkeit Stoffverlagerungen zu berücksichtigen, die schon beim Aufsättigen des Mediums, also vor der Entwässerung vonstatten gehen.

Ein entscheidender Modellparameter ist die Mischungszahl  $z_m$ . Sie ist eine dem Dispersivitätsfaktor f in der ADG entsprechende Größe, wobei der in Gleichung 16 gezeigte Zusammenhang zwischen beiden Größen meist Gültigkeit besitzt. Da  $z_m$  ganzzahlig sein muss, können die aus f errechneten Werte in der Regel nicht direkt verwendet, sondern müssen erst auf- oder abgerundet werden. So hätte beispielsweise ein f von 0,042 ein  $z_m$  von 10,5 zur Folge. Ob man nun mit 10 oder 11 arbeitet, bringt aber nur marginale Unterschiede mit

sich (vgl. Abschnitt 3.3). Die erforderliche Ganzzahligkeit von  $z_m$  ist also nur ein geringfügiger Nachteil des Modells.

Die Mischungszahl  $z_m$  gibt die Anzahl der Abschnitte an, in die ein PM, egal welcher Länge, unterteilt werden muss, um den Stofftransport mit unserem Modell korrekt zu beschreiben. In Stofftransportmodellen, in denen z. B. mit finiten Differenzen gerechnet wird, nimmt die Genauigkeit zu, wenn die Anzahl der Abschnitte erhöht wird. Das ist hier nicht der Fall, da  $z_m$  den Grad der Dispersion reflektiert und daher nicht willkürlich verändert werden kann.

Bei äußerst geringen Fließgeschwindigkeiten (oder einem geringmächtigen PM, vgl. Gleichung 5) spielt neben der Dispersion auch Diffusion eine Rolle beim Stofftransport. Dann gilt der Zusammenhang zwischen  $f$  und  $z_m$  in Gleichung 16 nicht mehr, sondern die Mischungszahl muss über folgende ebenfalls empirisch gefundene Beziehung berechnet werden:

$$z_m = \frac{0,4 vL}{D_h + D_d} + 1 \quad (17)$$

Das Hinzukommen der Diffusion hat demnach die gleiche Wirkung wie eine Erhöhung der Dispersion: Die Mischungszahl wird geringer, das PM muss in weniger Abschnitte unterteilt werden.

Im Modell wurde bisher angenommen, dass die Wasserbewegung ausschließlich von der Schwerkraft angetrieben wird und daher der hydraulische Gradient  $d\Psi/dz = 1$  ist ( $\Psi$  = Wasserpotential). Bei der Infiltration von Wasser in ein trockenes PM wirkt aber anfänglich außer der Schwerkraft auch noch ein Gradient im Matrixpotential, so dass der Gesamtgradient  $> 1$  ist. Daher bewegt sich das Wasser während der Aufsättigung eines PM in der Realität schneller als im Modell, so dass die Stoffverlagerung zu Beginn auch schneller vonstatten geht, als es hier berechnet wird. Abweichungen zwischen experimentellen und berechneten Frachtverläufen in den vorangegangenen Abschnitten sind teilweise darauf zurückzuführen. Die Möglichkeit Gradienten im Matrixpotential zu berücksichtigen, muss noch in das Modell eingebaut werden.

## Literatur

- Bear, J. (1972): Dynamics of fluids in porous media. Dover, New York.
- Fehse, K.-U. (2004): Zur Sorption von Zink-Ionen an natürliche und technische Sorbentien unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses. Dissertation, Landwirtschaftliche Fakultät, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Gelhar, L. W., A. Mantaglou, C. Welty und K. R. Rehfeldt (1985): A review of field-scale physical solute transport processes in saturated and unsaturated porous media. Electrical Power Research Institute, Palo Alto, Report EA-4190.

- Gelhar, L. W., C. Welty und K. R. Rehfeldt (1992): A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. *Water Resources Research* 28, 1955-1974.
- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005a): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. *Müll und Abfall* 37, 82-90.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005b): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. *Müll und Abfall* 37, 148-153.
- Hagenau, J., H. Borg (2006a): Ermittlung eines Dispersivitätsfaktors beim Chloridtransport - Abhängigkeit von Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit. Eingereicht zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Hagenau, J., H. Borg (2006b): Eine verbesserte mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. *Journal of the Soil Science Society of America* 43, 1100-1106.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. *Journal of Hydrology* 32, 203-218.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15 - 19.24.
- Parker, J. C., M. Th. van Genuchten (1984): Flux-averaged and volume-averaged concentrations in continuum approaches to solute transport. *Water Resources Research*, 20, 866-872.
- Schneider, W., J.-J. Göttner (1991): Schadstofftransport in mineralischen Tonabdichtungen und natürlichen Tonschichten. *Geologisches Jahrbuch, Reihe C, Heft 58*, Hannover.



## **IX. Abschlussdiskussion**

Das Ziel dieser Arbeit bestand darin, zu untersuchen, wie sich bei einer gezielten Wasserapplikation die Stoffauswaschung aus Mülldeponien in Hinblick auf Konzentrationsverlauf und ausgewaschene Stoffmenge (Gesamtfracht) vollzieht.

Ausgangspunkt war die These, dass bei der Auswaschung von Stoffen aus porösen Medien nicht nur die applizierte Wassermenge die ausgewaschene Stoffmenge bestimmt, sondern auch die Rate, mit der diese Wassermenge appliziert wird. Als poröse Medien für die experimentelle Überprüfung dieser These dienten zunächst unterschiedliche mineralische Substrate. Später wurden Komposte sowie Sand-Kompost-Gemische in variierten Zusammensetzungen untersucht, mit dem Ziel, die gewonnenen Ergebnisse später auch auf die Entfrachtung von Mülldeponien anwenden zu können.

Es wurde gezeigt, dass bei Auslaugung mit geringeren Applikationsintensitäten (und damit verbunden bei geringen Wassergehalten) höhere Stoffkonzentrationen im Drainagewasser vorkommen als mit höheren Raten. Somit wird auch mehr Stoffmenge pro Einheit Wasser ausgewaschen. Man spricht deshalb von einer höheren Auswaschungseffektivität bei geringeren Raten. Schon vor mehreren Jahrzehnten war bei Versuchen zur Entsalzung von Böden diese Erkenntnis gewonnen, aber nicht explizit begründet worden.

Das hier vorgestellte verbesserte Modell ermöglicht zum einen die Prognose von Stoffausträgen, wenn die zu betrachtenden Stoffe in gleichbleibender Konzentration und mit konstanter Rate auf der Oberfläche eines porösen Mediums (PM) aufgebracht werden, zum anderen wenn sie durch Anreicherung oder Austrocknung im Medium in porengrößenabhängigen Konzentrationen vorliegen. Stoffkonzentrationen und -frachten können also bei gegebener Beregnungsrate als Funktion der Zeit bzw. der applizierten Wassermenge beschrieben werden.

Die hier gewonnenen Erkenntnisse können über den ursprünglichen Anlass einer gezielten Entfrachtung von Mülldeponien hinaus auch in anderen Bereichen Anwendung finden, so beispielsweise bei der Bodensanierung oder bei der Entsalzung von Böden. Auch Stoffausträge als Folge unterschiedlicher natürlicher Niederschlagsraten lassen sich damit abschätzen. Arbeiten aus dem Bereich der Bodenentsalzung waren Ausgangspunkt für die in dieser Dissertation geprüften Thesen.

Zunächst konnten Säulenversuche mit verschiedenen Substraten, bei denen das Drainagewasser auf unterschiedliche Stoffe oder Summenparameter untersucht wurde, die höhere Auswaschungseffektivität geringerer Beregnungsraten bestätigen. Dabei wurde stets mit zwei bis vier deutlich unterschiedlichen Raten und mehreren Säulenlängen gearbeitet. Als

Substrate dienten dabei ein schwach toniger Sand, ein Sandlöss, Fertigungskompost des Rottegrades V sowie verschiedene Mischungen aus dem genannten Sand und Kompost. Die betrachteten Stoffe waren Chlorid und Zink sowie die Summenparameter chemischer Sauerstoffbedarf (CSB) und elektrische Leitfähigkeit.

Mit der ersten Versuchsreihe wurde sowohl eine von den Porengrößenabhängige Stoffverteilung innerhalb des Mediums bestätigt, als auch nachgewiesen, dass die Stoffauswaschung bei kleineren Raten effektiver vonstatten geht. Als Material dienten dabei der Sand und der Sandlöss, der ausgewaschene Stoff war hier zunächst ausschließlich Chlorid (Kapitel 2).

Experimente zur Auslaugung organischer Substanz aus den porösen Medien folgten (Kapitel 4). Diese organischen Stoffe können mit dem Summenparameter CSB erfasst werden, dessen Höhe im Drainagewasser bestimmt wurde. Dabei wurden weiterhin die Chlorid- und zusätzlich die Zinkkonzentration der Drainagelösung sowie deren elektrische Leitfähigkeit bestimmt. Hierfür wurden Komposte und Sand-Kompost-Gemische sowie ein mit (aus Kompost gewonnener) organischer Substanz versetzter Sand verwendet. In fast allen Fällen zeigte sich in mehr oder weniger starker Ausprägung, dass mit der kleinsten Rate grundsätzlich die meisten Stoffe pro gegebener Wassermenge ausgewaschen werden.

Bei einem Teil der Experimente mit Komposten (Kapitel 5) wurde jedoch die Beobachtung gemacht, dass Hydrophobie, die hier von der organischen Substanz ausgeht, die Infiltration von Wasser so stark hemmt, dass die Gesetzmäßigkeiten der Infiltration quasi nicht mehr gelten. In einem Fall wurde sogar das ansonsten beobachtete Ergebnis, also mehr Fracht und damit höhere Effektivität bei geringeren Beregnungsraten, auf den Kopf gestellt.

Der Einsatz eines Lösevermittlers, in diesem Falle des handelsüblichen Spülmittels „fit“, führte bei hydrophobem Material wider Erwarten nicht zu einer Erhöhung der ausgewaschenen Stoffmenge. Durch Versetzen des o. g. Sandes, also eines mineralischen Materials, mit gelöster organischer Substanz, nachfolgender Trocknung und anschließender Auswaschung konnte jedoch nachgewiesen werden, dass bereits gelöste Substanz nicht nochmal hydrophob wird.

Für die experimentellen Teile dieser Dissertation ist als einschränkend zu nennen, dass die Wassergehaltsverteilung besonders in relativ kurzen Säulen sehr ungleichförmig ist und somit die Zuordnung der Durchflussrate zu einem bestimmten Wassergehalt erschwert wird. Während sich am oberen Säulenrand die erwarteten Wassergehalte einstellen, werden sie nach unten hin immer größer bis hin zur Sättigung. Je höher das Lufteintrittspotential des Mediums ist, desto größer ist die gesättigte Zone im unteren Bereich der Säulen und umso

mehr finden Wasserbewegung und Stofftransport in den Säulen bei Wassersättigung statt. Mit feinkörnigeren Böden als dem hier verwendeten Sandlöss kann mit relativ kurzen Säulen ( $\leq 67$  cm) daher nicht gearbeitet werden, weil wegen ihres hohen Lufteintrittspotentials nahezu überall Sättigung vorläge. Ein weiteres Problem mit solchen Säulen ist, dass die Absenkung der Applikationsrate ab einem gewissen Punkt nicht mehr zu einer Absenkung des sich einstellenden Wassergehaltes führt. Dieser Punkt ist wiederum abhängig von Substrat und Säulenlänge.

Experimente mit Säulen von einem bis drei Metern Länge könnten diese Einschränkungen zum großen Teil beheben. Alternativ würden Saugplatten am unteren Ende der Säulen Abhilfe schaffen, die sowohl einen gleichmäßigeren Wassergehalt in der gesamten Säule garantieren als auch das Arbeiten mit wesentlich geringeren Raten als bisher ermöglichen würden.

Für die Bestätigung der eingangs aufgestellten Thesen sind keine weiteren Experimente notwendig. Auftreten, Wirkung und Überwindung der Hydrophobie bedürfen jedoch noch weiterer Untersuchungen.

Für die Erklärung der oben genannten höheren Auswaschungseffektivität kleiner Raten wurde die Annahme zugrunde gelegt, dass sich beim partiellen Austrocknen eines PM die sich bis dahin in Lösung befindlichen Stoffe an den Porenwänden anlagern. Da kleinere Poren im Verhältnis zum Porenvolumen mehr Wandfläche besitzen, erfolgt die Anlagerung zum überwiegenden Teil auch dort. Beim erneuten Durchfließen des Mediums mit geringer Intensität und damit bei geringem Wassergehalt werden dann diese kleinen Poren durchflossen. Steigende Raten und damit steigende Wassergehalte führen dazu, dass das Wasser vornehmlich durch größere Poren fließt und somit relativ wenig Stoff transportiert. Auf Basis dieser Annahmen erfolgte nun die Modellierung.

Zur Simulation dieser Auswaschungsprozesse musste eine Stoffverteilungsfunktion, welche die Annahme von porengrößenabhängigen Konzentrationen beinhaltet, in ein Transportmodell integriert werden. Es stellte sich heraus, dass mit Stofftransportmodellen auf Basis der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) dafür zwar eine Lösung gefunden werden könnte (siehe unten), nicht aber für die Berücksichtigung der Tatsache, dass sich schon bei der Aufsättigung eines trockenen Mediums bis zum der Applikationsrate entsprechenden Wassergehalt (und somit vor Beginn der Entwässerung) die Stoffverteilung innerhalb des Mediums ändert.

Deshalb erfolgte die Entwicklung eines eigenen Stofftransportmodells auf Basis einer physikalisch begründeten mathematischen Beschreibung von Wasserbewegung und Stofftrans-

port, das sowohl die porengrößenabhängigen Konzentrationen als auch Stoffbewegungen in der Aufsättigungsphase berücksichtigen kann. Der erste Ansatz (Kapitel 3) hat dabei in einigen Punkten noch deutliche Schwachstellen (siehe unten), mit ihm ist aber schon eine qualitative Beschreibung der Konzentrations- und Frachtverläufe möglich.

