

Dissertation 03/2007

**Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte poröse Medien:
Visualisierung und Quantifizierung von Gas-Phasen-
Verteilung und -Bewegung**

Gunnar Krauß

Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte poröse Medien: Visualisierung und Quantifizierung von Gas-Phasen- Verteilung und -Bewegung

Von der Fakultät für Geowissenschaften, Geotechnik und Bergbau
der Technischen Universität Bergakademie Freiberg

genehmigte

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

Dr. rer. nat.

vorgelegt

von Diplom-Geologe Gunnar Krauß

geboren am 01.10.1974 in Halle/Saale

Gutachter: Prof. Dr. B. Merkel (Freiberg)
Prof. Dr. H. Geistlinger (Halle (Saale))
Prof. Dr. L. Luckner (Dresden)

Tag der Verleihung: 26.01.2007

Vorwort

Die vorliegende Doktorarbeit wurde im Rahmen des SAFIRA-Verbundprojektes im Teilprojekt C1.1 (Förderkennzeichen: 02WT9947/8) am Umweltforschungszentrum UFZ Leipzig-Halle GmbH angefertigt und vom BMBF (Projektträger Wassertechnologie und Entsorgung) finanziert.

Die Dissertation wurde kumulativ verfasst und besteht aus drei Teilen. Im ersten Teil (*ZUSAMMENFASSENDE ÜBERSICHT*) werden einleitend die allgemeine Zielsetzung der Arbeit, ein umfassender Literaturüberblick, wesentliche Ergebnisse und Schlußfolgerungen der Arbeiten aufgeführt.

Der zweite Teil (*VERÖFFENTLICHUNGEN*) umfasst 6 Veröffentlichungen, die im Rahmen dieser Arbeit erstellt wurden. Jede der Publikationen beschäftigt sich mit Teilaspekten der experimentellen und konzeptionellen Beschreibung der Gasphasen-Bewegung und -Verteilungsmuster in korngestützten porösen Medien unter verschiedenen Randbedingungen.

Im dritten Teil (*ANLAGEN*) werden ergänzend theoretische und experimentelle Grundlagen zu Materialien und Methodik beschrieben.

Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Helmut Geistlinger (Dept. Hydrogeologie; UFZ Leipzig-Halle GmbH) für die Bereitstellung des interessanten Themas, die vielen Diskussionen und die intensive Unterstützung bei der Durchführung der Arbeit.

Mein besonders herzlicher Dank gebührt Herrn Dr. Detlef Lazik (Dept. Hydrogeologie; UFZ Leipzig-Halle GmbH), der mir die Begeisterung zur experimentellen, wissenschaftlichen Arbeit vermittelte und mich in zahlreichen konstruktiven Diskussionen jederzeit intensiv bei der Durchführung und Auswertung der Arbeiten unterstützte. Dein alltägliches „zieh durch“ hat mich bei den oft kniffligen und langwierigen experimentellen Analysen im Simulationslabor immer aufs Neue motiviert.

Ich möchte Herrn Prof. Broder Merkel (TU Bergakademie Freiberg) für die Betreuung der Arbeit und die fachliche Diskussion danken.

Herrn Prof. L. Luckner (GFI Dresden) und seiner Arbeitsgruppe gebührt mein Dank für die fachliche Diskussion sowohl der experimentellen als auch der theoretischen Ansätze und Arbeiten.

Dem Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, insbesondere dem Dept. Hydrogeologie mit seinem Leiter Herrn Prof. Mario Schirmer, danke ich für die infrastrukturelle Unterstützung während der Arbeit. Meine Kolleginnen und Kollegen machten die Arbeit immer sehr angenehm.

Ich danke Frau Carola Böhnisch für die Unterstützung der experimentellen Arbeiten im Labor.

Herrn Prof. Walther Gläßer (Dept. Hydrogeologie; UFZ Leipzig-Halle GmbH) danke ich für die langjährige Zusammenarbeit und die Möglichkeit, auch im Rahmen von Studenten-Praktika und einer Vorlesungsreihe an der Universität Leipzig fachlich mitwirken zu dürfen.

Herzlich danken möchte ich meinen lieben Eltern, die mich während meiner gesamten Ausbildung immer unterstützten.

Merci MAG pour la patience !

Summary
Zusammenfassung

I ZUSAMMENFASSENDE ÜBERSICHT

1	Einleitung	1
1.1	Einführung in die Problematik	1
1.2	Gas/Wasser-Phasenbewegung in porösen Medien	3
2	Ziele	7
2.1	Übersicht zu den Publikationen	8
3	Stand der Forschung	12
3.1	Gas-Strömung in korngestützten porösen Medien	12
3.1.1	Abhängigkeit zur Korngröße	12
3.1.2	Abhängigkeit zur Injektionsrate	16
4	Wesentliche Ergebnisse und Schlußfolgerungen	19
5	Literatur	26

II VERÖFFENTLICHUNGEN

1	LAZIK, D., KRAUSS, G., SCHULTZE, R.H. & GEISTLINGER, H. (2005): Gravimetrically balanced high-resolution visualization of gas/water-phase displacement in porous media.- in revision for <i>Journal of Contaminant Hydrology</i> .	30
2	KRAUSS, G., LAZIK, D. & GEISTLINGER, H. (2003): Gas sparging for bioremediation: Experimental investigations of gas phase distribution.- in: <i>Proceedings of „2nd European Bioremediation Conference“</i> , Chania/Crete, Greece, 30.06.-04.07.2003, p. 87-90.	52
3	GEISTLINGER, H., KRAUSS, G., LAZIK, D., & L. LUCKNER (2006): Direct Gas Injection into Saturated Glass Beads: Transition from Incoherent to Coherent Gas Flow Pattern.- in press in <i>“Water Resources Research”</i>	57
4	KRAUSS, G., GEISTLINGER, H. & D. LAZIK (2006): Gas/water-phase displacement dynamics in porous media: A bench-scale study.- revised to <i>“Water Resources Research”</i>	80
5	LAZIK, D., KRAUSS, G., & H. GEISTLINGER (2005): Time series analysis of gas-bubble residence times in porous media.- unpublished manuscript	105
6	LAZIK, D., GEISTLINGER, H., KRAUSS, G., BECKMANN, A. & SCHIRMER, M. (2002): Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“.- <i>GRUNDWASSER</i> , 3/02: 146-155.	129

III ANLAGEN

1	Poröse Medien	147
2	Fluide Phasen	161
3	Strömungs-Module („ <i>Aquifer-Analog</i> “-Modelle)	163
4	Mess- und Regeltechnik	175
5	Messdatenerfassung DASYLAB V6.0	181
6	Versuchsablauf	186
7	Verfahrens-Definitionen	188

Summary

The purpose of this thesis was the experimental investigation and conceptual description of gas-phase movement and distribution in water saturated porous media during direct gas injection. Sparging of air or oxygen into contaminated aquifers can stimulate and enhance microbial, aerobic degradation processes of organic contaminants or can be used for stripping of high volatile contaminants. A detailed knowledge of the parameters that are controlling gas phase movement and entrapment depending on porous media characteristics and injection conditions (rate, depth, geometrie) is the basis for an efficient and successful application of this remediation technology.

An experimental method was developed that enables the high-resolution observation and quantification of multiphase-flow processes in porous media in Darcy and pore scale. Gas-phase movement and distribution was visualized and quantified in 2D-flow tanks at an optical-gravimetric setup. The optical system enables 2D-observations at the Darcy scale (~ 1 m) with a spatial resolution in pore scale (~ 10 μm). Due to the gravimetric measurements of the in- and out-flowing fluid phases, the relationship between optical images and the bulk processes can be derived. Experiments were conducted in glass beads and natural sands (0.1-4 mm) as a function of grain size and injection rate. Experiments were performed with low gas injection rates of 10 ml/min that were step-wise increased.

Results showed that with point-like gas injection in different sediments the gas-phase distribution can be controlled by variation of boundary conditions (injection rate; injection area (sediment type); injection depth). Both a grain-size(d_k) and flow-rate(Q) dependent transition (incoherent/coherent) was observed in the gas flow pattern. Based on Hagen-Poiseuille flow a dynamic capillary model was developed that describes the Q -dependent transition. Depending on sediment type and injection rate a typical coherence length can be determined that describes transition from incoherent to coherent gas flow. For practical application of direct gas injection it is important to understand the transition from coherent channelized flow to incoherent flow. It is likely that under field conditions this transition will occur, since very long macro channels become unstable after a certain number of split-offs, i.e. after a certain coherence length.

Coherent gas flow could be theoretically described with Darcy's law. In order to transport gas to a certain aquifer region, coherent gas flow should be used. On the other hand to establish a high gas saturation in a certain aquifer region incoherent gas flow is more efficient than coherent flow. To control gas flow in the aquifer, field application should be based on a detailed knowledge of the geological structure in the injection area.

Depending on injection rate uncontrolled gas injection can lead to changes in the sediment structure and can cause movement and displacement of fine particles within the aquifer.

Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertationsschrift beschäftigt sich mit der experimentellen Untersuchung und konzeptionellen Beschreibung der Gasphasen-Bewegung und -Verteilung bei der Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte, korngestützte porösen Medien. Durch die Direktinjektion von Luft oder Sauerstoff in kontaminierte Grundwasserleiter können mikrobielle, aerobe Abbauprozesse stimuliert und beschleunigt und leichtflüchtige Kohlenwasserstoff-Verbindungen durch Phasentransferprozesse aus dem Grundwasserleiter abgereichert werden. Das Verständnis der prägenden Gesetzmäßigkeiten der Gasströmung und der daraus resultierenden Gasströmungsmuster im Untergrund ist die Grundvoraussetzung für eine effektive ingenieurtechnische Anwendung dieses Verfahrens in der Sanierungspraxis.

Es wurde eine experimentelle Methodik entwickelt, die eine hochauflösende Beobachtung und Quantifizierung von Mehrphasen-Strömungsprozessen in porösen Medien in der Darcy- und Poren-Skala ermöglicht. An einem optisch-gravimetrischen Messplatz wurden die Gasströmungsmuster in 2D-Tank-Experimenten analysiert. Das optische Beobachtungssystem ermöglicht die Prozessbeobachtung in der Darcy-Skala (~ 1 m) mit einer Auflösung im Bereich der Porenskala (~ 10 μ m). Über die volumetrische Bilanzierung wird ein Bezug zwischen optischem Bild und räumlichen Strömungsprozess hergestellt. In Abhängigkeit zu Korngröße und Gas-Injektionsrate wurden Experimente in Glaskugeln und natürlichen Sanden (0,1-4 mm) durchgeführt. Die Experimente wurden mit kleinen Gasströmungsraten von 10 ml/min gestartet, die dann schrittweise erhöht wurden.

Innerhalb der Gas-Strömungsmuster wurde sowohl ein Korngrößen(d_K)- als auch ein Strömungsraten(Q)-abhängiger Übergang (inkohärent/kohärent) beobachtet. Es wurde ein dynamisches Kapillar-Modell entwickelt, welches basierend auf der Hagen-Poiseuille-Strömung den Q -abhängigen Übergang beschreibt. In Abhängigkeit von Sedimenttyp und Injektionsrate kann eine Kohärenzlänge definiert werden, die den Übergang von kohärenter zu inkohärenter Strömung bestimmt. Dies sollte auch bei der praktischen Anwendung der Direkt-Gasinjektion im Feldmaßstab beachtet werden. Es ist zu vermuten, dass auch unter Feld-Bedingungen ein solcher Übergang stattfindet, dass Makro-Kanäle nach einer bestimmten Kohärenzlänge instabil werden ("snap-off").

Inkohärente Gasströmung kann in grobkörnigen Sedimenten zu hohen lokalen Gassättigungen führen. Die kohärente Gas-Strömung konnte mit Hilfe des Darcy-Gesetzes beschrieben werden. Um das Gas steuerbar in den Grundwasserleiter einzubringen, ist kohärente Gasströmung notwendig. Dies setzt eine genaue Charakterisierung der Sedimente und Lagerungsstrukturen am Standort voraus.

Beim unkontrollierten Gaseintrag können in Abhängigkeit zur Gasinjektionsrate Lagerungsstrukturen verändert und Feinstpartikel gasströmungsgebunden, raumwirksam verlagert werden. Dies kann dazu führen, dass grobporige Fließwege geschaffen werden, die dann bei nachfolgenden Injektionspulsen bevorzugt durchströmt werden.

I

ZUSAMMENFASSENDE ÜBERSICHT

1 Einleitung

1.1 Einführung in die Problematik

Eine der größten Herausforderungen im Umweltbereich in den letzten 20 Jahren ist die Entwicklung effizienter Werkzeuge zur Lokalisierung von Schadstoffen im Boden und im Grundwasser sowie die Entwicklung kosteneffizienter Methoden zur Sanierung des Untergrundes [Teutsch et al., 2001]. Zur Reinigung schadstoffbelasteter Flächen wurden je nach Ausbreitungsradius und Art der Kontamination unterschiedliche Sanierungsstrategien entwickelt. Die Direkt-Gasinjektion von Luft oder gasförmigem Sauerstoff in die gesättigte Bodenzone ist eine kostengünstige und mittlerweile weit verbreitete Technologie zur *In-situ*-Reinigung kontaminierter Grundwasserleiter. Direktgasinjektion findet Anwendung an Standorten, die mit Kohlenwasserstoff-(KW)-Verbindungen wie z.B. leichtflüchtige aromatische KW (BTEX-Aromaten) [z.B. Johnston et al., 1998; Murray et al., 2000; Kirtland et al., 2001; Johnston et al., 2002; Lee et al., 2002], chlorierten KW-Verbindungen wie TCE [z.B. Rabideau et al., 1999] oder Inhaltstoffen von Benzin oder Heizöl wie z.B. Methyl *tert*-butyl ether [z.B. Salanitro et al., 2000] verunreinigt sind. Auch zur Sanierung eines hoch mit Ammonium kontaminierten Grundwasserleiters wurde auf die Direktinjektion von Sauerstoff als Technologie zurückgegriffen [Berliner Wasserbetriebe, 2000; 2004]. Bei der Direktgasinjektion werden zwei Sanierungsziele verfolgt:

1. Volatilisierung und Überführung von Schadstoffen aus der flüssigen Phase in die gasförmige Phase zur Weiterbehandlung durch Bodenluftabsaugung (*soil vapour extraction*) in der ungesättigten Zone
2. Bereitstellung von Sauerstoff zur Stimulation aerober mikrobiologischer Abbauprozesse (*Biodegradation*) oder geochemischer Prozesse.

Dem verunreinigten Bereich zuströmende Luft wird in Folge von Austauschprozessen mit den weniger mobilen Phasen (reine Schadstoffphase, gelöste Phase, adsorbierte Phase und nicht durchströmter Luftporenanteil) mit Schadstoffen angereichert. Die Volatilisierung von Schadstoffen beruht auf dem Prozess des Massen-Transfers zwischen am Sediment adsorbiertem bzw. in der wässrigen Phase gelöstem Schadstoff in die Gasphase. Die Bereitstellung von Sauerstoff als Elektronen-Akzeptor zur Stimulation und Beschleunigung aerober mikrobieller Abbauprozesse ist für Kontaminationen geeignet, an denen biologisch abbaubare Verbindungen (Aliphaten und Aromaten) beteiligt sind.

In der überwiegend englischsprachigen Literatur zur beschriebenen Thematik existieren verschiedene Begriffe (*Air Sparging*, *in-Situ-Aeration*, etc., siehe Anlage 7), die die unterschiedlichen Methoden der Direkt-Gasinjektion in den geologischen Untergrund

beschreiben. Innerhalb der vorliegenden Arbeit werden übergreifend die Begriffe *Direkt-Gasinjektion* bzw. *Direkte Gasinjektion* verwendet.

Abbildung 1-1 zeigt das Verfahrensprinzip in einer schematischen Übersicht. In einem Großteil der Feldanwendungen zur Direkt-Gasinjektion wird auf vertikal in den Untergrund eingebrachte Injektionselemente mit überlappendem Wirkungsradius (*Zone Of Influence*; *ZOI*) zurückgegriffen. Diese können punktförmig oder mit definierten Filterstrecken versehen mittels relativ kostengünstiger „direct-push“-Verfahren [EPA, 1997] in definierten Tiefenbereichen installiert werden [z.B. Johnston et al., 1998; Murray et al., 2000; Benner et al., 2000]. Auch Horizontal-Brunnen-Injektion wird angewendet [z.B. Plummer et al., 1997; Lundegard et al., 2001]. Ein wesentlicher Bestandteil des System-Designs ist das flächenhafte Monitoring geochemischer und physikalischer Parameter im An- und Abstrom des Injektionsbereiches.

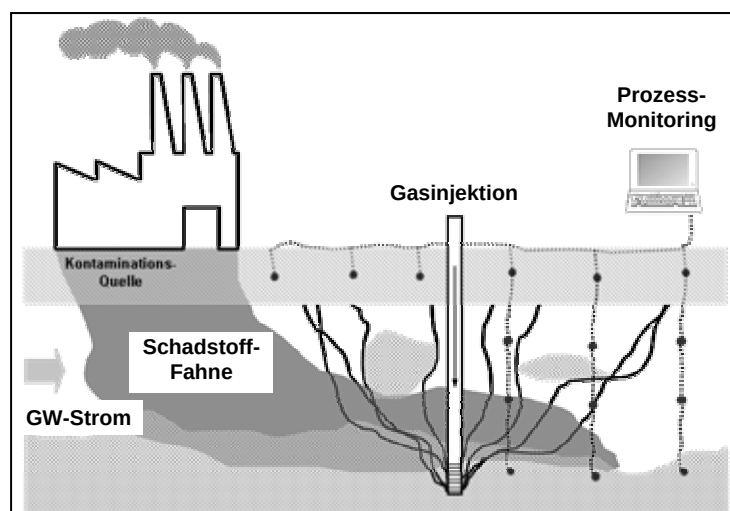


Abb. 1-1: Schematische Darstellung der Direkt-Gasinjektion als *In-situ*-Sanierungstechnologie.

Im Vergleich zu anderen Sanierungs-Verfahren, bei denen die Bereitstellung von Sauerstoff zur Beschleunigung mikrobieller Abbauprozesse im Mittelpunkt steht (z.B. H_2O_2 ; 'Oxygen Release Compounds'), bildet die Injektion von Luft als Sauerstoffquelle die kostengünstigste Variante [Fields et al., 2002]. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich deshalb ausschließlich mit Luft als Injektionsgas, da aufgrund der geringen Kosten zur Bereitstellung dieses Injektionsmediums ein Grossteil der Feldanwendungen darauf basiert.

Geophysikalische Untersuchungen bei Feldversuchen zeigten, dass die Gasphase z.T. sehr heterogen im Boden verteilt ist und somit große Unterschiede in den lokalen Gas-Sättigungen vorhanden sind [z.B. Lundegard und LaBrecque, 1995; Tomlinson et al., 2003]. Die Ursache sind stratigraphisch bedingte Permeabilitätsunterschiede im geologischen Untergrund. Diese können eine horizontale Erweiterung des Einflussbereiches der Gasphase entlang von

Schichtgrenzen verursachen oder führen zur Bildung von Gas-Speichern unter gering permeablen Sediment-Strukturen [z.B. Glass et al., 2000; Peterson und Murray, 2003; Tomlinson et al., 2003]. Die detaillierte Kenntnis der Gas/Wasser-Phasenbewegung (2-Phasen-Hydraulik) und -Verteilung in Abhängigkeit zur sedimentären Matrix und den Injektions-Bedingungen (Injektionsrate; Injektionstiefe; Injektionsgeometrie) ist eine wichtige Grundlage für die aktive Steuerung und effiziente Anwendung der Direkt-Gasinjektion. Zentrale Fragen von technologischer Relevanz sind:

- a) Mit welcher Verteilung kann die Gasphase im Sediment eingetragen und gespeichert werden?
- b) Wie beeinflusst die Injektionsrate die Gasphasenverteilung im Aquifer?
- c) Schafft/nutzt Direkt-Gasinjektion bevorzugte Fließwege?

1.2 Gas/Wasser-Phasenbewegung in porösen Medien

Die Zwei-Phasen-Strömungsmuster nichtmischbarer Fluida in porösen Medien werden bestimmt durch: *i*) die Fluid-Eigenschaften (Dichte, Viskosität, Kapillarität, Kompressibilität); *ii*) die Eigenschaften des porösen Mediums (Porengeometrie, Korn-Oberflächen, Lagerungsverhältnisse); *iii*) den angelegten Strömungs-Gradient bzw. der daraus resultieren Geschwindigkeit der Verdrängungsfront.

Das injizierte Gas wird sich entsprechend der Kraftresultierenden aus Kapillar(F_C)-, Reibungs(F_R)- und Auftriebs(F_A)-Kräften im Sediment bewegen. Im Fall der vertikal aufwärts-gerichteten Fluid-Strömung bei der Direkt-Gasinjektion wirken Auftriebs- und Strömungs-(F_S)-Kraft in die gleiche Richtung und ihre Absolutwerte addieren sich.

Die Gas-Phase kann je nach Geometrie des Porenraumes und der Strömungsrate Q_g zusammenhängend (*kohärent*) oder nicht-zusammenhängend (*inkohärent*) verteilt und gespeichert werden (Abb. 1-2). Kohärenter Gastransport (Abb. 1-2b) findet in Form von makroskopischen, verzweigten Gas-Kanälen oder in sehr feinkörnigen Sedimenten in einem räumlich dichten Porenkanalnetzwerk statt [z.B. Chen et al., 1996; Clayton, 1998]. Beim inkohärenten Gas-Transport (Abb. 1-2a) werden Makroblasen [z.B. Ji et al., 1993; Roosevelt und Corapcioglu, 1998] oder Mikroblasen [z.B. Wan et al., 2001] durch das Zusammenwirken von Kapillar-, Auftriebs- und Strömungskraft bewegt. Im Übergangsbereich zwischen kohärenter und inkohärenter Strömung können sich größere Gascluster oder Gaskanäle mit instabiler Phasengrenzfläche ausbilden.

Während der Injektion des Gases in einer Tiefe z unterhalb der Wasseroberfläche muss ein gewisser Injektionsdruck p_e [Pa] überwunden werden. Dieser setzt sich aus dem Druck der

Wasserphase p_w [Pa], dem Kapillardruck p_c [Pa] und dem Luftdruck p_L [Pa] zusammen. Die Druckverteilung in einer gasdurchflossenen Kapillare ist in Abbildung 1-2b dargestellt.

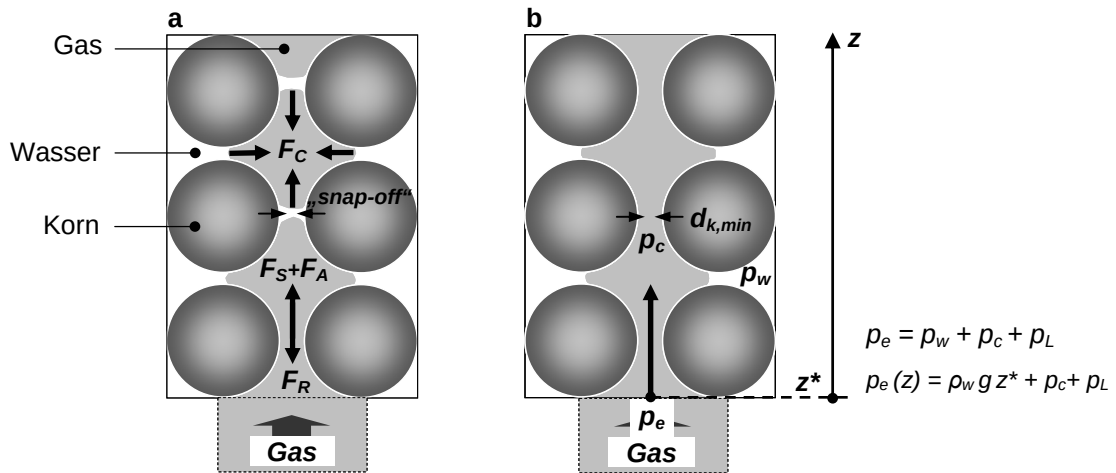


Abb. 1-2: Konzeptionelles Modell der Gasströmung im porösen Medium: a) inkohärent; b) kohärent ($d_{k,min}$...minimaler Porenkanaldurchmesser).

Die Gasströmung ist aufgrund der heterogenen, hysterese, teils nichtkonnektiven und stochastischen Ausbildung der Strömungswege im Untergrund mit Modellen bisher nur bedingt beschreibbar und damit nur beschränkt prognostizier- und steuerbar [Luckner, 2001].

Die experimentelle Analyse und konzeptionelle Beschreibung der Gasphasen-Bewegung erfolgt allgemein in unterschiedlichen Beobachtungsskalen (Abb. 1-3).

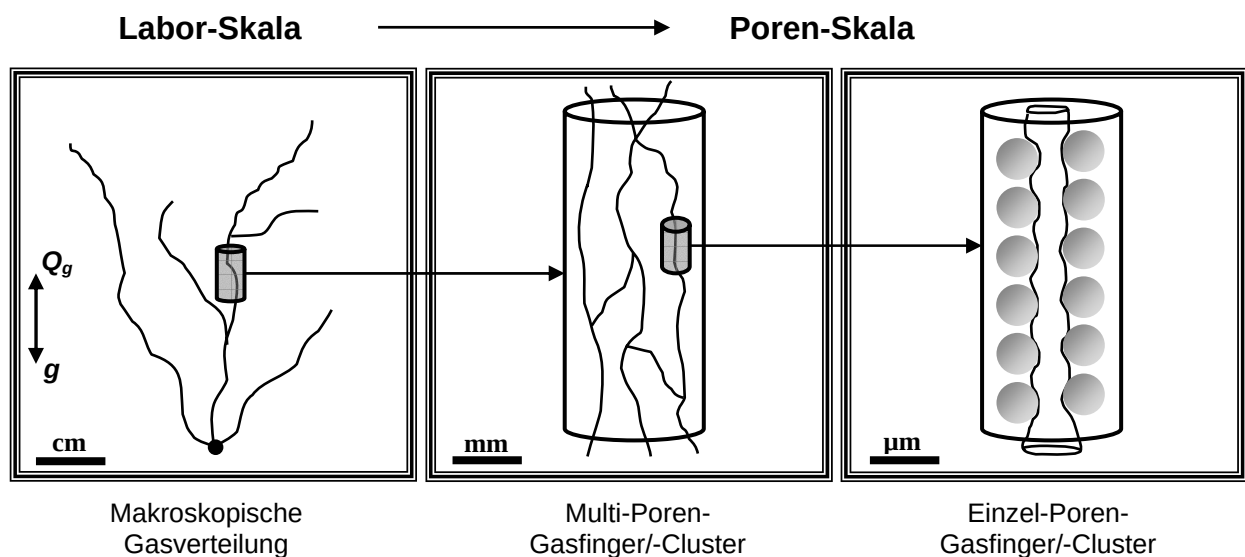


Abb. 1-3: Gasphasen-Verteilung/-Bewegung in verschiedenen räumlichen Skalen

Mit Hilfe von Modellversuchen gilt es, bestehende konzeptionelle Modelle zu testen bzw. konzeptionelle Bilder zur Charakterisierung und Quantifizierung der Gas-Ausbreitung und Speicherung für verschiedene Prozess-Bedingungen und -Skalen zu entwickeln.

Zum Verständnis der bei der Direkt-Gasinjektion ablaufenden Teilprozesse spielen Laborexperimente unter kontrollierten Randbedingungen eine zentrale Rolle. Zu diesem Thema wurde in den letzten Jahren eine Vielzahl an Untersuchungen im Labormaßstab durchgeführt, wobei Säulen und Tanks als „Aquifer-Analog-Modelle“ mit definierten Geometrien und Volumina genutzt wurden. Innerhalb dieser Arbeiten bildet die optische Visualisierung und Analyse von stationären Gasströmungsmustern in Abhängigkeit zur Korngrößen- bzw. Porengeometrie eine zentrale Rolle [z.B. Brauns und Wehrle, 1989; Ji et al., 1993; Brooks et al., 1999; Peterson et al., 1999a; Reddy und Adams, 2001; Peterson und Murray, 2003]. Studien zur Visualisierung und Quantifizierung der instationären Gas-Phasen-Bewegung fehlen.

Basierend auf einer rein qualitativen [z.B. Ji et al., 1993] bzw. semi-quantitativen [z.B. Brooks et al., 1999; Peterson et al., 1999a] Beschreibung stationärer Gasströmungsmuster erfolgte eine Klassifikation in Abhängigkeit zur mittleren Korngröße d_K des porösen Mediums. Dabei wird inkohärenter Gasfluss in Form von „slugs“ bzw. Makroblasen („*bubbly flow*“) in grobkörnigen Sedimenten von kohärentem Gasfluss in Form von Kanälen („*channelized flow*“) in feinkörnigen Sedimenten unterschieden. Der korngrößenabhängige Übergangsbereich der Strömungsmuster wurde im Bereich $d_K \sim 0,75\text{-}2$ mm beobachtet (Abb. 1-4). Die Ergebnisse von Brooks et al. [1999] verdeutlichen, dass die Erhöhung der Gasinjektionsrate innerhalb eines Korngrößenbereichs (z.B. für $d_K = 2$ mm) von inkohärenter zu kohärenter Gas-Strömung führen kann. Eine Klassifikation der Strömungsmuster als Funktion der Korngröße, wie sie bisher in der Literatur vorgenommen wurde, erscheint damit nicht eindeutig, da die Änderung von Injektionsdruck und Gas-Durchflussrate innerhalb eines Korngrößenspektrums zu unterschiedlichen Strömungsbildern führt.

Experimentelle Laborstudien zur Gasinjektion in korngestützte poröse Medien mit geringen Injektionsraten ($Q_g < 100$ ml/min) sind selten [Frette et al., 1992; Ji et al., 1993; Glass et al., 2000]. Bei vernachlässigbar kleinen Strömungskräften bestimmt das Zusammenwirken von Auftriebs- und Kapillarkräften, wesentlich beeinflusst durch die Porengeometrie, die Form bzw. Kohärenz/Inkohärenz der Gas-Wasser-Phasengrenzfläche (z.B. „snap-off“-Effekte).

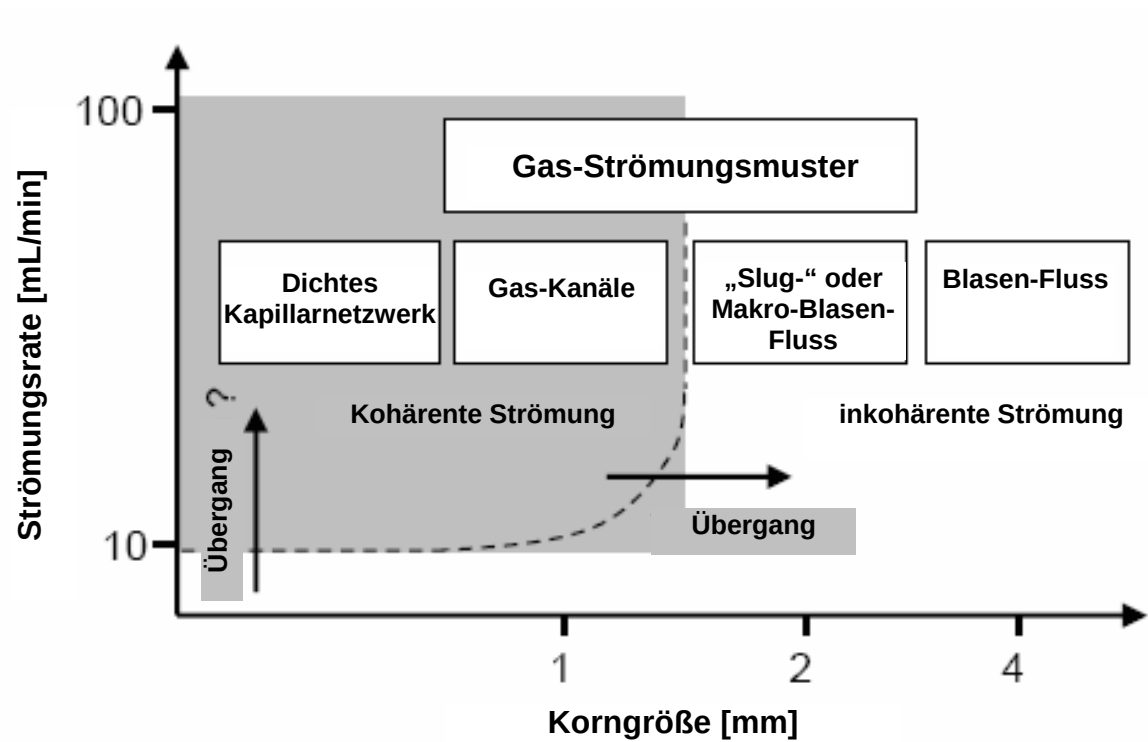


Abb. 1-4: Klassifizierung von Gas-Phasen-Strömungsmustern in Abhängigkeit von Korngröße und Gasinjektionsrate

2 Ziele

Die vorliegende Dissertationsschrift beschäftigt sich mit der experimentellen Untersuchung der Gasphasen-Bewegung und -Verteilung bei der Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte, korngestützte porösen Medien. Die Aufgabenstellung und die damit verbundenen Ziele bestanden in:

1. *der Entwicklung, Kalibration und Anwendung einer experimentellen Methodik, die eine räumlich und zeitlich hoch-aufgelöste Visualisierung und Quantifizierung der Prozessdynamik bei der vertikal aufwärts-gerichteten Gas-Strömung in porösen Medien ermöglicht.*
2. *der Charakterisierung der Gasphasen-Bewegung und -Verteilung in korngestützten porösen Medien (Glaskugeln/natürliche Sande) in Abhängigkeit von der Geometrie des Porenraumes (Korngrößenvariation) und der Gas-Injektionsrate.*
3. *der Entwicklung konzeptioneller Modelle zur Beschreibung unterschiedlicher Teilprozesse der Gasphasen-Bewegung in Abhängigkeit von der Geometrie des Porenraumes (Korngrößenvariation) und der Gas-Injektionsrate.*

Die Basis der experimentellen Arbeiten bildete die Entwicklung einer hochauflösenden Methodik zur Prozess-orientierten Analyse von Mehrphasen-Strömungsprozessen in porösen Medien. Es sollte ein experimentelles Setup entwickelt werden, mit dem folgende Messgrößen bzw. Systemzustände ermittelt werden konnten: i) Gespeichertes Gasvolumen V_G , ii) Lufteintrittsdruck p_e bzw. Kapillardruck p_c , iii) Gas-Wasser-Phasenverteilung an Grenzfläche Sediment/Plexiglas. Als feste Randbedingungen (unabhängige Größen) sollten Gasinjektionsrate Q_G und der Druck in der Wasserphase p_w vorgegeben werden. Der Versuchsaufbau sollte im Gegensatz zu den bisher aus der Literatur bekannten Arbeiten die Verknüpfung von direkter, optischer Visualisierung der räumlichen Verteilung und hochaufgelöster volumetrischer Bilanzierung der fluiden Phasenanteile im Porenraum zulassen.