Das Prinzip dieses Ansatzes besteht darin, dass die Stoffbeladungen der unterschiedlich großen Poren je nach deren Durchflussraten einzeln durch das Medium hindurchgeschoben werden, um nach Austritt aus dem Medium addiert zu werden. Somit ergibt sich als Ergebnis immer eine Stoffmenge, also eine Fracht. Die dazugehörigen Konzentrationen können dann mit Hilfe der Durchflussmengen aus den Frachten errechnet werden. Dieses qualitative Modell zeigt aber schon deutlich, dass geringere Raten grundsätzlich effektiver sind als höhere.

Um einer quantitativen Berechnung näher zu kommen, wurden im zweiten Ansatz (Kapitel 7) nun noch Tortuosität, Dispersion und Retardation berücksichtigt, die im ersten Ansatz noch nicht einbezogen worden waren. Bei der Validierung des verbesserten Modells dienten fortan sowohl die ADG als auch die Ergebnisse von selbst durchgeführten Durchbruchs- und Auslaugungsversuchen als Vergleichsgrundlage.

Das neue Modell sollte zunächst zur Berechnung des Stofftransportes ohne porenspezifische Stoffverteilung in der Lage sein, wie er auch mit der ADG simuliert werden kann. Der Vergleich beider Ansätze ergab immer dann eine gute Übereinstimmung, wenn der Parameter  $z_m$  im neuen Modell mit dem Dispersivitätsfaktor  $f$  aus der ADG (Kapitel 6) abgestimmt worden war. Dabei ergab sich eine umgekehrte Proportionalität beider Größen.

Als Nächstes wurden die Stoffverteilungsfunktion und die Aufsättigungsfunktion integriert. Somit war es möglich, die experimentell erzielten Konzentrations- und Frachtverläufe quantitativ gut zu beschreiben. Ausnahmen stellen dabei die Versuche mit stark hydrophobem Substrat sowie zur Auswaschung von Zink dar.

Das nun vorliegende Modell stellt Konzentrations- und Frachtverläufe auch dann zumindest in der richtigen Größenordnung dar, wenn die Werte der Eingabeparameter (wie bspw.  $a$ ,  $b$ ,  $s_g$ ,  $R$ ) nicht genau bekannt sind, sondern nur annäherungsweise geschätzt werden können. Durch Anpassen dieser Eingabeparameter ist es grundsätzlich möglich, Deckungsgleichheit zwischen experimentell ermittelten und errechneten Verläufen herzustellen (Kapitel 8).

Die Parameter, auf die das Modell am sensibelsten reagiert, sind die Werte  $a$  und  $b$  aus der Wasserspannungskurve sowie der Retardationsfaktor  $R$  und die Stoffmenge  $s_g$ . Auch noch nennenswert, aber wesentlich geringer, ist der Einfluss von  $z_m$ , auf die anderen Parameter reagiert das Modell unsensibel.

Die Wasserspannungskurve ist erforderlich, um der angelegten Applikationsrate rechnerisch den korrekten Wassergehalt zuzuordnen. Für diesen Zusammenhang erwies sich die Beschreibung der Durchflussrate nach Childs und Collis-George (1950) und die anschließende Erweiterung des Exponenten um ein  $\theta$  (vgl. Gleichungen 10 und 11 in Kapitel 7) als die Variante, die am häufigsten die beste Übereinstimmung bringt (bei 31 von 40 untersuchten Böden). Für die restlichen war die Methode von Brooks und Corey (1966) besser geeignet, die den gleichen Exponenten aber einen wesentlich geringeren Nenner beinhaltet und damit den Flux bei gegebenem Wassergehalt im Gegensatz zur erstgenannten Methode überschätzt.

Obwohl es keinerlei Anzeichen dafür gibt, dass sich die angesprochene Wassergehalt-Flux-Beziehung bei stark heterogenen Medien wie Müllkörpern grundsätzlich anders gestaltet als bei mineralischen Substraten, sollten Wassergehalt-Flux-Zusammenhänge verschiedener PM ausgewertet werden mit dem Ziel, eine optimale mathematische Beschreibung für sie zu finden.

Hier wurde mit Wasserspannungskurven gearbeitet, die mit einer Potenzfunktion beschrieben werden konnten. Die darauf aufbauenden Modellgleichungen sind dann am einfachsten. Grundsätzlich kann aber auch eine andere Funktion verwendet werden, solange sie die vorliegende Wasserspannungskurve gut beschreibt. Während die Ermittlung einer Wasserspannungskurve bei Böden und mineralischen PM in der Regel recht einfach ist, kann sie bei heterogenen Medien wie Komposten oder einem Müllkörper oft mit großen Schwierigkeiten verbunden sein.

Warum es rechnerisch funktioniert, dass die Stoffmengen in den Abschnitten nach der jeweiligen Durchflusszeit für die größte Pore als durchmischt angesehen werden können, konnte bisher nicht mathematisch begründet werden; ebenso wie die Wahl der Mischungszahl und der Zusammenhang zwischen dieser und dem Dispersivitätsfaktor  $f$ . Da aber auch  $f$  als empirischer Faktor angesehen werden muss, stellen diese (noch) ungeklärten Fragen die Gültigkeit des neuen Modells keineswegs in Frage.

Bei der Modellbeschreibung ist mehrfach von den Porenradien  $r_0$  und  $r_{\min}$  sowie deren korrespondierenden Wassergehalten  $\theta_0$  sowie  $\theta_{\min}$  die Rede. Dabei ist  $r_0$  der Radius unterhalb dessen keine Wasserbewegung mehr stattfindet,  $r_{\min}$  ist der Radius der Poren im Medium, in die Teilchen eines bestimmten Stoffs gerade noch eindringen können. Für die Berechnung der Stoffverteilung wurde auf  $r_0$  zurückgegriffen, weil er in der gleichen Größenordnung liegt wie  $r_{\min}$  für einige der betrachteten Stoffe. Außerdem zeigte die Sensitivitätsanalyse, dass seine Variation selbst um mehrere Zehnerpotenzen keine Auswirkung auf die Berechnungsergebnisse hat.

Würde man die mit der hier vorgestellten Stoffverteilungsfunktion errechneten Ausgangskonzentrationen in die ADG einsetzen, so wäre auch damit die Berechnung eines Auswaschungsvorgangs möglich. Mit der ADG kann der Aufsättigungsvorgang jedoch nicht berücksichtigt werden. Erste Überlegungen lassen auf die Möglichkeit der Anwendung der Richards-Gleichung (Hillel, 1998) zur Lösung dieses Problems schließen. Deren mathematische Umsetzung wäre jedoch wesentlich komplizierter als das hier entwickelte Modell.

Schwachpunkt des hier vorgestellten Modells ist die noch fehlende Möglichkeit, heterogene Medien mit beispielsweise über den vertikalen Verlauf unterschiedlichen Werten von  $a$  und  $b$  zu betrachten. Es muss auch die Fähigkeit eingearbeitet werden, Gradienten im Matrixpotential zu berücksichtigen. Insgesamt wurde das Anliegen der Arbeit jedoch mehr als erfüllt: Es sollte die höhere Effektivität kleiner Wasserapplikationsraten bei der Stoffauswaschung sowohl experimentell als auch rechnerisch nachgewiesen werden. Da die Ergebnisse mit dem ersten Modellansatz zwar tendenziell die gewünschten Ergebnisse brachten, aber von den tatsächlichen Werten zu stark abwichen, erfolgte die Verbesserung mit dem Ergebnis eines quantitativen Stofftransportmodells.

Die Entfrachtung von Müllkörpern, einer der ursprünglichen Anlässe dieser Arbeit, lässt sich somit relativ genau abschätzen. Lediglich die Wirkung von unterbrochenem Überstau, wie er in den eingangs zitierten Arbeiten zur Bodenentsalzung oft Anwendung fand, lässt sich noch nicht direkt simulieren. Für solche Ereignisse müssen zur Zeit noch durchschnittliche Beregnungs- bzw. Entwässerungsraten ermittelt und in das Modell eingegeben werden.

## X. Literaturverzeichnis

- AG Boden (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung, 4. Auflage. Schweizerbart, Stuttgart.
- Andreottola, G., P. Cannas (1992): Chemical and biological characteristics of landfill leachate. Pages 65-88 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Landfilling of waste: leachate. Elsevier Applied Science, London [u.a.].
- Anlauf, R., K. C. Kersebaum, L. Y. Ping, A. Nuske-Schüler, J. Richter, G. Springob, K. M. Syring, J. Utermann (1988): Modelle für Prozesse im Boden. Enke, Stuttgart.
- Arneth, J.-D., G. Milde, H. Kerndorff, R. Schleyer (1989): Waste deposit influences on groundwater quality as a tool for waste type and site selection for final storage quality. Pages 399-415 in: Baccini, P. (ed.): The landfill - reactor and final storage. Lecture Notes in Earth Sciences 20. Springer, Berlin [u.a.].
- Bear, J. (1972): Dynamics of fluids in porous media. Dover, New York.
- Belevi, H., P. Baccini (1989a): Water and element fluxes from sanitary landfills. Pages 391-397 in: Christensen, T.H., Cossu, R., Stegmann, R. (eds.): Sanitary landfilling: process, technology and environmental impact. Academic Press, London [u.a.].
- Belevi, H., P. Baccini (1989b): Long-term behaviour of municipal solid waste landfills. Waste Management and Research 7, 43-56.
- Bilitewski, B., G. Härdtle, K. Marek (1994): Abfallwirtschaft, 2. Auflage. Springer, Berlin [u.a.].
- Birecki, M., A. Kullmann, I. B. Revut, A. A. Rode (1967): Untersuchungsmethoden des Bodenstrukturzustandes. VEB Deutscher Landwirtschaftsverlag, Berlin.
- Brinkmann, U., K. Höring, A. Helfer, H.-J. Ehrig (1997): Untersuchung des Gefährdungspotentials, Deponie- und Langzeitverhalten vorbehandelter z. T. separierter Siedlungsabfälle. Bericht zum Teilvorhaben TV 6 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799.
- Brooks, R. H., A. T. Corey (1966): Properties of porous media affecting fluid flow. J. Irrig. Drainage Div. Am. Soc. Civ. Eng. 92, 62-88.
- Busch, K.-F., L. Luckner, K. Tiemer (1993): Geohydraulik, Lehrbuch der Hydrogeologie, Band 3. Bornträger, Berlin [u.a.].
- Campbell, G. S. (1974): A simple method for determining unsaturated conductivity from moisture retention data. Soil Sci. 117, 311-314.
- Campbell, G. S. (1985): Soil Physics with QBASIC. Developments in Soil Science 14. Elsevier Science, Amsterdam.
- Childs, E. C., N. Collis-George (1950): The permeability of porous materials. Proc. Roy. Soc. London Ser. A 201, 392-405.
- Cuypers, C., T. Pancras, T. Grotenhuis, W. Rulkens (2002): The estimation of PAH bioavailability in contaminated sediments using hydroxypropyl-beta-cyclodextrin and Triton X-100 extraction techniques. Chemosphere 46, 1235-1245.
- DIN 38409, Teil 41 (1980): Bestimmung des Chemischen Sauerstoffbedarfs (CSB) im Bereich über 15 mg/l. Beuth, Berlin.
- Ehrig, H.-J. (1980): Beitrag zum quantitativen und qualitativen Wasserhaushalt von Mülldeponien, Veröffentlichungen des Instituts für Stadtbauwesen, 2. erweiterte Auflage, Heft 26. TU Braunschweig.
- Ehrig, H.-J. (2003): Persönliche Mitteilung.
- Emberger, J. (1993): Kompostierung und Vergärung. Vogel, Würzburg.

- Fehse, K.-U. (2004): Zur Sorption von Zink-Ionen an natürliche und technische Sorbentien unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses. Dissertation, Landwirtschaftliche Fakultät, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Freeze, R. A., J. A. Cherry (1979): Groundwater. Prentice Hall, Englewood Cliffs.
- Gardner, W. R., D. I. Hillel, Y. Benyamini (1970): Post irrigation movement of soil water. I. Redistribution. Water Resour. Res. 6, 851-861.
- Gelhar, L. W., A. Mantoglou, C. Welty, K. R. Rehfeldt (1985): A review of field-scale physical solute transport processes in saturated and unsaturated porous media. Electrical Power Research Institute (EPRI), Report EA-4190, Palo Alto, California.
- Gelhar, L. W., C. Welty, K. R. Rehfeldt (1992): A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. Water Resour. Res. 28, 1955-1974.
- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. Wasser und Boden 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005a): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. Müll und Abfall 37, 82-90.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005b): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. Müll und Abfall 37, 148-153.
- Hagenau, J., H. Borg (2006a): Ermittlung eines Dispersivitätsfaktors beim Chloridtransport - Abhängigkeit von Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit. Eingereicht zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Hagenau, J., H. Borg (2006b): Eine verbesserte mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Hagenau, J., H. Borg (2006c): Test eines verbesserten Modells zur Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei Grundwasser.
- Hartge, K.-H., R. Horn (1991): Einführung in die Bodenphysik, 2. Auflage. Enke, Stuttgart.
- Heyer, K.-U., R. Stegmann (1997): Langfristiges Gefährdungspotential und Deponieverhalten von Ablagerungen. Bericht zum Teilvorhaben TV 4 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799 D3.
- Hillel, D. (1998): Environmental soil physics. Academic Press, San Diego.
- Jasper, S. E., J. W. Atwater, D. S. Mavinic (1985): Leachate production and characteristics as a function of water input and landfill configuration, Water Pollution Research J. Canada 20, 43-56.
- Jury, W. A., W. M. Jarrell, D. Devitt (1979): Reclamation of saline-sodic soils by leaching. Soil Sci. Soc. Am. J. 43, 1100-1106.
- Jury, W. A., W. R. Gardner, W. H. Gardner (1991): Soil Physics, 5<sup>th</sup> edition. John Wiley & Sons, New York.
- Kabbe, G., M. Dohmann (1999): Gezielte Infiltration von Wasser in einen Deponiekörper zur Reduzierung des Emissionspotentials, LUA Materialien Nr. 54.
- Klute, A., Ed. (1986): Methods of soil analysis, Part 1: Physical and mineralogical methods, 2<sup>nd</sup> ed. American Society of Agronomy Monograph No. 9, Madison.



- Krümpelbeck, I. (1999): Untersuchungen zum langfristigen Verhalten von SiedlungsabfalldPONen. Dissertation, Fachbereich Bauingenieurwesen, Bergische Universität - Gesamthochschule Wuppertal.
- Krümpelbeck, I., H.-J. Ehrig (2001): Sickerwasser aus Hausmülldeponien - Menge und Zusammensetzung. In: Hösel, G., Schenkel, W., Schnurer, H. (Hrsg.): Müll-Handbuch, KZ4587. Schmidt, Berlin.
- Kylefors, K., A. Lagerkvist (1997): Changes of leachate quality with degradation phases and time. Sixth international landfill Symposium, Cagliari 1997. Proceedings Vol. 2, 133-149.
- Lapidus, L., N. R. Amundson (1952): Mathematics of adsorption in beds. VI. The effect of longitudinal diffusion in ion exchange and chromatographic columns. *J. Phys. Chem.* 56, 984-988.
- Lee, P. H., S. K. Ong, J. Golchin, G. L. Nelson (2001): Use of solvents to enhance PAH biodegradation of coal-tar contaminated soils. *Water Res.* 35, 3941-3949.
- Leffelaar, P. A., R. Pal Sharma (1977): Leaching of a highly saline-sodic soil. *J. Hydrol.* 32, 203-218.
- Lohmann, S. (1999): Theoretische Grundlagen, Bauanleitung und Bedienung eines Regensimulators zur Realisierung unterschiedlicher Niederschlagsintensitäten für Säulenversuche. Unveröffentlichter Bericht, Institut für Agrartechnik und Landeskultur, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg.
- Low, P. F. (1961): Physical chemistry of clay - water interaction. *Advances in Agronomy* 13, 269-327.
- Luthin, J. N., J. W. Biggar (1962): Drainage-salinity investigations in the Five Points, Tranquillity Area, Fresno County, California. Report to the Bureau of Reclamation, United States Department of the Interior.
- Miller, R. J., P. F. Low (1963): Treshold gradient for water flow in clay systems. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 27, 605-609.
- Miller, R. J., J. W. Biggar, D. R. Nielsen (1965): Chloride displacement in Panoche clay loam in relation to water movement and distribution. *Water Resour. Res.* 1, 63-73.
- Myers, R. J. K., C. A. Campbell, K. L. Weier (1982): Quantitative relationship between net nitrogen mineralization and moisture content of soils. *Can. J. Soil Sci.* 62, 111-124.
- Nielsen, D. R., J. W. Biggar, J. N. Luthin (1966): Desalinisation of soils under controlled unsaturated flow conditions. 6. Congress of the International Commission on Irrigation and Drainage, 19.15-19.24.
- Parker, J. C., M. Th. van Genuchten (1984): Flux-averaged and volume-averaged concentrations in continuum approaches to solute transport. *Water Resour. Res.* 20, 866-872.
- Rahmen Abwasser VwV (1996): Rahmen-Abwasser-Verwaltungsvorschrift über Mindestanforderungen an das Einleiten von Abwasser in Gewässer, Rahmen-AbwasserVwV. GMBI. 1996, S. 729. <http://www.umwelt-online.de>.
- Reeve, R. C., A. F. Pillsbury, L. V. Wilcox (1955): Reclamation of a saline and high boron soil in the Coachella Valley of California. *Hilgardia* 4, 69-91.
- Schachtschabel, P., H.-P. Blume, G. Brümmer, K.-H. Hartge, U. Schwerdtmann (1992): Scheffer/Schachtschabel - Lehrbuch der Bodenkunde, 13. Auflage. Enke, Stuttgart.
- Schneider, W., J. J. Göttner (1991): Schadstofftransport in mineralischen Deponieabdichtungen und natürlichen Tonschichten. *Geologisches Jahrbuch, Reihe C, Heft 58*. Schweizerbart, Stuttgart.

- Shoup, T. E. (1984): Numerische Verfahren für Arbeitsplatzrechner. Hanser, München.
- Sobisch, T., H. Heß, H. Niebelschütz, U. Schmidt (2000): Effect of additives on biodegradation of PAH in soils. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* 162, 1-14.
- Spillmann, P., H.-J. Collins (1986): Physikalische Untersuchungen zum Wasser- und Feststoffhaushalt. In: Spillmann, P. (Hrsg.): *Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkung auf Gewässer*. VCH, Weinheim [u.a.].
- TASi (1993): Dritte allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz (TA Siedlungsabfall). Technische Anleitung zur Verwertung, Behandlung und sonstigen Entsorgung von Siedlungsabfällen. Bundesanzeiger Nr. 99a, 1993. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.
- Thomanetz, E. (2004): Universität Stuttgart, Institut für Siedlungswasserbau, Wassergüte- und Abfallwirtschaft. Persönliche Kommunikation.
- Thome-Kozmiensky, K. J. (1995): *Biologische Abfallbehandlung*. EF-Verlag für Energie- und Umwelttechnik, Berlin.
- van Genuchten, M. T. (1980): A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44, 892-898.
- Walker, A. N., R. B. Beaven, W. Powrie (1997): Overcoming problems in the development of a high rate flushing bioreactor landfill, Sixth international landfill Symposium, Cagliari 1997, Proceedings Vol. 1, 397-408.
- Wang, H. F., M. P. Anderson (1995). *Introduction to groundwater modeling*. Academic Press, San Diego.
- Wirtz, A., G. Kabbe, H.-J. Roos, F. Forge, M. Dohmann (1997): Emissionsverhalten umweltrelevanter Schadstoffe in Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Abfalls und der Standzeit der Deponien. Bericht zum Teilvorhaben TV 3 im BMBF-Verbundvorhaben "Deponiekörper", Förderkennzeichen BMBF: 1460799 C.

# Anhang 1

In Kapitel VIII verwendete Programme

a „Durchbruch“

b „Auswaschung“

c „Stoff“

## Vorbemerkungen

Sämtliche Zeilen in den Programmen, also auch nicht beschriebene, sind nummeriert.

Variablen, die nicht extra beschrieben sind, sind genau so bezeichnet wie im Text.

Zur besseren Überschaubarkeit sind Zeilen, die im eigentlichen Programm breiter als eine A4-Seite sind, im Folgenden umgebrochen; diese Umbrüche sind an nicht nummerierten Zeilen zu erkennen (z. B. bei a zwischen 430 und 440).

Mit dem Zeichen ' beginnende Zeilen oder Zeilenteile sind Kommentare. Sie haben keinen Einfluss auf den Programmablauf und dienen kurzen Informationen und Beschreibungen.

**1a Programmbeschreibung und -code des für die Berechnungen zum Stoffein- und Austrag in Kapitel VIII verwendeten Computerprogramms „Durchbruch“ sowie Darstellung und Beschreibung der Ausgabemaske**

Zeilennummer	Beschreibung
10 - 40	Kurzbeschreibung des Programms
60 - 90	löscht die bisherige Bildschirmanzeige (CLS), druckt eine Leerzeile (PRINT) und legt für alle Variablen doppelte Genauigkeit fest (DEFDBL)
110 - 150	setzt die Werte für die Oberflächenspannung $\sigma$ (SIG), die Viskosität $\nu$ (VIS) und die Dichte $\rho$ (RHO) der Lösung bei 20°C sowie die Fallbeschleunigung $g$ (G); diese Parameter werden in den Berechnungen konstant gehalten
170 - 370	Abfrage aller Eingabeparameter, die auch im Text beschrieben sind; einige der Parameter (z. B. die Durchflussrate, Zeile 230) werden gleich von den benutzerfreundlichen (mm/h) in die in der Rechnung verwendeten Größen (m/s) umgerechnet (Zeile 240); wegen der besseren Übersichtlichkeit auf dem Bildschirm sind die einzelnen Eingabeblocke durch Leerzeilen (PRINT-Befehle) voneinander getrennt
390 - 430	erste Berechnung von Werten, die im Modell benötigt werden, $M$ und $MM$ sind dabei die Brüche in den Gleichungen 11 bzw. 12 im Kapitel VIII, $TETA$ entspricht $\theta_{ap}$ , $TM$ und $TA$ sind die Zeiten $\Delta t_m$ und $t_a$
450 - 470	zeigt als erste Ausgabe die errechneten Werte von $\theta_{ap}$ und $\Delta t_m$ an und fragt nach der weiteren Ausgabehäufigkeit
490 - 520	errechnet die Anzahl der folgenden Zeitschritte, um die Variablen in Hinblick auf die sich eventuell auswirkende beschränkte Speicherkapazität des Systems (hier ca. 14.000 Werte) zu dimensionieren
540 - 550	berechnet $F_{ein}$ (Gleichung 15 in Kapitel VIII)
570 - 600	Abfrage der Konzentrationen der verwendeten Lösungen
620 - 650	Schleife zum null setzen der Konzentrationen zum Zeitpunkt null
660	setzt die Konzentration zum Zeitpunkt null über der obersten Schicht gleich der Eintragslösung
680	öffnet eine Datei zum Speichern bestimmter, im Folgenden berechneter Werte
700 - 730	Festsetzen der Anfangswerte von Schrittnummer (SR) sowie Zählern für die Ausgabehäufigkeit (COU) und für die Neuindizierung bei Überschreitung der in Zeile 510 festgelegten 14.000 Speicherplätze (KAU)
750	öffnet die Zeitschleife (äußere Schleife), Ende der Schleife in Zeile 990
760 - 780	erhöht den Wert der Zähler jeweils um eins
800	öffnet die Abschnittsschleife (innere Schleife), Ende der Schleife in Zeile 890
810	legt fest, zu welchen Zeiten welche Lösungen appliziert werden sollen
820	berechnet die im Abschnitt vorliegende Konzentration (Gleichung 18 in Kapitel VIII)
830	löscht die bisherige Bildschirmanzeige und gibt den Tabellenkopf aus
840	gibt Abschnittsnummer und Konzentration für den Abschnitt aus

860 berechnet die Konzentration der Drainagelösung  $(C_{lm})_{Dr}^t$  (CMD) als Wert des untersten Abschnitts zum vorletzten Zeitpunkt; setzt eine Leerzeile

870 gibt Tabellenkopf aus

880 gibt aus und schreibt in geöffnete Datei: Zeit in min und CMD in g/l; setzt Zähler COU = 0; hält das Programm mit SLEEP für die Betrachtung der Ausgabe an; all das erfolgt nur dann, wenn es gemäß Zeile 460 erfolgen soll, ansonsten nächster Schritt in der Abschnittsschleife

890 schließt die mit Zeile 800 geöffnete Abschnittsschleife

920 vergleicht den Zähler KAU mit der in Zeile 490 - 520 erstellten Höchstzahl für CM(Z, SR), um die Speicherkapazität nicht zu überschreiten; springt beim Unterschreiten zum Ende der Zeitschleife; wird die Höchstzahl erreicht oder überschritten, muss CM neu indiziert werden, um weiter speichern zu können

930 - 950 Schleife zum neu indizieren der Konzentration CM; allen Werten wird jetzt der Index SR = 0 zugeordnet; die bisher im Arbeitsspeicher abgelegten Werte werden von den folgenden überschrieben

960 - 970 Zähler KAU und SR werden null gesetzt

990 schließt die mit Zeile 750 geöffnete Zeitschleife

1000 schließt die mit Zeile 680 geöffnete Datei

1020 beendet das Programm

```

10      'DURCHBRUCH - EIN PROGRAMM ZUR BERECHNUNG DER MISCHUNGS-
20      'KONZENTRATION ALS FUNKTIONEN DER ZEIT
30      'BEI GLEICHER AUSGANGSKONZENTRATION IN ALLEN POREN
40      'MIT AUFSTIEGENDER KONZENTRATION UND ANSCHLIESSENDEM STOFFAUSTRAG
50
60      CLS
70
80      PRINT
90      'DEFDBL A-Z
100
110     'KONSTANTEN BEI 20 C°:
120     SIG = .072      'KG/S^2
130     VIS = .00101   'KG/M/S
140     ROH = 1000     'KG/M^3
150     G = 9.81      'M/S^2
160
170     'PARAMETEREINGABE
180     INPUT " A-WERT IN CM                "; A
190     A = A / 100 * ROH * G              'A IN KG/M/S^2 (PASCAL)
200     INPUT " B-WERT                    "; B
210
220     PRINT
230     INPUT " DURCHFLUSSRATE IN MM/H    "; Q
240     Q = Q / 3600000
250     INPUT " RETARDATIONSFAKTOR       "; R
260
270     PRINT
280     INPUT " SUBSTRATDICKE IN M        "; SD
290     INPUT " MISCHUNGSZAHL            "; Z
300     L = SD / Z                        'LÄNGE PRO TEILSCHICHT
310
320     PRINT
330     INPUT " GESAMTAPPLIKATIONSZEIT IN MIN "; TF
340     TF = TF * 60                       'TF IN SEC
350     INPUT " ABSTELLZEIT IN MIN        "; TA
360     TA = TA * 60                       'TA IN SEC
370     PRINT
380
390     'DURCHFLUSSFUNKTIONEN
400     M = SIG ^ 2 * G * ROH / VIS / 2 / A ^ 2      'M/S
410     MM = (-2 * B + 3) / (-2 * B + 1) / (-2 * B + 2)
420     TETA = (Q / M * (-2 * B + 1) * (-2 * B + 2)) ^ (1 / (-2 * B + 3))
430     TM = L / M / MM * TETA ^ (2 * B - 2)        'ZEIT IN S,
         AB DER SICH CMISCH ÄNDERT
440
450     PRINT " TETA = "; TETA; " - C-ÄNDERUNG ALLE"; TM / 60;
         "MINUTEN"
460     INPUT " ALLE WIEVIEL ZEITSCHRITTE SOLL ANZEIGE ERFOLGEN "; ZS
470     PRINT
480
490     'DIMENSIONIERUNG
500     AZ = INT(TF / TM)                    'ANZAHL DER ZEITSCHRITTE
510     V = INT(Z * AZ / 14000) + 1
520     REDIM CM(Z, AZ / V)
530
540     'WASSERVERTEILUNGSFUNKTION INKL. RETARDATION:
550     F = 1 / (-2 * B + 3) / R
560
570     'KONZENTRATIONEN
580     INPUT " KONZENTRATION DER EINTRAGSLÖSUNG "; CEIN
590     INPUT " KONZENTRATION DER SPÜLLÖSUNG    "; CSP
600     PRINT
610
620     'AUSGANGSWERTE ZUM ZEITPUNKT NULL
630     FOR N = 1 TO Z