Als korngestützte poröse Medien wurden mono- und hetero-disperse Packungen von Glaskugeln und natürlichen Sedimenten im Korngrößenbereich Mittelsand-Feinkies ($d_K = 0,1-4$ mm) verwendet. Glaskugeln als „ideales“ Korn-Analog (Kugelform; glatte Kornoberfläche; hoher Rundungsgrad; „ideale“ Benetzung durch Wasser) ermöglichen die theoretische Abschätzung der Lagerungsbedingungen und Porengeometrien mit Hilfe von Kugel-Modell-Konzepten. Anhand der Ergebnisse der Gasinjektionsexperimente in Glaskugeln wurden konzeptionelle Modelle für relevante Teilprozesse für verschiedene Beobachtungsskalen entwickelt.

2.1 Übersicht zu den Publikationen

Im Folgenden wird eine Übersicht zum Inhalt und Stand der Veröffentlichungen gegeben.

LAZIK, D., KRAUSS, G., SCHULTZE, R.H. & H. GEISTLINGER (2005): Gravimetrically balanced high-resolution visualization of gas/water-phase displacement in porous media.

Status: in revision for “*Journal of Contaminant Hydrology*”

In dieser Veröffentlichung werden Methodik und Aufbau des optisch-gravimetrischen Messplatzes beschrieben, der die zeiteffiziente, simultane Beobachtung von Prozessen in porösen Medien in der Poren- und Labor-Skala ermöglicht. Mit dieser optischen Visualisierungstechnik können Zwei-Phasen-Strömungsprozesse, strukturelle Eigenschaften oder die dynamische Wechselwirkung zwischen unterschiedlichen Phasen in einem Beobachtungsmaßstab von 10^{-1} m mit einer räumlichen Auflösung von 10^{-5} m untersucht werden. Die gravimetrische Bilanzierung der ein- und ausfließenden Phasen ermöglicht die Kalibration der ‚Oberflächen-Volumen-Beziehung‘ für die untersuchten Fließ-Prozesse.

Gasinjektions-Experimente in Glaskugeln und natürliches Sediment werden präsentiert und diskutiert. Zwischen der beobachteten mittleren Gassättigung an der Tankoberfläche und der gravimetrisch abgeschätzten Gassättigung wurde ein signifikanter Unterschied festgestellt.

Mit hochauflösenden Detailbildern konnte die irreversible Umlagerung von Sedimentpartikeln in Abhängigkeit der Richtung der Bewegung der Gas-Wassergrenzfläche visualisiert werden. Die 2D-‚Kartierung‘ von residualen Gas-Aggregaten in natürlichen Sedimenten zeigt eine starke Abweichung vom ‚Kugel-Bild‘. Je kleiner die Blasen werden, desto mehr erreichen sie Kugel-Form. Nur große Gasblasen korrelieren in ihrer Form mit der der Poren. Kleine Gasblasen, die die Poren nicht ausfüllen aber an der Partikeloberfläche festgeheftet sind, konnten visualisiert werden. Diese Effekte resultieren aus einer Auftriebs-Kontrollierten Fixierung, stabilisiert durch Rauigkeit der Korn-Oberflächen, und Gas-Blasen-Fixierung an hydrophoben Bereichen der Körner.

KRAUSS, G., LAZIK, D. & H. GEISTLINGER (2003): Gas sparging for bioremediation: Experimental investigations of gas phase distribution.

Status: published in Proceedings of “*2nd European Bioremediation Conference*”, 30.06.2003-04.07.2003, Chania/Crete, Greece, S. 87-90.

Es werden erste Ergebnisse von 2D-Gasinjektions-Experimenten in homogenes Glaskugelsediment ($d_K = 0,75-1$ mm) präsentiert, die in einem geschlossenen Strömungsmodul aus Plexiglas (20 x 37 x 1,1 cm) durchgeführt wurden. Die Arbeit veranschaulicht die optische Prozessvisualisierung in zwei Beobachtungs-Maßstäben (*Poren-Skala* / *Bench*’-Skala). Durch die

gleichzeitige Erfassung des zeitlichen Verlaufs von gespeichertem Gasvolumen und Gasdruck können Aussagen über Gassättigung und die Stabilität bzw. Stationarität der Gas-Phasenströmung getroffen werden. Für Glaskugeln als ideales Kornanalog wurden die Gas-Strömungsmuster mit Hilfe der modifizierten ‘*Bond-Number*’ nach Brooks et al. [1999] klassifiziert.

GEISTLINGER, H., KRAUSS, G., LAZIK, D., AND L. LUCKNER (2006): Direct Gas Injection into Saturated Glass Beads: Transition from Incoherent to Coherent Gas Flow Pattern

Status: in press in “*Water Resources Research*“

Der Übergang von inkohärenter zu kohärenter Gasströmung wurde in 2D-Tanks am optisch-gravimetrischen Messplatz untersucht. Als poröse Medien wurden Glaskugeln verwendet. Innerhalb der Strömungsmuster wurde sowohl ein Korngrößen(d_K)- als auch ein Strömungsraten(Q)-abhängiger Übergang beobachtet. Die experimentellen Ergebnisse konnten nicht mit quasi-statischen Modellen (z.B. ‘*Bo-Number*’) beschrieben werden, da diese nicht die Wechselwirkung zwischen stabilisierenden Reibungskräften und destabilisierenden Kapillar- und Auftriebskräften berücksichtigen. Es wurde ein dynamisches Kapillar-Modell entwickelt, welches basierend auf der Hagen-Poiseuille-Strömung die experimentellen Ergebnisse beschreibt und mit dessen Hilfe die Gasinjektionsexperimente nach einer d_K - Q -Abhängigkeit klassifiziert werden konnten.

KRAUSS, G., GEISTLINGER, H. & D. LAZIK (2006): Gas/water-phase displacement dynamics in porous media: A bench-scale study

Status: revised to “*Water Resources Research*“

In dieser Arbeit werden die Experimente zur Visualisierung und Quantifizierung der stationären und instationären Gasphasen-Bewegung und -Verteilung in Glaskugeln präsentiert (0,25-0,50; 0,75-1,00; 2,0-2,2; 0,25-2,2 mm).

Ein hochauflösendes Überlauf- und Wägesystem wurde zur Quantifizierung des gespeicherten Gasvolumens in porösen Medien entwickelt. Die Experimente, durchgeführt am optisch-gravimetrischen Messplatz, wurden mit kleinen Gasströmungsraten von 10 cm³/min gestartet, die dann schrittweise erhöht wurden. In einer weiteren Versuchsreihe wurde der Einfluss unterschiedlicher initialer Gasinjektionsraten auf die räumliche Gasverteilung untersucht. Der höchste Gasphasenanteil konnte im Feinkies gespeichert werden, wo die Gasphasenbewegung inkohärent war und homogen verteilte Gascluster im Porenraum immobilisiert wurden. Fluktuationen im Gasvolumen und Gaseintrittsdruck wiesen auf inkohärente Gasströmung in

porösen Medien mit Korndurchmessern > 1 mm hin. Mit Erhöhung der Gasinjektionsrate erfolgte ein Übergang von inkohärenter zu kohärenter Strömung im Grobsand. Mit Ausnahme des Feinkieses konnte die kohärente Strömung mit Hilfe des Darcy-Gesetzes beschrieben werden.

Eine Erhöhung der initialen Gasinjektionsrate konnte den gas-beeinflussten Bereich in feinkörnigen Sedimenten vergrößern (z.B. Mittel-Sand), führte aber in grobkörnigen Sedimenten (Grobsand, Feinkies) zu einer deutlichen Einengung des Injektionstrichters.

LAZIK, D., KRAUSS, G., & H. GEISTLINGER (2005): Time series analysis of gas-bubble residence times in porous media

Status: unpublished manuscript

Gasinjektion in grobkörnige, wassergesättigte Sedimente resultiert in Gasblasenbewegung und der Bildung einer inkohärent gespeicherten Gasphase. Kleine Schwankungen im Gaseintrittsdruck und Gasvolumen sind charakteristisch für inkohärente Gasphasenbewegung. Basierend auf diesen Schwankungen, die in Laborexperimenten in 2D-Strömungsmodellen gemessen wurden, konnten zwei unabhängige Methoden für die Bestimmung der Gasblasen-Verweilzeit in porösen Medien abgeleitet werden. Das entwickelte Gasinjektions-System erlaubt die Kontrolle der Frequenz des Gas-Blasen-Eintritts und die Analyse des Gasphasen-Verhaltens beim Eintritt in den Porenraum. Das Gasvolumen innerhalb der Strömungszelle wurde mit Hilfe eines sehr schnellen Überlaufsystems als Funktion der Zeit quantifiziert. Somit kann mit beiden Methoden, die in dieser Arbeit beschrieben werden, die Gasblasen-Verweilzeitverteilung quantitativ abgeschätzt werden. Erste Ergebnisse in 2mm-Glaskugelsediment stehen in Übereinstimmung sowohl zwischen beiden Methoden als auch mit gleichzeitig durchgeführten optischen Kontroll-Messungen. Diese bestätigten die erwartete Spanne in den Gasblasen-Aufstiegs-Geschwindigkeiten.

LAZIK, D., GEISTLINGER, H., KRAUSS, G., BECKMANN, A. & M. SCHIRMER (2002): Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“.

Status: veröffentlicht in *GRUNDWASSER*, 3/2002: S. 146-155.

Diese Arbeit stellt die thermodynamischen und kinetischen Charakteristika (Henry-Koeffizienten, Ratenkonstanten) von Mischgasphasen, die Grundgleichungen eines neuen kinetischen Modells (*variable-volume-Modell*) und die Ergebnisse von Säulenexperimenten mit einem Ein-Komponenten-Gas zur Auflösungskinetik einer residualen Gasphase vor.

Einen Schwerpunkt bildeten großskalige Tankexperimente zur Gasinjektion. Mit Hilfe dieser Versuche wurde ein konsistentes Bild über die Entwicklung des gasdurchströmten Kapillarnetzwerkes entwickelt. Dieses wurde in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom und der Injektionstiefe untersucht. Zur Analyse der räumlichen Verteilung der gasdurchflossenen Kapillaren wurden die Gasaustrittspunkte an der Tankoberfläche visualisiert. Der Vergleich aus gemessenem und nach dem Ein-Kugel-Modell anhand des Sedimentes abgeschätzten Kapillardruck zeigte, dass die Entwicklung des Kapillarnetzwerkes von Korngerüstumordnungen begleitet sein muss, da sonst die geringen Kapillardrücke nicht erklärbar sind. Die nachgewiesene Linearität zwischen Volumenstrom und dynamischem Gasvolumen bedeutet, dass eine Erhöhung des Volumenstromes eine Ausweitung des Kapillarnetzwerkes bewirkt. Die experimentell bestimmte Kapillardruck-Gasvolumen-Korrelation zeigte, dass dabei auch kleinere Kapillaren für die dynamische Gasspeicherung beansprucht werden.

3 Stand der Forschung

3.1 Gas-Strömung in korngestützten porösen Medien

In zahlreichen Laborversuchen wurden in den letzten Jahren Gas-Strömungsprozesse und -Verteilungsmuster sedimentabhängig unter definierten Randbedingungen beschrieben. Tabelle 3-1 gibt eine Übersicht von Publikationen zur experimentellen Simulation der vertikalen Luftströmung in wassergesättigten, korngestützten porösen Medien. Gegenübergestellt sind sowohl die Modell-Dimensionen, die Art des porösen Mediums und die Luftinjektionsrate als auch das gespeicherte Gasvolumen.

Um neue Modell-Konzepte zu entwickeln bzw. bestehende theoretische Modelle anzuwenden und zu prüfen, wurden Glaskugeln als Analog zu natürlichen Körnern verwendet [Ji et al., 1993; Plummer et al., 1997; Roosevelt und Corapcioglu, 1998; Brooks et al., 1999; Elder und Benson, 1999]. Die Mehrzahl der Arbeiten betrachtete die Strömungsprozesse in natürlichen Sanden und Kiesen, wobei sowohl homogene Schüttungen [z.B. Brauns und Wehrle, 1989; Semer et al., 1998; Peterson et al., 1999] als auch geschichtete Strukturen [Reddy und Adams, 2001; Peterson und Murray, 2003] untersucht wurden.

Durch direkte Prozess-Visualisierung konnte im Labor gezeigt werden, wie die Gas-Phasenausbreitung durch die geologische Struktur und die technischen Randbedingungen (Injektionsrate, Injektionstiefe etc.) beeinflusst wird. Dabei kamen sowohl tomographische [z.B. Chen et al., 1996; Wong und Wibowo, 2000] als auch optische Methoden [z.B. Ji et al., 1993; Peterson et al., 1999, Glass et al., 2000] zur Anwendung. Die optischen Visualisierungsexperimente zielten auf die qualitative [z.B. Ji et al., 1993] oder semi-quantitative [Brooks et al., 1999; Peterson et al., 1999] Beschreibung der stationären/quasi-stationären Strömungsmuster als Funktion der Korngröße ab. Studien der optischen Visualisierung kombiniert mit einer volumetrischen Quantifizierung instationärer/stationärer Gasströmungsprozesse (z.B. Gaseintritt; Gasblasen-Transport) in korngestützten porösen Medien fehlen.

3.1.1 Abhängigkeit zur Korngröße

Ji et al. [1993] führten erstmalig Visualisierungsexperimente mit Glaskugel-Sedimenten durch und beschrieben qualitativ die Gasphasen-Strömungsmuster als Funktion der Korngröße. Die Autoren schlussfolgerten, dass für Glaskugelsedimente mit einem Korngrößendurchmesser $d \geq 4$ mm die Gas-Strömungsmuster durch eine trichterartige Ausbreitung von Gasblasen geprägt sind (*'bubbly flow'*, inkohärent)(Abb. 3-1a). Korndurchmesser $d \leq 0,75$ mm führten zu einer kanalartigen, parabolischen Ausbreitung der Gasphase im wassergesättigten Sediment (*'channelized flow'*, kohärent)(Abb. 3-1b/c). Bei geringer Gas-Strömungsrate (Abb. 3-1/c)

bildete sich nur ein makroskopisch sichtbarer Kanal mit Verzweigungen hin zur Oberfläche. Dabei blieben weite Teile des Sedimentes unbeeinflusst vom Gasstrom. Der Übergang in den Strömungsmustern lag bei diesen Untersuchungen im Korngrößenbereich $0,75 \leq d_K \leq 4 \text{ mm}$.

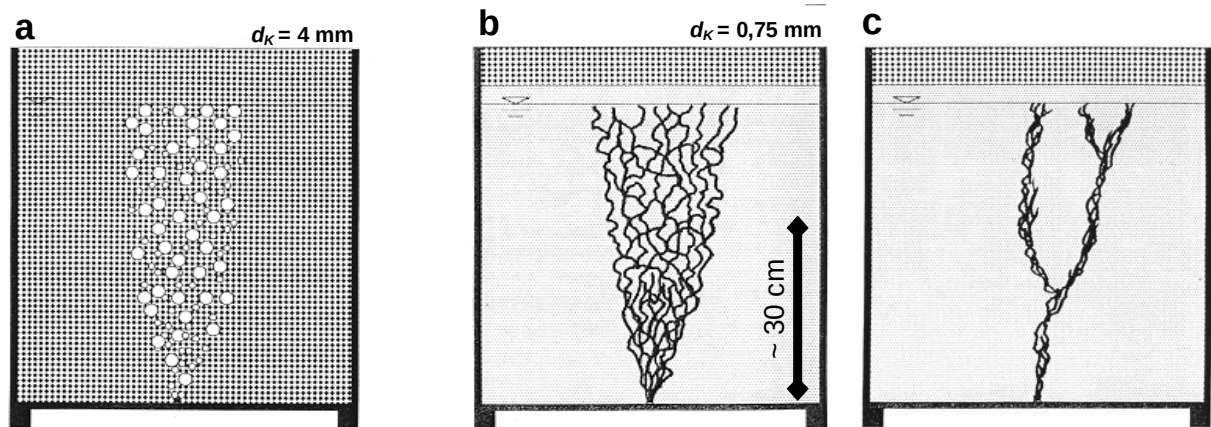


Abb. 3-1: Gasphasen-Strömungsmuster in Glaskugeln: a) inkohärenter Makroblasen-Fluss („*bubbly flow*“); b) kohärente Gas-Strömung („*channelized flow*“) mit mittlerer Injektionsrate; c) kohärente Gas-Strömung mit geringer Injektionsrate [nach Ji et al., 1993].

McCray und Falta [1997] nutzten numerische Simulationen [T2VOC-Code; Falta et al., 1995] zur Beschreibung der von Ji et al. [1993] experimentell aufgezeichneten kohärenten Gasverteilungsmuster in Glaskugelsedimenten ($d_K = 0,75 \text{ mm}$). Die Ergebnisse zeigten sowohl für homogene als auch heterogene Permeabilitätsverteilungen sehr gute Übereinstimmung zu den mit hohen Gasinjektionsraten erzeugten Strömungsmustern. Die Autoren wiesen aber darauf hin, dass die Beschreibung des Gas-Strömungsmusters bei geringen Gasinjektionsraten (Abb. 3-1c) mit Hilfe der Kontinuums-Theorie, die diesen Simulationen zugrunde liegt, nicht möglich war. Inkohärenter Gastransport in Form von Makro-Blasen wurde von Roosevelt und Corapcioglu [1998] in Glaskugeln ($d_K = 4 \text{ mm}$) untersucht. Mit spezieller Videotechnik konnte der Aufstieg von Gasblasen mit Durchmessern von $1,5 d_K$ bis $2 d_K$ visualisiert werden. Die Autoren verglichen die Aufstiegs-Geschwindigkeiten einzelner Gasblasen ($v_{gb} \sim 15 \text{ cm/sec}$) im porösen Medium mit dem freien Gasaufstieg im Wasser ($v_{gb} \sim 20 \text{ cm/sec}$). Die Transport-Geschwindigkeit einzelner Gasblasen war im porösen Medium größer als die eines Blasen-Cluster („*slugs*“). Corapcioglu et al. [2004] präsentierten eine theoretische Studie zur quantitativen Analyse der Gasblasen-Geschwindigkeit in grobkörnigen porösen Medien. Dem Modell liegt die Bilanzierung der auf die Gasblasen wirkenden Auftriebs-, Kapillar- und Strömungskräfte zugrunde. Die Ergebnisse, verglichen mit experimentellen Studien [z.B. Roosevelt und Corapcioglu, 1998] zeigen, dass die Aufstiegs-geschwindigkeit einzelner Gasblasen im wassergesättigten porösen Medium eine Geschwindigkeit von $18,5 \text{ cm/s}$ nicht übersteigen kann.

Marulanda et al. [2000] untersuchten die Luftströmung unter Verwendung zerkleinerter Glasstäbe als poröses Medium im Korngrößenbereich $d_K = 0,6-2$ mm. Sie benutzten die Technik des ‘*centrifuge modelling*’, wobei unter Variation der Zentrifugalkraft die Druckbedingungen in der wässrigen Phase unter Gelände-typischen Druck-Bedingungen studiert wurden. Die Gasphase breitete sich in Form diskontinuierlicher „*slugs*“ aus, die in Abhängigkeit zum Porenwasserdruck an der Oberfläche mit einer mittleren Geschwindigkeit von ca. 9-14,6 cm/s aufstiegen (graphisch über zeitliche Verschiebung der Gasfront bis zum Gasdurchbruch ermittelt).

Die sedimentcharakteristische Gas-Phasen-Ausbreitung bei der Drucklufteinblasung in natürliche Kornmischungen (Mittelsand-Mittelkies) wurde erstmalig von Brauns und Wehrle [1989] in Säulen- und Tank-Experimenten untersucht. Dabei wurden Sedimente mit sehr steilen Kornverteilungskurven im Bereich Mittelsand-Feinkies ($d_K = 0,2-8,0$ mm) verwendet. Je steiler die Kornverteilungskurve eines Bodens ausfällt, d.h. je gleichförmiger die Sediment-Körner sind, umso größer ist der Porenanteil des Bodens und umso gleichmäßiger die Porenverteilung. Dies bildet die Voraussetzung für eine einigermaßen gleichmäßige, über alle Poren gleichverteilte Luftströmung. Der Lufttransport im Feinkies ($d_K = 2,0-3,0$ mm) erfolgte auf wechselnden Wegen unter Einbeziehung fast des gesamten Porenraumes. Die Autoren beobachteten eine pulsierende Luftbewegung, hervorgerufen durch die Fortpflanzung eines Impulses von einer Luftblase (luftgefüllten Bereich) zur nächsten (inkohärente Strömung). Sedimente mit einem Eintrittskapillardruck $p_e > \text{ca. } 20$ cm-Wasser-Säule (Mittelsand-feiner) wurden beim Drucklufteinblasen auf wenigen Bahnen kohärent durchströmt. In diesen feinkörnigen Sedimenten bildeten sich größere luftgefüllte Bereiche entlang gerichteter Kornstrukturen, die durch den Einbau in das Modell erzeugt wurden. Auch Brauns und Wehrle [1989] betonten, dass die Art der Gasphasenausbreitung von den Injektionsbedingungen (Strömungsrate, Injektionsdruck) abhängig ist.

Peterson et al. [1999] untersuchten die Gasphasen-Strömung in Sanden mit Hilfe einer colorimetrischen Visualisierungstechnik. Sie mischten dem untersuchten Sediment Eisenspäne bei, und nutzen die Reaktion des Eisens bei der Zufuhr von Sauerstoff, welche zu einer Farbänderung von schwarz zu orange-braun (Eisen-Hydroxid) führt. Für natürliche Sande mit $d_K \geq 1,84$ mm war der Gasfluss inkohärent („*pervasive flow*“, Abb. 3-2a), bei einer Korngröße $d_K \leq 1,3$ mm strömte das Gas in kohärenten Kanälen („*channelized flow*“, Abb. 3-2b). Die Arbeiten mit natürlichen Sedimenten bestätigen den korngrößenabhängigen Übergang von inkohärenter zu kohärenter Gasströmung im Bereich von $d_K = 1-2$ mm, wie er von Ji et al. [1993] und Brooks et al. [1999], die Glaskugeln als Korn-Analog nutzten, beobachtet wurde.

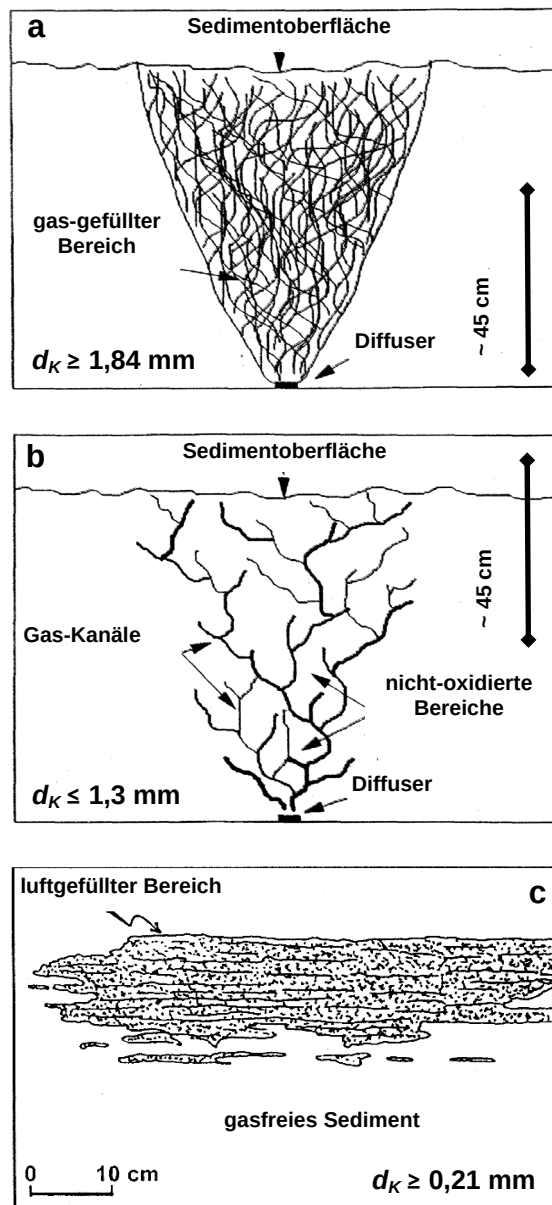


Abb. 3-2: Gasphasen-Strömungsmuster in natürlichen Sanden: a) inkohärenter Gas-Fluss („pervasive Flow“); b) kohärente Gas-Strömung („channelized flow“); c) kohärente Gas-Strömung mit signifikanter horizontaler Komponente („chamber flow“) [nach Peterson et al., 1999; 2001].

Clayton [1998] schlussfolgerte anhand von experimentellen Untersuchungen begleitet von Feldbeobachtungen, dass sich im natürlichen Fein-Mittelsand ein kohärentes gasgefülltes Netzwerk im Bereich der Porenskala („pore scale fingering“) bildet, wogegen sich im Grobsand makroskopische Gas-Kanäle herausbilden („macroscopic channeling“) (Abbildung 3-3). Die makroskopischen Kanäle können als Bereiche mit einer hohen Dichte an Poren-Kanälen beschrieben werden.

Peterson et al. [2001] beschrieben einen weiteren Typ für Gasphasen-Verteilung im Feinsand mit $d_K < 0,21 \text{ mm}$. Die kohärente Gasphasen-ausbreitung im feinkörnigem Sediment wird charakterisiert durch eine signifikante horizontale Komponente, die durch feinste Permeabilitätsunterschiede stratigraphisch begründet ist („chamber flow“) (Abb. 3-2c).

Die Arbeiten von Reddy und Adams [2001] und Peterson und Murray [2003], die die Luftinjektion in heterogene Sedimentstrukturen untersuchten, verdeutlichen die Sensitivität der Gasausbreitung gegenüber geringen Unterschieden in der Permeabilitätsverteilung. Der Gasstrom folgt grobporigen, höher permeablen Strukturen, in denen ein geringerer kapillarer Widerstand vorherrscht.

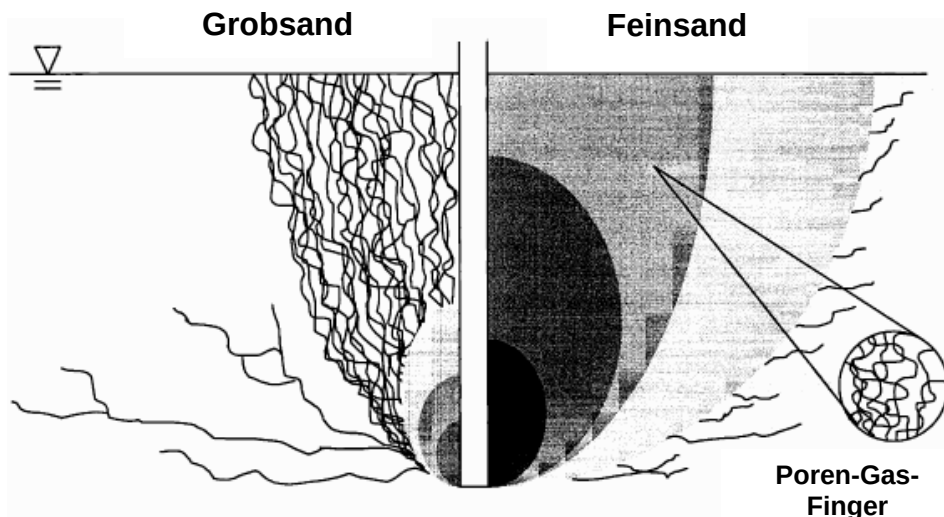


Abb. 3-3: Kohärenter Gasfluss im porösen Medium: ‚*Macroscopic channeling*‘ (Grobsand) und ‚*Pore scale fingering*‘ (Feinsand) [nach Clayton, 1998]

3.1.2 Abhängigkeit zur Injektionsrate

Neben der Standortgeologie und Schadstoffcharakteristik, spielt die Gasinjektionsrate für das Technologie-Design und den Sanierungserfolg eine entscheidende Rolle. So muss zum Beispiel beim Bio-Sparging, wo Sauerstoff nur in kontaminierte Grundwasserbereiche injiziert werden soll, ohne dass es zum Gasdurchbruch an der Oberfläche kommt, eine adäquate Injektionsrate gewählt werden.

Eine Erhöhung der Gasinjektionsrate kann in feinkörnigen Sedimenten zu einer Vergrößerung des gasbeeinflussten Bereiches führen [z.B. Ji et al., 1993; Semer et al., 1998; Peterson et al., 1999]. Im grobkörnigen Sedimenten (Kiese) kann durch eine Volumenstromerhöhung oftmals nur eine geringfügige Vergrößerung der Raumwirkung der injizierten Gasphase erreicht werden. Vielmehr wird auch bei erhöhtem Fluss die Gasphase in dem initial erschlossenen grobporigen Netzwerk transportiert [z.B. Semer et al., 1998]. Hohe Gas-Injektionsraten können geomechanische Veränderungen im Kornverband bewirken. Überschreitet der mit der Gasinjektionsrate verbundene Injektionsdruck im Porenraum den Druck, der durch die anliegende Wassersäule und die lithostatische Auflast gegeben ist, kann es zum Aufreißen des Kornverbandes kommen („*pneumatic fracturing*“, siehe Anlage 7).

Brauns und Wehrle [1989] beobachteten entlang von Gasströmungswegen in Mittelsand mehrfach Kornumlagerungen, die Störungen in den Boden einbrachten und die Porenstruktur dauerhaft veränderten. Tsai und Lin [2004] demonstrierten, dass es während der Lufteinblasung in heterogene Sande zum Austrag von Feinpartikeln und somit zu irreversiblen Veränderungen im Kornverband kommen kann. Die Verlagerung von Feinstpartikeln über die Gas-Wasser-Grenzfläche wurde erstmals von Wan und Wilson [1994] in Mikro-Modellversuchen visualisiert.

Geringe Gasinjektionsraten können die „*zone of influence*“ (ZOI) auf eine geringe Anzahl diskreter Kanäle nahe des Gaseintragspunktes beschränken [z.B. Ji et al., 1993; Brooks et al., 1999].

Experimentelle Studien zur Beschreibung von Gasphasenströmungsmustern in korngestützten porösen Medien mit geringen Gas-Injektionsraten ($Q_g < 100$ ml/min) sind selten. Ausnahmen bilden die Arbeiten von Frette et al. [1992], Brooks et al. [1999] und Glass et al. [2000]. Frette et al. [1992] untersuchten die Zwei-Phasen-Strömung (Fluid 1: Dibutyl-Phthalate; Fluid 2: Zuckerlösung) in zylindrischen Plexiglas-Körnern (2 mm x 2 mm). Das einströmende Fluid 2 wurde mit einer sehr kleinen Injektionsrate von 0.03 ml/min am Boden des Versuchstanks injiziert. Die Autoren visualisierten die inkohärente Ausbreitung des einströmenden Fluids und beobachteten einen stufenweisen Verdrängungsprozess der aufwärts-strömenden Front. Phänomenologisch wurde dieser Prozess als „kurzeitige Sprünge“ von Makro-Blasen beschrieben.

Glass et al. [2000] injizierten gasförmiges CO₂ in wassergesättigte Sande mit einem kleinen Gasvolumenstrom von $Q_g \approx 1$ ml/min, um den Einfluss von Kapillar- und Auftriebskraft auf den Gas-Aufstieg zu untersuchen. In heterogenen Wechsellagerungsstrukturen von natürlichen Sanden unterschiedlicher Permeabilität visualisierten die Autoren den Einfluss von Kapillarsperren auf die Gasausbreitung. Der Gasausbreitungsprozess war instationär, was in Form pulsierender „*Gas-Finger*“ und „*Gas-Pools*“, die sich unter Kapillarsperren bildeten, erkennbar wurde. Aus dem instabilen Ausbreitungsverhalten resultierten stark variierende lokale Gas-Sättigungen im Porenraum.

Insbesondere die Ergebnisse von Brooks et al. [1999] machen deutlich, dass während der Luftinjektion (verwendet wurden Glaskugeln ($d_K = 0,71\text{--}3$ mm)) ein Übergang in den Strömungs-Mustern ebenfalls von der Injektionsrate abhängt, z.B. tritt bei 1 mm Korngröße für eine Injektionsrate von $Q_g = 20$ ml/min inkohärenter Fluss auf („*slug flow*“), wogegen mit Volumenstromerhöhung bei $Q_g = 70$ ml/min kohärenter Gasfluss („*channelized flow*“) beobachtet wurde. Für 2 mm Glaskugeln wurde in einem Volumenstrombereich von 20-450 ml/min inkohärenter „*slug flow*“ beobachtet, ab einer Gas-Strömungsrate von 1,2 L/min wurde von kohärentem „*channel flow*“ berichtet. Elder und Benson [1999] beobachteten diskontinuierliche Kanäle („*slugs*“), über die die Gasphase in feinkörnigen Glaskugelsedimenten ($d_K = 0,1\text{--}0,4$ mm) inkohärent transportiert wurde. Erst mit Erhöhung des Injektionsdruckes wird Kohärenz der Strömung erreicht. Diese Arbeiten machen deutlich, dass innerhalb eines Korngrößenbereichs die Erhöhung der Gasinjektionsrate zu kohärenter Gas-Strömung führen kann.

Eine Klassifikation der Strömungsmuster nur als Funktion der Korngröße, wie sie bisher in der Literatur vorgenommen wurde, erscheint damit nicht eindeutig, da die Änderung von Injektionsdruck und Gas-Durchflussrate innerhalb einer Korngrößenverteilung zu unterschiedlichen Strömungsmustern führen kann.

Tab. 3-1: Experimente zur Charakterisierung von Gas-Strömungsmustern in porösen Medien.