```

```

640     CM(N, 0) = 0
650     NEXT N
660     CM(0, 0) = CEIN
670
680     OPEN "HB3.DAT" FOR OUTPUT AS #1
690
700     'RECHNUNG UND AUSGABE
710     SR = 0
720     COU = ZS - 1
730     KAU = 0
740
750     FOR TS = TM TO TF STEP TM
760         SR = SR + 1
770         COU = COU + 1
780         KAU = KAU + 1
790
800         FOR N = 1 TO Z
810             IF TS < TA THEN CM(0, SR - 1) = CEIN ELSE CM(0, SR - 1) = CSP
820             CM(N, SR) = CM(N - 1, SR - 1) * F + CM(N, SR - 1) * (1 - F)
            'C-MOMENTAN
830             IF N = 1 THEN CLS : PRINT : PRINT " ABSCHNITT KONZENTRATION"
840             PRINT USING "      ##          ###.##"; N; CM(N, SR)
850
860             IF N = Z THEN CDR = CM(N, SR - 1): CLS
870             IF N = Z AND COU = ZS THEN PRINT " ZEIT IN MIN DR.KONZ."
880             IF N = Z AND COU = ZS THEN PRINT USING " #####.##      ###.##";
            TS / 60; CDR: PRINT #1, TS / 60, CDR: COU = 0: SLEEP
890         NEXT N
900
910         'ERWEITERUNG BEI ZU VIELEN SCHRITTEN
920         IF KAU < AZ / V THEN 990
930         FOR N = 1 TO Z
940             CM(N, 0) = CM(N, SR)
950         NEXT N
960         KAU = 0
970         SR = 0
980
990     NEXT TS
1000    CLOSE #1
1010
1020    END

```

## Ausgabemaske

Die folgende Ausgabemaske erscheint nach allen durch ZS definierten Zeitschritten (Zeile 460). Zunächst wird die Konzentration in den einzelnen Abschnitten angezeigt. Im ersten Beispiel ist die Eintragslösung gerade bis in den 8. Abschnitt eingedrungen. Demzufolge hat die Drainagelösung noch eine Konzentration von null, was im anschließenden Block, der die Werte für Zeit (ab Applikationsbeginn) und Konzentration in der Drainage (DR.KONZ.) zeigt, auch zu sehen ist. Die Konzentration wird hier relativ zur Ausgangskonzentration angegeben und ist somit dimensionslos.

ABSCHNITT	KONZENTRATION
1	82.91
2	50.87
3	22.83
4	7.65
5	1.95
6	0.39
7	0.06
8	0.01
9	0.00
10	0.00

ZEIT IN MIN	DR.KONZ.
43.81	0.00

Als zweites Beispiel wird eine Ausgabe gezeigt, wie sie sich nach Abstellung des Stoffeintrages (hier nach 600 Minuten) darstellt. Mittlerweile ist die Konzentration der Drainagelösung schon wieder am Sinken. An der Tiefenverteilung der Konzentration ist zu erkennen, dass die obere Hälfte des Substrats schon wieder fast entfrachtet ist.

ABSCHNITT	KONZENTRATION
1	0.10
2	0.80
3	3.37
4	9.46
5	20.12
6	34.78
7	51.27
8	66.88
9	79.56
10	88.54

ZEIT IN MIN	DR.KONZ.
771.07	89.49



**1b Programmbeschreibung und -code des für die Berechnungen zur Auswaschung in Kapitel VIII verwendeten Computerprogramms „Auswaschung“ sowie Darstellung und Beschreibung der Ausgabemaske**

Zeilennummer	Beschreibung
10 - 30	Kurzbeschreibung des Programms
50 - 70	löscht die bisherige Bildschirmanzeige (CLS), legt für alle Variablen doppelte Genauigkeit fest (DEFDBL)
90 - 130	setzt die Werte für die Oberflächenspannung $\sigma$ (SIG), die Viskosität $\nu$ (VIS) und die Dichte $\rho$ (RHO) der Lösung bei 20°C sowie die Fallbeschleunigung $g$ (G); diese Parameter werden in den Berechnungen konstant gehalten
150 - 350	Abfrage aller Eingabeparameter, die auch im Text beschrieben sind; einige der Parameter (z. B. die Durchflussrate, Zeile 290) werden gleich von den benutzerfreundlichen (mm/h) in die in der Rechnung verwendeten Größen (m/s) umgerechnet (Zeile 300); im Programm wird nicht der Radius (RMIN, Zeile 240) sondern der Durchmesser (DMIN, Zeile 250) verwendet; wegen der besseren Übersichtlichkeit auf dem Bildschirm sind die einzelnen Eingabeblocke durch Leerzeilen (PRINT-Befehle) voneinander getrennt
370 - 420	erste Berechnung von Werten, die im Modell benötigt werden, M und MM sind dabei die Brüche in den Gleichungen 11 bzw. 12 im Kapitel VIII, TETA entspricht $\theta_{ap}$ , TM und TA sind die Zeiten $\Delta t_m$ und $t_a$
440 - 460	zeigt als erste Ausgabe die errechneten Werte von $\theta_{ap}$ und $\Delta t_m$ an und fragt nach der weiteren Ausgabehäufigkeit
480 - 510	errechnet die Anzahl der folgenden Zeitschritte, um die Variablen in Hinblick auf die eventuell eintretende beschränkte Speicherkapazität des Systems (hier ca. 14.000 Werte) zu dimensionieren
530 - 540	berechnet $F_{ein}$ (Gleichung 15 in Kapitel VIII)
560 - 580	berechnet den Minimalwassergehalt $\theta_{min}$ (Abschnitt 2.1 in Kapitel VIII) und bricht das Programm ab, falls er größer ist als $\theta_{ap}$
590 - 600	berechnet die Ausgangsstoffmenge $s$ (SAP) und die gelöste Konzentration $C_{vor}$ (CN; Gleichung 23 und 32 in Kapitel VIII)
620 - 650	Ausgabe der eben berechneten Werte
670 - 700	Schleife zum null setzen der Konzentrationen zum Zeitpunkt null
720	öffnet eine Datei zum Speichern bestimmter, im Folgenden berechneter Werte
740 - 780	Festsetzen der Anfangswerte von Schrittnummer (SR), Zählern für die Ausgabehäufigkeit (COU) und für die Neuindizierung bei Überschreitung der in Zeile 500 festgelegten 14.000 Speicherplätze (KAU) sowie der Teilfracht (SF)
800	öffnet die Zeitschleife (äußere Schleife), Ende der Schleife in Zeile 1300
810 - 820	erhöht den Wert von SR und KAU jeweils um eins
840	öffnet die Abschnittsschleife (innere Schleife), Ende der Schleife in Zeile 1200
850	springt ans Ende des Algorithmus (Zeile 1030), wenn der betreffende Abschnitt noch nicht von der Auswaschung erfasst ist

860	überspringt den Aufsättigungsalgorithmus, wenn die Aufsättigung für diesen Abschnitt schon abgeschlossen ist
880 - 920	berechnet die Stoffverlagerung während der Aufsättigungsphase; wird dabei in 910 angezeigt, dass die Aufsättigung noch nicht beendet ist, geht es für den nächsten Abschnitt im „Standardalgorithmus“ für die Phase nach der Aufsättigung weiter, ansonsten wird mit 920 die erste Konzentration $C_{\text{ein}}$ für den nächsten Abschnitt errechnet und SF null gesetzt
940	gibt den Tabellenkopf aus
950 - 960	gibt Abschnittsnummer und Konzentration für den neu aufgesättigten Abschnitt aus und weist darauf hin, dass ein neuer Abschnitt aufgesättigt ist
980	berechnet die im Abschnitt vorliegende Konzentration für den Fall, dass die Aufsättigung schon abgeschlossen ist (Gleichung 18 in Kapitel VIII)
1000 - 1010	analog zu 940 und 950
1030	lässt die folgenden Operationen nur für den letzten Abschnitt zu
1040 - 1070	berechnet die Konzentration der Drainagelösung $(C_{\text{im}})_{\text{Dr}}^{\text{t}}$ (CMD), die Teilfracht (FE) sowie die kumulierte Gesamtfracht (FG); erhöht den Wert von COU um eins
1090	lässt die folgenden Ausgaben nur dann zu, wenn sie gemäß Zeile 460 erfolgen sollen, ansonsten nächster Schritt in der Abschnittsschleife
1110 - 1130	gibt den Tabellenkopf aus
1140	gibt aus: Zeit in min, Applikationsmenge in mm, Konzentration in g/l, Teilfracht und kumulierte Gesamtfracht in $\text{g/m}^2$
1150	schreibt die Applikationsmenge und die Gesamtfracht in die in Zeile 720 geöffnete Datei
1160	setzt den Zähler COU auf null; hält das Programm mit SLEEP für die Betrachtung der Ausgabe an
1170	löscht den Bildschirm für die neue Anzeige, außer beim letzten Schritt
1200	schließt die mit Zeile 840 geöffnete Abschnittsschleife
1230	vergleicht den Zähler KAU mit der in Zeile 490 - 510 erstellten Höchstzahl für $CM(Z, SR)$ , um die Speicherkapazität nicht zu überschreiten; springt beim Unterschreiten zum Ende der Zeitschleife; wird die Höchstzahl erreicht oder überschritten, muss CM neu indiziert werden, um weiter rechnen zu können
1240 - 1260	Schleife zum neu indizieren der Konzentration CM; allen Werten wird jetzt der Index $SR = 0$ zugeordnet; die bisher im Arbeitsspeicher abgelegten Werte werden von den folgenden überschrieben
1270 - 1280	Zähler KAU und SR werden null gesetzt
1300	schließt die mit Zeile 800 geöffnete Zeitschleife
1310	schließt die mit Zeile 720 geöffnete Datei
1330	beendet das Programm

```

10 'AUSWASCHUNG - EIN PROGRAMM ZUR BERECHNUNG VON MISCHUNGSKONZENTRA-
20 'TION UND FRACHT ALS FUNKTIONEN DER ZEIT MIT PORENGRÖSSENABHÄNGIGEN
30 'KONZENTRATIONEN
40
50   CLS
60
70   DEFDBL A-Z
80
90   'KONSTANTEN BEI 20 C°:
100  SIG = .072      'KG/S^2
110  VIS = .00101   'KG/M/S
120  RHO = 1000     'KG/M^3
130  G = 9.81      'M/S^2
140
150  'PARAMETEREINGABE
160  PRINT
170  INPUT " A-WERT IN CM                "; A
180  A = A / 100 * RHO * G                'A IN KG/M/S^2 (PASCAL)
190  INPUT " B-WERT, DIM.LOS            "; B
200  INPUT " SÄTTIGUNGSWASSERGEHALT, DIM.LOS "; TETS
210
220  PRINT
230  INPUT " STOFFBELADUNG IN G/M^2      "; SMAX
240  INPUT " KLEINSTER PORENRADIUS IN MIKROM. "; RMIN
250  DMIN = 2 * RMIN / 1000000          'DMIN IN M
260  INPUT " RETARDATIONSFAKTOR        "; R
270
280  PRINT
290  INPUT " DURCHFLUSSRATE IN MM/H     "; Q
300  Q = Q / 3600000                    'Q IN M/S
310  INPUT " SUBSTRATDICKE IN M        "; SD
320  INPUT " MISCHUNGSZAHL            "; Z
330  L = SD / Z                          'LÄNGE PRO TEILSCHICHT
340  INPUT " APPLIKATIONSZEIT IN MIN   "; TF
350  TF = TF * 60                        'TF IN SEC
360
370  'DURCHFLUSSFUNKTIONEN
380  M = SIG ^ 2 * G * RHO / VIS / 2 / A ^ 2      'M/S
390  MM = (-2 * B + 3) / (-2 * B + 1) / (-2 * B + 2)
400  TETA = (Q / M * (-2 * B + 1) * (-2 * B + 2)) ^ (1 / (-2 * B + 3))
410  TM = L / M / MM * TETA ^ (2 * B - 2)        'ZEIT IN S, AB DER SICH
      CMISCH ÄNDERT
420  TA = L / Q * TETA                        'ZEIT IN S FÜR EINEN
      ABSCHNITT
430
440  PRINT
450  PRINT " TETA = "; TETA; " - C-ÄNDERUNG ALLE"; TM / 60; "MINUTEN"
460  INPUT " ALLE WIEVIEL ZEITSCHRITTE SOLL ANZEIGE ERFOLGEN "; ZS
470
480  'DIMENSIONIERUNG
490  AZ = INT(TF / TM)                        'ANZAHL DER ZEITSCHRITTE
500  V = INT(Z * AZ / 14000) + 1
510  REDIM CM(Z, AZ / V)
520
530  'WASSERVERTEILUNGSFUNKTION:
540  F = 1 / (-2 * B + 3) / R
550
560  'STOFFVERTEILUNGSFUNKTION:
570  TETMIN = (4 * SIG / A / DMIN) ^ (1 / B)
580  IF TETA < TETMIN THEN PRINT "Q ZU KLEIN - ABBRUCH": GOTO 1330
590  SAP = (TETA ^ (B + 1) - TETMIN ^ (B + 1)) / (TETS ^ (B + 1)
      - TETMIN ^ (B + 1)) * SMAX
600  CN = SAP / SD / TETA / R
610
620  PRINT