Methode	Dimension [cm]	Korngröße d [mm]	Untersuchungsziel	Luft-Injektionsrate [L/min]	Gas-Sättigung [-]	Zitat
Säule	$d=10 \times 30$ $d=19 \times 90$	Sand: 0,2-0,6 / 0,3-0,8 / 0,6-1,4 / 2,0-3,0 / 5,0-8,0	Luftsättigung; Strömungsmuster	0,33-33	#	Brauns und Wehrle, 1989
Säule; CT	$d=17,8 \times 38,1$	Sand grob/fein $d=\#$	Gas-Verteilung; Luftsättigung	0,03-0,35	0,1-0,5	Chen et al., 1996
Säule	$d=120 \times 65$	Quarz-Sand: 0,46 ⁺	Gas-Verteilung/-Flux um Injektionsbrunnen	62-283	#	Hein et al., 1997
Säule	$d=3,9 \times 90$ $d=3,6 \times 90$	Glaskugeln: 4	Migration einzelner Luftblasen	#	#	Roosevelt und Corapcioglu, 1998
Säule	$d=6$ cm	Sand: 0,16 [*] / 0,21 [*] / 0,27 [*] / 0,36 [*] / 0,46 [*] / 0,61 [*] / 0,72 [*] / 0,92 [*] / 1,35 [*]	Gas-Verteilung; Luftsättigung	#	0,02-0,14 ^s	Clayton, 1998
Säule	$d=5,3 \times 30$	Glaskugeln 0,42-0,50 / 0,71-0,8 / 1/ 1,5 / 2 / 3	Luftsättigung; Strömungsmuster	0,02-2	dyn: 0,1-0,35 r: 0,05-0,20	Brooks et al., 1999
Säule CT	$d=7,6 \times 28,6$	schluffiger Sand: 0,075-0,4	Luftsättigung; Strömungsmuster	#	0,3-0,8	Wong und Wibowo, 2000
Säule	$d=58 \times 67$	Grobsandiger Mittelsand: $d=0,25^+$	Verteilung gasdurchflossener Kapillaren; Tiefen-Abhängigkeit	0,025-0,65	#	Lazik et al., 2002
Tank	120x84x80	Sand: 0,2-0,6 / 0,3-0,8 / 0,6-1,4 / 2,0-3,0 / 5,0-8,0	Luftsättigung; Strömungsmuster	0,33-33	dyn: 0,05-0,3 r: 0,04-0,18	Brauns und Wehrle, 1989
Tank	73x88x2,54	Glaskugeln: 0,2 / 0,3 / 0,4 / 0,75 / 2 / 4	Strömungsmuster	0,6-10	dyn: bis 0,5	Ji et al., 1993
Tank	236x88x1,3	Sand/Glaskugeln $d=\#$	horizontale/vertikale Gasinjektion	4,4 ; 7 ; 24,7	#	Plummer et al., 1997
Tank	61x38x25	Kies/Sand: 15 [*] / 4,5 [*] / 0,75 [*]	Strömungsmuster	3-30	#	Semer et al., 1998
Tank	90x90x2,5	Sand: 1,1 ^s / 1,3 ^s / 1,84 ^s / 2,61 ^s / 3,1 ^s / 4,38 ^s	Strömungsmuster	0,2-1,1	0,09-0,25 ^{&}	Peterson et al., 1999
Tank	40x44x3,8	Glaskugeln: 0,1-0,3 / 0,1-3 / 1-3	Gaskanal-Größe/Abstand	0,35-17	0,09-0,46	Elder und Benson, 1999
Tank	30x28x10	Zerkleinerte Glasstäbe: 0,3-2 / 0,075-0,75	Einfluss des Porenwasserdrucks	#	#	Marulanda et al., 2000
Tank	10x18,5x4	Sand: 0,305 [*] / 0,190 [*] / 0,168 [*]	Injektionsrate; Abstand gasdurchströmter Kanäle; Benzen-Abreicherung	0,045-0,125	#	Rogers und Say Kee, 2000
Tank	91x72x10	Sand: 0,55 [*]	Einfluss der Wasserströmung auf Luft-Injektionszone	2,5 ; 4,7	#	Reddy und Adams, 2000
Tank	91x72x10	Kies/Sand: 4,5 [*] / 0,66 [*] / 0,52 [*] / 0,12 [*]	Bodenheterogenität; Strömungsmuster	2,5	#	Reddy und Adams, 2001
Tank	102x102x5 252x127x9	Sand: 0,07-0,3 / >0,18 / <0,212	Strömungsmuster; Gasverteilung	0,33-2,4	0,28	Peterson et al., 2001
Tank	90x90x2,5 102x102x5 252x127x9	verschiedene Sande Kiese zwischen 0,078 [*] – 3,7 [*]	Bodenheterogenität; Strömungsmuster	0,2-2,4	#	Peterson und Murray, 2003
Tank Säule	70x50x2	Sands: 0,200-0,500 / 1-2	Reduzierte Oberflächenspannung von Wasser	0,4	0,1-0,7	Kim et al., 2004
Tank	95x48x10 218x64x10	Quarz-Sand: 0,84-1,68 / 0,42-0,59 / 0,17-0,29	Strömungsmuster; Luft-Barriere	7,2-66,7	#	Dror et al., 2004
Tank	50x50x1	Quarz-Sand: ca. 0,2 -2	Geometrie Gasverteilung	0,6-5	#	Selker et al., 2006

d_{50} ; d_{10} ; ^smittlerer Korndurchmesser; #... nicht angegeben von den Autoren; *dyn*...dynamisch gespeichertes Gasvolumen; *r*...residuales Gasvolumen; [&]Luftbeeinflusste Fläche normalisiert auf 1m² -Basis; ^sGassättigung bei Luftdurchbruch

4 Wesentliche Ergebnisse und Schlußfolgerungen

Die im Rahmen der Dissertation erzielten und in den jeweiligen Veröffentlichungen detailliert diskutierten Ergebnisse zur vertikalen Gasströmung in wassergesättigten porösen Medien werden im Folgenden thesenartig zusammengefasst.

I. Die Charakteristik der Gas-Strömung/-Verteilung ist abhängig vom Sedimenttyp.

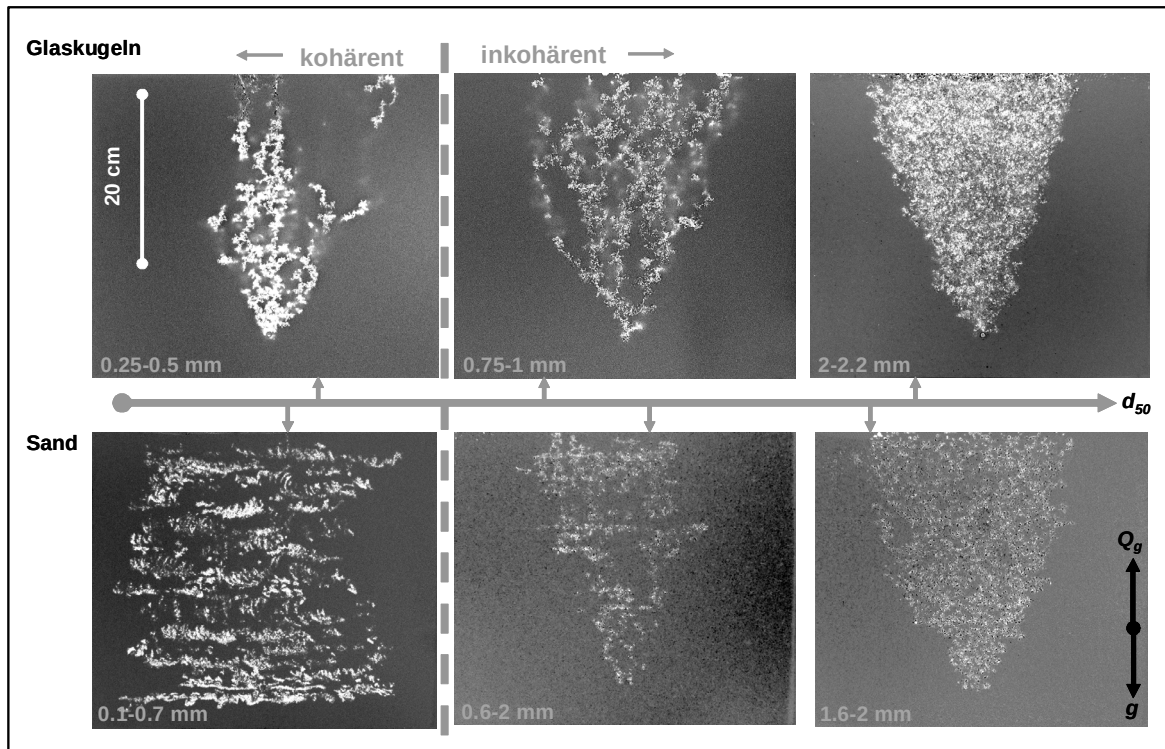


Abb. 4-1: Gas-Phasen-Strömungsmuster in korngestützten porösen Medien für eine Gasinjektionsrate von $10 \text{ cm}^3/\text{min}$.

In grobkörnigem Sediment des Korndurchmessers von ca. 2 mm (Feinkies) ist die Gasphase homogen in Form inkohärenter Makroblasen gespeichert. Im Korngrößenbereich von 1 mm (Grobsand) sind makroskopische Gaskanäle ausgebildet. Das verzweigte Netzwerk wird bei geringer Injektionsrate jedoch nicht vollständig vom Gas durchflossen („*dead end*“-Kanäle). Mit weiterer Verringerung des mittleren Korndurchmessers (Mittelsand) wird die Gasphase in eng zusammenliegenden Kanälen kohärent im Sediment transportiert. Stark abweichend von der Form eines parabolischen Ausbreitungstrichters ist das Gas im Mittelsand (0,1-0,7 mm) sehr gleichmäßig verteilt. Dabei ist die Verteilung durch eine signifikante horizontale Komponente geprägt, die durch feinste Permeabilitätsunterschiede stratigraphisch begründet ist. Heterogenität in der Porengrößenverteilung führt zur lateralen Aufweitung des gasgefüllten Kapillarnetzwerkes.

1. *Auftriebs-Beeinflusste Strömungsmuster (vertikale Gasströmung) besitzen parabolische Form.*
2. *Inkohärenter Gaseintrag kann zu hohen lokalen Sättigungen führen (z.B. Kies).*
3. *Die Heterogenität in der Porengrößenverteilung führt zur lateralen Aufweitung des gasgefüllten Kapillarnetzwerkes.*
4. *Für grobkörnige Sedimente kann der Gaseintrittsdruck bei kleiner Injektionsrate mit dem statischen Kapillardruck-Konzept über die Porengeometrie (minimaler Porenkanaldurchmesser) abgeschätzt werden.*

II. Sedimenttyp und Injektionsrate bestimmen die Kohärenz/Inkohärenz der Gasströmung

Innerhalb der Experimente wurde sowohl ein Korngrößen(d_K)- als auch ein Strömungsraten(Q)-abhängiger Übergang in den Strömungsmustern beobachtet (Abb. 4-2).

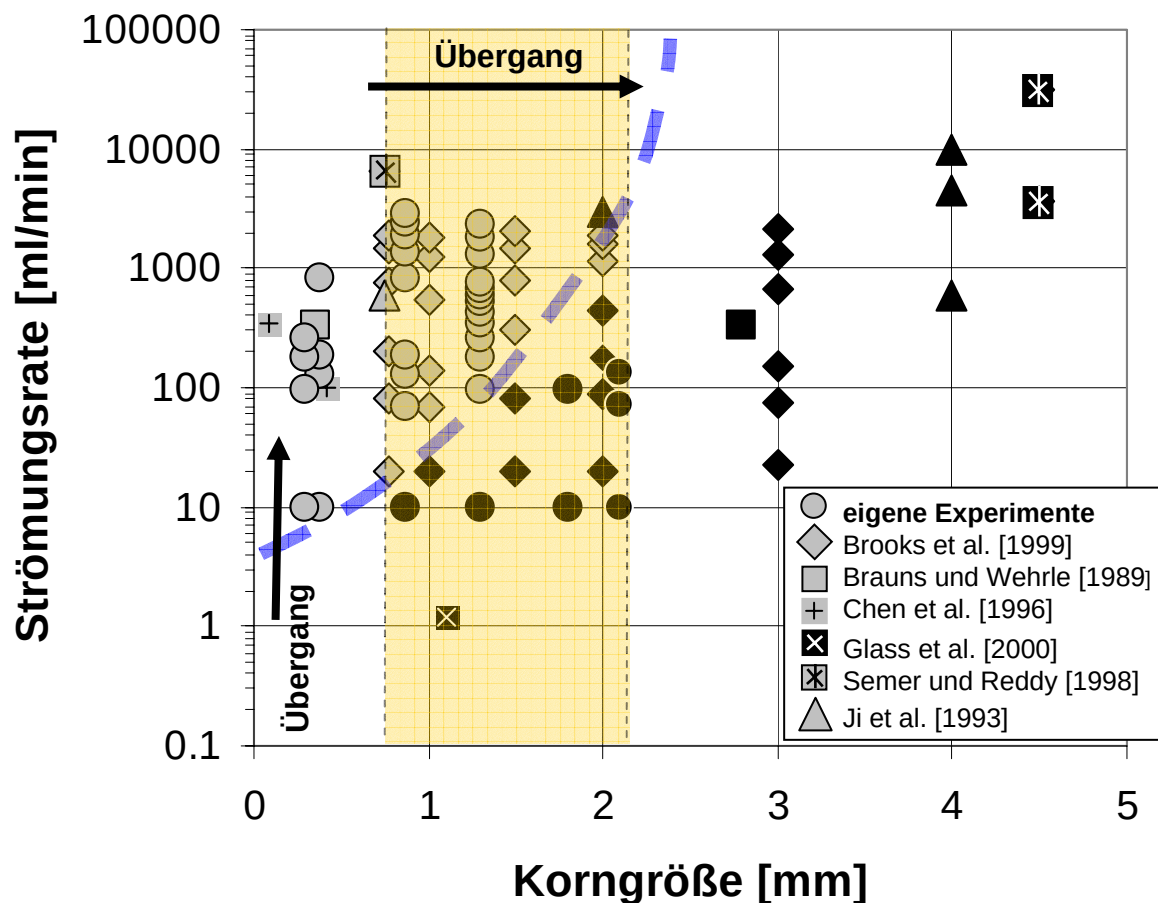


Abb. 4-2: Klassifizierung von inkohärenten (graue Symbole) und kohärenten (schwarze Symbole) Gas-Phasen-Strömungsmustern in korngestützten porösen Medien (Glaskugeln/Sande/Kiese).

1. Der Übergang in den Strömungsmustern zwischen kohärenter und inkohärenter Strömung kann nicht mit quasi-statischen Modellen (z.B. „Bo-Number“) beschrieben werden.

Die experimentellen Ergebnisse konnten nicht mit quasi-statischen Modellen beschrieben werden, da diese nicht die Wechselwirkung zwischen stabilisierenden Reibungskräften und destabilisierenden Kapillar- und Auftriebskräften berücksichtigen. Es wurde ein dynamisches Kapillar-Modell entwickelt, welches basierend auf der Hagen-Poiseuille-Strömung die experimentellen Ergebnisse beschreibt und mit dessen Hilfe die Gasinjektionsexperimente nach einer d_K - Q -Abhängigkeit klassifiziert werden konnten.

2. Die kohärente Gas-Strömung kann mit Hilfe des Darcy-Gesetzes beschrieben werden.

Die Nicht-Linearität zwischen dem Gasvolumen V_g und der Gasinjektionsrate Q_{inj} zeigt die Gültigkeit des Darcy-Gesetzes. Die experimentell bestimmte Gasphasen-Verweilzeit in Abhängigkeit zum Druck-Gradienten kann verwendet werden, um das Gasströmungs-Regime zu klassifizieren.

3. In Abhängigkeit von Sedimenttyp und Injektionsrate kann eine Kohärenzlänge definiert werden, die den Übergang von kohärenter zu inkohärenter Strömung bestimmt.

Dies sollte auch bei der praktischen Anwendung der Direkt-Gasinjektion im Feldmaßstab beachtet werden. Es ist zu vermuten, dass auch unter Feld-Bedingungen ein solcher Übergang stattfindet, da die Makro-Kanäle nach einer bestimmten Anzahl an Verzweigungen, d.h. einer bestimmten Kohärenzlänge, instabil werden („snap-off“). Auch beim Wechsel verschiedener sedimentärer Einheiten ist ein Übergang von kohärenter zu inkohärenter Strömung zu erwarten.

4. Um das injizierte Gas gezielt in einen bestimmten Bereich im Grundwasserleiter einzubringen, ist kohärente Gasströmung notwendig.

Ein effizienter Gaseintrag setzt eine genaue Charakterisierung der Sedimente und Lagerungsstrukturen am Standort voraus. Mittels relativ kostengünstiger „direct-push“-Technologien (z.B. GeoProbe®) können die Gaseintragspunkte im Gelände in Bereichen installiert werden, in denen die geologischen Verhältnisse eine hohe Effizienz von Gas-ausbreitung und -speicherung ermöglichen.

5. Eine Erhöhung der initialen Gasinjektionsrate kann den gas-beeinflussten Bereich in feinkörnigen Sedimenten vergrößern (z.B. Mittel-Sand), kann aber in grobkörnigen Sedimenten (Grobsand, Feinkies) zu einer deutlichen Einengung des Injektionstrichters führen.

III. Direkt-Gasinjektion schafft / nutzt bevorzugte Fließwege.

Beim unkontrollierten Gaseintrag können in Abhängigkeit zur Gasinjektionsrate Lagerungsstrukturen durch Kornumlagerungen verändert werden. Besonders durch die Verlagerung von Feinstpartikeln (Ton, Schluff) können grobporige Fließwege geschaffen werden, die dann bei nachfolgenden Injektionspulsen bevorzugt durchströmt werden.

1. Kornbewegung kann zu veränderlichen Strömungswegen führen.

Testserien zur Direktgasinjektion zeigten, dass geomechanische Instabilitäten zu Umlagerungen im Kornverband führen können. Die vorliegende Abbildung zeigt eine mit der Detailkamera aufgezeichnete Sequenz, die Kornbewegung in natürlichem Sediment (Mittelsand) visualisiert. Die gestrichelte Linie markiert das beobachtete Korn.

Bei reiner Gasinjektion (Abb.4-3a) bildete sich zunächst ein Strömungskanal aus. Nach Unterbrechung des Gasflusses (Abb.4-3b) kommt es zum Nachfließen der gespannten Gasphase bis zu dem Punkt, wo Bewegung innerhalb der Sedimentmatrix einsetzt (Abb.4-3c). Nach erneutem Einschalten des Gasflusses (Abb.4-3d) bildete sich aufgrund der veränderten Porengeometrie ein neuer Strömungskanal aus.

Die Testserie verdeutlicht, dass trotz versuchstechnisch dichtem Einbau des Sedimentes und Beaufschlagung mit lithostatischem Druck (über Silikon-Membran an der Modellrückseite) innerhalb der gerüstaufbauenden Körner andere Körner frei beweglich vorliegen.

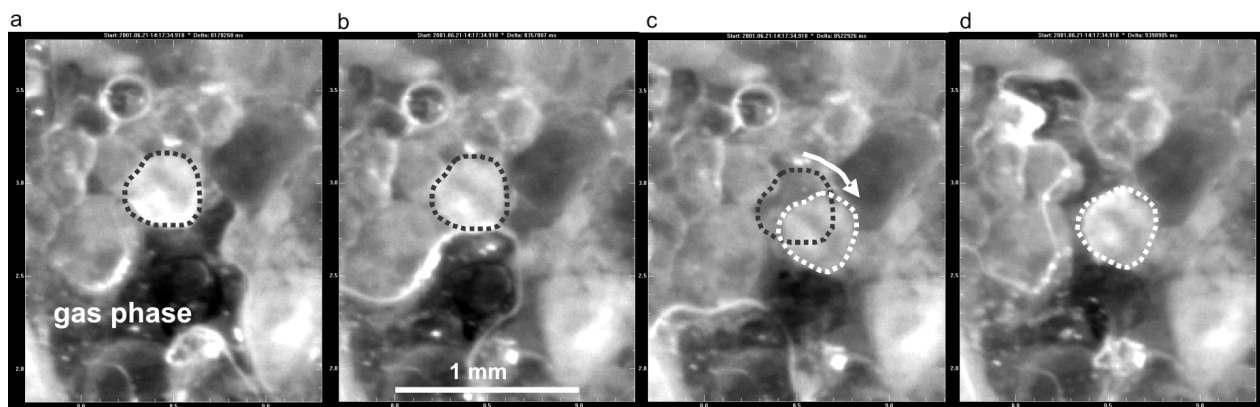


Abb. 4-3: Visualisierung von Partikelbewegung in natürlichem Mittelsand.

2. Gasinjektion kann innere Erosion (Abtrag/Austrag von Feinkorn - Tonaggregate, Schluff) verursachen.

Kornbewegung innerhalb der Sedimentmatrix kann das Initial dazu bilden, dass beim Erreichen und Überschreiten einer kritischen Strömungsrate Suffosion und Partikel-Verlagerung einsetzt. Dabei können Kornfraktionen im Ton-/Schluffbereich im Porenraum umgelagert und transportiert [z.B. Tsai und Lin, 2004].

Während grossskaliger Tank-Experimente wurde im Laufe der Direkt-Gasinjektion Feinkorn aus dem Bodenkörper ausgespült und an der Oberfläche der Kiesauflast abgelagert (Abb. 4-4). Die Abbildung zeigt die Sedimentoberfläche vor (Abb. 4-4a) und nach der Gasinjektion (Abb. 4-4b). Die ausgespülten Korn-Fractionen (Korngrößenanalyse mit SediGraph 5100, *Micromeritics*) lagen im Bereich von $d_K = 1-250 \mu\text{m}$ mit der größten Häufigkeit zwischen $2-100 \mu\text{m}$.

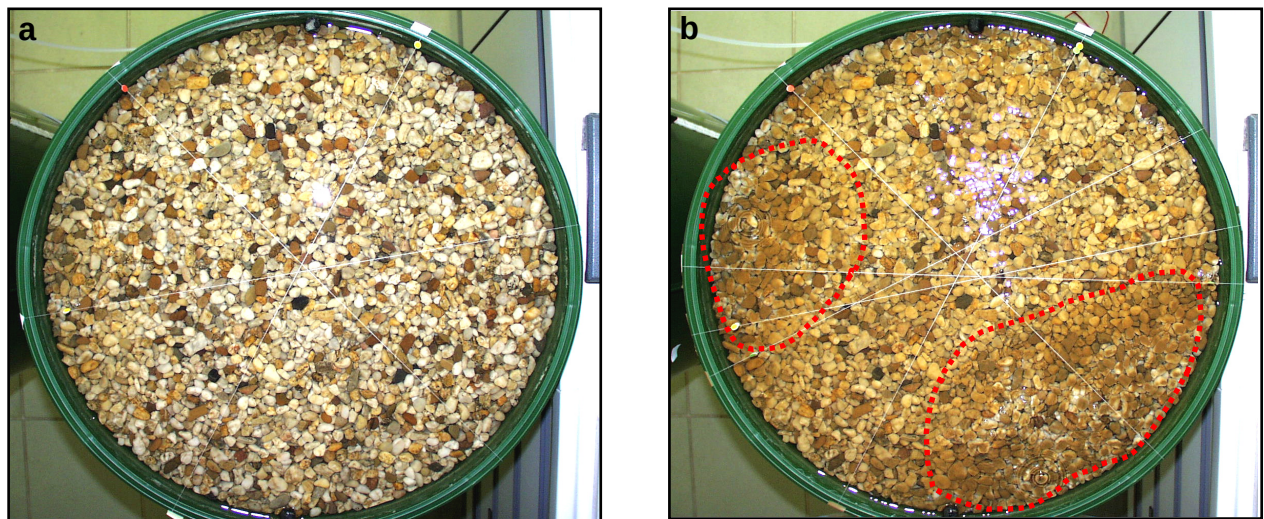


Abb. 4-4: Partikel-Auswaschung bei Gasinjektion in großskalige Tanks: a) Oberfläche vor Injektion; b) Oberfläche nach Injektion, markierte Bereiche zeigen abgelagertes Feinkorn im Bereich der Gasaustrittspunkte.

Wan und Wilson [1994] visualisierten die Einbindung von Kolloiden (Latexpartikel/Ton $d \sim 0,5-1 \mu\text{m}$) in die Gas-Wasser-Grenzfläche in Porennetzwerken. Es konnte gezeigt werden, dass im Gegensatz zur Wasser-Feststoff-Grenzfläche Kolloide bevorzugt an der Gas-Wasser-Grenzfläche sorbiert werden. Einmal sorbiert, wurden nur sehr wenige Teilchen wieder desorbiert. Der Einbau und die Verlagerung von Kolloiden und Fein-Partikeln durch Gas-Wasser-Grenzflächen können signifikanten Einfluss auf den Verbleib bzw. Transport von partikel-gebundenen Schadstoffen haben. Stationäre Grenzflächen in porösen Medien können den Transport von Schadstoff-Partikeln verzögern, sich bewegende Grenzflächen können zur Verlagerung von Schadstoffen führen [Wan und Wilson, 1994].

3. In suffusionsgefährdeten Sedimenten kann Gasinjektion zu großräumiger / fortschreitender Gefügeumbildung führen.

Bei der Gasinjektion in Glaskugelsediment mit $d_K = 0,25-0,5$ mm (Abb. 4-5) kam es schon bei geringer Gasinjektionsrate ($Q_g \sim 10 - 130$ ml/min) zur Verflüssigung des Sedimentes an der Oberfläche. Mit Erhöhung der Gasinjektionsrate wurde die Scherfestigkeit im oberen Sedimentbereich überwunden und das Sediment verflüssigte sich. Dabei kam es zur rückschreitenden inneren Erosion, die zur Kornumlagerung führte. Dies zeigte die Notwendigkeit einer suffusions-sicheren lithostatischen Auflast (Stützsicht), die in der vorliegenden Arbeit mit Hilfe von Bleikugeln realisiert wurde.

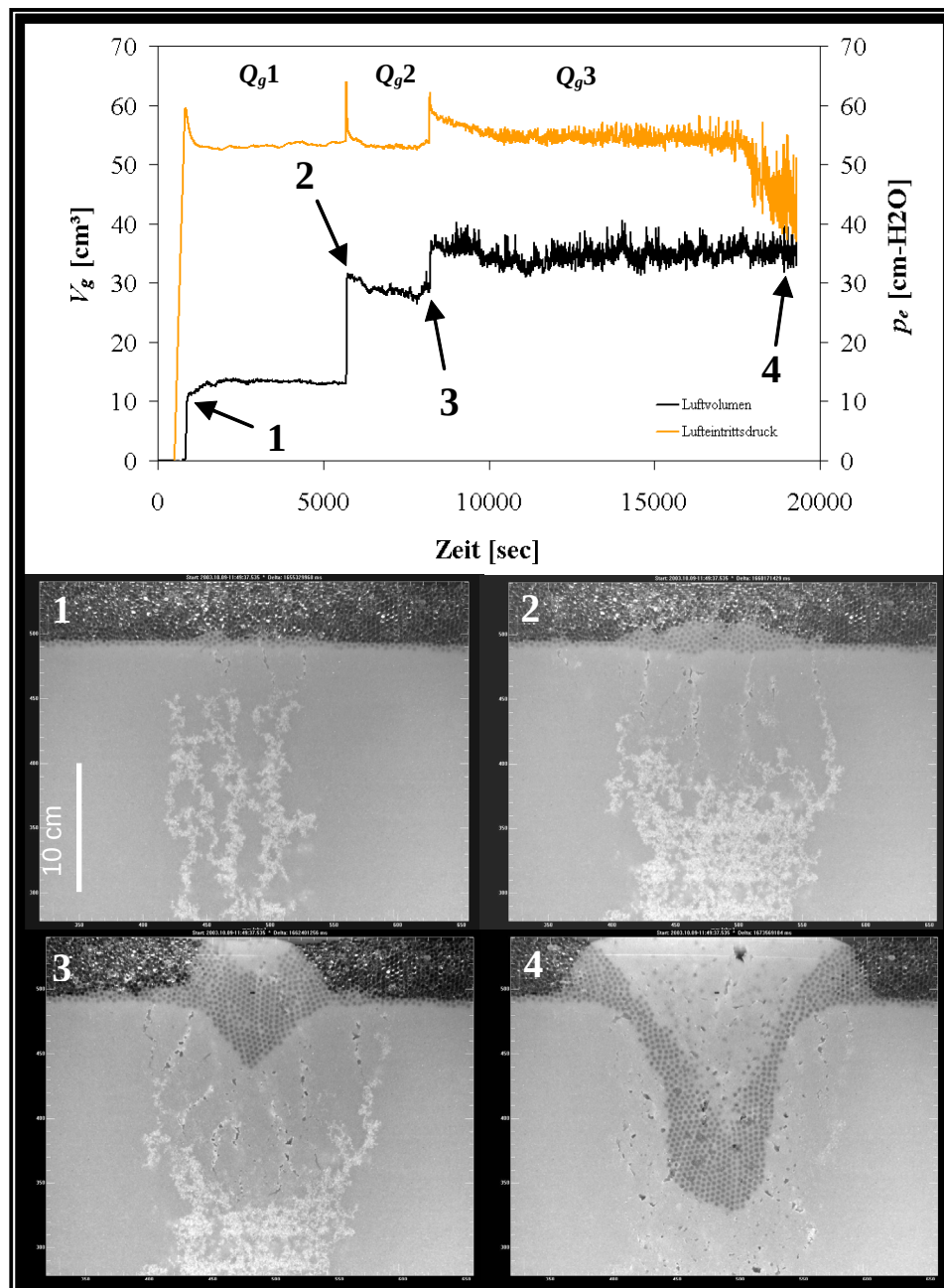
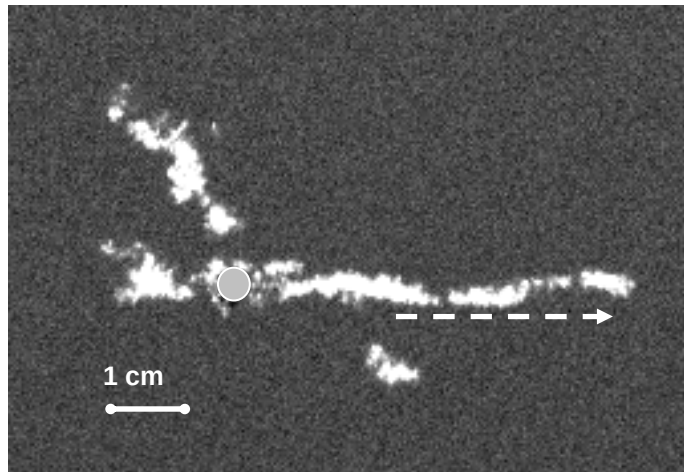


Abb. 4-5: Kornumlagerung durch fortschreitende innere Erosion in Glaskugelsediment; oben: zeitlicher Verlauf von Gasvolumen und Gasdruck; unten: Fotos Kornverband (Ziffern entsprechend Diagramm).

4. Die Gasphasenausbreitung erfolgt unter Ausnutzung von Diskontinuitäten der Lagerung.



Im Mittelsand (0,1-0,7 mm) bildeten sich trotz sorgfältigen feuchten Einbaus feine, makroskopisch kaum erkennbare Strukturen, in der es zu einer Separierung im Kornverband kam. Entlang dieser Strukturen breitet sich die Gasphase zunächst in höher permeablen Bereichen aus.

Abb. 4-6: Gaseintritt in Mittelsand (grau: Injektionspunkt).

Abbildung 4-7 zeigt in einer schematischen Darstellung die Gasphasenausbreitung in Abhängigkeit zur Permeabilitätsstruktur. In natürlichen Systemen sind derartige k -Verteilungen durchaus zu finden. In glazialen Sedimenten kann es z.B. durch Wechsel der Milieubedingungen während der Ablagerung und Kompaktion der Sedimentkörper zu feinschichtigen Wechsellagerungen kommen, in denen im Bereich der Porenskala gerichtete und lokal verdichtete Kornstrukturen auftreten. Diese Strukturen im Kornverband führen zu heterogenen Strömungs- und Transportpfaden. Untersuchungen von Peterson et al. [2001] und Peterson and Murray [2003] bestätigen diese Beobachtung.

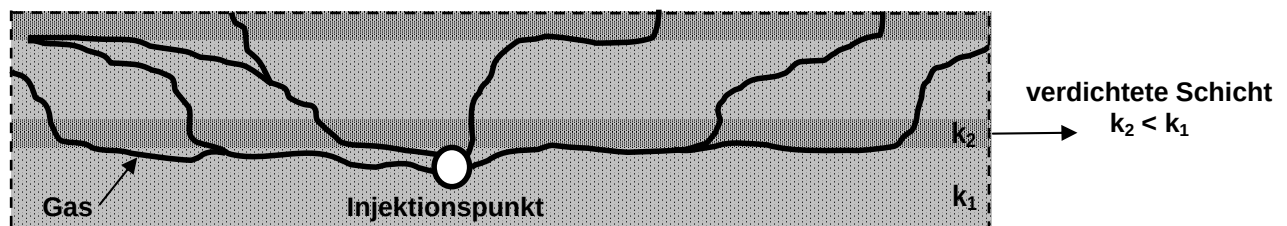


Abb. 4-7: Schematische Darstellung der Gasphasenausbreitung in Abhängigkeit zur Permeabilität des Kornverbandes.

5 Literatur

Benner, M. L., Stanford, S. M., Lee, L. S., und Mohtar, R. H., 2000. Field and numerical analysis of in-situ air sparging: a case study. *Journal of Hazardous Materials*, 72 (2-3): 217-236.

Berliner Wasserbetriebe, 2000, Entwicklung eines gekoppelten Nitrifikations-Denitrifikations-Verfahrens zur In-situ-Reinigung stark stickstoffbelasteter Grundwasserleiter. Schlussbericht, BMBF-Förderkennzeichen 02 WT 9587/9, Berlin, 1-137.

Berliner Wasserbetriebe, 2004, BIOXWAND - Entwicklung und Erprobung einer Bio-Oxidationswand im Abstrom eines hoch mit Ammonium belasteten Grundwasserleiters. BMBF Förderkennzeichen 02WT0091, Berlin, 1-165.

Brauns, J. und Wehrle, K., 1989, Untersuchung der Drucklufteinblasung in die gesättigte Bodenzone (In-situ-Strippen)-Modellversuche. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben (AZ: 12/0415.1) der Landesanstalt für Umweltschutz B.-W.; Karlsruhe, 56.

Brooks, M. C., Wise, W. R., und Annable, M. D., 1999. Fundamental changes in situ air sparging flow patterns. *Ground Water Monitoring and Remediation*, 19 (2): 105-113.

Chen, M. R., Hinkley, R. E., und Killough, J. E., 1996. Computed tomography imaging of air sparging in porous media. *Water Resources Research*, 32 (10): 3013-3024.

Clayton, W. S., 1998. Field and laboratory investigation of air fingering during air sparging. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 18 (3): 134-145.

Corapcioglu, M. Y., Cihan, A., und Drazenovic, M., 2004. Rise velocity of an air bubble in porous media: Theoretical studies. *Water Resources Research*, 40 (4), doi: 10.1029/2003WR002618.

Dror, I., Berkowitz, B., und Gorelick, S. M., 2004. Effects of air injection on flow through porous media: Observations and analyses of laboratory-scale processes. *Water Resources Research*, 40 (9), doi: 10.1029/2003WR002960.

Elder, C. R. und Benson, C. H., 1999. Air channel formation, size, spacing, and tortuosity during air sparging. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 19 (3): 171-181.

EPA, 1997. Direct Push Technologies. Expedited Site Assessment Tools For Underground Storage Tank Sites - A Guide for Regulators, EPA 510-B-97-001, United States Environmental Protection Agency; Office of Underground Storage Tanks V1-VI1.

Falta, R.W., Pruess, K., Finsterle, S. und Battistelli, A., 1995. T2VOC user's guide.

Fields, K., Gibbs, J., Condit, W., Leeson, A., und Wickramanayake, G., 2002. Air Sparging - A Project Manager's Guide. Batelle Press, Columbus, Richland.

Frette, V., Feder, J., Jossang, T., und Meakin, P., 1992. Buoyancy-Driven Fluid Migration in Porous-Media. *Physical Review Letters*, 68 (21): 3164-3167.

Glass, R. J., Conrad, S. H., und Peplinski, W., 2000. Gravity-destabilized nonwetting phase invasion in macroheterogeneous porous media: Experimental observations of invasion dynamics and scale analysis. *Water Resources Research*, 36 (11): 3121-3137.

- Hein, G. L., Gierke, J. S., Hutzler, N. J., und Falta, R. W., 1997. Three-Dimensional Experimental Testing of a Two-Phase Flow-Modeling Approach for Air Sparging. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 17 (3): 222-230.
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D. P., Lin, J. D., und Hill, E., 1993. Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 13 (4): 115-126.
- Johnston, C. D., Rayner, J. L., und Briegel, D., 2002. Effectiveness of in situ air sparging for removing NAPL gasoline from a sandy aquifer near Perth, Western Australia. *Journal of Contaminant Hydrology*, 59 (1-2): 87-111.
- Johnston, C. D., Rayner, J. L., Patterson, B. M., und Davis, G. B., 1998. Volatilisation and biodegradation during air sparging of dissolved BTEX-contaminated groundwater. *Journal of Contaminant Hydrology*, 33 (3-4): 377-404.
- Kim, H., Soh, H. E., Annable, M. D., und Kim, D. J., 2004. Surfactant-enhanced air sparging in saturated sand. *Environmental Science & Technology*, 38 (4): 1170-1175.
- Kirtland, B. C., Aelion, C. M., und Widdowson, M. A., 2001. Long-term AS/SVE for petroleum removal in low-permeability Piedmont saprolite. *Journal of Environmental Engineering-Asce*, 127 (2): 134-144.
- Lazik, D., Geistlinger, H., Krauss, G., Beckmann, A., und Schirmer, M., 2002. Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem "Aquifer". *Grundwasser*, 7 (3): 146-155.
- Lee, C. H., Lee, J. Y., Jang, W. Y., Jeon, Y. H., und Lee, K. K., 2002. Evaluation of air injection and extraction tests at a petroleum contaminated site, Korea. *Water Air and Soil Pollution*, 135 (1-4): 65-91.
- Luckner, L., 2001. Wirkung von Gasen auf den reaktiven Stofftransport im Mehrphasensystem Untergrund. *Grundwasser*, 6 (4): 155-162.
- Lundegard, P. D. und LaBrecque, D., 1995. Air sparging in a sandy aquifer (Florence, Oregon, U.S.A.): Actual and apparent radius of influence. *Journal of Contaminant Hydrology*, 19 (1): 1-27.
- Lundegard, P. D., Chaffee, B., und LaBrecque, D., 2001. Effective air delivery from a horizontal sparging well. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 21 (2): 117-123.
- Marulanda, C., Culligan, P. J., und Germaine, J. T., 2000. Centrifuge modeling of air sparging -- a study of air flow through saturated porous media. *Journal of Hazardous Materials*, 72 (2-3): 179-215.
- McCray, J. E. und Falta, R. W., 1997. Numerical simulation of air sparging for remediation of NAPL contamination. *Ground Water*, 35 (1): 99-110.
- Murray, W. A., Lunardini Jr., R. C., Ullo Jr., F. J., und Davidson, M. E., 2000. Site 5 air sparging pilot test, Naval Air Station Cecil Field, Jacksonville, Florida. *Journal of Hazardous Materials*, 72 (2-3): 121-145.

- Peterson, J. W., Lepczyk, P. A., und Lake, K. L., 1999. Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach. *Environmental Geology*, 38 (1): 1-6.
- Peterson, J. W., Murray, K. S., Tulu, Y. I., Peuler, B. D., und Wilkens, D. A., 2001. Airflow geometry in air sparging of fine-grained sands. *Hydrogeology Journal*, 9 (2): 168-176.
- Peterson, J. W. und Murray, K. S., 2003. Grain-size heterogeneity and subsurface stratification in air sparging of dissolved-phase contamination: Laboratory experiments-field implications. *Environmental & Engineering Geoscience*, 9 (1): 71-82.
- Plummer, C. R., Nelson, J. D., und Zumwalt, G. S., 1997. Horizontal and vertical well comparison for in situ air sparging. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 17 (1): 91-96.
- Rabideau, A. J., Blayden, J. M., und Ganguly, C., 1999. Field performance of air sparging system for removing TCE from groundwater. *Environmental Science & Technology*, 33 (1): 157-162.
- Reddy, K. R. und Adams, J. A., 2001. Effects of soil heterogeneity on airflow patterns and hydrocarbon removal during in situ air sparging. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 127 (3): 234-247.
- Reddy, K. R. und Adams, J. A., 2000. Effect of groundwater flow on remediation of dissolved-phase VOC contamination using air sparging. *Journal of Hazardous Materials*, 72 (2-3): 147-165.
- Rogers, S. W. und Say Kee, O., 2000. Influence of porous media, airflow rate, and air channel spacing on benzene NAPL removal during air sparging. *Environmental Science and Technology*, 34 (5): 764-770.
- Roosevelt, S. E. und Corapcioglu, M. Y., 1998. Air bubble migration in a granular porous medium: Experimental studies. *Water Resources Research*, 34 (5): 1131-1142.
- Salanitro, J. P., Johnson, P. C., Spinnler, G. E., Maner, P. M., Wisniewski, H. L., und Bruce, C., 2000. Field scale demonstration of enhanced MTBE bioremediation through aquifer bioaugmentation and oxygenation. *Environmental Science & Technology*, 34 (19): 4152-4162.
- Semer, R., Adams, J. A., und Reddy, K. R., 1998. Experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging. *Geotechnical and Geological Engineering*, 16 (1): 59-75.
- Selker, J. S., M. Niemet, N. G. McDuffie, S. M. Gorelick, und J. Y. Parlange, 2006. The Local Geometry of Gas Injection into Saturated Homogeneous Porous Media. *Transport in Porous Media*, in press.
- Teutsch, G., Rügner, H., Zamfirescu, D., Finkel, M., und Bittens, M., 2001. Source remediation vs. Plume Management: Critical factors affecting cost-efficiency. *Land Contamination & Reclamation*, 9 (1): 128-139.
- Tomlinson, D. W., Thomson, N. R., Johnson, R. L., und Redman, J. D., 2003. Air distribution in the Borden aquifer during in situ air sparging. *Journal of Contaminant Hydrology*, 67 (1-4): 113-132.

- Tsai, Y. J. und Lin, D. F., 2004. Mobilizing particles in a saturated zone during air sparging. *Environmental Science & Technology*, 38 (2): 643-649.
- Wan, J. und Wilson, J. L., 1994. Visualization of the role of the gas-water interface on the fate and transport of colloids in porous media. *Water Resources Research*, 30 (1): 11-23.
- Wan, J. M., Veerapaneni, S., Gadelle, F., und Tokunaga, T. K., 2001. Generation of stable microbubbles and their transport through porous media. *Water Resources Research*, 37 (5): 1173-1182.
- Wong, R. C. K. und Wibowo, R., 2000. Tomographic evaluation of air and water flow patterns in soil column. *Geotechnical Testing Journal*, 23 (4): 413-422.

II

VERÖFFENTLICHUNGEN

Gravimetrically balanced high-resolution visualization of gas/water-phase displacement in porous media

LAZIK, D.*, KRAUSS, G.*, SCHULTZE, R.H.[#] & GEISTLINGER, H.*

*UFZ- Centre for Environmental Research Leipzig-Halle in the Helmholtz-Association, Dept. Hydrogeology, T.-Lieser-Str. 4, D-06120 Halle, Germany

[#]Optimare GmbH, Dept. Mobile Analytik, Jadestr. 59, D-26382 Wilhelmshaven, Germany

Abstract

A method and setup for gravimetrically phase balanced optical visualization is presented that allows a time efficient simultaneous observation of pore- and bench-scale processes in porous media. With this visualization technique it is possible to study two phase flow as well as structural properties or dynamically interactions between different phases in an observation scale of 10^{-1} m with a spatial resolution of 10^{-5} m. The image transformation behavior of the optical system is derived which gives the quantitative description of the spatial resolution in dependence on the optical path. Gravimetric phase balancing of the in- and out flowing fluid phases allows the calibration of the surface-to-bulk relation for flow processes.

Gas injection experiments into glass beads and natural sediment are presented and discussed. A significant difference is found between the observed mean surface-layer gas-saturation and the gravimetrically estimated bulk gas-saturation. From high-resolution detail images reversible rearrangement of particles is found in dependence of the direction of the gas-water interface movement near the particle. The 2D-mapping of residual gas aggregates in natural sediment shows strong deviation from the sphere-picture. As smaller the gas bubbles as better they fit the sphere-picture. Only large gas bubbles correlate in shape with pore shape. Small gas bubbles are visualized which don't fill the pores but are still pinned at particle surfaces. We attribute this effect to both buoyancy controlled bubble fixation stabilized by surface roughness, and gas bubble fixation at hydrophobic parts of the particle surface.

Keywords: visualization, spatial resolution, phase displacement, saturation, gas-bubble shape

1. Introduction

Processes inside of aquifers or soils acting at different scales determine the development of groundwater quality, control passive natural attenuation of contaminated sites and influence the remediation efficiency. Understanding of such scale dependencies results in appropriate model assumptions based on REV-averaged parameters (Bear, J., 1972).

There are a number of laboratory studies that have demonstrated that flow and displacement processes in porous media often show the dependency of macro scale behavior on small-scale heterogeneities (e.g. Glass, R. J. et al., 2000; Mortensen, A. P. et al., 2001; Conrad, S. H. et al., 2002).

Glass, R. J. et al. (2000) reported an experimental study on gravity-destabilized non-wetting phase invasion. They visualized macroscopically invasion dynamics of CO₂ and trichloroethylene (TCE) in water saturated silica sands. A series of length scales that describe finger diameter, pool height and width below capillary barriers was derived. A macroscopic growth model was developed which should incorporate the intrinsic pore-scale nature of the invasion dynamics. But, discrepancy between

experimental results and theoretical assumptions occurred when maximum pool height under a capillary barrier was described as a function of capillarity, gravity and viscous forces. As possible explanations they assume:

- differences in local porosity,
- thinness of capillary barriers causes the breakthrough of non-wetting phase at a lower pressure,
- assumption of an invariant contact angle is incorrect, and
- particle movement leads to development of larger pores.

These possibilities will modify the model assumptions. However the necessary optical information for balancing the different pore scale effects is limited by the resolution of the bench scale observation technique used.

To study macro-(bench-) scale fluid flow dependencies of pore scale phase behavior and matrix structure we developed an optical visualization setup consisting of two CCD-cameras with an observation scale of 10^{-1} m and a resolution of 10^{-5} m.

2. Overview of non-invasive visualization techniques

In recent years, a variety of non-invasive, non-destructive visualization techniques have been employed to investigate flow as well as solute transport processes in porous media. One of the major advantages of these techniques is that the measurements are conducted without interfering of the measurement objects. The application of a particular visualization technique strongly depends on the spatial and temporal dimension of the process investigated. On the other hand spatial and temporal resolution of the properties investigated are restricted by the technical properties and requirements defined by the visualization technique.

Tomographic measurement techniques (e.g. X-ray computed tomography; positron emission tomography) are used for investigating multiphase flow processes (e.g. Chen, M. R. et al., 1996; Khalili, A. et al., 1998; 1999; Clausnitzer, V. and Hopmans, J. W., 2000; Wong, R. C. K. and Wibowo, R., 2000) and structural properties of porous media (e.g. Kasteel, R. et al., 2000; Vogel, H. J. and Roth, K., 2001). Reinecke et al. (1998) presented a comparison of tomographic measurement techniques for visualization of multiphase flow. By using tomographic measurement systems, two-dimensional slices of materials and multiphase flow pattern are obtained. In this slices physical properties like phase distribution and pore geometry in porous media can be measured with a spatial and temporal resolution, which is dependent on the measurement system chosen. The slides can be added to each other, what results in a quasi three dimensional representation of the measurement results. Wildenschild, D. et al. (2002) compared the results obtained with three different X-ray computed tomography systems with spatial resolutions in the range of 5 – 400 μm . A disadvantage of the high-resolution X-ray systems (synchrotron based computed micro-tomography) is the limited specimen size. Often it is also not easy to get access to X-ray computed systems over longer periods of time, so experiments must therefore be designed to fit within such timeframe.

Nuclear magnetic resonance imaging (NMRI) and magnetic resonance imaging (MRI) are other techniques applicable to study flow processes and internal structures of porous media (e.g. Sederman, A. J. et al., 1997; Sederman, A. J. and Gladden, L. F., 2001; Chen, Q. et al., 2002) as well as bacterial density distributions in water saturated porous media (Sherwood, J. L. et al., 2003). Chen, Q. et al. (2002) reviewed NMRI methods for visualization of fluid flow and transport in porous media. They show the capacity of NMRI to obtain structural information both of the porous medium and the fluid distributions as well as their temporal development. Limitations of some techniques are given for high paramagnetic content of the media and weak tracer signals. Therefore, high resolution imaging at the moment is restricted to natural sediments with low contents of paramagnetic substances or artificial porous media (Chen, Q. et al., 2002).

Deinert, M. R. et al. (2004) measured the transient behavior of moisture profiles in silica sand using real-time neutron radiography.

To study dynamically changes and interaction between phases within multi phase flow processes measuring techniques with high temporally and spatially resolution are essential. This can be realized by using optical techniques.

Montemagno, C. D. and Gray, W. G. (1995) presented a visualization technique based on photoluminescence volumetric imaging (PIV) for exploration of multiphase flow and transport in porous media. They measured sample volumes up to 125 mm³ in size with a spatial resolution of better than 1 µm.

Light transmission technique is used in the field of porous media characterization to obtain information about phase saturation (e.g. Tidwell and Glass, 1994; Darnault, C. J. G. et al., 1998; Niemet, M. R. and Selker, J. S., 2001), the extent of interfacial surface areas (Niemet, M. R. et al., 2002), colloid transport properties in porous media (Weisbrod, N. et al., 2003), to understand basic aspects of mass transfer processes (Jia, C. et al., 1999; Zinn, B. et al., 2004), to study solute dispersion and transport (e.g. Theodoropoulou, M. A. et al., 2003) and to get insights in the characteristics of microbial growth in porous media (Thullner, M. et al., 2002; Yarwood, R. R. et al., 2002). Because of the relatively low energy of visible light, much thinner sample sections are required for light transmission systems than for gamma ray and X-ray systems. Also, the media must be sufficiently translucent to allow a readily quantifiable fraction of the source light to transmit through the sample (Niemet, M. R. et al., 2002). From 2D-optical visualization setups one obtains in general a depth weighted information from the observed object plane. Here the challenge is i) to develop and calibrate an inversion algorithm for generation and quantification of 2D-results, and ii) to verify its validity for the observed porous media. When using optical methods one has to consider the additional phase-interaction with the model wall.

Recent applications of non-invasive visualization techniques are summarized in Table 1 with respect to sample dimension, spatial resolution and measured properties.

Tab. 1. Overview of applications of non-invasive visualization techniques for observation of porous media (examples).

System	Measured properties	Sample dimension	Spatial resolution	Reference
CT	fluid saturation; distribution	25 cm	500 μm	<i>Chen, M. R. et al., 1996</i>
X-ray tomography	fluid distribution	19 cm	400 μm	<i>Reinecke, N. et al., 1998</i>
CT	two-phase flow pattern	7.6 cm	750 μm	<i>Wong, R. C. K. and Wibowo, R., 2000</i>
Micro focus X-ray tomography	solute breakthrough	0.48 cm	23 μm	<i>Clausnitzer, V. and Hopmans, J. W., 2000</i>
Industrial tube X-ray (Linear Computed Axial Tomography)	fluid distribution saturation	7.6 cm	368 μm	<i>Wildenschild, D. et al., 2002</i>
Medical scanner (Siemens Somatom Plus S)	fluid distribution saturation	7.6 cm	150 μm	<i>Wildenschild, D. et al., 2002</i>
Synchrotron X-ray (Advanced Photon Source)	fluid distribution saturation	2.7 cm 0.6 cm 0.15 cm	76 μm 17 μm 6.7 μm	<i>Wildenschild, D. et al., 2002</i>
NMRI	gas flow; diffusion	0.4 cm	100 μm	<i>Kaiser, L. G. et al., 2000</i>
MRI	velocity; two-phase flow	5 cm	195 μm	<i>Sederman, A. J. and Gladden, L. F., 2001</i>
NMR	porosity; velocity; dispersion	4 cm	150-300 μm	<i>Gotz, J. et al., 2002</i>
NMRI	porosity; velocity	2.5 cm	350 μm	<i>Chen, Q. et al., 2002</i>
NMRI	two-phase flow	6.4 cm	630 μm	<i>Chen, Q. et al., 2002</i>
MRI	bacterial motility	8.25 cm	330 μm	<i>Sherwood, J. L. et al., 2003</i>
MRI	mass transfer; hydrodynamics	1.25 cm	97.7 μm	<i>Gladden, L. F. et al., 2003</i>
Real-time neutron radiography	transient flow; fluid contents	9 cm 20 cm	225 μm 450 μm	<i>Deinert, M. R. et al., 2004</i>
Photoluminescence Volumetric Imaging	pore geometry; flow; interfaces	0.5 cm	10 μm	<i>Montemagno, C. D. and Gray, W. G., 1995</i>
Optical, Light transmission	phase displacement; fluid saturation	43 cm	500 μm	<i>Glass, R. J. et al., 2000</i>
Optical ; Light transmission	phase displacement; fluid saturation	10 cm	100 μm	<i>Mortensen, A. P. et al., 2001</i>
Optical; UV excited fluorescence	solute transport/ dispersion	23 cm	$\approx 350 \mu\text{m}$	<i>Huang, W. E. et al., 2002</i>
Optical ; Light transmission	distribution of microbial growth	50 cm	750 μm	<i>Thullner, M. et al., 2002</i>
Optical ; Light transmission	DNAPL remediation processes	60 cm	600 μm	<i>Conrad, S. H. et al., 2002</i>
Optical ; Light transmission	gas-water interfacial area; saturation	45.5 cm	1000 μm	<i>Niemet, M. R. et al., 2002</i>
Optical; colour tracer	solute transport; mass transfer	30 cm	400 μm	<i>Zinn, B. et al., 2004</i>

In general the effort for measurements and interpretation increases with the number of observed dimensions and hence the time resolution (not listed above) decreases with increasing dimension number. The dependence of relative spatial resolution Φ/Φ_0 of the different methods (Table 1) to a typical relative length d/d_0 of the objects investigated (Fig. 1) can be approximated as a power law with a exponent of about 0.7.

We note its validity independent of the technique used, means that typical dimensions of bench scale investigations result in a spatial resolution of more than $10^2 \mu\text{m}$. To overcome this resolution limitation a visualization system described in the following section was designed.

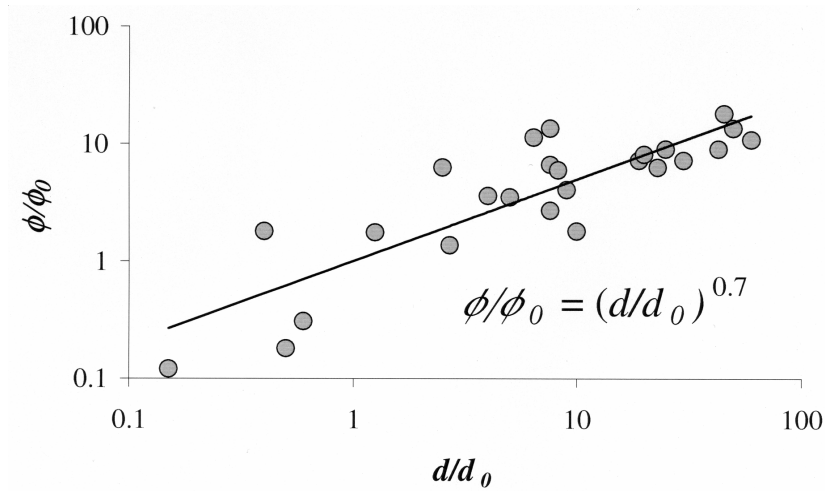


Fig. 1. Comparison of relative spatial resolution scale versus relative observation scale for the imaging techniques listed in Table 1 ($d_0 = 1$ cm, $\Phi_0 = \Phi(d_0) = 55.5$ μm).

3. Gravimetrical phase balance supported process visualization

3.1. Overview of experimental requirements

To study multi phase flow processes in porous media an experimental setup was developed that combines high resolution visualization and gravimetrical phase balancing to investigate flow processes simultaneously at different scales. Fig. 2 shows the computer-controlled experimental setup consisting of a camera system in front of a 2D-experimental tank (Fig. 2a) and the fluid control unit including a gravimetrical system at the back side of the flow model (Fig. 2b).

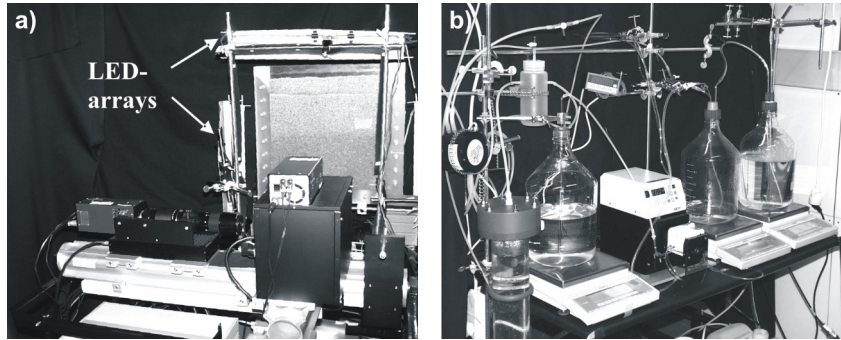
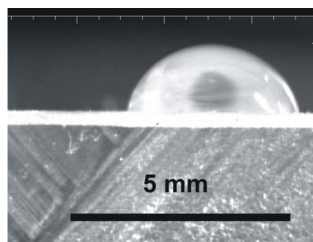


Fig. 2. Experimental setup: camera system and 2D-tank a) with fluid flow control and b) gravimetrical system.

Flow experiments were conducted with different designed flow tanks: i) open (Fig. 2a: $400 \times 450 \times 12$ mm inner dimensions); ii) closed vertical and lateral orientated tanks. The physical flow model was placed about 500 mm in front of the visualization set up.



To observe the displacement processes at the optical surface without a containment-induced preference for one of the phases, the contact angle should be 90° . Therefore we use Plexiglas which has a relatively high contact angle (Fig. 3) of about 70° - 78° (e.g. van Pelt, A. W. J. et al., 1985; Mozes, N. et al., 1987; Holländer, A. et al., 2003).

Fig. 3. Contact of water and air at a common Plexiglas sheet used for the experiments.

In the open tanks the sediment was covered by a 6 cm layer of lead beads (diameter 3 mm) to confine and fix the sediment matrix. Gaze between sediment and lead beads prevent mixing. Due to the large pore size of lead-bead layer compared to the porous media of interest we assume that this layer contains a negligible small amount of stored gas.

When working with closed tanks a silicone foil between the sediment and the rear tank-wall enables sediment compression by pushing water into the interspaces between foil and wall.

For gas injection cylindrical diffusers (inner diameter: 5 mm) with openings of about 1.5 mm were inserted orthogonal to the observation plane at a height of a few cm from bottom. For fine sediments high porosity non-woven material was added into the sparge point to prevent clogging. The openings at the sparge point have to be larger then the minimum pore throat diameter of the sediment to measure the capillary pressure connected with the pore geometry. Different arrangements of water injection ports were installed at the tank frames.

Because of the opacity of natural sediments and silicone foil front lighting was used for all experiments. Illumination by an array of about 200 white LED's¹ avoided heating of the tank surface. Surrounding the setup by non-reflecting black curtains eliminates reflections on the tank walls and excludes influences by daylight variations.

3.2 Fluid control and gravimetical phase balancing

The gravimetrical system shown in Fig. 4 was designed for phase-quantification to calibrate the (2D)-optical observation results. Before the beginning of each phase displacement experiment at the time t_0 [s] bottle 2 contained only gas whereas the bottles 1 and 3 were water filled. Whereas a constant water flux is

realized by pumping² of water from bottle 1 to the tank, gas flux is controlled by a mass flow controller³. Before entering the tank the dry gas is flushed through a 1 m long column filled with water to saturate it and prevent evaporation of water from the tank.

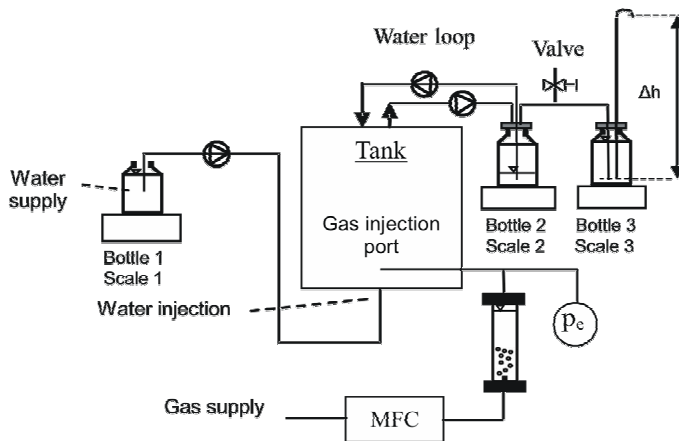


Fig. 4. Gravimetrical Setup: The gravimetrical measuring system contains one inflow and 2 outflow scales. (MFC - mass flow controller, p_e – gas entry pressure, $\rho_w g \cdot \Delta h$ - phase's-independent outlet pressure definition of the tank).

¹ Light emitting diodes, WU-7-750 SWC, Luminous Intensity 5.6 kmcd (Wustlich Opto-Elektronik GmbH)

² Peristaltic pump MCP-Standard, $Q_{W,max} \approx 100$ mL/min, (Ismatec GmbH)

³ Mass flow controller MFC 8712, $Q_g = 0,01 \dots 5$ L/min, $\pm 0.5\%$ from measure (Fa. Bürkert GmbH & Co. KG)

A water quantity passing the tank outlet will be trapped in bottle 2 and its volume-equivalent gas quantity will escape into bottle 3. If a quantity of gas passing the tank outlet and enters bottle 2 the same gas quantity will also escape into bottle 3.

As the gas inlet of bottle 3 has the same level as the outlet of water, the gas must have the pressure $p_o = \rho_w g \cdot \Delta h + p_a$ (ρ_w [kg/m³] - water density, g [m/s²] – acceleration constant, Δh [m] – effective height of water column, p_a [Pa] – atmospheric pressure).

The pressure p_o [Pa] is independent of the filling levels inside the bottle system. Therefore a phase-independent boundary condition can be fixed for the tank when additional level differences are prevented between tank outlet, connecting tubes, and bottle inlet. Additionally capillary effects of the different phases flowing into the bottle system have to be minimized. Therefore, we used a simple woollen thread inside the connecting tube to bottle 2 and added a tenside to the water of bottle 3 to lower the surface tension of water.

The gas entry pressure p_e [Pa] is monitored by a difference pressure sensor⁴ against the pressure at the tank outlet.

A water loop between the tank-outlet diffuser, which has large pore sizes with respect to the maximum sediment pore diameters, and bottle 2 regulates the water level inside the tank during gas injection.

If the total pore volume V_p [m³] is given by water saturation of the dry sediment inside the tank and Δm_i [kg] denotes the mass change of scale $i = \{1, 2, 3\}$ during the gas/water injection experiment one obtains the mean gas volume V_g [m³] and the mean saturation $\bar{s}_{g,grav}$, respectively:

$$\bar{s}_{g,grav}(t) = \frac{V_g(t)}{V_p} = \frac{\Delta m_2 - \Delta m_1}{V_p \rho_w}, \quad \Delta m_i = m_i(t) - m_i(t_0), \quad (1)$$

and the gas flux Q_g [m³/s] :

$$Q_g(t) = \frac{V_g(t)}{t} = \frac{\Delta m_3 - \Delta m_1}{t \rho_w}. \quad (2)$$

The scales⁵ have a higher resolution (in water volume equivalents of about 10 μ L) compared to the MFC (50 μ L/min for the smallest flux). As our scales allow measurements up to 6.2 kg this gravimetrical system limits experiments where it is necessary to refill (bottle 1 and 3) or remove (bottle 2) the water inside the bottles. Therefore when performing phase-volume consuming experiments (high phase fluxes) we used the gravimetrical system to test if there is any leakage and to calibrate the Q_g (MFC) to the water-vapour containing gas. In this case the connection valve (Fig. 4) between bottle 2 and 3 can be opened after MFC-calibration and the experiments can be performed against gas pressure using scale 1 and 2 respectively.

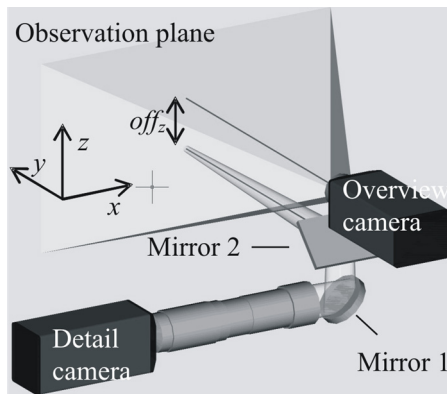
⁴ HCXM350D6V, $p = 0 \dots 350$ mbar, $\pm 0.1\%$ from measure, (Sensortechnics GmbH)

⁵ LP6200Master^{pro}, 0 - 6.2 kg ± 10 mg resolution (Sartorius GmbH)

3.3 Process Visualization

3.3.1 Setup

Obviously it would not make sense to investigate an object with a surface area in the range of a few thousand cm^2 (e.g. $0.5 \times 0.5 \text{ m}$) completely with a resolution of about $10 \mu\text{m}$. Up to now the high data volume would correspond to i) high information redundancy ii) high post processing demand and iii) unacceptable temporal resolution. Thus a system (Fig. 5) was designed, consisting of two imaging detectors (cameras) operating with different spatial resolutions. With one camera the complete observation plane means the surface of an object is scanned (*overview camera*), with a second camera a section of the surface is investigated with higher spatial resolution (*detail camera*). To follow changes in



the object surface, it is necessary to shift the section observed by the detail camera rapidly. Problems are likely turning the whole camera to shift this section since the detail detector will consist of a complex optic to achieve the required resolution. Thus a two mirror scanning system has been designed for the movement of the detail detector's field of view.

Fig. 5. Visualization setup: schematic overview of location of the optical components and the optical paths of the cameras (off_z [m] – offset of the central image reflection points at observation plane for normal optical path directions).

Although with this design the data volume is reduced drastically, cameras with high resolution, high sensitivity and fast frame rate are required. As imaging detectors two CCD⁶ cameras have been employed. These cameras provide a resolution of 1280×1024 pixels with 12 bit. The size of a pixel is $6.7 \mu\text{m}$; images can be taken with a frame rate of 8 Hz. The camera is available providing different exposure times; $10^{-7} - 10^{-3} \text{ s}$ or $10^{-3} - 10^3 \text{ s}$. We have selected the type using the longer exposure times to avoid problems with the illumination of an object.

The different spatial resolutions of the object investigated are obtained by employment of different optical systems. For the overview camera, a wide angle lens⁷ was used. For the detail camera, a macro lens⁸ with a focal length of 200 mm in combination with a teleconverter⁹ is used. This optical system allows a reproduction scale of 1:1 between object and camera.

The scanning system was realized using silver coated mirrors¹⁰ (coating thickness 0.19 mm) on glass substrate. The mirrors were mounted on rotary stages¹¹ with a DC-motor. The stages can be turned with a velocity of 80 °/s with a calculated accuracy of 3.6 seconds. The deflection of the detail cameras field of

⁶ Imager3, (LaVision)

⁷ Schneider, Type Cinegon 1.4/8 mm COMPACT

⁸ Nikon, Micro-Nikkor-200mm/4 IF

⁹ Nikon TC301

¹⁰ 12.5 mm crown glass, LINOS Photonics

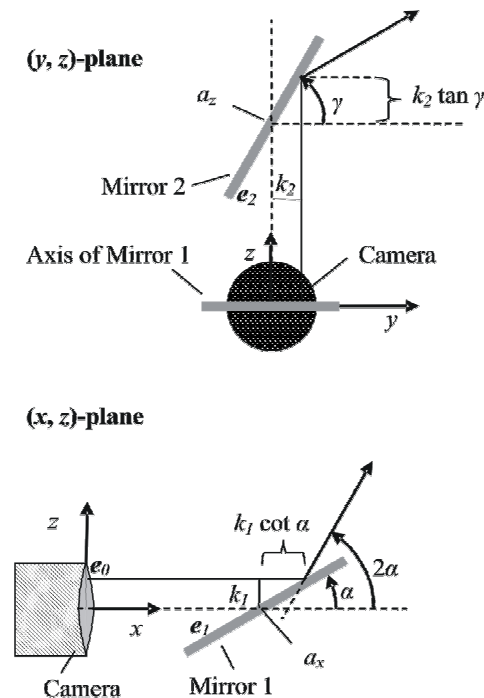
¹¹ Owis, DMT65 and DMT100

view involves a variation of the distance between camera and object. This slight variation can be neglected using a wide aperture diameter. Since an optimized resolution should be achieved and the proper operation of auto focus lenses is doubtful observing porous media, the complete detail camera have been mounted on a linear measuring stage¹² with a travel length of 100 mm. The camera can be moved with a calculated accuracy of 0.5 μm .

The complete optical system including cameras, lenses and scanner was mounted on x-profile. The overview cameras line of sight is arranged orthographic to the observation plane (see Fig. 2).

The detail camera is arranged with its line of sight parallel to the observation plane and orthographic to the overview camera. The centre of the first mirror is placed at the optical axis of the detail camera at a horizontal distance a_x [m]. The rotation axis of the first mirror (circular, (diameter 80 mm) runs orthographic to the observation plane. The rotation axis of the second mirror (rectangular, 120×80 mm) runs parallel to the observation plane with a horizontal distance a_y [m]. Both axes are mounted one upon the other in such a manner that the vertical distance between the centers of both mirrors is given by a_z [m] (about 100 mm). The optical system is fixed on an optical desk with shock mounts and two different sample holders. To allow investigations in vertical or horizontal orientated physical flow models the whole optical setup can be rotated.

3.3.2 Theoretical basics



The employment of the scanning system is assigned with variation of the distance between the observed section at the object and the detail camera as well as with the deformation of its image. The correction of these effects and the computer controlled coordination of cameras and mirrors require a theoretical description of the scanning system – in detail of the optical path of the detail camera. Thereby its spatial resolution will be of special scientific interest for the interpretation of the scanned images. A schematic view of the optical path and planes is given in Fig. 6.

Fig. 6. Optical paths, (x, z)-plane: from camera to mirror 1, and (y, z)-plane: from mirror 1 to mirror 2.

¹² Owis, LIMES 120

The image at the camera, both mirrors, and the object's surface are described as planes $\vec{e}_i$:

$$\vec{e}_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + s \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} + t \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (3)$$

$$\vec{e}_1 = \begin{pmatrix} a_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + l_1 \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} + k_1 \begin{pmatrix} \cot \alpha \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (4)$$

$$\vec{e}_2 = \begin{pmatrix} a_x \\ 0 \\ a_z \end{pmatrix} + l_2 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + k_2 \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ \tan \gamma \end{pmatrix}, \quad (5)$$

$$\vec{e}_3 = \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \\ a_z \end{pmatrix} + l_3 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + k_3 \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (6)$$

The entrance of the camera's lenses $\vec{e}_0$ is defined as (x, z) -plane through the origin of the Cartesian coordinate system. According to the great focal length of the telescope, beams entering the telescope can be treated as parallels to the x -axis. The planes of the mirrors are defined by: i) the distances a_x and a_z in x and z -direction respectively, ii) the directions of the rotation axis of mirror 1: $(0, 1, 0)$, and mirror 2: $(1, 0, 0)$ and iii) by their rotation angles α [°] and γ [°] with the positive coordinate axis x and y . The position of the object is considered to be fixed at the plane $y = a_y$.