```

```

630 PRINT " MIN-WASSERGEHALT: "; TETMIN
640 PRINT " AUSGANGSSTOFFMENGE: "; SAP; "G/M^2"
650 PRINT " KONZENTRATION GELÖST: "; CN; "G/M^3"
660
670 'AUSGANGSWERTE ZUM ZEITPUNKT NULL
680 FOR N = 0 TO Z
690 CM(N, 0) = 0
700 NEXT N
710
720 OPEN "HB2.DAT" FOR OUTPUT AS #1
730
740 'RECHNUNG UND AUSGABE
750 SR = 0
760 COU = ZS - 1
770 KAU = 0
780 SF = 0
790
800 FOR TS = TM TO TF STEP TM
810 SR = SR + 1
820 KAU = KAU + 1
830
840 FOR N = 1 TO Z
850 IF TS < TA * (N - 1) THEN CM(N, SR) = 0: GOTO 1030
860 IF TS > TA * N THEN 980
870
880 'AUFSAETTIGUNG
890 CF = CM(N - 1, SR - 1) * F "AUFSAETTIGUNGSFRACHT"
900 SF = SF + CF
910 IF TS < TA * N - TM THEN CM(N, SR) = 0: GOTO 1030
920 CM(N, SR) = (SF + CN): SF = 0
930
940 IF N = 1 THEN PRINT " ABSCHNITT KONZENTRATION"
950 PRINT USING " ## #####.##"; N; CM(N, SR);
960 PRINT " NÄCHSTER ABSCHNITT AUFGESÄTTIGT": GOTO 1030
970
980 CM(N, SR) = CM(N - 1, SR - 1) * F + CM(N, SR - 1) * (1 - F)
' = C-MOMENTAN
990
1000 IF N = 1 THEN PRINT " ABSCHNITT KONZENTRATION"
1010 PRINT USING " ## #####.##"; N; CM(N, SR)
1020
1030 IF N = Z THEN GOTO 1040 ELSE 1200
1040 CMD = CM(Z, SR - 1)
1050 FE = CMD * Q * TM
1060 FG = FG + FE
1070 COU = COU + 1
1080
1090 IF COU = ZS THEN GOTO 1110 ELSE 1200
1100
1110 PRINT
1120 PRINT " ZEIT AP.MENGE KONZENTRATION TEILFRACHT GESAMTFRACHT"
1130 PRINT " MIN. MM G/L G/M^2 G/M^2 "
1140 PRINT USING " #####.## #####.# #####.## ##.## ##.##";
TS / 60; TS * Q * 1000; CMD; FE; FG
1150 PRINT #1, TS * Q * 1000, FG
1160 COU = 0: SLEEP
1170 IF TS < TF - TM THEN CLS
1180 PRINT
1190
1200 NEXT N
1210
1220 'ERWEITERUNG BEI ZU VIELEN SCHRITTEN
1230 IF KAU < AZ / V - Z THEN 1300
1240 FOR N = 1 TO Z
1250 CM(N, 0) = CM(N, SR)

```

```

1260     NEXT N
1270     KAU = 0
1280     SR = 0
1290
1300     NEXT TS
1310     CLOSE #1
1320
1330     END

```

## Ausgabemaske

Die folgende Ausgabemaske erscheint nach allen durch ZS definierten Zeitschritten (Zeile 460). Zunächst wird die Konzentration in den einzelnen Abschnitten angezeigt. Im gezeigten Beispiel ist der Abschnitt 5 gerade frisch aufgesättigt, was durch die Ausgabe "NÄCHSTER ABSCHNITT AUFGESÄTTIGT" deutlich gemacht wird. Anschließend werden die Werte für Zeit (ab Applikationsbeginn) und Applikationsmenge (AP.MENGE) sowie die Konzentration und die Teil- und Gesamtfracht am Säulenende gezeigt: Letztere betragen hier noch null, weil die Aufsättigung noch nicht abgeschlossen ist und noch keine Drainagelösung angefallen ist.

ABSCHNITT	KONZENTRATION (G/L)	
1	24.95	
2	70.22	
3	109.22	
4	125.56	
5	135.82	NÄCHSTER ABSCHNITT AUFGESÄTTIGT

ZEIT MIN	AP.MENGE MM	KONZENTRATION G/L	TEILFRACHT G/M^2	GESAMTFRACHT G/M^2
48.27	144.4	0.00	0.00	0.00

Die nächste hier gezeigte Ausgabe erscheint nach Aufsättigung des untersten (hier 17.) Abschnitts. An der Tiefenverteilung der Konzentration ist zu erkennen, dass die obere Hälfte des Substrats jetzt schon nahezu komplett ausgewaschen ist. Es ist der erste Zeitschritt, bei dem Drainagelösung auftritt, weswegen die Gesamtfracht noch der Teilfracht entspricht. Für Darstellungen von Konzentration oder Fracht als Funktion der Zeit ab Entwässerung oder der Drainagemenge sind die Werte für Zeit oder Applikationsmenge bei Beginn der Entwässerung von den laufenden Werten abzuziehen.

ABSCHNITT	KONZENTRATION (G/L)
1	0.00
2	0.00
3	0.00
4	0.02
5	0.09
6	0.38
7	1.38
8	4.28
9	11.66
10	28.23
11	61.48
12	121.82
13	222.53
14	379.45
15	609.91
16	930.31
17	1352.67

ZEIT MIN	AP.MENGE MM	KONZENTRATION G/M <sup>3</sup>	TEILFRACHT G/M <sup>2</sup>	GESAMTFRACHT G/M <sup>2</sup>
267.87	438.1	1400.87	4.01	4.01

**1c Programmbeschreibung und -code des für die Berechnungen zum Stoffein- und Austrag mit der Advektions-Dispersions-Gleichung in Kapitel VIII verwendeten Computerprogramms „Stoff“ sowie Darstellung und Beschreibung der Ausgabe-  
maske**

Zeilennummer	Beschreibung
10 - 30	Kurzbeschreibung des Programms
50 - 60	löscht die bisherige Bildschirmanzeige (CLS) und legt für alle Variablen doppelte Genauigkeit fest (DEFDBL)
80 - 160	Abfrage der ersten Eingabeparameter
190 - 250	Abfrage der Zeiteinheit, mit der gerechnet werden soll und entsprechende Zuordnung
290 - 390	Abfrage der Zeitparameter
410 - 440	Umrechnung der Zeiteinheit
460 - 530	Berechnung von Werten, die im Modell benötigt werden (vgl. Gleichungen 2-11 in Kapitel VIII)
550	Berechnung des Terms $p_2$ der Lösungsfunktion
570	öffnet eine Datei zum Speichern bestimmter, im Folgenden berechneter Werte
590 - 610	gibt Tabellenkopf aus
630 - 650	zeigt für den Fall, dass die Anfangszeit null beträgt, das erste Wertepaar an und geht mit dem nächsten Zeitschritt in Zeile 670; springt andernfalls sofort in Zeile 670
670	öffnet die Zeitschleife
680 - 920	nimmt die Berechnungen zur Stoffkonzentration vor; wechselt dabei über GOSUB (Zeilen 690, 730, 840 und 880) in ein Unterprogramm (ab Zeile 1130 bzw. 1290), welches die sogenannte Fehlerfunktion berechnet und einen Wert für $sv$ liefert  in Zeile 790 erfolgt ein Vergleich der aktuellen Zeit mit der Endzeit des Stoffeintrages; ist diese Endzeit überschritten, so erfolgt (nach dem vorangegangenen Stoffeintrag) die Berechnung des Stoffaustrags; andernfalls wird in Zeile 940 fortgesetzt
940 - 950	gibt Zeit und Konzentration auf dem Bildschirm aus (Zeile 940) und schreibt sie in die geöffnete Datei (Zeile 950)
970	schließt die mit Zeile 670 geöffnete Schleife
990	schließt die mit Zeile 570 geöffnete Datei
1040 - 1090	Abfrage, ob noch weitere Berechnungen erfolgen sollen und ggf. Fortsetzen in den entsprechenden Zeilen
1110	beendet das Programm
1130 - 1270	Unterprogramm zur Berechnung der Fehlerfunktion mittels einer Näherungsfunktion aus Anlauf et al. (1988); auf diesen Algorithmus wurde hier hauptsächlich zugegriffen
1290 - 1640	Unterprogramm zur Berechnung der Fehlerfunktion mit Hilfe des Romberg-Algorithmus. Eine genaue Beschreibung dazu ist zu finden in Shoup (1984)

```

10 'STOFF - Programm zur Berechnung des Stofftransports mit der
20 'analytischen Lösung der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) mit
30 'abstellbarer Stoffquelle und interaktiver Parametereingabe
40
50 CLS
60 DEFDBL A-Z
70
80 INPUT "          bulk density (kg/mü) = "; rho
90 INPUT "          porosity (mü/mü) = "; theta
100 INPUT " Henry adsorption coefficient (mü/kg) = "; kH
110 INPUT "          diffusion coefficient (mý/a) = "; Dm
120 INPUT "          distance of interest (m) = "; Lf
130 INPUT "          hydraulic conductivity (m/a) = "; kf
140 INPUT "          hydraulic gradient (m/m) = "; grad
150 INPUT "          applied concentration (mg/L) = "; Co
160 INPUT "          initial concentration (mg/L) = "; Ci
170 PRINT
180
190 INPUT "Zeiteinheit (min, h, d oder a) = "; t$
200 t$ = "min"
210
220 IF t$ = "min" THEN aa = 525600
230 IF t$ = "h" THEN aa = 8760
240 IF t$ = "d" THEN aa = 365
250 IF t$ = "a" THEN aa = 1
260
270 PRINT
280
290 PRINT "          Anfangszeit ("; t$; ") = ";
300 INPUT t0
310
320 PRINT "          Endzeit des Laufs ("; t$; ") = ";
330 INPUT tm
340
350 PRINT "          Zeitschritt ("; t$; ") = ";
360 INPUT dt
370
380 PRINT " Endzeit des Stoffeintrags ("; t$; ") = ";
390 INPUT tes
400
410 t0 = t0 / aa
420 tm = tm / aa
430 dt = dt / aa
440 tes = tes / aa
450
460 R = 1 + rho / theta * kH
470
480 alpha = .1 * Lf
490 v = kf / theta * grad
500 Dh = alpha * v
510 D = Dm + Dh
520 vv = v / R
530 DD = D / R
540
550 p2 = EXP(v * Lf / D)
560
570 OPEN "STOTRA2.DAT" FOR OUTPUT AS #1
580
590 PRINT
600 PRINT "          Zeit ("; t$; ")          C/Co"
610 PRINT "          -----"
620
630 IF t0 > 0 THEN 670
640 PRINT USING "          #####.#          ###.##"; t * 0; Co * 0
650 t0 = t0 + dt

```



```

660
670 FOR t = t0 TO tm STEP dt
680   beta = (Lf - vv * t) / (2 * SQR(DD * t))
690   GOSUB Anlauf   'alternativ Romberg
700   p1 = 1 - sv
710
720   beta = (Lf + vv * t) / (2 * SQR(DD * t))
730   GOSUB Anlauf   'alternativ Romberg
740   p3 = 1 - sv
750
760   C1 = Ci + .5 * (Co - Ci) * (p1 + p2 * p3)
770   CCo = C1 / Co * 100
780
790   IF t <= tes THEN GOTO 940
800
810   tt = t - tes
820
830   beta = (Lf - vv * tt) / (2 * SQR(DD * tt))
840   GOSUB Anlauf   'alternativ Romberg
850   p1 = 1 - sv
860
870   beta = (Lf + vv * tt) / (2 * SQR(DD * tt))
880   GOSUB Anlauf   'alternativ Romberg
890   p3 = 1 - sv
900
910   C2 = .5 * Co * (p1 + p2 * p3)
920   CCo = (C1 - C2) / Co * 100
930
940   PRINT USING "          ###      ###.##"; t * aa; CCo#
950   PRINT #1, USING "###      ###.##"; t * aa; CCo
960
970 NEXT t
980
990 CLOSE #1
1000
1010 PRINT "          -----"
1020 PRINT
1030
1040 PRINT "          Neuer Lauf oder neue Zeiten (L/Z) ";
1050 INPUT a$
1060
1070 IF a$ = "L" OR a$ = "l" THEN CLS : GOTO 10
1080 IF a$ = "Z" OR a$ = "z" THEN CLS : GOTO 290
1090 GOTO 1030
1100
1110 END
1120
1130 Anlauf:
1140   a1 = 7.0523078399999999D-02
1150   a2 = .0422820123#
1160   a3 = .0092705272#
1170   a4 = .0001520143#
1180   a5 = .0002765672#
1190   a6 = .0000430638#
1200
1210   x = beta
1220   IF beta < 0 THEN x = ABS(beta)
1230   sv = 1 - 1 / (1 + a1 * x + a2 * x ^ 2 + a3 * x ^ 3 + a4 * x ^ 4 +
      a5 * x ^ 5 + a6 * x ^ 6) ^ 16
1240   IF sv > 1 THEN sv = 1!
1250   IF beta < 0 THEN sv = -sv
1260
1270   RETURN
1280
1290 Romberg:

```

```

1300    PI = 3.141592654#
1310    a = 0
1320    B = beta
1330    h = B - a
1340
1350    NMAX = 10
1360    EPS = 10 ^ -12
1370
1380    DEF FNF (t) = EXP(-t ^ 2)
1390
1400    DIM R(20, 20)
1410
1420    R(1, 1) = .5 * h * (FNF(a) + FNF(B))
1430
1440    FOR I = 2 TO NMAX
1450        SUM = 0!
1460
1470        FOR II = 1 TO 2 ^ (I - 2)
1480            SUM = SUM + FNF(a + h * (II - .5))
1490        NEXT II
1500
1510        R(I, 1) = .5 * (R(I - 1, 1) + h * SUM)
1520        h = .5 * h
1530
1540    FOR J = 2 TO I
1550        R(I, J) = (2 ^ (2 * (J - 1)) * R(I, J - 1) - R(I - 1, J - 1)) /
                    (2 ^ (2 * (J - 1)) - 1)
1560    NEXT J
1570
1580    IF ABS(R(I, I) - R(I - 1, I - 1)) < EPS THEN GOTO 1460
1590
1600    NEXT I
1610
1620    sv = 2 * R(I, I) / SQR(PI)
1630    IF sv > 1 THEN sv = 1!
1640    RETURN

```

## Ausgabemaske

Die folgende Ausgabemaske erscheint Zeile für Zeile fortlaufend nach Eingabe des letzten Parameters (Endzeit des Stoffeintrages) Es werden die Werte für Zeit (ab Applikationsbeginn) sowie die Konzentration in der Drainage (C) relativ zur Ausgangskonzentration ( $C_0$ ) gezeigt.

Zeit (min)	C/C <sub>0</sub>
15.0	51.17
30.0	68.16
45.0	86.35
60.0	92.56
75.0	61.01
90.0	26.69
105.0	9.99

Neuer Lauf oder neue Zeiten (L/Z) ?

## **Anhang 2**

Herleitung der Berechnung des Retardationsfaktors R

Grundlage ist die Gleichung A1, die schon in Kapitel VIII (als Gleichung 12) beschrieben wurde:

$$R = 1 + \frac{\rho_t k_h}{\theta} \quad (\text{A1})$$

Aus Gleichung A1 ergibt sich eine Erhöhung von R bei Verringerung des Wassergehaltes, wenn  $\rho_t$  und  $k_H$  gleich bleiben. Während man bei  $\rho_t$  davon ausgehen kann, geht aus der Arbeit von Fehse (2004) jedoch hervor, dass bei natürlichen PM der Verteilungskoeffizient  $k_h$  (im Folgenden wegen anderer benötigter Indizes nur k genannt) keineswegs konstant ist, sondern vom Feststoff:Lösung-Verhältnis (FLV) des Systems abhängt, das seinerseits an den Wassergehalt gebunden ist.

Nach Fehse führt in einer Lösung die Verdopplung der Feststoffmasse bei unveränderten Lösungsvolumen und Gleichgewichtsbedingungen (also sich einstellender Konzentration C, auch  $C_{eq}$  genannt) nicht dazu, dass sich auch die sorbierte Stoffmenge verdoppelt, sondern sie bleibt gleich (abgesehen von einigen Ausnahmen, s. u.).

Wäre die sorbierte Stoffmenge direkt proportional zur Feststoffmasse, wäre k konstant, Dann bliebe  $S_a$  (sorbierte Stoffmenge pro Substratmenge) gleich und Gleichung A2 (vgl. Gleichung 6 in Kapitel VIII) würde uneingeschränkt mit konstantem k gelten:

$$S_a = k_h C \quad (\text{A2})$$

Ein Fehlen des FLV-Effekts wurde nur bei bestimmten Tonen oder technischen Substraten (z. B. Zeolithe) beobachtet.

Bei den von uns betrachteten Substraten kommt es durch eine verdoppelte Feststoffmasse vielmehr dazu, dass die Zahl der angelagerten Teilchen insgesamt gleich bleibt, sich die Stoffmenge pro Substratmenge  $S_a$  damit also halbiert. Man kann auch sagen, dass sich im Gleichgewicht immer eine bestimmte Stoffmenge in Lösung und der andere Teil im sorbierten Zustand befinden muss.

Für Gleichung A1 bedeutet dies jedoch, dass sich k bei einer Verdopplung der Feststoffmenge halbiert und somit als umgekehrt proportional zum FLV beschrieben werden kann. Fehse (2004) zeigt eine solche Funktion konkret am Beispiel einer Braunkohlenasche.

Da bei einer Erhöhung der Feststoffmasse das zusätzliche Substrat in Hinblick auf Material, Körnung etc. dem Ausgangssubstrat entsprechen sollte, ist davon auszugehen, dass jede Erhöhung der Substratmasse zu einer proportionalen Erhöhung der Teilchenoberfläche führt. Somit gilt  $A_{oi} \sim M$ . Diese Feststellung für Systeme mit suspendiertem Substrat (also eher

geringem FLV) soll nun auf poröse Medien mit Lösung im Feststoff (also hohem FLV) angewendet werden.

Ein Blick auf Gleichung 21 in Kapitel VII und die damit berechnete Abbildung 2 zeigt unter Vernachlässigung des Faktors  $\beta$  die Verteilung der Porenwandflächen als Funktion des Wassergehaltes. Wie dort schon ausgeführt, sind bei 50%iger Wassersättigung schon rund 98% der Porenwände benetzt. Im von uns betrachteten Bereich von Wassergehalten über 25% Sättigung (bei einem reinen Sand entspricht das in etwa der Feldkapazität) kommt es also selbst bei unterschiedlichen Wassergehalten nur zu geringfügigsten Änderungen bei  $A_{oi}$ . Das bedeutet also, dass eine Halbierung des Wassergehaltes bei annähernd konstantem  $A_{oi}$  zu einer Verdopplung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses führt. Diese hat laut Fehse (2004) dann eine Halbierung von  $k$  zur Folge.

Mit Hilfe der um  $\beta$  reduzierten Gleichung 22 aus Kapitel VII, die die Stoffmengen bzw. Porenwandflächen als Funktion des Wassergehaltes zeigt und den oben beschriebenen Zusammenhängen  $A_{oi} \sim M$  und  $k \sim 1/\text{FLV}$  lässt sich  $k$  nun wie folgt beschreiben:

$$\text{FLV} = \frac{A_{oi}}{\theta_{ap}} = \frac{L \rho g a}{\sigma \theta_{ap}} \left( \frac{\theta_{ap}^{b+1}}{b+1} - \frac{\theta_o^{b+1}}{b+1} \right) \quad \text{A3}$$

$$k = p \frac{1}{\text{FLV}} = p \frac{\sigma \theta_{ap}}{L \rho g a} \left( \frac{b+1}{\theta_{ap}^{b+1} - \theta_o^{b+1}} \right) \quad \text{A4}$$

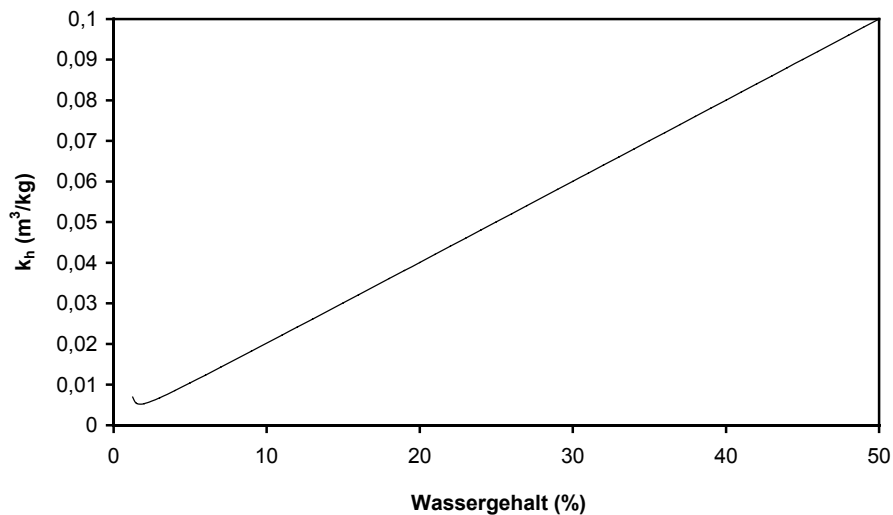
$p$  ( $\text{m}^3/\text{kg}$ ) ist dabei ein Proportionalitätsfaktor, mit dem berücksichtigt werden soll, dass außer den aufgeführten noch weitere von Medium (Sorbens) und Lösung (Sorptiv) abhängige Parameter in die Beziehung eingehen. Ist der  $k$ -Wert bei Wassersättigung ( $k_s$ ) bekannt, so lässt sich von ihm ausgehend für jeden Wassergehalt  $\theta_{ap}$  das entsprechende  $k_{ap}$  errechnen. Dazu muss Gleichung A4 für ein bestimmtes  $\theta$  durch Gleichung A4 für  $\theta_s$  geteilt werden. Man erhält:

$$\frac{k_{ap}}{k_s} = \frac{\theta_{ap}}{\theta_s} \left( \frac{\theta_s^{b+1} - \theta_o^{b+1}}{\theta_{ap}^{b+1} - \theta_o^{b+1}} \right) \quad \text{A5}$$

Für  $k_{ap}$  ergibt sich dann:

$$k_{ap} = k_s \frac{\theta_{ap}}{\theta_s} \left( \frac{\theta_s^{b+1} - \theta_o^{b+1}}{\theta_{ap}^{b+1} - \theta_o^{b+1}} \right) \quad \text{A6}$$

Der Verlauf von Gleichung A6 für ein Medium mit  $a = 1$ ,  $b = -3$ ,  $\theta_s = 50\%$  und  $k_s = 0,1 \text{ (m}^3/\text{kg)}$  ist in Bild A2-1 dargestellt.  $\theta_0$  liegt bei etwa 0,01 (1%). Dabei wird der annähernd lineare Verlauf von  $k$  bei  $\theta_{ap} > 10\%$  deutlich, der darauf zurückzuführen ist, dass in diesem Bereich der Funktion der Wert des Terms in Klammern bei etwa 1 liegt und die Veränderung des Wertes von  $k$  direkt von der Wassergehaltsänderung abhängt.



**Bild A2-1:** Sorptionskoeffizient  $k_h$  als Funktion des Wassergehaltes.

Um diese Erkenntnis wiederum mit dem FLV-Effekt in Kontext zu bringen, lässt sich die Aussage treffen, dass eine Verringerung des Wassergehaltes im Medium zwar zu einem proportionalen Rückgang des Lösungsvolumens aber nur zu einem marginalen Schwund an beteiligter Oberfläche und damit Feststmasse im FLV führt.

Um  $R$  bei gegebenem  $k_s$  ohne den Umweg über  $k_{ap}$  zu errechnen, wird Gleichung A6 in Gleichung A1 eingesetzt:

$$R = 1 + \frac{\rho_t k_s}{\theta_s} \left( \frac{\theta_s^{b+1} - \theta_0^{b+1}}{\theta_{ap}^{b+1} - \theta_0^{b+1}} \right) \quad A7$$

Unter Vernachlässigung des Terms in Klammern (da er meist  $\approx 1$  ist) lässt sich die Feststellung treffen, dass  $R$  konstant ist, weil  $k_s$  und  $\theta_s$  für ein Medium konstant sind.

Wenn dem nicht so wäre und  $k$  bei allen Wassergehalten Konstanz aufwiese, hätten geringere Wassergehalte größere Retardationskoeffizienten zur Folge. Das würde dazu führen, dass bei geringeren Wassergehalten die Stoffe stärker zurückgehalten und somit die Auswaschung gebremst werden würde. Der „Effektivitätsvorteil“ der geringen Raten und Wassergehalte aufgrund der höheren Ausgangskonzentration würde somit getilgt. Bei einem  $k$  von

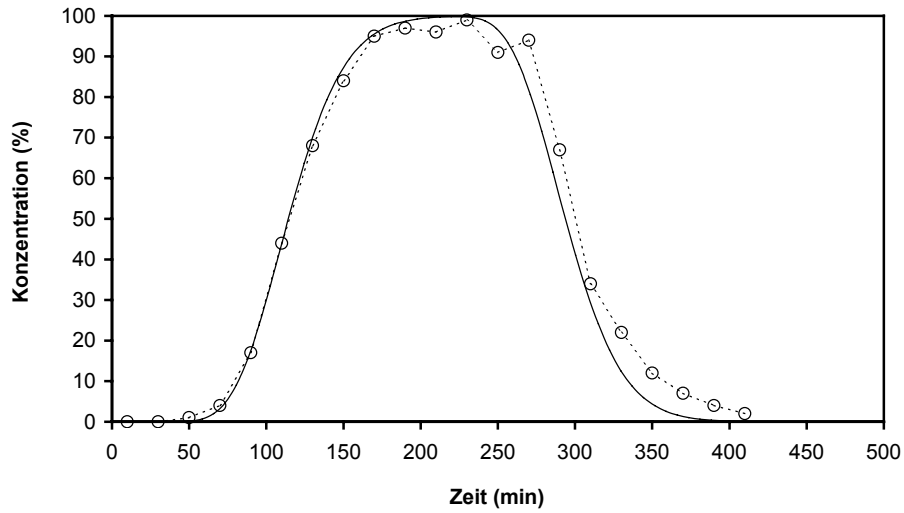
null hätte  $R$  bei allen Wassergehalten den Wert eins und die Auswaschung würde sich bei kleineren Raten (noch) effektiver gestalten. Mit steigenden  $k$  würde die Differenz zwischen den  $R$  bei zwei gegebenen Wassergehalten immer mehr werden. Das Verhältnis der beiden  $R$  wäre dann annähernd umgekehrt proportional dem Verhältnis der Wassergehalte. Für die Berechnungen würde das bedeuten, dass die Konzentrations- und Frachtkurven bei allen Intensitäten aufeinanderlägen.

Dass dies nicht so ist, zeigen die Versuchsergebnisse sowie die nach Fehse (2004) abgeleiteten o. g. Zusammenhänge.