The detection of an image can be described by single beams, each entering the camera's lenses at a distinct position ($y_{\text{image}} [\text{m}] = s$, $z_{\text{image}} [\text{m}] = t$) which have been reflected on mirror 1 and 2 from the corresponding origin position (x, z) at the observation plane.

A single beam is defined by position vectors $\vec{g}_1$, $\vec{g}_2$ and $\vec{g}_3$ between camera, mirrors and object planes.

The points of intersection/reflection of beam and mirrors/object planes are determined by:

$$\vec{g}_i = \vec{e}_i, \quad i = \{1, 2, 3\}. \quad (7)$$

(Note: Due to the linear independence of the vector compounds (vector room $\mathfrak{R}_3$) Eq. (7) forms a simple equation system, containing 3 equations for c_i (see next), l_i , and k_i .)

With the image point $\vec{P}_0^T = (0, s, t)$ in $\vec{e}_0$ and the beam direction $\vec{r}_1^T = (1, 0, 0)$ the position vector $\vec{g}_1$:

$$\vec{g}_1 = \vec{P}_0 + c_1 \cdot \vec{r}_1, \quad (8)$$

gives the beam axis from the camera to mirror 1 where c_1 is the unknown distance.

From Eq. (4) and Eq. (8) one finds the first reflection point with respect to the rotation angel α in:

$$\vec{P}_1 = \begin{pmatrix} a_x + t \cdot \cot \alpha \\ s \\ t \end{pmatrix}, \quad (9)$$

and the reflection angle 2α to mirror 2 with respect to the positive x -axis by simple geometrical consideration. (Note: the reflection direction lies inside the (x, z) -plane $y = s$) Thus the optical path from mirror 1 to mirror 2 is given by:

$$\vec{g}_2 = \vec{P}_1 + c_2 \cdot \vec{r}_2, \quad \vec{r}_2 = \begin{pmatrix} \cos 2\alpha \\ 0 \\ \sin 2\alpha \end{pmatrix}, \quad (10)$$

and the interception point with mirror 2 follows from Eq. (5) and Eq. (9) with:

$$\vec{P}_2 = \begin{pmatrix} a_x + t \cdot \cot \alpha + (a_z - t + s \cdot \tan \gamma) \cot 2\alpha \\ s \\ a_z + s \cdot \tan \gamma \end{pmatrix}, \quad (11)$$

where γ defines the rotation angle of mirror 2 with respect to the positive y -axis. In equivalence to the reflection characteristics of mirror 1 one would find a reflection characteristic of 2γ in a (y, z) -plane for mirror 2. The total beam direction of the optical path from mirror 2 to the observation plane can be found by application of the orthogonal operator A_{yz} :

$$\vec{r}_3 = \vec{r}_2^T \cdot A_{yz}, \quad A_{yz} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2\gamma & \sin 2\gamma \\ 0 & \sin 2\gamma & -\cos 2\gamma \end{pmatrix}, \quad (12)$$

which performs i) a transformation of coordinates resulting in the rotation of the (y, z) -plane around the x -axis with 2γ and ii) a direction inversion of z to obtain the reflected beam. Considering Eq. (11) the optical path to the observation plane is:

$$\vec{g}_3 = \vec{P}_2 + c_3 \cdot \vec{r}_3, \quad (13)$$

and by using Eq. (7) the observed position is finally given as:

$$\vec{P}_3(s, t) = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_x + \left(\frac{a_y - s}{\sin 2\gamma} + a_z - t + s \cdot \tan \gamma \right) \cot 2\alpha + t \cdot \cot \alpha \\ a_y \\ a_z + s \cdot \tan \gamma - (a_y - s) \cot 2\gamma \end{pmatrix}. \quad (14)$$

Fig. 7 shows the projections of a square at the image plane $\vec{e}_0$ with the length $\Delta s = \Delta t = 2$ cm in dependence of an equidistant rotation of the mirror angles $\alpha = \alpha_0 - n \delta$, $\gamma = \gamma_0 + n \delta$, ($\alpha_0 = \gamma_0 = 45^\circ$, $\delta = 5^\circ$, $n = 0, 1, 2, \dots$) onto the observation plane for the setup positions $a_y = 50$ cm, $a_z = 5$ cm (a_x is not considered, it's only shifts the x -position).

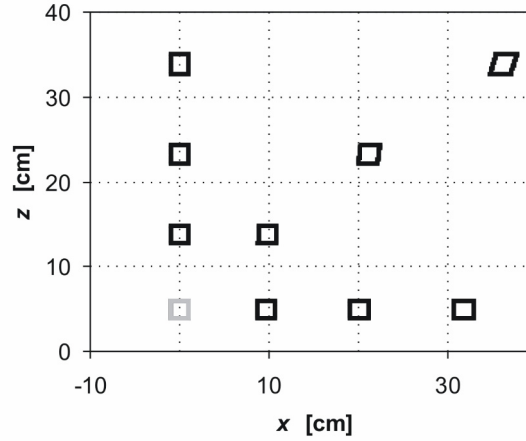


Fig. 7. Projections of a square ($\Delta s = \Delta t = 2$ cm) to the observation plane for variable projection angles α, γ (see text). The grey square shows the nearly no deformed square for the orthogonal optical path with $\alpha = \alpha_0$ and $\gamma = \gamma_0$.

The figure shows i) the enlargement of size and ii) the deformation of the square rim. Additionally iii) the image-position shows a stronger shifting in x than z -direction. Thus, due to the constant number of detector pixels the spatial resolution declines generally with $n \delta$ but weighted by the viewing direction (α, γ).

3.3.3. Optical resolution

For quantification of the angle dependent resolution we consider the transformation of a circle at the observation plane. The circle radius $r_{\max}$ [μm]:

$$r_{\max} = \frac{1}{2} \Delta l_p \sqrt{n_h^2 + n_v^2} \quad (15)$$

(Δl_p [μm] - size of a pixel, n_h, n_v - horizontally and vertically number of pixels) should represent the maximum distance between the centre and the rim of the detector surface area. With $s = r_{\max} \cdot \sin \beta$, $t = r_{\max} \cdot \cos \beta$ and $a_i^0 = a_i / r_{\max}$, $i = \{x, y, z\}$ Eq. (14) can be transformed into dimensionless terms. Based on the line integral of first kind the dimensionless circle-transform area $A^0(\alpha, \gamma)$ with its envelope $\vec{P}_3(\beta)$ can be calculated as:

$$\begin{aligned} A^0(\alpha, \gamma) &= \frac{1}{2} \cdot \int_0^{2\pi} \left(x(\beta) \frac{\partial z}{\partial \beta} - z(\beta) \frac{\partial x}{\partial \beta} \right) d\beta \\ &= \pi (\cot \alpha - \cot 2\alpha) \cdot (\tan \gamma + \cot 2\gamma). \end{aligned} \quad (16)$$

Note: According to the requirements Eq. (16) gives the independence of the optical path length between camera and object. Thus the resolution should be independent of the distance a_y to the observation plane.

To quantify the resolution $\Phi(\alpha, \gamma)$ the area $A^0(\alpha, \gamma)$ has to be compared with the best possible theoretical resolution of the sensor matrix:

$$\Phi(\alpha, \gamma) = \frac{\Delta l_p}{\pi} A^0(\alpha, \gamma). \quad (17)$$

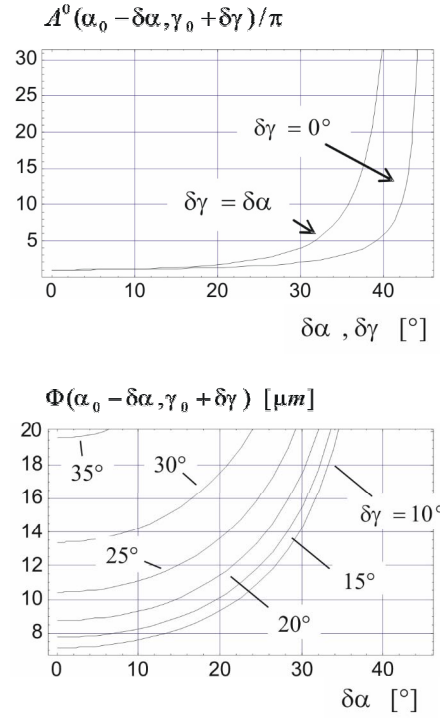


Fig. 8. Relative size enlargement $A^0(\alpha, \gamma)$ and absolute resolution $\Phi(\alpha, \gamma)$ of the detail detector for different observation angles $\alpha = \alpha_0 - \delta\alpha$, $\gamma = \gamma_0 + \delta\gamma$.

The first diagram in Fig. 8 shows near the centre of the observation plane an equivalent size of image $A^0(\alpha, \gamma)$ and original circle at the camera plane. With increasing angles the diagram gives quantitatively the relative size-enlargement according to Eq. (16). The second diagram in Fig. 8 shows the optical resolution $\Phi(\alpha, \gamma)$ for the used arrangement of our visualization setup.

Inside of an area $\alpha_0 \pm 20^\circ, \gamma_0 \pm 15^\circ$ the spatial resolution remains lower than $10 \mu m$ whereby the identical transformation $\vec{P}_0^T = (0, s, t) \xrightarrow{\alpha_0, \gamma_0} \vec{P}_3^T = (a_x + t, a_y, a_z + s)$ describes the orthogonal optical path. For comparison the square-images in Fig. 7 were calculated for the angle range $(\alpha_0, \alpha_0 - 15^\circ; \gamma_0, \gamma_0 + 15^\circ)$.

3.3.4 Positioning of detail camera

To get insights into geometrical properties of larger areas of the porous media and to describe a larger part of, for instance, residual gas phase distributions in dependency to the scanned structure of the sediments one can define a region of interest (ROI) in the overview image that will be tracked with the detail camera. Therefore the direction (α, γ) of the optical path of the detail camera has to be estimated for that ROI. From the absolute calibrated overview image one can take the centre of ROI by simple geometrical consideration at:

$$\vec{P}_3 = \begin{pmatrix} a_x + a_y \cdot \tan \alpha_{ov} \\ a_y^0 \\ a_z + off_z + a_y^0 \cdot \tan \gamma_{ov} \sqrt{1 + \tan^2 \alpha_{ov}} \end{pmatrix}, \quad (18)$$

(off_z [m] – (see Fig. 5) vertical distance between the image points of both cameras at the observation plane for the central optical pass: $\alpha = \alpha_{ov} = \alpha_0$ and $\gamma = \gamma_{ov} = \gamma_0$, α_{ov} – horizontal, and γ_{ov} – vertical angles of view of overview camera) and therefore according to the above given theory the angles of the detail camera.

3.4 Image processing

The images processed yield gas phase distribution in different glass beads and natural sediments as a function of space and time. First the cameras were spatially calibrated using reference points on the observed flow tank. Before an experimental run the background image containing the water saturated porous medium was taken. Images taken during the experiment were reduced from the background. This procedure results in an image series that should contain only changes with respect to the initial condition, in this investigation phases displacements or matrix shifts, respectively. Moreover the background subtraction equilibrates spatial differences of illumination. Image processing was done with IMAGEJ 1.33f (Wayne Rasband; National Institutes of Health; free download from <http://rsb.info.nih.gov/ij/>)

De facto the optical system will image the object with small variations around its position, its illumination and small variations of camera system properties by itself. Thus the background reduction and also all additional observations obtain a setup-related uncertainty (e.g. Detwiler, R. L. et al., 1999).

To quantify the amount of gas trapped in the pore space the images have to be segmented so that a resulting binary image only contains information about phase distribution. To threshold one could in principle proceed by trial and error until one achieves a threshold that appears reasonable. This procedure is very subjective and may lead to biases when one is trying to compare images (Baveye, P. et al., 1998).

We have localized typical areas of the different phases by the detail camera (Fig 9). Fig. 9 shows the whole greyscale-intensity distribution I_D [np], (np - number of pixel) and the ones for the background Bgr_D [np] and gas filled area G_D [np]. The individual peak areas are proportional to the one of gas phase/background identified on the detail image. Dashed lines represent best fits of single Gaussians to the means of the distributions of Bgr_D ($r^2 = 0.998$) and G_D ($r^2 = 0.992$), and show the high correlation of the peak shapes to Gaussians. Due to its differences in mean and variance a peak separation should be possible.

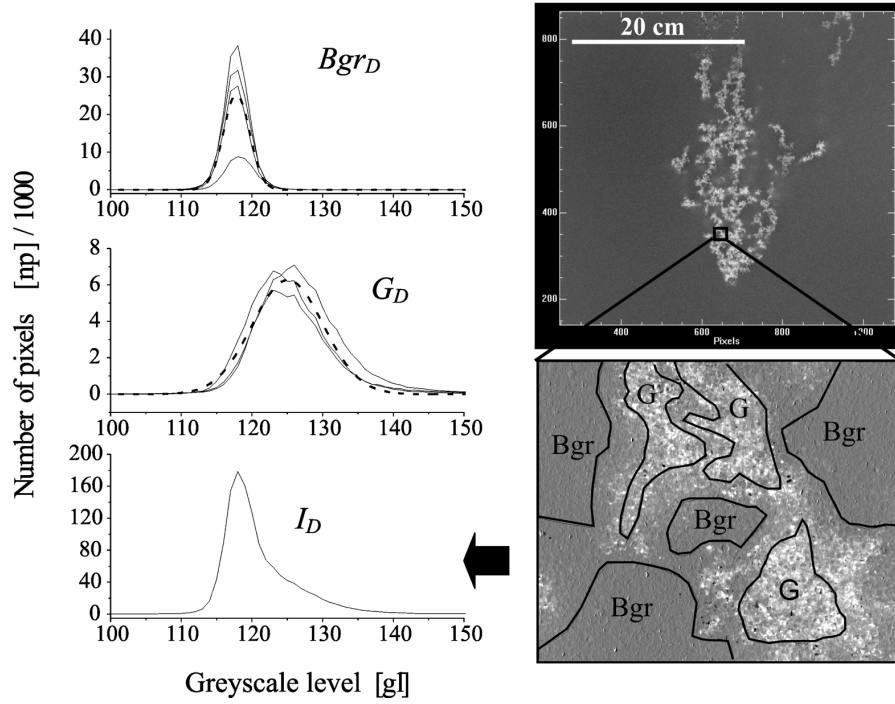


Fig. 9. Image analyses of phase distribution in detail image: (left) segmented greyscale-intensity distribution I_D , dashed lines: Gaussians fitted to the mean gas ($r^2 = 0.992$) - and background ($r^2 = 0.998$) - greyscale-intensity distributions; (right) Overview image (top) with detail image analyzed (bottom).

We assume that the front line intensity of background and gas filled pore space mainly observed by the overview camera has to be similar distributed. Based on this assumption the deconvolution of the overview image, spectrum (I_o [np]), was performed by a characteristic peak function set f_o [np] validated at the detail image – in this case as Gaussian duplet:

$$\sum_k (I_o(k) - f_o(k))^2 = \text{Min} \quad (19)$$

$$f_o(k) = \frac{A}{\sqrt{\pi/2}} \left(\frac{A_{Bgr}^{rel}}{w_{Bgr}} e^{-2\left(\frac{k - \bar{k}_{Bgr}}{w_{Bgr}}\right)^2} + \frac{A_g^{rel}}{w_g} e^{-2\left(\frac{k - \bar{k}_g}{w_g}\right)^2} \right) \quad (20)$$

$$A_i^{rel} = \frac{A_i}{A}, \quad A = \sum_i A_i, \quad i = \{Bgr, g\}$$

(A_i [np × gl] – Area, w_i [gl] – width, and $\bar{k}_i$ [gl] – centre of peak i. gl – greyscale level). With respect to the different resolutions and sensitivities of the two cameras, illumination variations, and space dependencies of optical parameters of setup and object only the peak shape function is used for deconvolution.

The normalized peak area A_g^{rel} should be comparable with the gravimetrically estimated mean gas saturation.

4. Results and discussion

Recent investigations are focussed on direct gas injection in water saturated sediments. Experiments are conducted to characterize and quantify gas phase transport mechanisms as well as mean gas phase saturation and distribution as a function of porous media size and gas injection rate. The setup described above is used to characterize and quantify the development of a gas filled capillary network in porous media with higher (pore scale in bench scale) resolution than it was done in previous gas sparging studies (e.g. Ji, W. et al., 1993; Elder, C. R. and Benson, C. H., 1999; Peterson, J. W. et al., 1999; Reddy, K. R. and Adams, J. A., 2001).

4.1. Comparison of optical and gravimetric gas phase quantification

The experiment presented was conducted with artificial glass beads¹³ as an analogue to natural silica grains, and will be described and discussed in detail in a forthcoming publication. Gas injection was controlled on the basis of gas flow rate. The flux dependent parameters gas entry pressure and trapped gas volume V_g are measured. After complete saturation of the sediment with water gas was injected into the model with a low gas flow rate of $Q_g = 10$ ml/min (experimental setup see Fig. 4). In steady state ($V_g(t) = \text{const}$) images of gas phase distribution were taken simultaneously with both cameras and then the gas flow rate was increased. The experimental data are listed in Table 2.

Tab. 2. Experimental parameters.

Porous media size [mm]	0.25-0.50				Porosity [-]	0.38					
Permeability [m ²]	1.11×10^{-10}				Tank dimension [cm]	$40 \times 35 \times 1.2$					
Steady state	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Q_g [ml/min]	10	31	59	146	233	321	407	495	582	669	844
V_g [cm ³]	17.67	22.39	29.10	50.21	66.53	77.35	88.81	98.93	108.29	114.08	136.12
$S_{g,grav}$ [%]	2.77	3.51	4.56	7.86	10.42	12.12	13.91	15.50	16.96	17.87	21.32

Fig. 10 shows the series of overview greyscale-intensity distributions I_O for different mean gas saturations (Table 2).

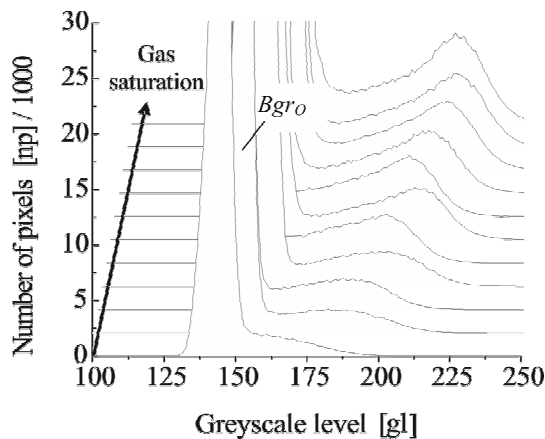


Fig. 10. Greyscale-intensity distributions of overview images; the gas saturation corresponds with the steady states in Table 2, ($Bgro$ [np] – greyscale-intensity distribution of overview image).

¹³ Carl Roth GmbH + Co. KG

The fitting results (Table 3) confirm the Gaussian duplet assumption by high correlation.

Tab. 3. Best fits results.

No. Exp.	A_{Bgr}^{rel}	A_g^{rel}	$\bar{k}_{Bgr}$ [gl]	$\bar{k}_g$ [gl]	w_{Bgr} [gl]	w_g [gl]	r^2
1	0.825	0.175	144.7	146.7	5.9	28.4	0.989
2	0.802	0.198	151.6	172.4	4.6	49.4	0.992
3	0.794	0.206	149.8	179.0	4.5	38.8	0.999
4	0.765	0.235	156.2	189.9	5.5	38.5	0.998
5	0.701	0.299	152.3	186.6	4.7	38.4	0.995
6	0.671	0.329	155.8	195.1	5.2	42.0	0.995
7	0.655	0.345	150.0	191.8	5.4	38.6	0.997
8	0.640	0.360	154.3	198.5	5.7	37.7	0.993
9	0.598	0.402	158.0	202.3	4.9	39.3	0.995
10	0.590	0.410	157.4	205.5	4.8	38.1	0.994
11	0.522	0.478	157.9	204.6	4.9	38.1	0.987

Optical and gravimetric measurements (see Fig. 11. and Eq.(21)) are strongly correlated.

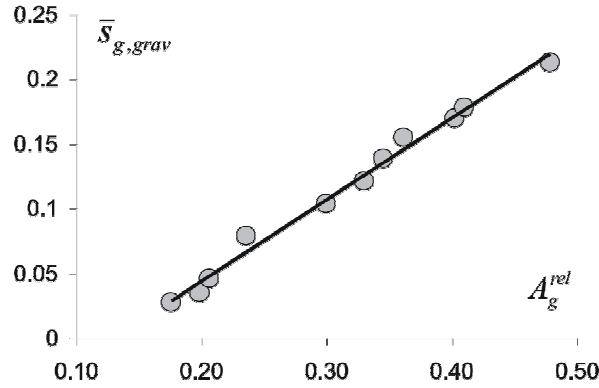


Fig. 11. Comparison of optical and gravimetric observations.

The regression line

$$\bar{s}_{g,grav} = 0.63 A_g^{rel} - 0.08, \quad r^2 = 0.99 \quad (21)$$

obtained from the data in Fig. 11 shows an approximately 1/3 higher steady state gas saturation in the observation plane with respect to the bulk saturation. We address this effect to the comparatively low coordination number (Haughey, D. P. and Beveridge, G. S. G., 1969) at the interface tank wall (Plexiglas)–sediment (glass beads), means: water available pores of surface layer are homogenized in size with the ones of bulk via pore size exclusion by the trapped gas. Beside its consequence for gas entrapment along sedimentary fine structures in aquifers or soils and its relevance for interpretation of column experiments (Geistlinger et. al. 2005, submitted to *Water Resources Research*) it shows the necessity of gravimetric phase balance control for interpretation the 2D–gas sparging experiments.

While analyzing the greyscale-intensity distributions (Fig. 9-10) it becomes clear that the images of the gas phase distribution show low contrast. Therefore further studies have to be conducted to establish methods that enhance the contrast between the phases measured within the images (e.g. use of dye tracers, stronger light sources, and colour reactions).

4.2. Gas bubble visualization in natural sediment

Fig. 12 shows an image set obtained with the two cameras for natural coarse sand. The comparison of the overview image (Fig. 12a/b) with the detail image (Fig. 12c/d) of the ROI marked in Fig. 12a shows the effect of resolution improvement.

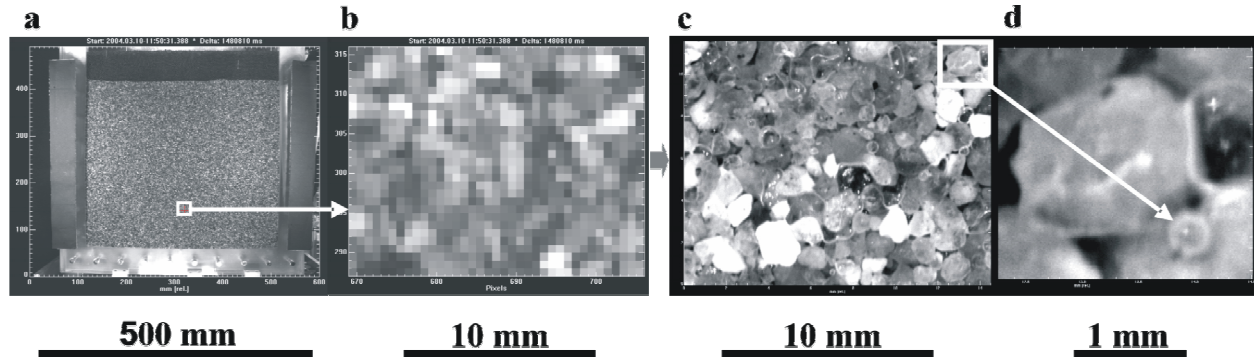


Fig. 12. Image set obtained with the visualization system: a) overview image; b) zoomed section in overview image of equivalent size and position like detail image; c) detail image; d) zoomed section of detail image showing a residual gas bubble fixed at a particle surface.

An example for pore scale visualization of phase distribution after gas injection into coarse sand (0.63-2 mm) is given in Fig. 13. Fig. 13a illustrates the sediment filled tank, where a ROI is marked in the overview image. The track stored with the detail camera (Fig. 13b) shows the sediment with trapped gas bubbles. By common algorithms of image processing the detail track can be analyzed, e.g. concerning the size distribution of particles, pores, pore throats, and bubbles respectively, or frame of bubbles.

A common conceptualization for mass transfer between gas and water phases assumes spherical gas bubbles (single-, multiple-, effective bubble models) which are correlated with the pore size (e.g. Geistlinger et. al. 2005, submitted to *Water Resources Research*). Our experiment (Fig. 13) shows that the gas-water interface is not given by spherical bubbles only. Different aggregate structures are possible, and additional it seems that there is only a weak correspondence between bubble size distribution and the one of pore size. Interesting to note (Fig. 12d): small gas bubbles (compared with pore throats) are visualized which don't leave the pores but are still pinned at particle surfaces. Therefore we suppose three mechanisms:

- buoyancy can fix a bubble underneath a particle (instable mechanical equilibrium),
- surface roughness acts to stabilize instable fixed bubbles, and
- hydrophobic surface areas of sediment will pin bubbles stable against buoyancy.

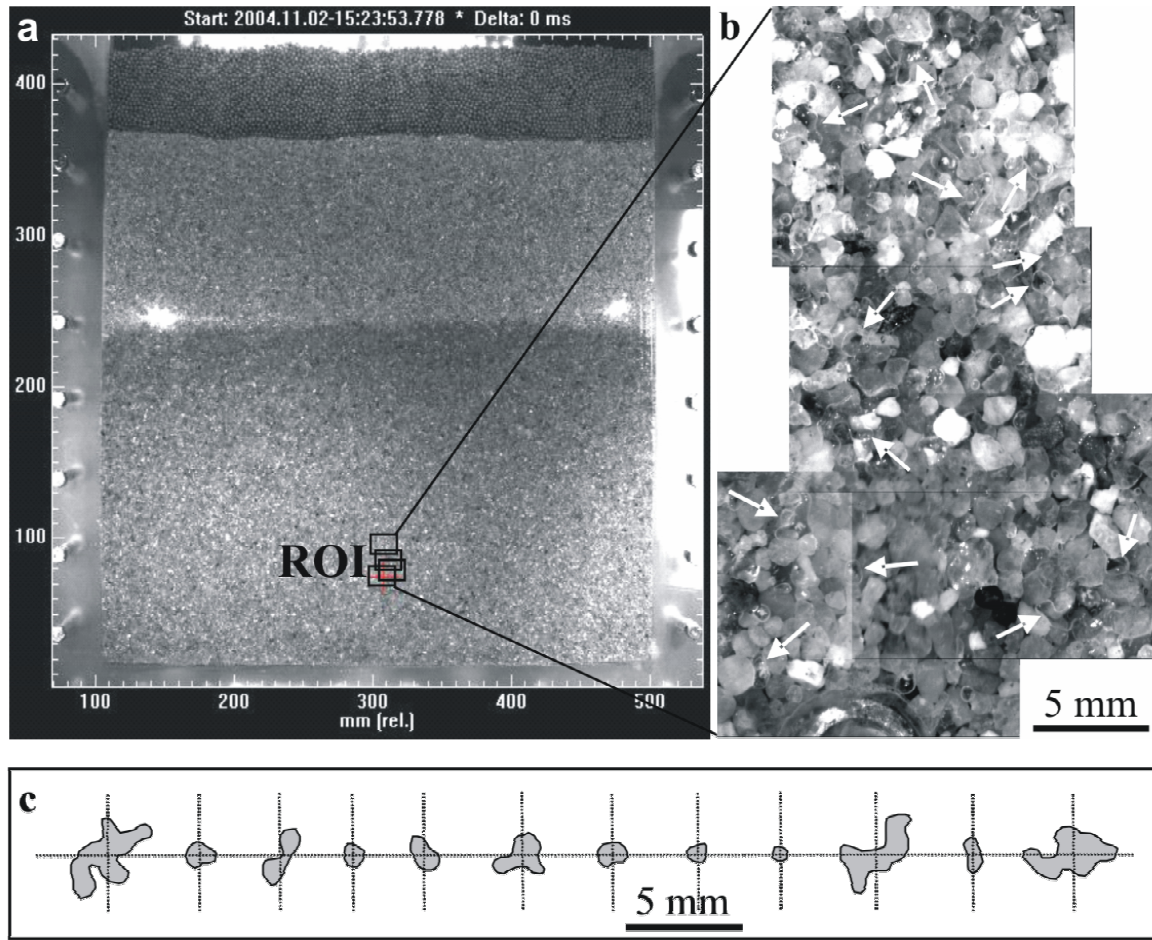


Fig. 13. Pore-scale-resolution imaging: a) ROI defined in the overview image; b) distribution of residual gas bubbles and pore geometries; c) shape of trapped gas bubbles (locations are marked by arrows in b).

Fig 14 presents pore scale images of gas phase flow in densely packed medium sand (0.2-0.63 mm). Referring back to the questions reported by Glass, R. J. et al. (2000) Fig. 14 illustrates that the gas-water interface-dynamic can result in particle movement. During gas injection a flow channel is established (Fig. 14a). Shutdown of gas flux results in retreat of the gas phase (Fig. 14b). That causes the rearrangement of the particle marked by the dotted lines (Fig. 14c). When gas flow is turned on again a new flow channel will be established (Fig. 14d).

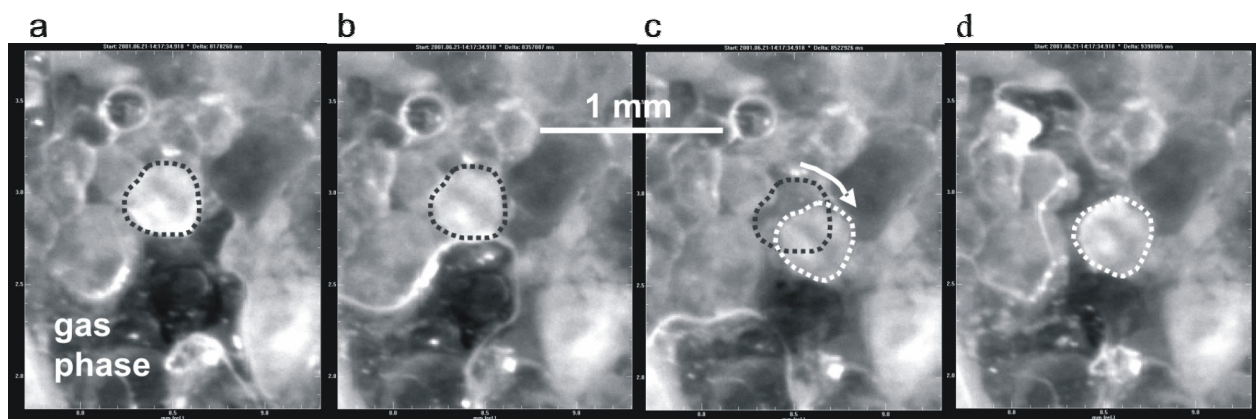


Fig. 14. Pore-scale imaging of particle rearrangement in medium sand.

5. Summary and conclusion

The review of visualization techniques shows the demand of high-resolution techniques to investigate bench scale processes on pore scale level.

Therefore an optical-gravimetric measuring system was developed. Its high optical resolution is obtained by coupling of two cameras for simultaneous pore scale and bench scale observation. Due to the relative heavy detail camera a mirror system was implemented to control its optical path, and to track moving objects. A theoretical expression for the optical paths describing the angles-dependent image deformation is derived and an object-plane area is calculated which enable a resolution better 10 μm . Moreover, the derived expressions are the basis for computer controlled positioning of the detail image to the region of interest (ROI). The developed pore- in bench scale investigation technique reduces the volume of pore scale data to that of the observed ROI. Therefore the effort of post processing is reduced, too. A gravimetric phase balancing allows the volume based interpretation of the more or less surface based optical scans.

Examples are given to show the properties of the measuring system, and for post processing procedure respectively. The peak shape analysis of the greyscale-intensity distributions of gas or water filled areas at the detail image gives high correlations to Gaussians. Also the Gaussian based deconvolution of the greyscale-intensity distributions from overview images show high correlations. We address both to the fine grained, in its optical properties uniform glass beads used in this study. Most of the incident light will be reflected from particles which are located at or near the Plexiglas wall. Larger glass beads would lead to a distinct depth distribution of incident light and therefore to an additional depth-dependency of the greyscale-intensity distribution of the reflected one.

For glass beads a significant difference is found for the means of surface and bulk gas saturation. Both are in good correlation with respect to different gas fluxes applied. We address the saturation difference to the one of the coordination of bulk- and surface particles and therefore to small differences of mean bulk and surface-layer pore-diameters, respectively. This effect could result in a size exclusion of water available pores and therefore in a homogenization of flow paths. We suppose this effect could explain the inverse correlation of dispersivity and gas saturation found in our column experiments (Geistlinger et. al. 2005, submitted to *Water Resources Research*).

The 2D-mapping of residual gas aggregates in natural sediment shows for larger bubbles its strong deviation of the sphere-picture often used in literature and modelling. As smaller the gas bubbles as better they fit the sphere-picture. Moreover only a limiting correlation is observed between pore and bubble size, respectively. Small gas bubbles (compared with pore throats) are visualized which don't leave the pores but are still pinned at particle surfaces.

From high-resolution detail images reversible rearrangements of particles are found depending on the direction of the gas-water interface movement near the particle.

Further investigations are necessarily to quantify the different observations described with respect to improved greyscale resolution, natural sediments and their fine-structures.

Acknowledgement

Prof. Ludwig Luckner & co-workers deserve thank for intensive discussions. We thank the UFZ Centre for Environmental Research Leipzig-Halle for financial and technical support of our work, which is part of the SAFIRA-Project (C1.1; 02WT9947/8) and was funded by the BMBF and the „Projektträger Wassertechnologie und Entsorgung“. Finally we'd like to thank Mr. D. Mach and Mr. I. Richter, Optimare GmbH, for manufacturing the visualization setup and for programming of the IDL-based image processing procedures.