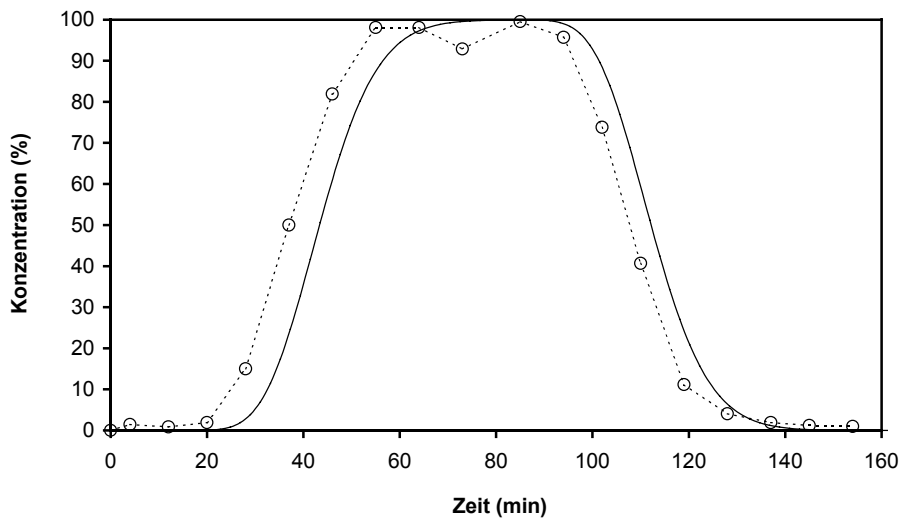
## **Anhang 3**

Darstellung aller in Kapitel VIII, Abschnitt 4.1 erwähnten Konzentrationsverläufe  
bei Säulenversuchen zum Stofftransport mit Chloridlösung

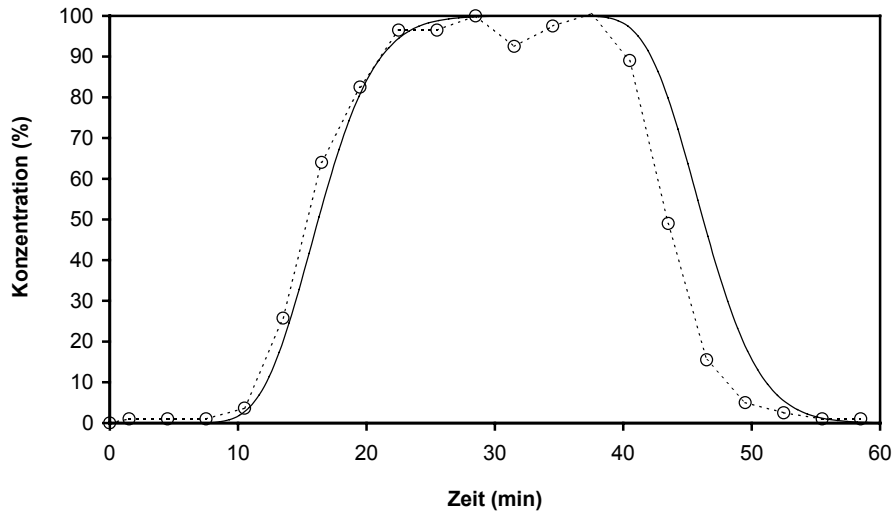




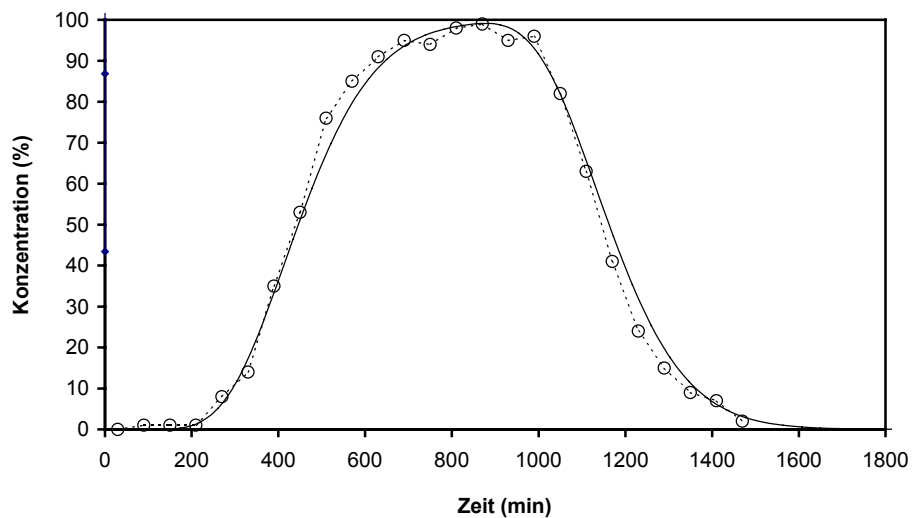
**Bild A3-1:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 30 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 180 min,  $z_m = 15$ .



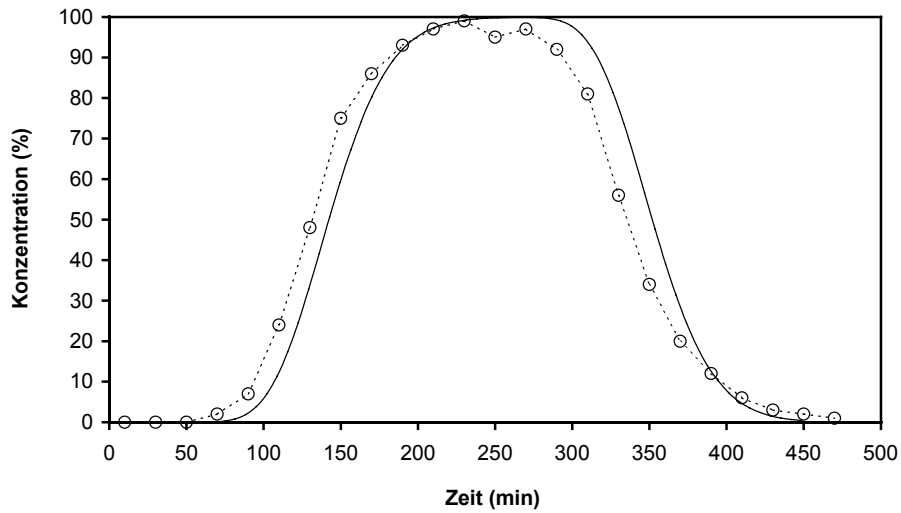
**Bild A3-2:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 88 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 69 min,  $z_m = 20$ .



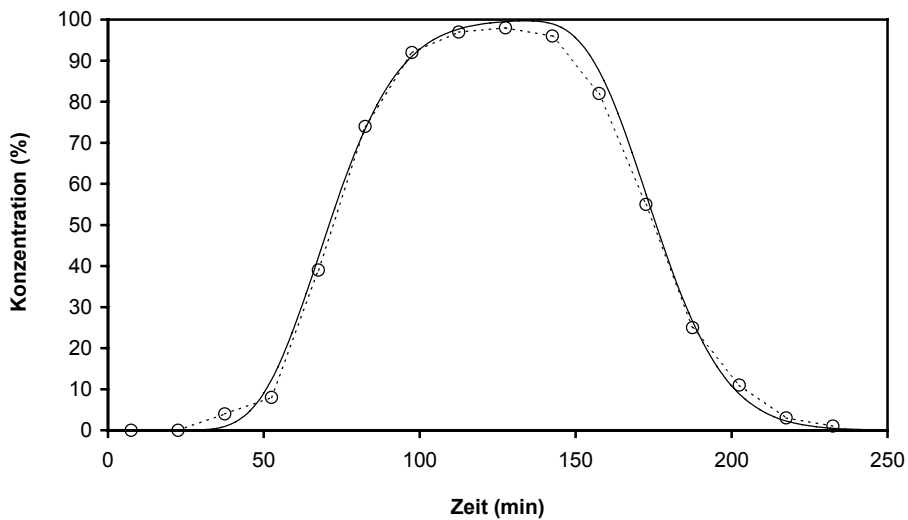
**Bild A3-3:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 260 mm/h (Überstau), Abstellung des Stoffeintrags nach 30 min,  $z_m = 20$ .



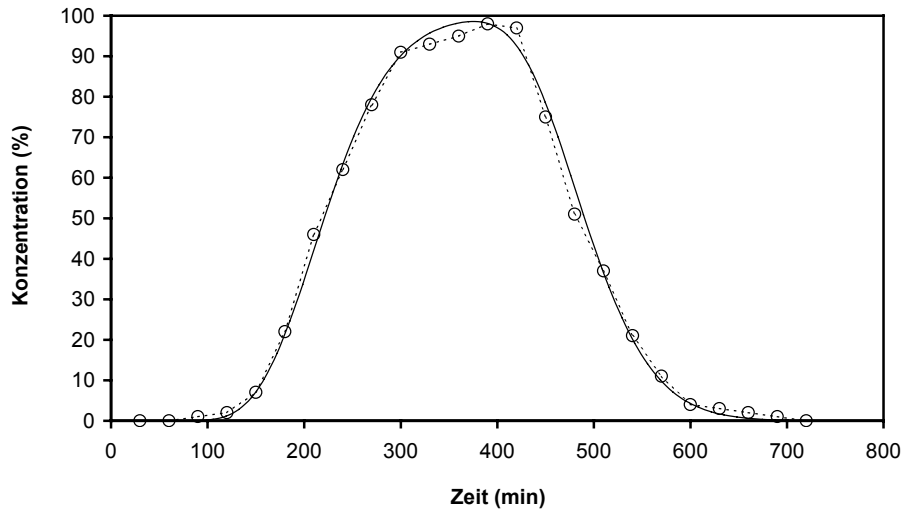
**Bild A3-4:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 25 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 720 min,  $z_m = 10$ .



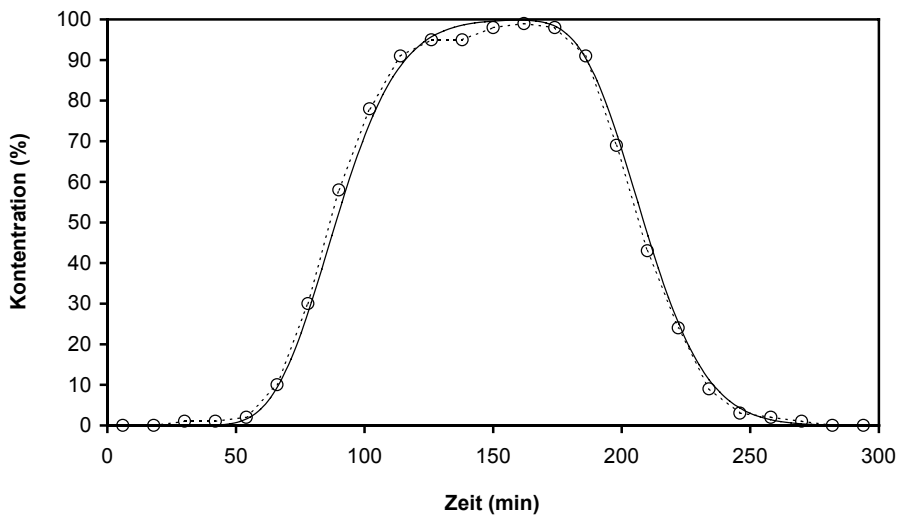
**Bild A3-5:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 90 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 210 min,  $z_m = 20$ .



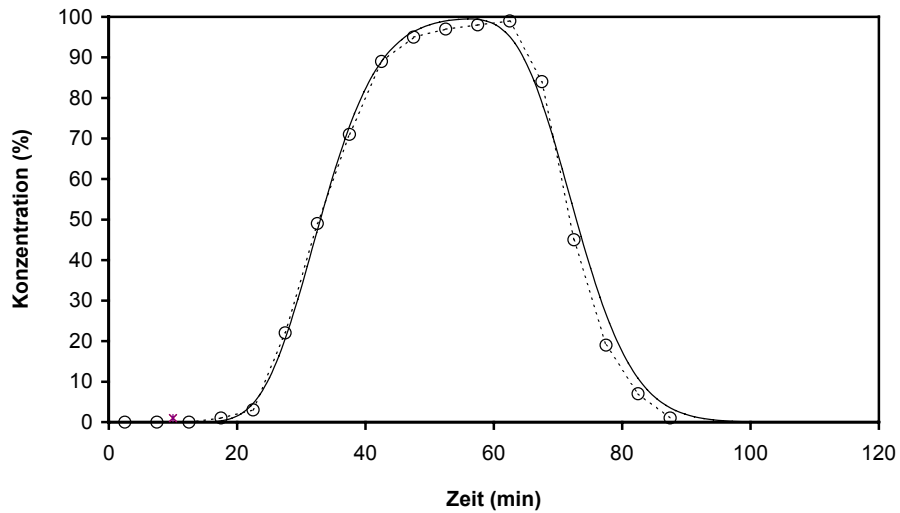
**Bild A3-6:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sand, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 193 mm/h (Überstau), Abstellung des Stoffeintrags nach 105 min,  $z_m = 15$ .



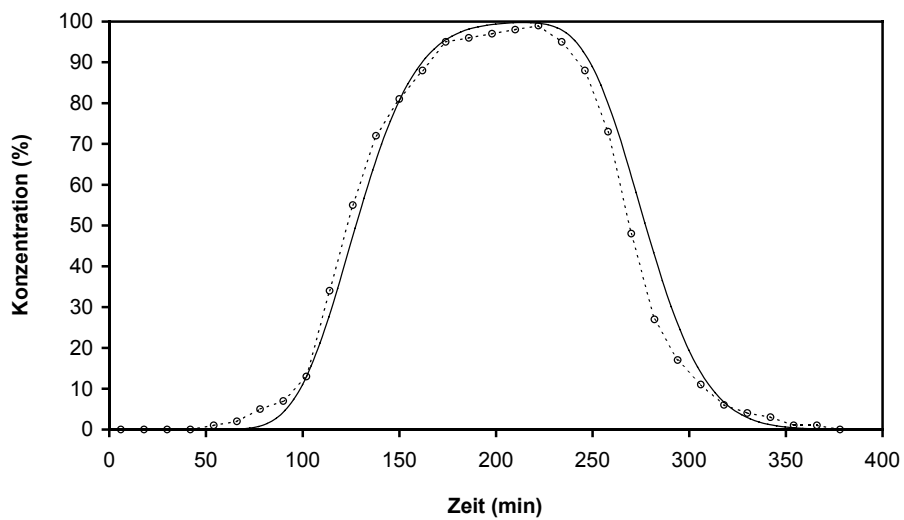
**Bild A3-7:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 26 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 270 min,  $z_m = 15$ .



**Bild A3-8:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 65 mm/h, Abstellung des Stoffeintrags nach 120 min,  $z_m = 20$ .