References

- Baveye, P., Boast, C.W., Ogawa, S., Parlange, J.Y., Steenhuis, T., 1998. Influence of image resolution and thresholding on the apparent mass fractal characteristics of preferential flow patterns in field soils. *Water Resources Research* 34 (11), 2783-2796.
- Bear, J., 1972. *Dynamics of Fluids in Porous Media*. Dover Publications, Inc., New York, 764 pp.
- Chen, M.R., Hinkley, R.E., Killough, J.E., 1996. Computed tomography imaging of air sparging in porous media. *Water Resources Research* 32 (10), 3013-3024.
- Chen, Q., Kinzelbach, W., Oswald, S., 2002. Nuclear magnetic resonance imaging for studies of flow and transport in porous media. *Journal of Environmental Quality*, 31 (2), 477-486.
- Clausnitzer, V., Hopmans, J.W., 2000. Pore-scale measurements of solute breakthrough using microfocus X-ray computed tomography. *Water Resources Research* 36 (8), 2067-2079.
- Conrad, S.H., Glass, R.J., Peplinski, W.J., 2002. Bench-scale visualization of DNAPL remediation processes in analog heterogeneous aquifers: surfactant floods and in situ oxidation using permanganate. *Journal of Contaminant Hydrology* 58 (1-2), 13-49.
- Darnault, C.J.G., Throop, J.A., DiCarlo, D.A., Rimmer, A., Steenhuis, T.S., Parlange, J.Y., 1998. Visualization by light transmission of oil and water contents in transient two-phase flow fields. *Journal of Contaminant Hydrology*, 31 (3-4): 337-348.
- Deinert, M.R., Parlange, J.Y., Steenhuis, T., Throop, J., Unlu, K., Cady, K.B., 2004. Measurement of fluid contents and wetting front profiles by real-time neutron radiography. *Journal of Hydrology* 290 (3-4), 192-201.
- Detwiler, R.L., Pringle, S.E., Glass, R.J., 1999. Measurement of fracture aperture fields using transmitted light: An evaluation of measurement errors and their influence on simulations of flow and transport through a single fracture. *Water Resources Research* 35 (9), 2605-2617.
- Elder, C.R., Benson, C.H., 1999. Air channel formation, size, spacing, and tortuosity during air sparging. *Ground Water Monitoring and Remediation*, 19 (3): 171-181.
- Geistlinger, H., Beckmann, A., and Lazik, D., 2005. Mass transfer between a Multi-Component trapped Gas Phase and a mobile Water Phase: Experiment and Theory. *Water Resources Research*, submitted.
- Glass, R.J., Conrad, S.H., Peplinski, W., 2000. Gravity-destabilized nonwetting phase invasion in macroheterogeneous porous media: Experimental observations of invasion dynamics and scale analysis. *Water Resources Research* 36 (11), 3121-3137.
- Haughey, D.P., Beveridge, G.S.G., 1969. Structural Properties of Packed Beds - A Review. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 47, 130-140.
- Holländer, A., Klein, W., Keusgen, M., 2003. Polymeroberflächen für biomedizinische Anwendungen. *Biospektrum* 9 (1), 39-41.
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D.P., Lin, J.D., Hill, E., 1993. Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization. *Ground Water Monitoring & Remediation* 13 (4), 115-126.
- Jia, C., Shing, K., and Yortsos, Y.C., 1999. Visualization and simulation of non-aqueous phase liquids solubilization in pore networks. *Journal of Contaminant Hydrology* 35 (4), 363-387.
- Kasteel, R., Vogel, H.J., Roth, K., 2000. From local hydraulic properties to effective transport in soil. *European Journal of Soil Science* 51 (1), 81-91.

- Khalili,A., Basu,A.J., Pietrzyk,U., 1998. Flow visualization in porous media via Positron Emission Tomography. *Physics of Fluids* 10 (4), 1031-1033.
- Khalili,A., Basu,A.J., Pietrzyk,U., Raffel,M., 1999. An experimental study of recirculating flow through fluid-sediment interfaces. *Journal of Fluid Mechanics* 383, 229-247.
- Montemagno,C.D., Gray,W.G., 1995. Photoluminescence volumetric imaging: A technique for the exploration of multiphase flow and transport in porous media. *Geophysical Research Letters* 22 (4), 425-428.
- Mortensen,A.P., Glass,R.J., Hollenbeck,K., Jensen,K.H., 2001. Visualization of microscale phase displacement processes in retention and outflow experiments: Nonuniqueness of unsaturated flow properties. *Water Resources Research* 37 (6), 1627-1640.
- Mozes,N., Marchal,F., Hermesse,M.P., Van Haecht,J.L., Reuliaux,L., Leonard,A.J., Rouxhet,P.G., 1987. Immobilization of Microorganisms by Adhesion: Interplay of Electrostatic and Nonelectrostatic Interactions. *Biotechnology and Bioengineering* 30, 439-450.
- Niemet,M.R., Rockhold,M.L., Weisbrod,N., Selker,J.S., 2002. Relationships between gas-liquid interfacial surface area, liquid saturation, and light transmission in variably saturated porous media. *Water Resources Research* 38 (8), 1135-1147.
- Niemet,M.R., Selker,J.S., 2001. A new method for quantification of liquid saturation in 2D translucent porous media systems using light transmission. *Advances in Water Resources* 24 (6), 651-666.
- Peterson,J.W., Lepczyk,P.A., Lake,K.L., 1999. Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach. *Environmental Geology* 38 (1), 1-6.
- Reddy,K.R., Adams,J.A., 2001. Effects of soil heterogeneity on airflow patterns and hydrocarbon removal during in situ air sparging. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering* 127 (3), 234-247.
- Sederman,A.J., Gladden,L.F., 2001. Magnetic resonance visualisation of single- and two-phase flow in porous media. *Magnetic Resonance Imaging* 19 (3-4), 339-343.
- Sederman,A.J., Johns,M.L., Bramley,A.S., Alexander,P., Gladden,L.F., 1997. Magnetic resonance imaging of liquid flow and pore structure within packed beds. *Chemical Engineering Science* 52 (14), 2239-2250.
- Sherwood,J.L., Sung,J.C., Ford,R.M., Fernandez,E.J., Maneval,J.E., Smith,J.A., 2003. Analysis of bacterial random motility in a porous medium using magnetic resonance imaging and immunomagnetic labeling. *Environmental Science & Technology* 37 (4), 781-785.
- Theodoropoulou,M.A., Karoutsos,V., Kaspiris,C., Tsakiroglou,C.D., 2003. A new visualization technique for the study of solute dispersion in model porous media. *Journal of Hydrology* 274 (1-4), 176-197.
- Thullner,M., Mauclair,L., Schroth,M.H., Kinzelbach,W., Zeyer,J., 2002. Interaction between water flow and spatial distribution of microbial growth in a two-dimensional flow field in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology* 58 (3-4), 169-189.
- van Pelt,A.W.J., Weerkamp,A.H., Uyen,M.H.W.J.C., Busscher,H.J., de Jong,H.P., Arends,J., 1985. Adhesion of *Streptococcus sanguis* CH3 to Polymers with Different Surface free energies. *Applied and Environmental Microbiology* 49 (5), 1270-1275.
- Vogel,H.J., Roth,K., 2001. Quantitative morphology and network representation of soil pore structure. *Advances in Water Resources* 24 (3-4), 233-242.
- Weisbrod,N., Niemet,M.R., Selker,J.S., 2003. Light transmission technique for the evaluation of colloidal transport and dynamics in porous media. *Environmental Science & Technology* 37 (16), 3694-3700.
- Wildenschild,D., Vaz,C.M.P., Rivers,M.L., Rikard,D., Christensen,B.S.B., 2002. Using X-ray computed tomography in hydrology: systems, resolutions, and limitations. *Journal of Hydrology* 267 (3-4), 285-297.
- Wong,R.C.K., Wibowo,R., 2000. Tomographic evaluation of air and water flow patterns in soil column. *Geotechnical Testing Journal* 23 (4), 413-422.
- Yarwood,R.R., Rockhold,M.L., Niemet,M.R., Selker,J.S., Bottomley,P.J., 2002. Noninvasive quantitative measurement of bacterial growth in porous media under unsaturated-flow conditions. *Applied and Environmental Microbiology* 68 (7), 3597-3605.
- Zinn,B., Meigs,L.C., Harvey,C.F., Haggerty,R., Peplinski,W.J., Von Schwerin,C.F., 2004. Experimental visualization of solute transport and mass transfer processes in two-dimensional conductivity fields with connected regions of high conductivity. *Environmental Science & Technology* 38 (14), 3916-3926.

Gas sparging for bioremediation: Experimental investigations of gas phase distribution

KRAUSS, G.*, LAZIK, D.* & GEISTLINGER, H.*

*UFZ- Centre for Environmental Research Leipzig-Halle in the Helmholtz-Association, Dept. Hydrogeology, T.-Lieser-Str. 4, D-06120 Halle, Germany

Abstract

In this study we present experimental investigations of gas phase transport and distribution in initially water saturated porous media. An optical-gravimetric system (Multiphase Flow Simulator) consisting of two coupled CCD-cameras is used to visualize gas phase distribution behaviour in porous media at different scales (overview camera: bench scale/detail camera: pore scale). We performed 2D-visualization experiments to investigate the development, distribution and stability of a capillary network used by the gas flow as well as the extent of interfacial boundaries as a function of porous media size and gas flux. Within spherical glass beads (particle size in the sand range) as porous media we characterized the dominant forces, and consequently the two-phase flow patterns were characterized using the Modified-Bond-number theory [1].

1. Introduction

Sparging of reactive gases like O₂, H₂, CH₄, NH₃, CO₂ and others into a contaminated aquifer can initiate, stimulate and control microbial oxidative and reductive degradation processes of organic contaminants. In order to design an optimized setup for direct gas injection the hydraulic and geochemical impact on the contaminated aquifer must be well understood.

Beside basic information on contaminant characteristics and geological structure detailed knowledge of gas phase distribution behaviour in the soil („zone of influence“) is necessary for an efficient and successful application of this remediation technology. Questions of technological relevance are:

- How the geological structure (sediment composition, grain size distribution) does determine the spatial distribution of the gas filled capillary network?
- Will a gas filled capillary network be activated and used again during following injection series?
- Will the injection mode (e.g. pulsed mode) influence the spatial distribution of the capillary network and will there be a correlation to the trapped gas-volume?
- What is the minimum distance („zone of influence“) between injection points that separated capillary networks are formed?

Gas flow visualization and characterization of gas flow pattern during bench scale experiments are important tools to investigate how gas flow distribution is affected by geology and process conditions (flow rate, injection depth, injection mode, etc.) [1, 2, 3, 4, 5]. Gas flow distributions are very sensitive to relatively subtle changes in permeability and grain size.

2. Experimental Methods

2D-visualization experiments were conducted to investigate the development, distribution and stability of a gas filled capillary network as a function of porous media size and gas flux. First experiments should reproduce gas flow patterns reported in literature with a new technique for combined pore scale and bench scale visualization of multiphase flow processes.

The experimental set up used for sparging of air into spherical glass beads (0.36-0.50; 0.75-1.00; 2; 4 mm) is shown in Figure 1. The gas was saturated with water in a pre-sparging column and injected into the previously fully water saturated model (Plexiglas tank, inner dimensions: 37 x 20 x 1 cm; for 4 mm glass beads 2 cm). With a weighting system the displaced water was measured as an equivalent to the gas volume injected and stored in the porous medium. Gas flow rate was controlled by a mass flow controller and kept constant with a flow rate of 10 mL/min during the experiments. Gas entry pressure was measured at the injection point in the middle of the lower boundary of the model by using a difference pressure transmitter. Hydrostatic pressure h_w was kept constant during the experiments using an overflow system at the outflow of the model.

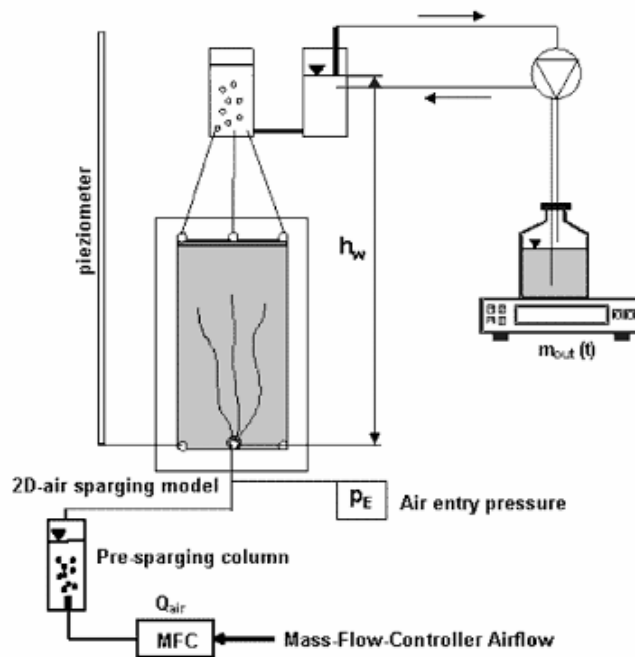


Fig. 1. Experimental setup.

To visualize and quantify multiphase flow processes within 2D-experiments a new visualization technique (*Multiphase Flow Simulator*) was developed at the Department of Hydrogeology at the UFZ.

This non-invasive technique, based on two computer-coupled CCD-cameras, is capable to study flow processes in porous media with a high temporarily and spatial resolution. With specific algorithms of image analyses (Fig. 2) it is possible to quantify gas flow distribution and saturation as well as the extent and thickness of interfacial areas between the water phase and the gas phase.

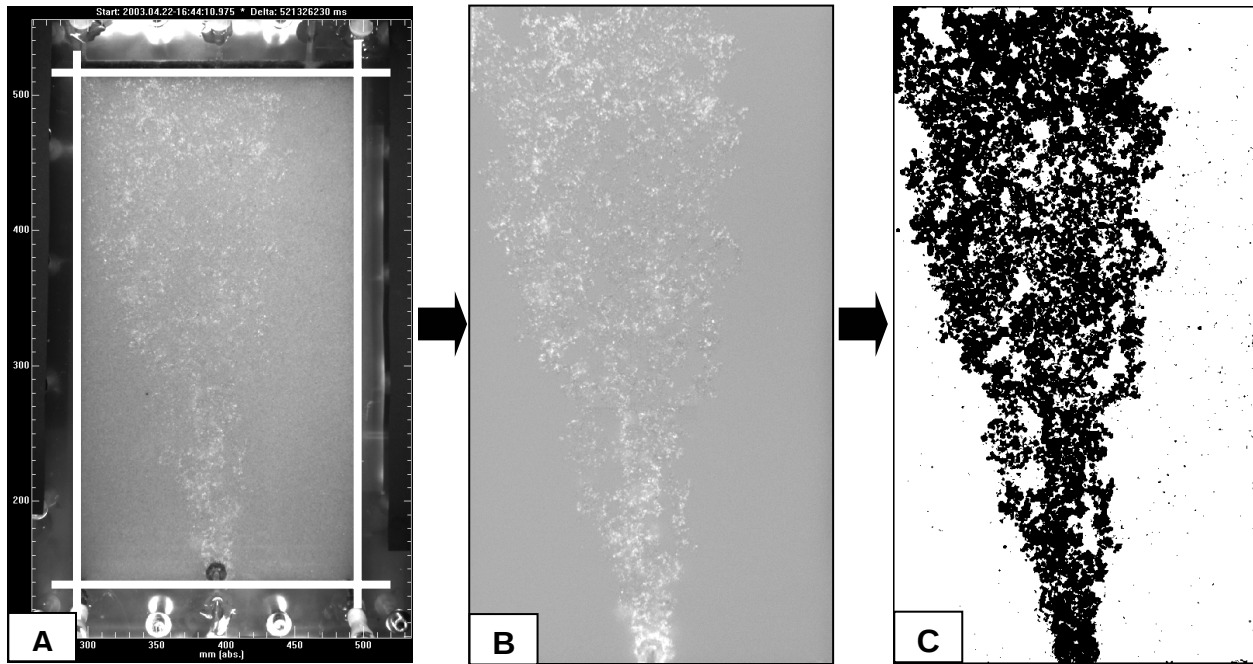


Fig. 2. Image Analyses for quantification of two-phase flow pattern: A) Original two-phase flow image; B) Difference image to fully water saturated condition ($V_{\text{air}} = 0$); C) Binary image of air phase (black) and water phase (white) within the pore space.

With this optical system multiphase flow processes can be investigated in *bench scale* (overview camera: model size up to 1 m) as well as in *pore scale* (detail camera: resolution $\sim 10 \mu\text{m}$) (Fig. 3).

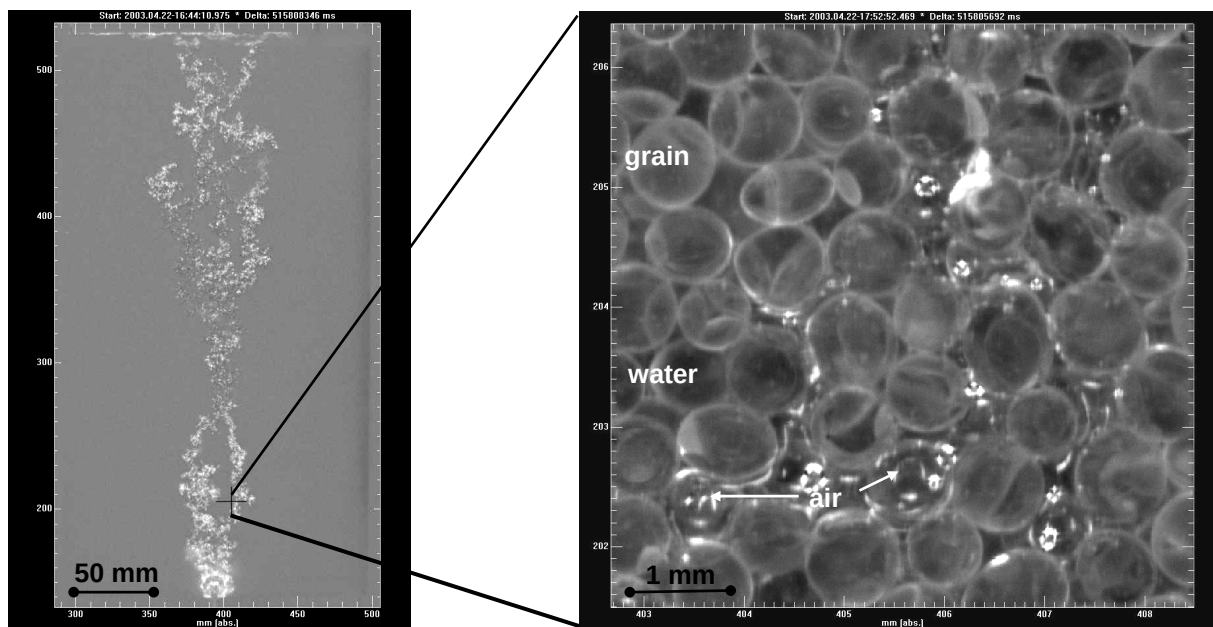


Fig. 3. Two-phase flow visualization at different scales: left) bench scale; right) pore scale.

During every experiment gas was injected into the porous medium with a constant flow rate. Gas entry pressure and displaced water volume were monitored. The temporarily and spatially change in gas phase distribution was filmed with the Multiphase Flow Simulator until steady state conditions were reached.

3. Results and Discussion

Figure 4 shows one typical experimental run for direct gas injection in spherical glass beads 0.75-1.00 mm. After overcoming the hydrostatic and capillary pressure air invaded the porous medium and a gas filled capillary network developed. After first steady state instabilities in the capillary network lead to the formation of new macroscopic gas channels. During gas channel formation a peak in the entry pressure curve (black) of approximately 6 mbar correlates with a step like increase of the dynamically trapped gas volume (grey curve) (Fig. 4). The picture on the right hand side in Fig. 4 shows the stable gas filled capillary network in steady state.

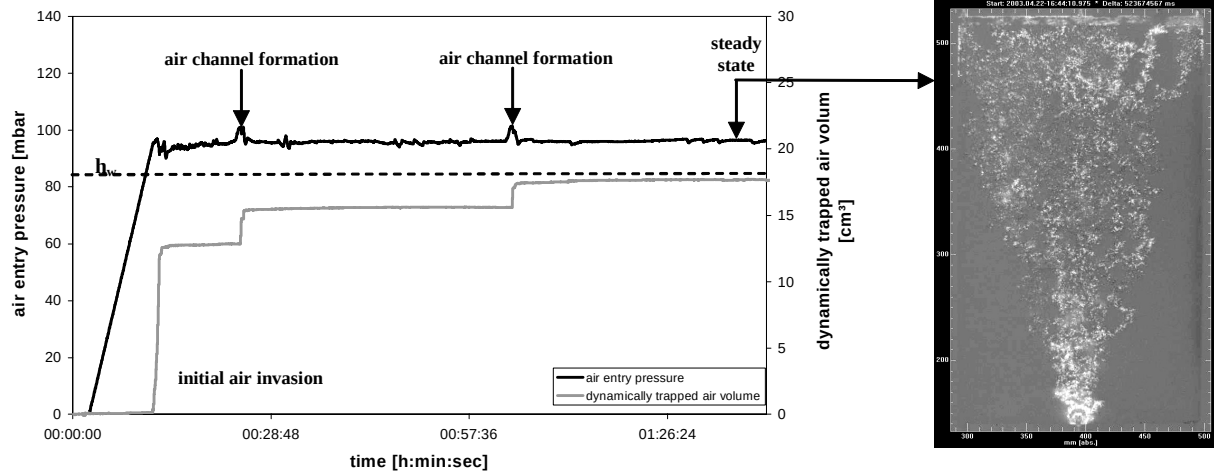


Fig. 4. Results of gas injection experiment within glass beads 0.75-1 mm.

Within a grain size of 0.75-1 mm transition of channelized flow to bubbly flow is expected. The gas flow is still dominated by capillary forces, so that gas phase transport will be realized within discrete channels in pore scale.

The observed flow patterns were characterized using the 'Modified-Bond-number concept' [1]. The dimensionless Bond-number compares the buoyancy forces to the capillary forces:

$$(1) \quad N_B = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot r^2}{\sigma}$$

($\Delta\rho$ = density difference between the gas phase and the water phase; σ = air-water-surface tension, g = gravitational acceleration, r = particle radius)

Capillary forces are dominant for $N_B < 1$ and buoyancy forces are dominant for $N_B > 1$. This definition compares buoyancy forces to capillary forces for a system characterized by a single spatial dimension. The pore neck r_c dimension will dictate the largest capillary pressure and the pore body r_b dimension will dictate the largest buoyancy force [1]:

$$(2) \quad N_B^* = \left(\frac{\Delta\rho \cdot g}{\sigma} \right) \left(\frac{r_b^3}{r_c} \right)$$

$$(3) \quad N_B^* = \frac{N_B}{\alpha} = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot r^2}{\sigma \cdot \alpha}$$

The ratio α of pore neck size to pore body size was estimated from experimental studies to be $\alpha \approx 0.05 \dots 0.5$ [1].

Figure 5 shows the observed gas flow pattern as a function of porous media size and there relation to the 'Modified-Bond number'. Grey points mark the gas flow pattern estimated with the Modified-Bond number within the presented experiments.

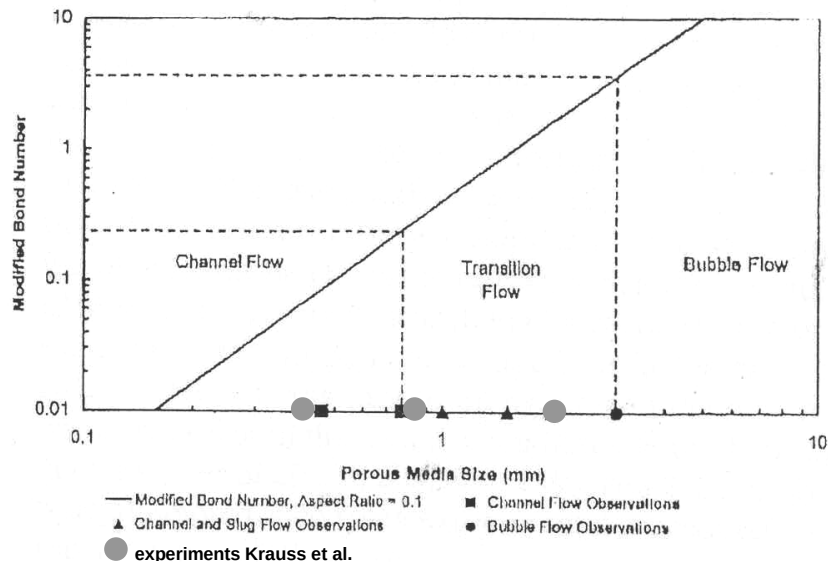


Fig. 5. Characterization of gas flow pattern using the Modified-Bond-number concept [1].

The results correlate well with the observations made by [1, 2, 3] and others. Following studies will investigate two-phase flow in natural sediments with heterogeneous grain size distributions. To realize natural lithostatic pressures the experimental setup allows us to compress the sediment within the flow tank. Studies will also include investigations of the two phase flow pattern with varying the orientation of the tank (vertical/horizontal) to study the influence of the buoyancy forces.

4. References

- [1] Brooks, M.C., Wise, W.R. and M.D. Annable (1999) "Fundamental changes in situ air sparging flow patterns", *Ground Water Monitoring and Remediation* 19 (2): 105-113.
- [2] Peterson, J.W., Lepczyk, P.A. and K.L. Lake (1999) "Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach", *Environmental Geology*, 38(1): 1-6.
- [3] Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D.P., Lin, J.D., and E. Hill III (1993) "Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization", *Ground Water Monitoring & Remediation*, 13(4): 115-126.
- [4] Marulanda, C., Culligan, P.J. and J.T. Germaine (2000) "Centrifuge modeling of air sparging- a study of air flow through saturated porous media", *Journal of Hazardous Materials*, 72: 179-215.
- [5] Lazik, D., Geistlinger, H., Krauss, G., Beckmann, A. and M. Schirmer (2002) „Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“, *GRUNDWASSER*, 3/2002: 146-155.

Direct Gas Injection into Saturated Glass Beads: Transition from Incoherent to Coherent Gas Flow Pattern

HELMUT GEISTLINGER, GUNNAR KRAUSS, DETLEF LAZIK, AND LUDWIG LUCKNER¹⁾

Department of Hydrogeology, UFZ Centre for Environmental Research Leipzig-Halle

¹⁾ DGFZ-Groundwater Research Centre of Dresden

Abstract

The transition from incoherent to coherent buoyancy-driven gas flow is investigated in 2-D tanks filled with glass beads using a high-resolution optical-gravimetric setup. Both a grain-size (d_k) and flow-rate (Q) dependent transition is observed in the gas flow pattern. Standard quasi-static criteria do not explain the experimental results, since they do not take into account the competition between stabilizing friction forces and destabilizing capillary and gravitational forces. Conceptualizing the steady-state tortuous gas flow as core-annulus flow and applying Hagen-Poiseuille flow for a straight capillary, we propose a flow-rate and grain-size dependent stability criterion that accounts for the experimental results and is used to classify the experiments in a d_k - Q -diagram.

Keywords: buoyancy-driven gas flow, 2-D visualization experiments, gas injection, incoherent gas flow, coherent gas flow, stability criterion

1. Introduction

[2] Efficient application of direct gas injection for stimulation of biodegradation processes of organic contaminants in the aquifer requires a detailed knowledge of the gas flow pattern and its dependency from sediment type and injection rate. Many experimental investigations using glass beads (Ji et al., 1993; Plummer et al., 1997; Roosevelt and Corapcioglu, 1998; Brooks et al., 1999; Elder and Benson, 1999), homogeneous natural sands (Brauns and Wehrle, 1989; Semer et al. 1998; Peterson et al., 1999), and macro-heterogeneous sands (Glass et al., 2000; Reddy and Adams, 2001; Peterson and Murray, 2003)

show a transition between coherent and incoherent gas flow in buoyancy driven systems (see Figure 1). This transition is dependent on the grain size distribution, packing density and injection rate.

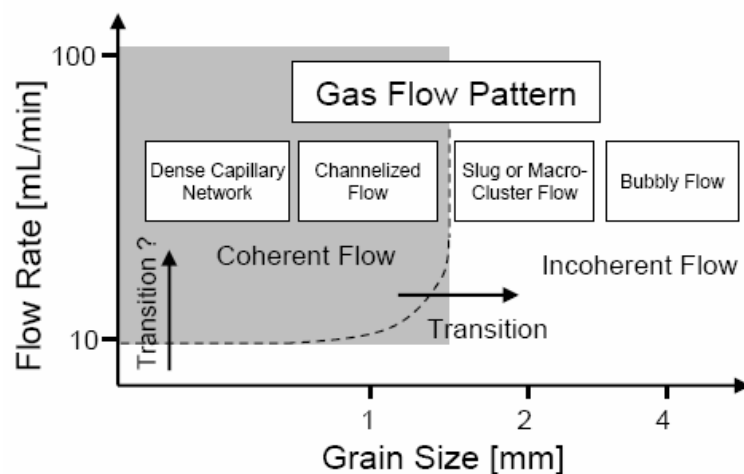


Figure 1 Classification of gas flow pattern dependent on grain size and flow rate.

[3] The term “coherent” gas flow denotes gas flow that is driven by an applied pressure gradient along a continuous or coherent gas phase, i.e. Darcy’s law or Hagen-Poiseuille’s law can be applied. “Incoherent” gas flow means, that the gas phase is discontinuously or incoherently distributed and that some of the gas clusters are trapped and some others move upwards depending on the competition between buoyancy and capillary forces. This is always the case in invasion percolation experiments (e.g. Frette et al., 1992; Chaouche et al., 1994; Hirsch et al., 1994), where a very low injection rate is applied, so that viscous forces can be neglected.

[4] Ji et al. (1993) conducted the first series of visualisation experiments using glass beads. They described gas flow pattern qualitatively as a function of grain size and classified them according to Figure 1. McCray and Falta (1997) conducted numerical simulations based on the continuum assumption and using the T2VOC-simulator. In the case of medium-grained beads with $d_k = 0.75$ mm and for moderate flow rates they obtained reasonable agreement between theory and experiment. However, the continuum approach failed to describe asymmetrical gas flow pattern that arise at low flow rates.

[5] Brooks et al. (1999) investigated gas flow where the glass beads had grain sizes ranging from 0.42 to 3 mm. For their smallest flow rate (20 mL/min), they observed coherent channel flow for fine sediments ($d_k = 0.42$ to 0.5 mm), but found incoherent slug and bubbly flow for coarser sediments. Thus, it can be assumed that a transition from coherent to incoherent gas flow occurs by increasing the gas flow rate for a given sediment as indicated in Figure 1. Other studies on homogeneous natural sands have established that the grain-size dependent transition from coherent to incoherent gas flow is in the range between 1 and 2 mm.

[6] As Figure 1 indicates, incoherent gas flow occurs for all grain sizes as Q approaches zero (quasi-static limit). There exist only a few experimental studies for very low injection rates. In fact in these cases (e.g. Frette et al., 1992; $Q = 0.03$ mL/min; Glass et al., 2000; $Q = 1.2$ mL/min) incoherent gas flow was observed.

[7] Summarizing then, past experimental results lead to our main hypothesis, namely, that there should exist a boundary (also denoted as “neutral curve”) within the d_k - Q -plane, indicated by the dashed line in Figure 1, that separates stable coherent from incoherent gas flow.

[8] Important characterizations and classifications of gas flow pattern, both quantitatively and analytically, were done by Morrow and Songkran (1981), Brooks et al. (1999), Clayton (1998), and Selker et al. (2005). Following Clayton (1998) pore scale channelling (in his work denoted as pore scale fingering) will be ubiquitous for direct gas injection and macro channels and pore channels are transitional expressions of similar behaviour, i.e. macro channels are probably best described as areas of dense concentration of pore channels. Gas channelling on different scales are shown in Fig. 2. It is important to distinguish between the system flow rate, Q , the macro channel flow rate, Q_{ch} , and the pore channel flow rate, Q_p . After each symmetrical branching the macro channel flow rate is reduced to the half of its previous value as indicated for the left macro channel in Fig. 2. According to Selker et al. (2005) in the far source region mechanical equilibrium between buoyancy, capillary and viscous forces

must hold for stable pore channels, i.e. a stable gas-water interface exists and the vertical gradient that drives the gas flow is given by the hydrostatic gradient.

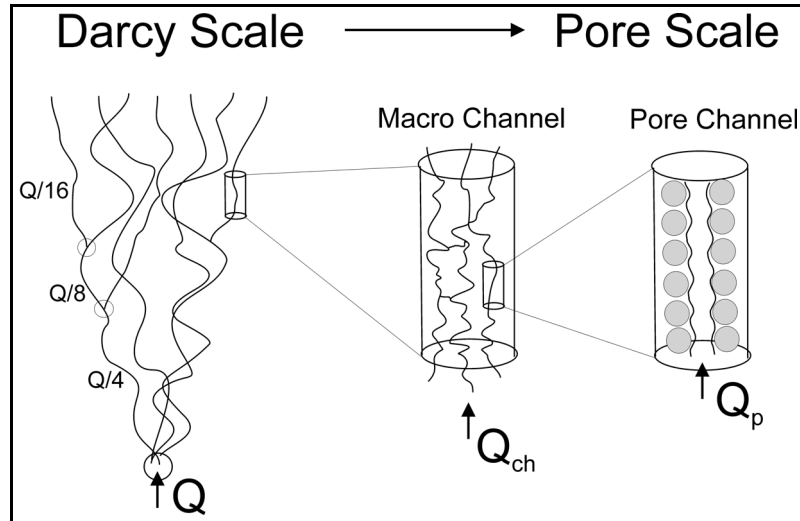


Figure 2 Channelized gas flow for point like gas injection on different scales.

[9] The standard conceptual models are mainly based on quasi-static arguments that are only valid in the limit $Q \rightarrow 0$, i.e. they can only describe the onset of bubbly flow as done by Brooks et al. (1999). Therefore these models do not describe the Q -dependent transition from incoherent to coherent channel flow because flow type is determined by the competition between stabilizing friction forces and destabilizing capillary and gravitational forces. As shown by Lenormand et al. (1988) and discussed by Dullien (1992), dynamical criteria have to be used in two-fluid flow characterization. In their classical paper Lenormand et al. (1988) classified the horizontal flow pattern within a Ca - M -diagram (Ca – capillary number, M – viscosity ratio of the two fluids). For buoyancy-driven flow the modified bond number (Brooks et al., 1999) has to be included.

[10] The objective of this paper is to contribute to the classification problem of buoyancy-driven immiscible two-fluid flow in porous media. We propose a stability or coherence criterion based on a dynamical capillary model. Using a 2-D-visualization setup consisting of two CCD-cameras combined with a gravimetric measurement setup, a series of point-like gas injection experiments were conducted for three different glass beads with grain sizes in the range of medium to coarse sand. The experimental flow pattern and flow characteristics were classified using the new conceptual model.

2. Methods and Materials

2.1 Optical-gravimetric Measurements

[11] Details of the experimental methodology and setup were described in detail in Krauss et al. (2005). A short overview of the experimental setup (shown in Fig. 3) is presented. The optical system consists of two CCD-cameras, one is used as an overview camera (Darcy scale) and the other as a detail camera (pore scale, resolution down to 10 microns). The flow module consists of a plexiglas tank (40 cm x 45 cm x 1.2 cm; thickness of the front and back plexiglas plates was 2 cm). The tank was illuminated by an

array of light emitting diodes (LED's; WU-7-750 SWC, Luminous Intensity 5.6 kmcd; Wustlich Opto-Electronic GmbH). The contact angle 'water-plexiglas' was experimentally determined and lies in the range of standard literature values of about $70^\circ - 78^\circ$ (see for instance van Pelt et al., 1985).

[12] The air flow rate was controlled by a mass flow controller (MFC 8712, $Q_g = 0.01 - 5 \text{ L/min} \pm 0.5\%$ from measure; Bürkert GmbH & Co. KG). Air entry pressure was measured at the injection point by a difference pressure transmitter (HCXM350D6V, $0 \dots 350 \text{ mbar} \pm 0.1\%$ from measure; Sensortech GmbH). For gas injection, a cylindrical diffuser (ID $\approx 5 \text{ mm}$) with openings diameter of about 1.5 mm was used. The total injection area at the sparge point was about 75 mm^2 . For fine sediments, high porosity non-woven material was added into the sparge point to prevent clogging. The gas injection point was placed 5 cm from the bottom of the tank.

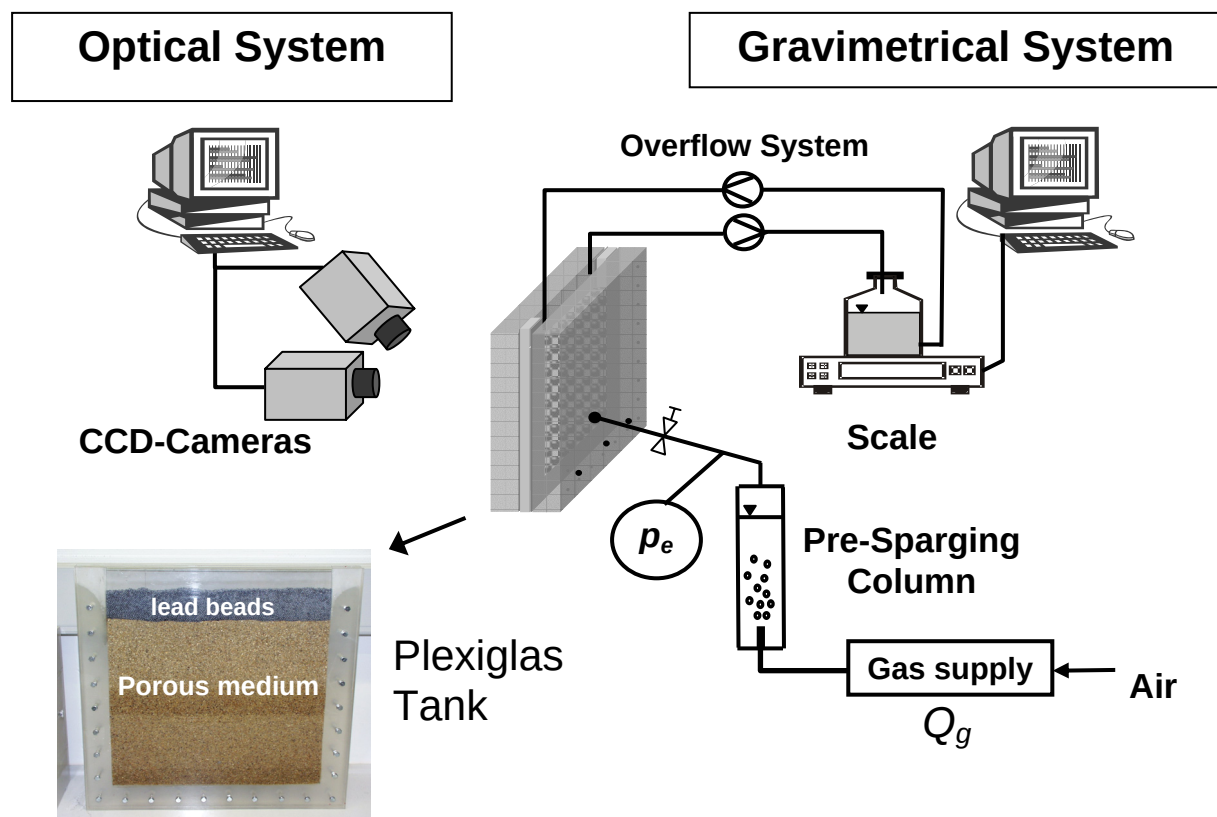


Figure 3 Experimental setup for gas flow visualization and gas phase quantification.

[13] During the experiment, the hydrostatic potential was kept constant. In order to achieve this an overflow system was used that maintained a constant water level by using two peristaltic pumps (MCP/ICP, $Q_{w,max} \approx 0 \dots 230 \text{ mL/min}$ per channel, Isamtec GmbH) calibrated at pre-defined hydrostatic levels. One pump sucks gas and water from the tank to the weighted bottle and the other re-inject water from the bottle into the tank. Since a pre-sparging column is used to saturate the air with water vapour, the gas volume of the column was compressed as long as the entry pressure for a certain glass beads

sediment (GBS) was reached. During this time interval, the gas volume within the tank is constant and an ideal gravimetric system should indicate no volume change.

[14] With a weighting system the displaced water mass was measured as an equivalent of the injected air volume according to

$$S_g(t) = \frac{V_g(t)}{V_p} = \frac{\Delta m_{out}(t)}{V_p \cdot \rho_w}, \quad \Delta m_{out}(t) = m_{out}(t) - m_{out}(t_0) \quad (1)$$

(t – time, S_g – gas saturation, V_g – gas volume, V_p – pore volume, ρ_w – density of water, m_{out} – water mass at the outflow). The mean gravimetrically measured S_g -values are used for calibration the optically measured S_g -values (for details see Lazik et al., 2005).

[15] In the following, the oscillating behaviour of the air entry pressure is used as an indicator for incoherent flow. Therefore, it is important to estimate the errors due to the dynamic weighing system. Assuming a realistic error of about 1 cm³ water volume and taking into account the tank dimensions and the constant hydrostatic potential of 37 cm-WC, gives a pressure error of 0.021 mbar. That is about 1% of the averaged pressure amplitude measured for the coarse sediment and shown in Figure 10.

[16] All experimental data were stored for post-processing automatically using data acquisition software DASyLabV6.0. For image processing the following software was used: UTHSCSA ImageTool_v3.00 (by D. Wilcox, B. Dove, D. McDavid, D. Grier; University of Texas Health Science Centre) and IMAGEJ 1.33x (Wayne Rasband; National Institute of Health; free download from <http://rsb.info.nih.gov/ij/>).

2.2 Characterization of Glass Beads Sediments

[17] For the injection experiments three different glass beads (Carl Roth GmbH + Co KG) were used to represent medium to coarse grain sizes, where each glass beads is characterized by a certain size interval, namely, 0.25 - 0.5 mm, 0.75 – 1.0 mm, and 2.0 – 2.2 mm, denoted in the following as 0.5mm, 1mm, and 2mm-GBS. The GBS had a density of about 2.45 g/cm³, a packing density of 1.51 g/cm³ for the 0.5mm- and 2mm-GBS and 1.57 g/cm³ for the 1mm-GBS, respectively, with corresponding porosities of 0.36 and 0.39. In preparation of the 2-D tanks the glass beads were cleaned with acetone and water and dried at 105 °C. The dry glass beads were packed into the tank in 1 – 2 cm-layer. In order to achieve a high packing density, a small hammer was used to tap the tank after each layer was applied. The packing density of regular, equal-sized glass beads can vary between the loosest cubic packing (coordination number 6, porosity $\phi = 0.4764$, see Figure 4A and the densest, cubic-face-centred packing (coordination number 12, porosity $\phi = 0.2595$, see Figure 4B (DULLIEN, 1992):

- | | |
|-------------------------------|--------------------------|
| 1. very loose random packing: | $\phi = 0.44$, |
| 2. loose random packing: | $\phi = 0.40 - 0.41$, |
| 3. poured random packing: | $\phi = 0.375 - 0.391$, |
| 4. close random packing: | $\phi = 0.359 - 0.375$. |

An empirical relationship between porosity and coordination number Z for random packed spheres is given by Sahimi (1995):

$$\phi = 0.0043\langle Z \rangle^2 - 0.1193\langle Z \rangle + 1.072 \quad (2)$$

and used for calculating the coordination number 8.7 for the 0.5mm- and 2mm-GBS and 8.1 for 1mm-GBS.

The minimal and maximal pore channel diameter $d_{k,min}$ and $d_{k,max}$ for a equal-sized GBS are after Busch et al. (1993):

$$d_{k,min} = \xi_{min} \cdot d_k = (0.155 \dots 0.414)d_k \quad (3a)$$

$$d_{k,max} = \xi_{max} \cdot d_k = (0.458 \dots 0.732)d_k, \quad (3b)$$

where ξ_{min} and ξ_{max} are the dimensionless diameters in units of d_k , and the values in brackets correspond to cubic-face-centered and simple cubic coordination, respectively.

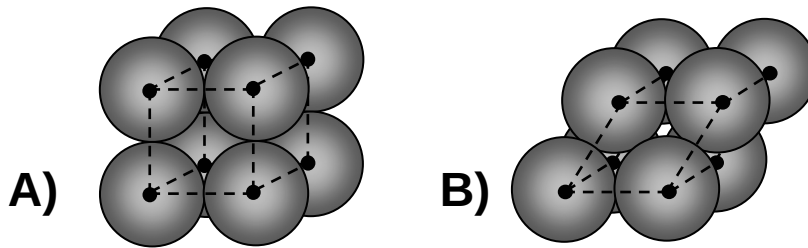


Figure 4 Coordination of equal-sized glass beads: A) Simple cubic coordinated, B) Cubic face-centred coordinated.

Using linear extrapolation one obtains ξ_{min} between 0.30 and 0.33, and ξ_{max} between 0.61 and 0.64 for $Z = 8.7$ and 8.1, respectively.

[18] An important parameter that determines the flow pattern is the aspect ratio

$$a = \frac{\xi_{min}}{\xi_{max}} \quad (3c)$$

that can vary between 0.34 and 0.57 from cubic-face-centered to simple cubic coordination and varies in our cases between 0.49 ... 0.51. Another useful parameter is the radius of a “mean” capillary defined as follows:

$$R_c = 0.25 \cdot (\xi_{min} + \xi_{max}) \cdot d_k. \quad (3d)$$

All relevant geometric parameters of the three different GBS are listed in Table 1.

Table 1 Geometric parameters, theoretical and experimental capillary pressures, and critical flow rates.

Sediment name	0.5mm-GBS	1mm-GBS	2mm-GBS
Averaged d_k [mm]	0.375	0.875	2.1
¹⁾ $d_{k,min}$ [mm]	0.11	0.28	0.60
²⁾ $d_{k,max}$ [mm]	0.23	0.56	1.3
³⁾ R_c [mm]	0.085	0.21	0.48
⁴⁾ $p_{c,1}$ [mbar]	8.5	3.4	⁵⁾ 3.0
⁶⁾ $p_{c,2}$ [mbar]	12.9	5.1	⁵⁾ 4.6
⁷⁾ $p_{c,3}$ [mbar]	16.9	6.8	3.0
$p_{c,exp}$ [mbar]	15.9	8.0	3.2
⁸⁾ Q_{crit} [mL/min]	0.1 - 0.6	4.7 - 22	110 - 594

¹⁾ Calculated according to Equ.(3a).

²⁾ Calculated according to Equ.(3b).

³⁾ Calculated according to Equ.(3d).

⁴⁾ Capillary pressure calculated according to Equ. (4) with $R_1 = R_c$ and $R_2 = \infty$.

⁵⁾ According to the conceptual model (Fig. 8C) p_c has to be calculated with the double curvature.

⁶⁾ Capillary pressure calculated according to Equ. (4) with $R_1 = d_{k,min}/2$ and $R_2 = \infty$.

⁷⁾ Capillary pressure calculated according to Equ. (4) with $R_1 = R_2 = R_c$.

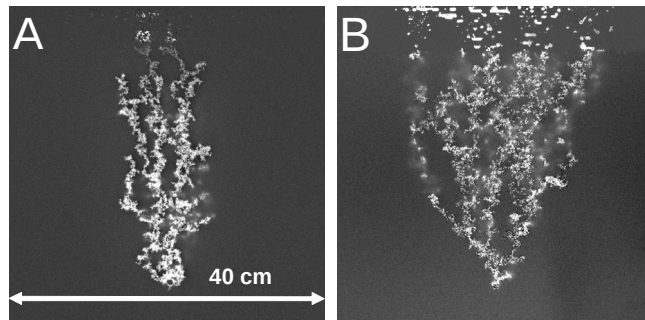
⁸⁾ The critical flow rate Q_{crit} is calculated for $d_{k,min}/2$ and R_c .

3. Discussion of Visualization Experiments at low Injection Rate of $Q = 10$ mL/min

[19] All experiments were conducted under no bulk water flow. Compressed air was injected with a constant flow rate of about $Q = 10$ mL/min (0.5mm-GBS: $Q = 10.18 \pm 0.24$ mL/min, 1mm-GBS: $Q = 9.51 \pm 0.39$ mL/min, 2mm-GBS: $Q = 10.22 \pm 0.34$ mL/min) and the resulting air entry pressure $p_e(t)$ and the gas volume $V_g(t)$ were measured.

[20] For the discussion of the gas flow pattern one has to distinguish between the transient drainage phase – during which gas displaces water – and a steady-state phase after the gas breakthrough. All presented pictures are referenced to the water-saturated state ($Q = 0$, $S_g = 0$).

[21] First, we discuss the flow pattern, the temporal behaviour of the entry pressure and the gas volume



for the 0.5mm- and 1mm-GBS, respectively. The steady-state gas flow pattern for the 0.5mm-GBS and 1mmGBS are shown in Figure 5 based on a calibrated grey scale. Both sediments show similar channel like gas flow pattern.

Figure 5 Channel-like, steady-state gas flow pattern: A) 0.5mm-GBS and B) 1mm-GBS.

In case of 0.5mm-GBS both the steady-state entry pressure and steady-state gas volume are reached after about 1000 seconds as can be seen from Figures 6 and 7. An initial pressure peak is observed (Fig. 6) for all sediments due to the drainage of water.

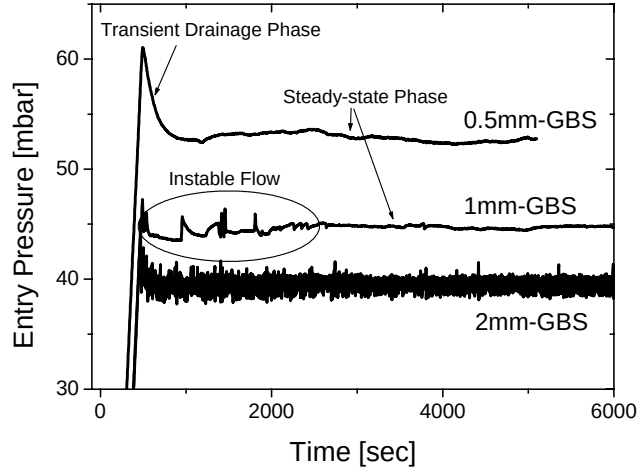


Figure 6 Entry pressure versus time for three different GBS.

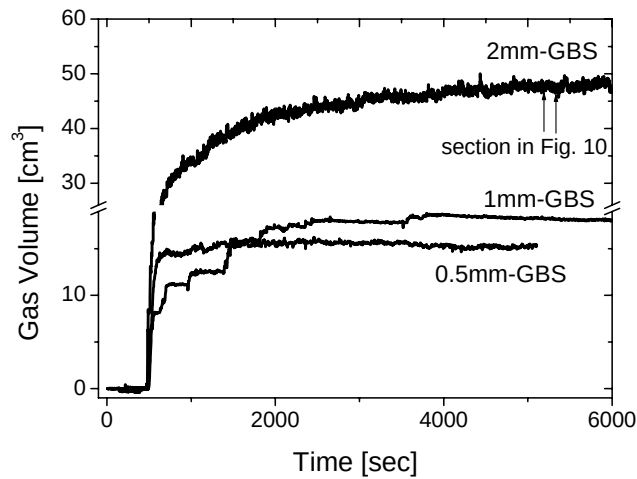


Figure 7 Gravimetrically measured gas volume versus time: A) 0.5mm-GBS, B) 1mm-GBS, and C) 2mm-GBS.

[22] Next, we discuss the gas flow characteristics of the 2mm-GBS. The strong fluctuations or oscillations of the entry pressure and the gas volume that are shown in Fig. 6 and in Fig. 7, respectively, and also in a higher time resolution in Fig. 10 indicate incoherent gas flow for the 2mm-GBS. In the following we prefer the term ‘oscillation’, since the behaviour is more periodic than random (see also Glass et al., 2000). In order to understand the incoherent flow behaviour we analysed the temporal development of the gas flow pattern shown in Figure 8. The first picture (Figure 8A) was taken shortly after gas breakthrough at $t = 33$ s. The second picture was taken after a quasi-steady-state gas phase distribution was established at $t = 6000$ s. The term “quasi-steady-state” relates to the time average over many oscillations. Figure 8C shows the difference picture between two subsequent gas phase distributions in the quasi-steady-state state. Any new structure that develops during that time $\Delta t = 1$ s is indicated by the

difference picture. The new gas cluster shown in Figure 8C is further experimental proof for the incoherent pulsating character of the gas flow. Note that for a strict steady-state gas phase distribution the difference picture should be homogeneous grey, i.e. without any structural difference. This was the case for the 0.5mm- and 1mm-GBS (difference pictures are not presented).

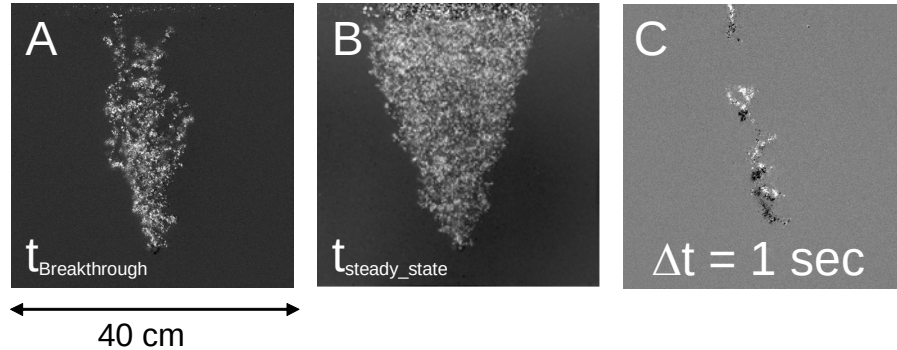


Figure 8 Gas flow pattern for the 2mm-GBS at different times: A) shortly after gas breakthrough, B) steady-state, and C) difference picture for two subsequent times ($\Delta t = 1$ s) in the quasi-steady-state state.

[23] Because of these flow instabilities and due to the high symmetry of the glass beads sediments, new channels can be explored after “snap-off”. To a certain degree, this happens also in the transition region, i.e. for the 1mm-GBS. These “symmetrical instabilities” lead to the unexpected behaviour that the gas volume is higher in the coarser sediment, which is more unstable with respect to the gas flow pattern (see Fig. 7).

4. Conceptual Models

4.1. Pore Scale Models

[24] The pore scale model approximates gas flow through an undulating stream tube or capillary (above also as pore channel denoted; compare with Fig. 2). The main arguments on stable undulating interfaces are taken from stability analysis of two-fluid core-annulus flow discussed in Joseph and Renardy (1993). The coherent gas flow pattern in the transient state and steady state of the 0.5mm- and 1.0mm-GBS are conceptualized in Fig. 9A and Fig. 9B, and for incoherent gas flow of the 2mm-GBS in Fig. 9C.

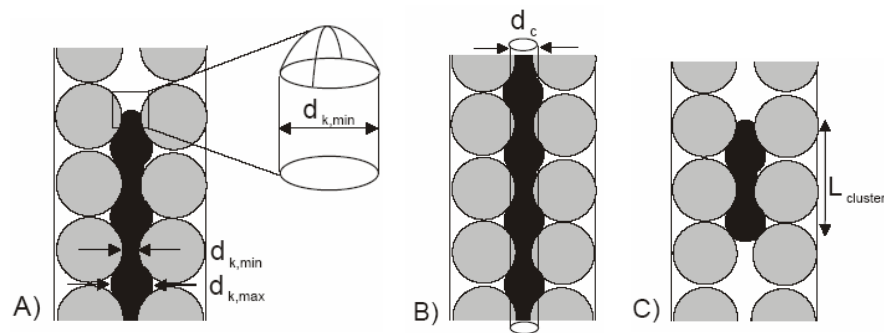


Figure 9 Conceptual capillary model: A) Drainage: Transient coherent gas flow. The capillary pressure is given by the curvature of the moving front. B) Steady-state coherent gas flow in a periodic undulating capillary. C) Incoherent gas flow due to up moving gas clusters.

[25] In order to derive the conceptual model for incoherent macro-cluster gas flow, it is necessary to discuss the correlations between the gas volume- and entry pressure oscillations shown in Fig. 10. We start at the minimum pressure indicated by point 1 in Fig. 10 and note that the gas volume in the pre-sparging column has to be compressed until the pressure overcomes the entry pressure at the sparging point, given by the hydrostatic and capillary pressure. This maximum pressure is indicated by point 2. The gas cluster will increase until “snap-off” occurs, i.e. up to the maximum gas volume indicated by point 3. In the case of quasi-steady-state flow, i.e. the sediment has trapped its maximum gas volume so that no additional trapping is possible, the gas cluster moves up $\sim 37\text{cm}$ in 3 sec corresponding to a rough macro-cluster velocity of about 12 cm/s . A more detailed time series analysis will be published in the near future by Lazik et al. Incoherent gas transport via macro-bubbles was also studied by Roosevelt and Corapcioglu (1998), both experimentally and theoretically. Their experimental macro-bubble velocity of about 15 cm/s lies below the theoretical limit velocity of 18 cm/s and the bubble velocity in bulk of about 20 cm/s .

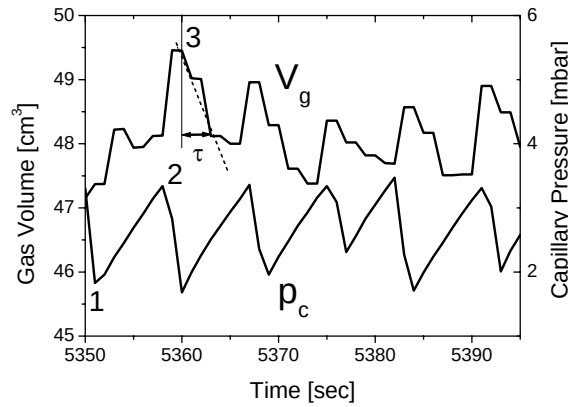


Figure 10 Oscillations of the capillary pressure ($p_c = p_e - p_w$) and the gas volume V_g for the 2mm-GBS.

4.2. Quasi-static Models

[26] The onset of bubbly flow is calculated from the force balance of a trapped gas bubble (see for instance Brooks et al., 1999). To calculate the capillary force, assume that the glass spheres are covered by a thin water film (contact angle $\theta \approx 0^\circ$), so that the Laplace pressure is obtained from the excess free energy of the curved interface

$$p_c = \sigma \cdot H = \sigma \cdot \left(\frac{1}{R_1} \pm \frac{1}{R_2} \right), \quad (4)$$

where σ is the interface tension, and H is the curvature of the interface and R_1, R_2 are the radii of principal directions. Note that for a spherical interface $H = 2/R$ is twice the curvature of a cylindrical interface $H = 1/R$. While the zero-contact-angle hypothesis is open to question, there is a strong experimental evidence that for silica based sediments the water covers the surface completely (see for instance Busch et al., 1993).

[27] Taking into account that $d_{k,min}$ shown in Fig. 11 determines the critical capillary force:

$$F_c = 2\pi \cdot \sigma \cdot R_{k,min}, \quad (5a)$$

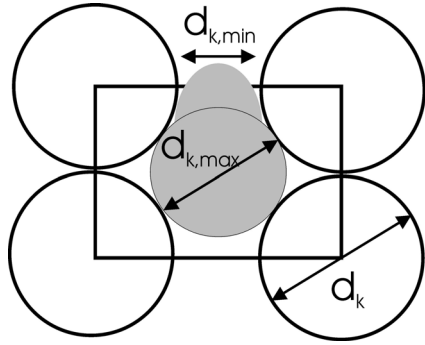
which has to be overcome by the buoyancy force:

$$F_b = \frac{4}{3}\pi \cdot R_{k,max}^3 \cdot \Delta\rho \cdot g, \quad (5b)$$

one obtains for the critical grain diameter at which bubbly flow occurs:

$$d_{k,crit} = \sqrt{\frac{6\sigma \cdot a}{\xi_{max}^2 \cdot \Delta\rho \cdot g}} \cong 8mm, \quad (5c)$$

where the dimensionless channel diameters and the aspect ratio were introduced via Eqs. (3a) – (3c) (g –



acceleration of gravity, $\Delta\rho$ – density difference between the two fluids; in our case: $\Delta\rho \cong \rho_w$). The given numerical value corresponds to the aspect ratio for $Z = 8.7$. Experiments for GBS indicate an onset for bubbly flow at $d_k = 4$ mm (Ji et al., 1992) and at $d_k = 3$ mm (Brooks et al., 1999), respectively. Thus, the simple quasi-static criterion gives too large of a critical grain size diameter and cannot explain the experimental observations.

Figure 11 Trapped gas bubble (grey) in simple-cubic coordinated glass beads. The square represents the diagonal cross section through the unit cell shown in Fig. 3A).

[28] Another more realistic quasi-static criterion for isolated gas bubbles or clusters takes into account the hydrostatic pressure drop over such a cluster (see Fig. 9C). From the condition, that the gas pressure must be constant within the coherent gas cluster one obtains the following critical cluster length, at which the cluster overcomes the capillary force at its top and moves upwards:

$$L_{cluster} = \frac{(p_{c,max} - p_{c,min})}{\Delta\rho \cdot g} = \frac{4\sigma}{\Delta\rho \cdot g \cdot d_k} \left(\frac{1}{\xi_{min}} - \frac{1}{\xi_{max}} \right), \quad (6)$$

where $p_{c,max}$ is the capillary pressure at the top and $p_{c,min}$ at the bottom of the cluster. Expression (6) yields for $d_k = 3$ mm a cluster length of 5.5 mm, and for $d_k = 4$ mm for a cluster length of 4.1 mm, respectively. Thus, the cluster length is of the order of the grain size and the apparent flow pattern observed in bubbly flow.

[29] The next issue is to find under what condition “snap-off” occurs during the transient drainage phase. Consider the moving front of a vertical gas-filled capillary (Fig. 9A) using the well-accepted conceptual model of a periodic stick-and-ball capillary (Dullien, 1992), the flow becomes instable and “snap-off” should occur if the pressure at z_2 (neck pressure) acting on the gas-water interface (capillary pressure + hydrostatic pressure) from outside is greater than the gas pressure at z_1 (see Figure 12):

$$p_{c,2} - p_{c,1} + \Delta\rho \cdot g(z_2 - z_1) > 0. \quad (7a)$$

The physical condition (7a) leads to the following dimensionless instability condition assuming $z_2 - z_1 \approx d_k$:

$$\frac{2}{\xi_{\max}} \left(\frac{1}{a} - 2 \right) + Bo > 0, \quad (7b)$$

where $Bo = \Delta\rho \cdot g d_k^2 / \sigma$ is the bond number. Calculating the left hand side of Equation 7b, yields for all GBS positive values (0.07 for 0.5mm-GBS; 0.06 for 1mm-GBS; and 0.7 for 2mm-GBS). Therefore the quasi-static instability condition (7b) is independent of the flow rate for all GBS incoherent gas flow, contrary to the experimental observations.

[30] Note that the aspect ratio for cubic-face-centered coordination is 0.34 and for the unrealistic simple-cubic coordination 0.56. Assuming that the relationship (2) between porosity and coordination is valid, then buoyancy driven gas flow pattern should be unstable for equal-sized closed randomly packed GBS, i.e. for $\phi < 0.375$ (all experiments quoted from the literature satisfy this condition) in the limit $Q \rightarrow 0$. This statement is supported by the experimental results obtained by Frette et al. (1992) for very small $Q = 0.03$ mL/min and equal-sized plexiglas grains ($\phi = 0.34$, cylindrical grains with diameter and length of 2mm). The sediment was saturated with dibutyl-phtalate and the density of the infiltrating water was varied by changing its sucrose content. Therefore, buoyancy driven flow could be investigated within a bond number range between 0.0046 and 0.4. In all cases unstable flow was observed in agreement with the instability condition (7b).

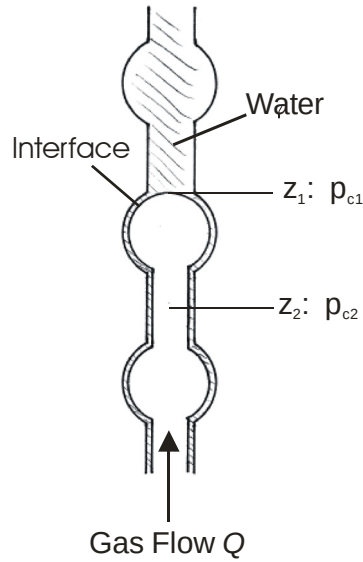


Figure 12 Quasi-static motion ($Q \rightarrow 0$) of a pore-scale finger during drainage for a stick-and-ball capillary after Dullien (1992).

4.3. Dynamic Capillary Model

[31] The following considerations assume that the steady-state tortuous gas flow is a core-annulus flow, where the annular fluid is slow moving water and the core fluid is the rapidly moving gas. The gas stream follows a tortuous pathway searching in each pore for pathways of minimal free energy. Such a stable

undulating capillary is shown in Fig. 9B, where d_c denotes the diameter of the mean flat capillary, and where the z -dependent gas pressure along such a capillary is given by the sum of the capillary and hydrostatic pressure. The amplitudes of the undulating capillary in the pore region should be smaller than $d_{k,\max}/2$, because the main part of the pore water is not moved by gas-water friction.

[32] Mathematically, the undulating interface can be expressed as a Fourier sum:

$$R(z) = R_c + \sum_{q \neq 0} a_q \exp(iqz) = R_c + \frac{(d_{k,\max} - d_{k,\min})}{4} \cdot \sin\left[\frac{\pi \cdot z}{d_k}\right]. \quad (8)$$

where the last equation in (8) defines the special single-wavelength case with maximal possible amplitudes: $a_q \neq 0$ only for $q = \pi/d_k$, and where R_c denotes the radius of the flat capillary. Comparing the surface free energy between an undulating (F_u) and a flat capillary (F_0), with the same volume yields the free energy difference, following Safran (1994)

$$\Delta F = F_u - F_0 \approx \sigma \cdot 2\pi R_c \cdot \sum_{q \neq 0} \frac{|a_q|^2}{2R_c^2} (q^2 R_c^2 - 1). \quad (9)$$

Hence, the flat capillary becomes instable for long-wavelength oscillations: $qR_c < 1$, i.e. for wave lengths $\lambda > 2\pi R_c \approx \pi d_k/2$. This capillary instability is called the Rayleigh instability and is well known in two-fluid dynamics. The physical reason for this is that the system tries to minimize the excess surface free energy by searching for geometries with a minimal interface-volume ratio, e.g. isolated spheres. A rigorous quantitative description of the core-annulus-flow based on linear stability analysis is provided by Joseph and Renardy (1993). The case of horizontal flow (neglecting gravitational forces) yields the well-known long-wavelength instability. For vertical flow, the capillary instability is amplified by the gravitational force. To the authors knowledge, all stability analyses were done for straight capillaries or parallel plates. Unfortunately, there are no exact results for curved geometries, e.g. stick-and-ball capillaries. Therefore, a semi-quantitative argument based on Hagen-Poiseuille flow for a straight capillary is developed here.

[33] From the exact results for straight capillaries, it follows that only frictional forces will eliminate the instability driven by capillary and gravitational forces. Such a dynamic model can account for this competition between destabilizing and stabilizing forces (see Fig. 13). Assuming Hagen-Poiseuille flow, the rate- and radius-dependent friction force that acts on a small water element is

$$F_f = \frac{8\mu_g Q_p}{R_c^2} \cdot \Delta x, \quad (10)$$

where μ_g is the dynamical viscosity of the gas phase. Hence, for thick capillaries (coarse sediments) and small flow rates, the stabilizing friction force is not large enough and incoherent gas flow will occur. Increasing the flow rate can lead to the Q -dependent transition from incoherent to coherent flow indicated in Figure 1. Decreasing the mean capillary radius will increase the friction force and therefore a d_k -dependent transition from incoherent to coherent gas flow can occur.

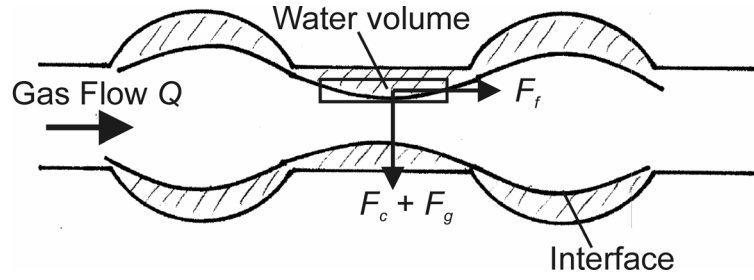


Figure 13 Destabilizing capillary force F_c and gravitational force F_g and stabilizing friction force F_f acting on a small water volume (rectangular section) in a horizontal section of a stick-and-ball capillary.

Optimal Capillary Radius

[34] The free energy of the system, F , consists of the excess surface free energy, E_c , and the frictional energy, E_f . Since the thermodynamic system minimizes its free energy the optimal capillary radius is determined by the following condition:

$$\begin{aligned} \delta F &= \delta E_c + \delta E_f = \frac{\partial E_c}{\partial R_c} \cdot \delta R_c + \frac{\partial E_f}{\partial R_c} \cdot \delta R_c = \\ &= \sigma \cdot 2\pi \cdot L \cdot \delta R_c - \frac{16\mu_g Q_p \cdot L^2}{R_c^3} \cdot \delta R_c = 0 \end{aligned} \quad (11a)$$

$$R_{c,opt} = 2 \cdot \sqrt[3]{\frac{Q_p \cdot L \cdot \mu_g}{\pi \cdot \sigma}}, \quad (11b)$$

where L is some characteristic length of the capillary and Q_p is the pore channel flow rate shown in Fig. 2. Thus, for a given constant flow rate the system “searches” for optimal capillaries with the radius given by (11b). Note that (11b) gives only an estimate of the optimal capillary radius, since gravitational forces were not considered in the energy balance. Furthermore, Equ. (11b) can be used in order to estimate the coherence length for pore channel flow: For instance assuming buoyant flow (gas flow is driven by the hydrostatic gradient) over a vertical distance of 1 m, the optimal pore channel diameter becomes 7 μm , i.e. it is unstable against fluctuations due to pore level heterogeneity. Therefore, it is rather likely that snap-off occurs after a coherence length of 1 m.

Stability or Coherence Condition

[35] In the case of vertical steady-state flow, the necessary local stability condition is

$$Q_{crit} = \frac{\pi \Delta \rho \cdot g}{8\mu_g} \cdot R_c^4. \quad (12)$$

The physical meaning of (12) is that only when the flow rate within a capillary is larger than Q_{crit} will the mechanical equilibrium at the gas water interface be maintained. Put differently, only if this condition is satisfied can a coherent flow exist.

5. Discussion

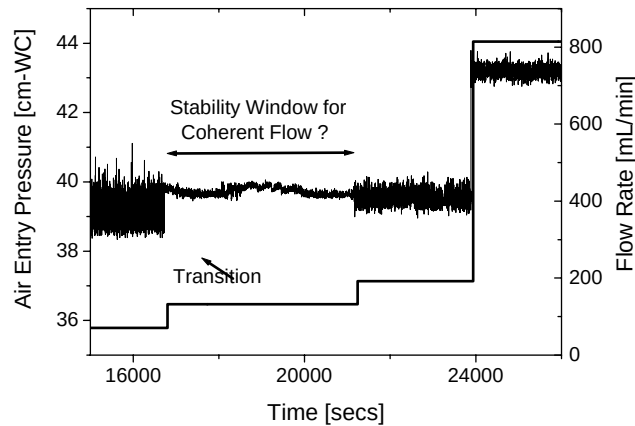
5.1 Capillary Pressure

[36] Subtracting the hydrostatic pressure from the steady-state value of the air entry pressure (see Fig. 6) yields the experimental capillary pressure $p_{c,exp}$ listed in Table 1. Calculation of the capillary pressure involves distinguishing between steady-state coherent and quasi-steady-state incoherent gas flow. Consider first the coherent case. The capillary pressure is determined by some characteristic curvature along the stable undulating interface shown in Fig. 9B. Calculating the capillary pressure for the flat capillary leads to too small a theoretical value, listed in Table 1 as p_{c1} . Using the $d_{k,min}$ -value yields the p_{c2} -values which improves the agreement but these values are still too small, both for the 0.5mm- and 1mm-GBS. The best agreement is achieved by taking into account the undulating character of the interface, and calculating the capillary pressure p_{c3} in the pore space region, where the curvature is approximated by $2/R_c$. This supports the undulating capillary model with amplitudes smaller than $d_{k,max}/2$ (see discussion in Sec. 4.3.).