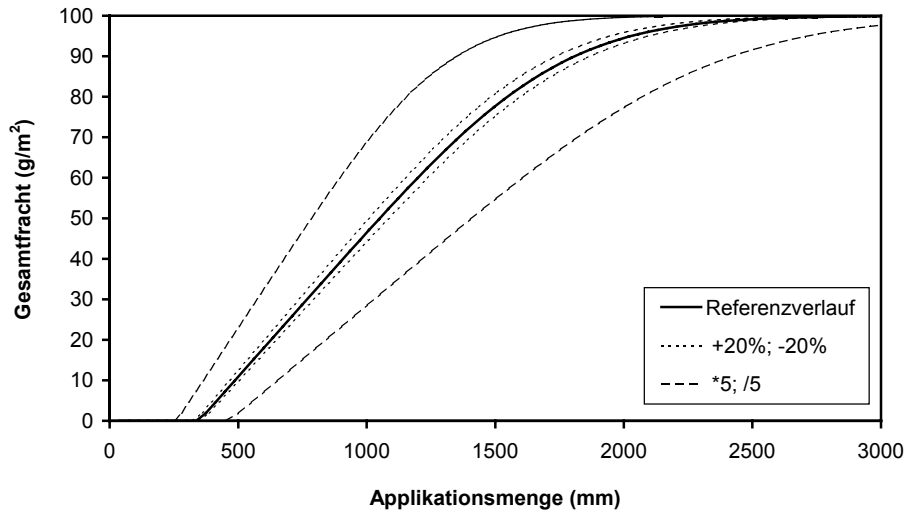
**Bild A3-9:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 20 cm, Beregnungsrate 175 mm/h (Überstau), Abstellung des Stoffeintrags nach 40 min,  $z_m = 20$ .



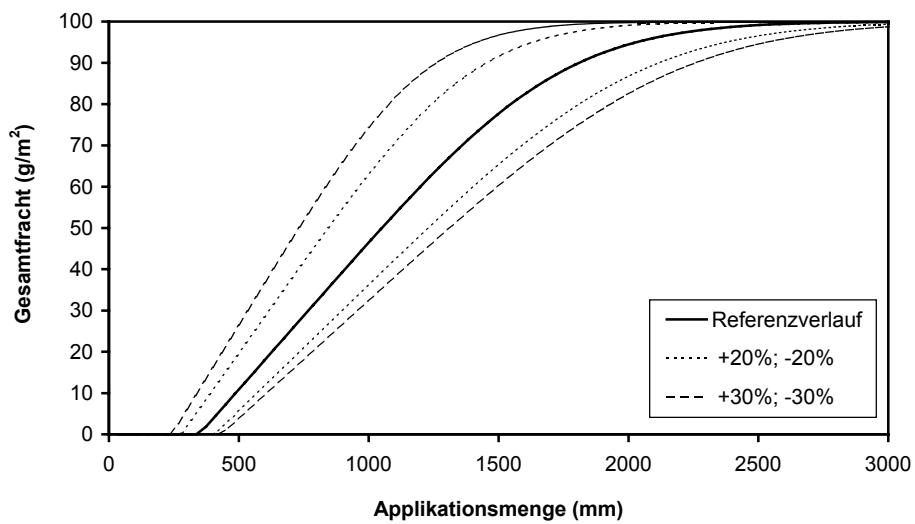
**Bild A3-10:** Experimentelle (.....) und mit unserem Ansatz berechnete (—) Durchbruchkurven für Chlorid. Sandlöss, Säulenlänge 67 cm, Beregnungsrate 150 mm/h (Überstau), Abstellung des Stoffeintrags nach 150 min,  $z_m = 25$ .

## **Anhang 4**

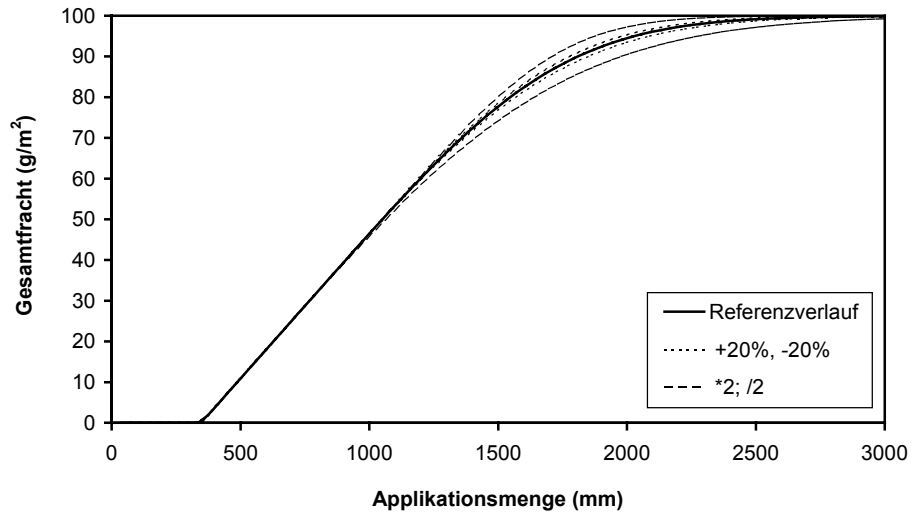
Sensitivitätsanalyse - Einfluss relevanter Parameter auf den Verlauf der Gesamtfracht  
(vgl. Kapitel VIII, Abschnitt 5)



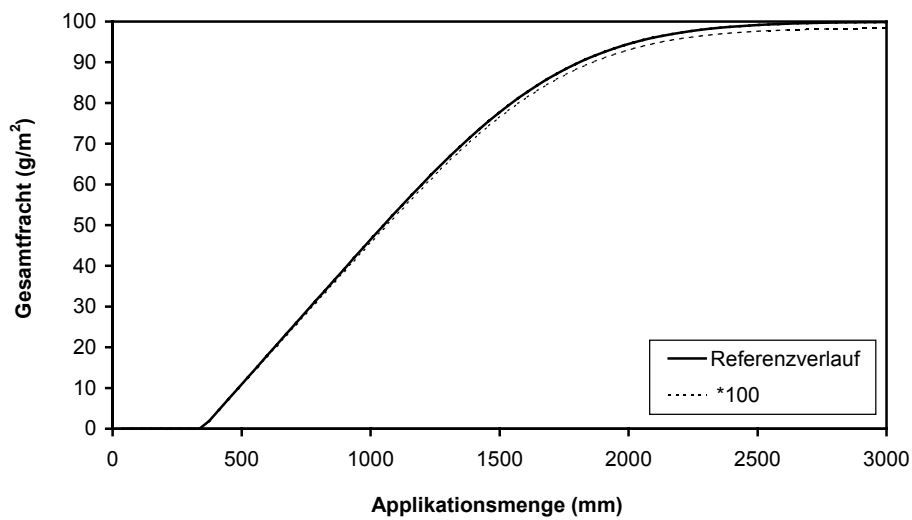
**Bild A4-1:** Einfluss der Variation von a auf den Frachtverlauf.



**Bild A4-2:** Einfluss der Variation von b auf den Frachtverlauf.

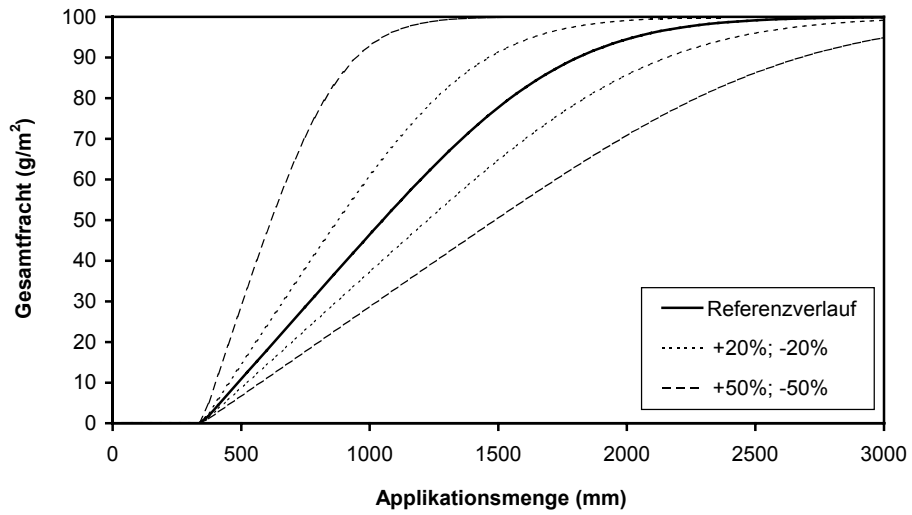


**Bild A4-3:** Einfluss der Variation von  $z_m$  auf den Frachtverlauf.

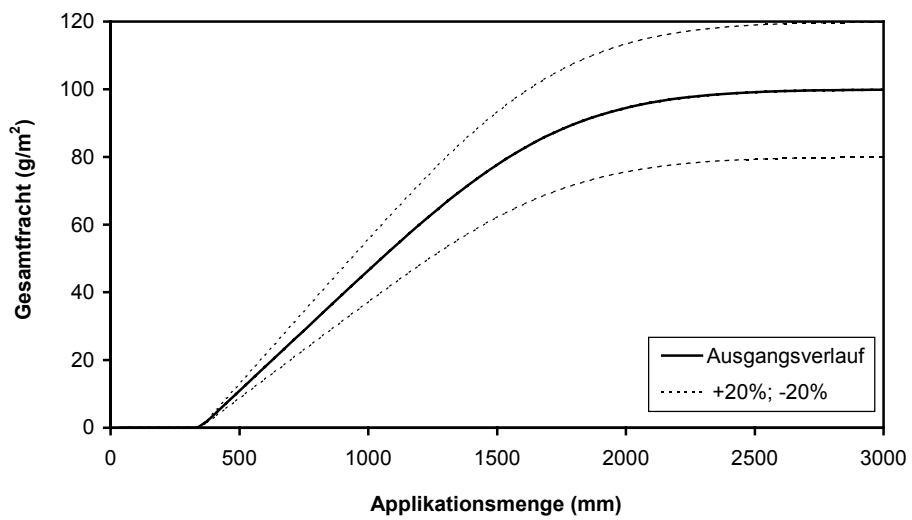


**Bild A4-4:** Einfluss der Variation von  $r_{min}$  auf den Frachtverlauf.





**Bild A4-5:** Einfluss der Variation von R auf den Frachtverlauf.



**Bild A4-6:** Einfluss der Variation von s auf den Frachtverlauf.

**Hinweis:** Die experimentellen Daten der Arbeit können auf Wunsch am Lehrstuhl für Landeskultur und Kulturtechnik der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg angefordert werden.

## **Erklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Literatur und Hilfsmittel angefertigt habe.

Mit dieser wissenschaftlichen Arbeit wurden bisher keine vergeblichen Promotionsversuche unternommen.

Des Weiteren erkläre ich, dass gegen mich keine Strafverfahren anhängig sind.

Halle/Saale, den 27.06.2006

## LEBENS LAUF

### Persönliche Daten

Name: Jens Hagenau  
Anschrift: Eichendorffstraße 9, 06114 Halle (Saale)  
Geburtsdatum und -ort: 29. März 1972 in Halle (Saale)  
Familienstand: ledig  
Staatsangehörigkeit: Bundesrepublik Deutschland

### Werdegang

- 1978 - 1990 Polytechnische und Erweiterte Oberschule in Halle-Neustadt, Abschluss: Abitur
- 1995 Beginn des Studiums an der Landwirtschaftlichen Fakultät der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg
- 1997 Landwirtschaftliches Praktikum in der "Petersberger Agrarvereinigung e.G." in Ostrau,
- 1997 - 1998 Praktikum beim Institut Dr. Jost in Queis, Arbeiten zur Umweltanalytik und Altlastensanierung
- 2001 Studienabschluss als Diplom-Agraringenieur (Dipl.-Ing. agr.) der Fachrichtung Bodenschutz und Landschaftsgestaltung, Thema der Diplomarbeit: „Einfluss der Niederschlagsintensität auf die Auswaschung von Stoffen aus Böden“
- 2001 - 2006 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Agrartechnik und Landeskultur der Landwirtschaftlichen Fakultät der Martin-Luther-Universität (Professur für Landeskultur und Kulturtechnik), Arbeiten u. a. zu den Themen:
- Ermittlung von Wasserspannungskurven und Durchflussparametern
  - Durchführung von Säulenversuchen
  - Stofftransport im Boden und im Deponiekörper
  - Betrachtungen zur Dispersivität
  - Untersuchungen zur Hydrophobie
  - Einbeziehung von Sorptionsergebnissen unter Berücksichtigung des Feststoff:Lösung-Verhältnisses in Stofftransportberechnungen
  - Abfallwirtschaftskonzepte
  - Bodenschutz in der räumlichen Planung (Bewertung und Wichtung von Bodenfunktionen)

## **Veröffentlichungen**

- Hagenau, J., H. Borg (2003a): Einfluss der applizierten Wassermenge und Applikationsrate auf die Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 105-111.
- Hagenau, J., H. Borg (2003b): Mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien. *Wasser und Boden* 55, 112-119.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005a): Simulation der Auswaschung von organischen Verbindungen, Chlorid und Zink aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate. *Müll und Abfall* 37, 82-90.
- Hagenau, J., H. Borg, K.-U. Fehse, M. Wolter (2005b): Hydrophobie bei der Auswaschung von organischen Verbindungen aus simulierten Deponiekörpern. *Müll und Abfall* 37, 148-153.
- Hagenau, J., H. Borg (2006a): Ermittlung eines Dispersivitätsfaktors beim Chloridtransport - Abhängigkeit von Substrat, Länge der durchströmten Schicht und mittlerer Fließgeschwindigkeit. Eingereicht in *Grundwasser*.
- Hagenau, J., H. Borg (2006b): Eine verbesserte mathematische Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei *Grundwasser*.
- Hagenau, J., H. Borg (2006c): Test eines verbesserten Modells zur Beschreibung der Stoffauswaschung aus porösen Medien in Abhängigkeit von der applizierten Wassermenge und der Applikationsrate. In Vorbereitung zur Veröffentlichung bei *Grundwasser*.