[37] In case of incoherent gas flow, the capillary pressure oscillates between 2 and 3.2 mbar as shown in Figure 10. According to the model shown in Fig. 9C, the capillary pressure at the top of the gas cluster determines the maximum capillary pressure. Using the $d_{k,min}$ -value gives too large a capillary pressure value of 4.6 mbar, suggesting that the theoretical $d_{k,min}$ -values are unlikely to be realized in the 2mm-GBS. Using the averaged value R_c gives a more realistic value of 3.0 mbar. Before calculating the minimal value, we emphasize that after “snap-off” occurs, the measured entry pressure is given by the sediment environment near the sparging element. Since the sparging element possesses a flat interface the coordination of adjacent grains must be simple cubic. Using $d_{k,max}$ for simple-cubic coordination yields a minimal capillary pressure of 1.9 mbar that is in good agreement with the experimental one.

5.2 Coherence Condition for three Glass Beads Sediments

[38] Using the stability criterion (12) and the mean characteristic radii as upper limit and $d_{k,min}/2$ as lower limit, we obtain the range for the critical flow rate for each sediment listed in Table 1. For the 2mm-GBS



the theoretical lower limit rate is 110 mL/min which is significantly larger than the experimental flow rate of 10 mL/min. This strongly suggests incoherent flow. Increasing the flow rate to 130 mL/min leads to the expected transition from incoherent to coherent flow indicated by the stable entry pressure shown in Fig. 14.

Figure 14 Air entry pressure (oscillating curves, left y-axes) and corresponding flow rate (step-like solid line, right y-axes) over time for the 2mm-GBS.

[39] The other extreme case is the 0.5mm-GBS, where the upper limit for the critical flow rate is 0.6 mL/min listed in Table 1. Considering Fig. 5A one can see nearly the same number of channel split-offs and channel-recombinations, thus only 2 – 3 macro channels breach the water surface. Assuming that each of them consists of 3 – 5 pore channels as shown in Fig. 2 (usual assumption, see Glass et al., 2000) stable flow is still maintained according to stability condition (12).

[40] For the 1mm-GBS the theoretical stability condition yields a range of critical flow rates between 5 and 22 mL/min, which covers the experimental flow rate. Therefore some transition behaviour is expected for this case. This is observed in the transient phase shown in Fig. 6 by an ellipse. In this transient phase (0 – 15 s) an oscillating behaviour similar to that in the 2mm-GBS is observed. It is reasonable to conclude that the system explores many different capillary pathways leading to “snap-offs” after a certain relaxation time. However, the system searches for its minimal free energy during this instable phase (15 – 2500 s) by cutting off unfavourable flow channels and exploring new channels. Since drainage of water causes a higher pressure, pressure peaks can be observed as shown in Fig. 6, which have the same order of magnitude as the initial pressure peak. This instable phase is the physical reason for the unexpected behaviour, namely, that the steady-state gas saturation is higher than those of the finer 0.5mm-GBS (see discussion above in Sec. 3).

[41] To further establish if the stability criterion could be used for classification of dynamical gas flow patterns, a second series of experiments were conducted:

i) mixed GBS, grain size: 0.25 – 2.2 mm; ii) natural sand, grain size: 1.6 – 2 mm; iii) natural sand, grain size: 0.6 – 2 mm; iv) natural sand, grain size: 0.2 – 0.6 mm.

For mixed-sized sediments, the simple min-max estimation of the capillary diameter using Equ. (3) is not possible. However, the model and the stability criterion should still be valid and can be used for classification purposes. The results will be discussed in a forthcoming paper (Krauss et al.).

[42] The main conclusion that follows from these experimental results is that increasing the flow rate for a certain sediment size to a critical threshold will lead to coherent flow pattern. All experiments that have been conducted are shown in Figure 15, where the glass beads are represented by circles and the natural sands by triangles. Furthermore, we have included in this Figure the experimental results from Frette et al. (1992), Ji et al. (1993), Brooks et al. (1999), and Glass et al. (2000), where the very small flow rate of 0.03 mL/min is not scaled to the flow axes. The x-axes give the main grain size diameter and the min/max-values of the grain size are indicated in the Figure. According to the results of this paper, incoherent flow behaviour arise at small flow rates and transition to coherent flow with increasing flow rate. This is supported by experiments presented here and experiments from literature for grain sizes up to a critical value of about 2 mm. This behaviour for the 2mm-GBS and for the 1.6/2mm-coarse sand is shown in Fig. 15. On the other hand, the mixed sized GBS ($d_k = 0.3 - 2$ mm) exhibit coherent flow at the lowest flow rate of 10 mL/min indicating that the arithmetic mean of the grain size diameter is not a good measure to estimate the effective channel diameter. Thus, in further studies, other algorithms, e.g. the

Pencenkin algorithm (see Busch et al., 1993), have to be applied for estimating $d_{k,min}$ and $d_{k,max}$ for mixed-sized sediments.

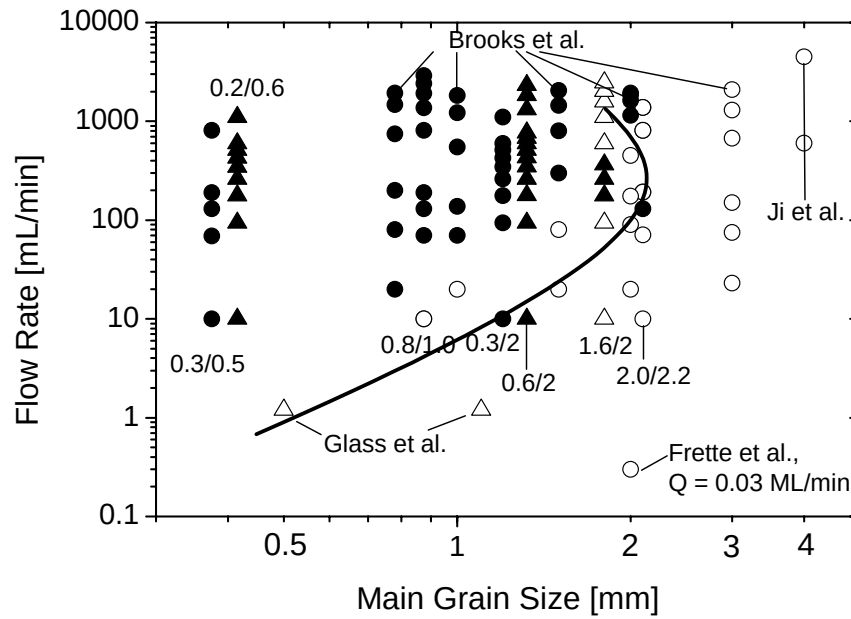


Figure 15 Classification of coherent (solid black symbols) and incoherent (white symbols) gas flow. The grain size interval min/max-values (in mm) are also indicated. Glass beads are represented by circles and natural sands by triangles.

[43] The region between 2 and 3mm grain size is discussed in the literature (see Brooks et al. (1999)) as a transition region, where channelized flow turns into bubbly flow. From the results presented here, macro-clusters (denoted also as ‘slugs’ by Brooks et al. (1999)) and bubbles are both incoherent flow pattern. Hence, increasing the flow in this regime should lead to a transition from incoherent bubbly flow to coherent channel flow. Estimating ξ_{min} and ξ_{max} via Eqn. (2, 3a, 3b) and R_c via Equ. (3d) and applying the min-max stability condition (12) to the 1-D column experiments of Brooks et al. (1999) (GBS: $d_k = 3$ mm, $Q_{max} = 2100$ mL/min) and to the 2-D tank experiments of Ji et al. (1992) (GBS: $d_k = 4$ mm, $Q_{max} = 4500$ mL/min), leads to critical flow ranges of 500 ... 2500 mL/min and 1500 ... 7900 mL/min, respectively. Thus, it is likely that a transition behaviour, which is similar to that of the 1mm-GBS should occur. In both series of experiments such transition behaviour was not observed. It is likely that for larger grain sizes this kind of transition does not exist due to turbulent disturbances, since the friction forces stabilize the channelized flow only in the laminar region.

[44] As discussed by Joseph and Renardy (1993), a neutral curve divides the regions of coherent and incoherent flow as indicated by the thick solid line in Fig. 15. This neutral curve indicates a transition region between black and white symbols up to a critical grain size of about 2 mm and a wide range of flow rates. A stability window may well exist for grain sizes near the critical grains size (as shown in Figure 14) because of this concave curvature.

[45] For low flow rates, buoyancy drives the flow so that it is always incoherent. This leads to a number of interesting dynamical phenomena that can be only explained at a pore-scale level. Glass et al. (2000) described these phenomena for macro-heterogeneous sediments consisting of an alternating structure in order from below to above: coarse sand, medium sand, and so on, where the transitions represent capillary barriers (CB). The authors characterize the flow dynamics from injection point to CB2 as follows: *“In general, the gravity-destabilizing finger growth mode occurs in all units until a CB is encountered. Once encountered, CBs then cause gravity-stabilized pool growth behind the CB until they are breached. During this mode the earlier gravity-driven fingering is partially or in some cases completely “overwritten” by the backward growing horizontal front.”* (quoted from Glass et al. 2000).

[46] The most surprising feature is a backward moving gas front for buoyancy driven flow. To understand this one first has to classify the flow pattern. The term “gravity-stabilized” growth as opposite to “gravity-destabilized” growth is misleading, suggesting that gravity forces act against flow instabilities and thereby leading to gravitationally induced transition from unstable to stable flow. Incoherent flow should arise in the experiments due to the critical flow rates in the medium and coarse grain sizes for a flow rate of 1.2 mL/min in both sediments. Thus, after the flow channel has encountered CB2 through incoherent macro-cluster flow, the same gas-filling effects should take place as shown in Fig. 7B. Because of the capillary barrier, CB2 prevents the gas from escaping into the next higher coarse sand layer. The result is a gas-filling effect that goes backwards and leads to an apparent backward moving gas front.

5.3. Characteristic Length Scales

[47] The question that arises is how to describe the incoherent flow process? Since the flow is not able to maintain stable capillaries, the gas cluster grows as long as the “snap-off” occurs. Such a gas cluster is shown in Fig. 9C. The cluster moves upwards as the curvatures at the top of the gas front becomes $2/R_{k,min}$ shown in Fig. 8A. Only a $R_{k,min}$ smaller than the initial one can trap the gas cluster again, provided that volume expansion can be neglected. Upon recombination with another gas cluster the critical cluster length is again reached and the aggregated cluster moves upwards. If there exist enough other trapped gas clusters so that any chosen pathway within the highly symmetrical pore leads to further recombination, then a quasi-steady state may be reached. Trapping by smaller $R_{k,min}$ ’s is rather unlikely. Consequently, the gas clusters can quickly move upwards over a length scale of many centimetres. These jumps of macro-clusters leads to the non-monotonic pulsation behaviour often described in literature and is shown by the difference picture in Fig. 8C.

[48] The characteristic cluster length can be calculated by the condition that the gas pressure at the cluster top is equal to the gas pressure at the cluster bottom (see Fig. 9C). Evaluating expression (6) and using the averaged experimental $p_{c,max}$ - and $p_{c,min}$ -values from Fig. 10 yields a characteristic cluster length of 1.3 cm for the 2mm-GBS. As mentioned before ‘blowing-up’ and ‘snap-off’ of such gas clusters at the injection point cause the pressure oscillations shown in Figure 10.

[49] Since the fundamental work of Brooks et al. (1999) that clearly recognized the transition behaviour and that

“All of the observed patterns had a minimal transverse dimension of several grain diameters. A multipore analysis may therefore seem more appropriate than single-pore analysis presented earlier.”

different authors emphasize the “universal” channel-like flow pattern, and try to estimate the length scale of the macro channel diameter by semi-quantitative arguments (see for instance Clayton (1998), Elder and Benson (1999), Glass et al. (2000), Selker et al. (2005)), although the channel diameter is difficult to measure due to the random displacement processes at the pore scale. Glass et al. (2000) estimates the channel diameter via a formula obtained from dimensional analysis balancing local differential pressures due to capillary, gravitational, and viscous forces:

$$L_c = \frac{p_{c,\min} - p_{c,\max}}{\Delta\rho \cdot g - \frac{Q_{ch} \cdot \mu}{k_{ch} \cdot A_{ch}}}, \quad (13)$$

where Darcy’s law was applied to a macro channel (index ‘ch’) with a permeability k , a channel cross section A_{ch} , a dynamic viscosity μ for the invading fluid, and $\Delta\rho$ the density difference between fluids. The theoretical channel diameter for the CO₂-case and for a very low flow rate of 1.2 mL/min obtained from (13) lies between 6 and 7 mm. This is consistent with the experimental values from Elder and Benson (1999) that lie between 3 and 8 mm for high flow rates between 350 and 17000 mL/min. Selker et al. (2005) found an experimental value for the macro channel diameter of 8 mm and argue that Equation (5c), which gives excellent agreement to their experiments, can be applied. Our rough estimate for a channel diameter in the 1mm-GBS yields 6.5 ± 2.2 mm for $Q = 10$ mL/min. Further theoretical efforts are necessary to understand this apparent rate-independent channel diameter.

6. Conclusions

[50] The main conclusion to be drawn from our experimental results and theoretical studies is that increasing the flow rate for a certain sediment size to a critical threshold will lead to coherent flow pattern. The proposed pore scale model approximates gas flow through variable diameter pore channel and accounts for the stabilizing viscous forces in contrast to the standard Bond number models in literature. The model was successful applied to direct gas injection experiments using saturated equal-sized glass beads, i.e. it describes the grain-size and flow-rate dependent transition in the gas flow pattern. However, the model should still be valid in case of natural sands and can be used for classification purposes. Further research is needed, in order to provide good estimates for the key model parameters: pore channel diameter and aspect ratio.

[51] Based on the pore scale model we classify experimental results into coherent and incoherent gas flow shown in Fig. 15. This Figure can be used as a prediction chart, i.e. which flow type can be expected for certain injection conditions.

[52] For direct gas injection into artificial and natural sediments the presented results have important implications:

- High injection rates: Most of the direct gas injection experiments are conducted for high flow rates, typically in the range of 1000 mL/min. In some distance from the injection point the coherent macro channel flow is purely buoyant and can be described by Darcy's law. As stated by Selker et al. (2005) the observed main features of the flow pattern in the far source region are apparently flow-rate independent (universal channel diameter, parabolic geometry).
- Low injection rates: On the other side invasion percolation experiments are conducted under very low flow rates, in order to guarantee that viscous forces can be neglected. The resulting flow pattern are incoherent.
- Coherence length: For practical application of direct gas injection it is important to understand the transition from coherent channelized flow to incoherent flow. It is likely that under field conditions this transition will occur, since very long macro channels become unstable after a certain number of split-offs (see Figure 2), i.e. after a certain coherence length. Furthermore, very long pore channels become unstable as can be concluded from Equ.(11b).
- High efficiency of direct gas injection: In order to transport gas to a certain aquifer region, coherent gas flow should be used. On the other hand to establish a high gas saturation in a certain aquifer region incoherent gas flow is more efficient than coherent flow as shown in Fig. 7. In order to control the injection process, one needs some predictive tools for estimating the vertical and horizontal coherence length. The pore scale model could provide first estimates.

[53] As emphasized by many authors, most of the experimental results are controlled at the pore scale. Therefore continuum models must fail in describing the following phenomena of buoyancy-driven flow, especially at low flow rates. These models do not describe

- Transition from coherent to incoherent gas flow
- Incoherent transport via macro-clusters
- Symmetrical instabilities lead to high residual gas saturations
- Asymmetrical coherent flow pattern for point-like gas injection at low flow rates.

Discrete models could be a promising alternative in describing these phenomena, however it is not clear how to include core-annulus flow, since these models conceptualize gas-water flow as piston-like flow.

Notation

a	$= \xi_{min} / \xi_{max}$, aspect ratio
Bo	$= \Delta\rho \cdot g d_k^2 / \sigma$, bond number
Ca	$= u \cdot \mu / \sigma$, capillary number
$d_{k,min}$	minimal pore diameter, defined through sphere models, m
$d_{k,max}$	minimal pore diameter, defined through sphere models, m
d_c	diameter of the mean flat capillary, m
d_k	grain size diameter, m
g	earth acceleration, equal to 9.81 m s^{-2}
k_f	hydraulic conductivity, m s^{-1}
p_c	capillary pressure, Pa
p_g	gas phase pressure, Pa
p_w	water phase pressure, Pa
Q	volume flow rate, $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$
u	mean gas phase velocity, m s^{-1}
R_c	radius of the mean flat capillary, m
S_g	gas saturation

Greek symbols

ϕ	porosity
μ_w	dynamical viscosity of the water phase, Pa s
μ_g	dynamical viscosity of the gas phase, Pa s
ρ_w	water phase density, kg m^{-3}
ρ_g	gas phase density, kg m^{-3}
$\Delta\rho$	$= \rho_w - \rho_g$, density difference, kg m^{-3}
σ	interface tension, N m^{-1}
ξ_{min}	$= d_{k,min} / d_k$
ξ_{max}	$= d_{k,max} / d_k$

Acknowledgements

This work was funded by the German Federal Ministry of Research and Technology and is part of the SAFIRA-project. The authors would like to thank Prof. F. Häfner, Institute of Drilling Engineering and Fluid Mining, Technical University Freiberg, for critical discussion and valuable hints.

References

- Brauns, J., and K. Wehrle (1989), Untersuchung der Drucklufteinblasung in die gesättigte Bodenzone (In-situ-Strippen)-Modellversuche, Abschlußbericht zum Forschungs-vorhaben (AZ: 12/0415.1) der Landesanstalt für Umweltschutz B.-W., pp. 56, Karlsruhe.
- Brooks, M. C., Wise, W. R., and M. D. Annable (1999), Fundamental changes in situ air sparging flow patterns, *Ground Water Monitoring and Remediation*, 19(2), 105-113.
- Busch, K.-F., Luckner, L., and K. Tiemer (1993), Geohydraulik - Lehrbuch der Hydrogeologie, *Lehrbuch der Hydrogeologie Bd. 3*, Gebrüder Bornträger Verlag, Berlin-Stuttgart.
- Chaouche, M., N. Rakotomalala, D. Salin, B. Xu, and Y.C. Yortsos (1994) Invasion percolation in a hydrostatic or permeability gradient: experiments and simulations. *Phys. Rev. E*, 49(5), 4133-4139.
- Clayton, W. S. (1998), Field and laboratory investigation of air fingering during air sparging. *Ground Water Monitoring and Remediation*, 18(3), 134-145.
- Corapcioglu, M. Y., Cihan, A., and M. Drazanovic (2004), Rise velocity of an air bubble in porous media: Theoretical studies, *Water Resources Research*, 40(4),
- Dullien, F. A. L. (1992), *Porous Media - Fluid Transport and Pore Structure*. Academic Press, INC.
- Elder, C. R. and C. H. Benson (1999), Air channel formation, size, spacing, and tortuosity during air sparging, *Ground Water Monit. Rem.*, 19(3), 171-181.
- Frette, V.J., J. Feder, T. Jossang, P. Meakin, and K.J. Maloy (1994), Fast immiscible fluid-fluid displacement in three-dimensional porous media at finite viscosity contrast, *Phys. Rev. Lett.*, 68(21), 3164 – 3167.
- Glass, R. J., S. H. Conrad, and W. Peplinski (2000), Gravity-destabilized nonwetting phase invasion in macroheterogeneous porous media: Experimental observations of invasion dynamics and scale analysis, *Water Resources Research*, 36(11), 3121-3137.
- Hirsch, L.M. and A.H. Thompson (1994), Size-dependent scaling of capillary invasion including buoyancy and pore size distribution effects. *Phys. Rev. E*, 50(3), 2069-2086.
- Ji, W., A. Dahmani, D. P. Ahlfeld, J. D. Lin, and E. Hill (1993), Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization, *Ground Water Monitoring and Remediation*, 13(4), 115-126.
- Joseph, D. D., and Y. Y. Renardy (1993): *Fundamentals of Two-Fluid Dynamics. Part II: Lubricated Transport, Drops and Miscible Liquids.*- Springer Verlag New York, *Interdisciplinary Applied Mathematics Series vol. 4*.
- Krauss, G., H. Geistlinger, and D. Lazik (2005), Gas/water-phase displacement dynamics in porous media: A bench-scale study, *Water Resour. Res.*, in revision.
- Lazik, D., Krauss, and H. Geistlinger (2005), Time series analyses of gas-bubble residence time in porous media, submitted to *Water Resour. Res.*
- Lenormand, R., Touboul, E., and C. Zarcone (1988), Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media. *J. Fluid Mech.*, 189, 165-187.
- McCray, J.E., and R.W. Falta, *Ground Water* 35 1 1997 99–110.
- Morrow, N. R. and B. Songkran (1981), Effect of viscous and buoyancy forces on nonwetting phase trapping in porous media, In: Shah, D.O. (Editor), *Surface Phenomena in Enhanced Oil Recovery*, Plenum, New York, 387-411.
- Peterson, J. W., Lepczyk, P. A., and K. L. Lake (1999), Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach, *Environmental Geology*, 38 (1): 1-6.
- Peterson, J. W. and K. S. Murray (2003), Grain-size heterogeneity and subsurface stratification in air sparging of dissolved-phase contamination: Laboratory experiments-field implications, *Environmental & Engineering Geoscience*, 9(1), 71-82.
- Plummer, C. R., Nelson, J. D., and G. S. Zumwalt (1997), Horizontal and vertical well comparison for in situ air sparging, *Ground Water Monitoring and Remediation*, 17(1), 91-96.
- Reddy, K. R. and J. A. Adams (2001), Effects of soil heterogeneity on airflow patterns and hydrocarbon removal, *J. Geotech. Geoenviron. Eng.*, 127(3), 234-247.
- Roosevelt, S. E. and M. Y. Corapcioglu (1998), Air bubble migration in a granular porous medium: Experimental studies, *Water Resources Research*, 34(5), 1131-1142.

- Safran, S.A. (1994), Statistical Thermodynamics of Surfaces, Interfaces, and Membranes, pp. 270, Addison-Wesley, New York.
- Sahimi, M. (1995), Flow and Transport in Porous Media and Fractured Rock, pp. 482, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim.
- Semer, R., Adams, J. A., and K. R. Reddy (1998), Experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging, *Geotech. Geol. Eng.*, 16(1), 59-75.
- Selker, J. S., M. Niemet, N. G. McDuffie, S. M. Gorelick, J. Y. Parlange (2005) The Local Geometry of Gas Injection into Saturated Homogeneous Porous Media, *Transport in Porous Media*, in press.
- van Pelt, A. W. J., Weerkamp, A. H., Uyen, M. H. W. J. C., Busscher, H. J., de Jong, H. P., and J. Arends (1985), Adhesion of *Streptococcus sanguis* CH3 to Polymers with Different Surface free energies, *Applied and Environmental Microbiology*, 49(5), 1270-1275.

Gas/water-phase displacement dynamics in porous media: A bench-scale study

GUNNAR KRAUSS, HELMUT GEISTLINGER, AND DETLEF LAZIK

Department of Hydrogeology, UFZ-Centre for Environmental Research Leipzig-Halle in the Helmholtz Association, Halle, Germany

Abstract

We visualized and quantified transient and steady state gas phase movement and distributions in glass beads (0.25-0.50; 0.75-1.00; 2.0-2.2; 0.25-2.2 mm). Experiments, conducted in a high-resolution optical-gravimetric setup, were performed with low gas injection rates of 10 cm³/min that were step-wise increased. A high-flux overflow and weighting system was developed to quantify the gas phase volume trapped in unconfined porous media models. The highest amount of gas phase volume was trapped in fine gravel, where isolated gas clusters were immobilized homogeneously in the pore space. Fluctuations of gas volume and gas entry pressure indicated incoherent gas movement in porous media with mean grain diameters larger than 1 mm. With increasing gas injection rate a flow rate-dependent transition from incoherent to coherent flow within coarse sand was observed and, with exception of the fine gravel, the coherent gas flow regime was found to be in agreement with Darcy's law. In contrast to low injection rates, for a high initial gas injection rate, fine-grained porous media (e.g. medium sand) show an extended gas-affected area whereas in coarser-grained media (e.g. coarse sand, fine gravel) a reduced one was observed.

Keywords: visualization, gas injection, airflow rate, saturation, glass beads, Darcy's law

1. Introduction

The injection of gases into the subsurface (e.g. air sparging) is a widely practiced remediation technology when targeting the treatment of hydrocarbon-impacted aquifers. This technology has been used in the treatment of sites contaminated with BTEX [e.g., *Johnston et al.*, 1998; *Murray et al.*, 2000; *Kirtland et al.*, 2001; *Johnston et al.*, 2002; *Lee et al.*, 2002], chlorinated hydrocarbons [TCE, *Rabideau et al.*, 1999] or other constituents of gasoline or fuels [MTBE, *Salanitro et al.*, 2000]. A clear understanding of the flow behavior of the injected gas is essential to optimize the design of injection process, to minimize costs and to maximize the success of the remediation procedure.

Beside site geology and contaminant characteristics, air injection rate plays a major role in technology design and remediation success in the field. Low injection rates can restrict the zone influenced by air to a few channels near the injection point [e.g., *Ji et al.*, 1993; *Brooks et al.*, 1999]. High injection rates can extend the area influenced by air [e.g., *Peterson et al.*, 1999; *Rogers and Ong*, 2000], and can be used to create hydraulic flow barriers [*Dror et al.*, 2004]. On the other hand, high injection rates hold the risk to spread contaminants in formerly uncontaminated zones, and can lead to the rearrangement or fracturing of the sediment matrix [*Lundegard and Anderson*, 1996; *Tsai and Lin*, 2004]. For instance in the case of bio sparging, where oxygen should be provided only in the contaminated aquifer-zone, an adequate air injection rate has to be chosen.

To obtain insights into the mechanisms controlling air flow and distribution in porous media under different injection conditions, laboratory visualization experiments (column/tanks) are usually conducted [e.g., *Ji et al.*, 1993; *Roosevelt and Corapcioglu*, 1998; *Brooks et al.*, 1999; *Peterson et al.*, 1999, 2001; *Dror et al.*, 2004; *Selker et al.*, 2005]. Optical visualization studies aimed at a qualitative [e.g., *Ji et al.*, 1993] or semi-quantitative [e.g., *Brooks et al.*, 1999; *Peterson et al.*, 1999] description of phase displacement-mechanisms for stationary air flow pattern as a function of porous media size. These investigations indicated a transition in flow regimes between incoherent bubbly flow (in porous media with grain diameter $d_g > 4$ mm) and coherent channelized flow (in porous media with $d_g < 0.75$ mm) at a mean grain diameter of $d_g \sim 2$ mm [e.g., *Ji et al.*, 1993; *Brooks et al.*, 1999, *Peterson et al.*, 1999]. (Note: the terms ‘coherent/incoherent’ are used synonymously to ‘continuously/discontinuously’). However, visualization combined with quantitative analyses of transient and stationary gas phase movement have been lacking in most of these studies.

The majority of bench-scale injection experiments reported in the literature was controlled based on air injection rate Q_{inj} . Experimental bench-scale studies of gas injection in porous media with low gas flow rates (i.e. $Q_{inj} < 100$ mL/min) are scarce [e.g., *Brooks et al.*, 1999; *Glass et al.* 2000], although there is a great demand to study these flow regimes. At low flow rates micro-scale air channeling is more prevalent. Thus, the continuum assumption required for multiphase flow models may not be valid under low-flow conditions [*McCray*, 2000].

Conceptual models of air injection in porous media were proposed by *Johnson et al.* [1993], *Ahlfeld et al.* [1994] or *Johnson et al.* [2001]. All these conceptualizations emphasize the complexity of the processes. Air injection in water-saturated porous media consists of a number of sequential stages, i.e. (1) initial gas entry and drainage of the near-injection area, (2) transient development of the gas-filled capillary network and breakthrough in the unsaturated zone, (3) stationary flow pattern and (4) entrapment of residual gas phase after injection shutdown.

Based on a high-resolution optical-gravimetric measuring setup, our study focuses quantitative investigations of the dynamics of gas/water-phase displacement depending on porous media size and gas injection mode. The main objectives of this experimental research were the: *i)* highly resolved visualization/quantification of transient/steady state sub-processes of gas injection; *ii)* classification of gas flow pattern for low gas flow rates (quasi-static conditions); *iii)* classification of gas flow pattern within one grain size as a function of gas injection rate (Darcy’s-law); *iiii)* characterization of the influence of changing the initial gas injection rate on the zone of influence.

2. Theory and experimental setup

2.1. Conceptual model

Depending on the geometry of the pore space and the flow rate, gas flow can be coherent or incoherent. Buoyancy-driven incoherent flow means that the gas phase flows discontinuously as macro-bubbles [e.g. *Ji et al.*, 1993; *Roosevelt and Corapcioglu*, 1998] or micro-bubbles [e.g. *Wan et al.*, 2001] with a

characteristic length (coherence length) [e.g. *Geistlinger et al.*, 2006] smaller than the observed flow path. Coherent gas flow denotes gas flow that is driven by an applied pressure gradient along a continuous gas phase (the coherence length has to be larger than the observation length of the flow path). Therefore, gas flow pattern are characterized by macroscopically branched gas channels or in fine-grained porous media by dense distributions of pore-scale fingers [e.g. *Chen et al.*, 1996; *Clayton*, 1998].

To divide gas flow pattern into buoyancy-driven and capillary-force-controlled flow regimes based on the pore-space geometry usually the dimensionless Bond-number $Bo = F_B / F_C$ is used [e.g. *Morrow and Songkran*, 1981; *Brooks et al.*, 1999]. The quasi-static Bo -model takes not into account the viscous forces and should therefore only applied for low gas injection rates $Q_{inj} \rightarrow 0$ [*Geistlinger et al.*, 2006]. A trapped gas bubble will tend to rise due to the buoyancy force F_B . To escape through the pore throat, F_B has to overcome the capillary force F_C of the gas-water-solid interface at the pore throat. For $Bo = 1$ one expects a transition between the flow pattern.

If $r_{g,max}$ [mm] and $r_{g,min}$ [mm] are the radii of spheres which fit the pore body or pore throat respectively, the equilibrium between F_B and $(F_{C,throat} - F_{C,body})$ is expressed by:

$$F_B = \frac{(\rho_w - \rho_g) g \frac{4}{3} r_{g,max}^3}{r_{g,min}^2} = \Delta F_C = \frac{1}{r_{g,min}} - \frac{1}{r_{g,max}} 2\sigma \cos \alpha \quad (1)$$

(acceleration of gravity $g = 9.81 \text{ m/s}^2$; density difference between water- and gas-phase $\rho_w - \rho_g = 1000 \text{ kg/m}^3$; surface tension $\sigma(20^\circ\text{C}) = 72.7 \cdot 10^{-3} \text{ N/m}$).

For spherical glass beads like used in this study, the minimal and maximal pore channel radii $r_{g,min}$ and $r_{g,max}$ can be expressed by

$$r_{g,max} = \xi_{max} r_g = (0.458 \dots 0.732) r_g, \quad (2)$$

and

$$r_{g,min} = \xi_{min} r_g = (0.155 \dots 0.414) r_g. \quad (3)$$

where ξ_{min} and ξ_{max} are the dimensionless radii in units of r_g (grain radii), and the values in brackets correspond to cubic-face-centered and simple cubic grain coordination, respectively [see e.g. *Geistlinger et al.*, 2006].

The critical grain diameter

$$d_{g,crit} = \sqrt{\frac{6\xi_{min}\sigma_w \cos \theta}{(\rho_w - \rho_g) g \xi_{max}^3} \left(1 - \frac{\xi_{min}}{\xi_{max}}\right)} \quad (4)$$

for dividing the flow pattern ($Bo=1$) is $d_{g,crit} = (4.5 \dots 6.8) \text{ mm}$ for a contact angle $\theta = 0^\circ$, and for $\theta = 30^\circ$ follows only a slightly different range of $d_{g,crit} = (4.2 \dots 6.4) \text{ mm}$, respectively. From the geometrical point of view, one expects the transition between coherent gas flow (capillary fingering) and the onset of incoherent bubble flow (buoyancy-driven) for spherical glass beads at a grain size of $d_g \sim 6$

mm. Thus, the simple quasi-static criterion based on the *Bo*-model gives a too large critical grain size diameter and cannot be used to explain our experimental observations .

In fine-grained sediments, a gas bubble could only overcome the pore throat if the bubble size increases the space formed by a single pore body. If the pressure p_b [kPa] inside the bubble of the height h_c is given by

$$p_b = (\rho_w - \rho_g) g h_c + \frac{2\sigma \cos \theta}{r_{g,\max}}, \quad (5)$$

the force equilibrium for F_B and $(F_{C,\text{throat}} - F_{C,\text{body}})$ for the pore throat is given by

$$2\pi r_{g,\min} \sigma \cos \theta = \pi r_{g,\min}^2 p_b, \quad (6)$$

and the critical coherence length is found to be:

$$h_c = \frac{2\sigma \cos \theta}{(\rho_w - \rho_g) g r_g} \left(\frac{1}{\xi_{\min}} - \frac{1}{\xi_{\max}} \right). \quad (7)$$

For $d_g \sim 1$ mm, h_c ranges from ~ 30 – 120 mm ($\theta = 0^\circ$) and 25 – 100 mm ($\theta = 30^\circ$).

Inside of capillary-force-dominated flow pattern, pore-scale or capillary fingering occurs [e.g. Clayton, 1998]. Assuming the gas flux Q_g (term is used equivalent to the gas injection rate Q_{inj}) is performed inside a capillary with the equivalent-radius R_c [mm] and a cross sectional area A_c [m²], and h_w [mm] is the water filled height of the porous media, Hagen-Poiseuille's-law can be applied [Geistlinger *et al.*, 2006]:

$$\frac{Q_g}{A_c} = v_g = - \frac{(\xi_{\min} + \xi_{\max})}{128 \eta} r_g^2 \frac{\Delta p_d}{h_w} \quad (8)$$

For a given pressure gradient, the mean gas phase velocity v_g [m/s] behaves proportional to r_g^2 , which is known as Hazen's law for the estimation of the permeability K [m²] of a porous medium. Therefore, the substitution

$$K \propto \frac{(\xi_{\min} + \xi_{\max})}{128} r_g^2 \quad (9)$$

leads to Darcy's law:

$$v_g = \frac{K}{\eta} \frac{\Delta p_d}{h_w} \quad (10)$$

with no restriction for gas phase movement along one or several capillaries (fingers/strands) [e.g., Selker *et al.*, 2005].

On the other hand, v_g can be characterized by Q_g and the mean gas-affected cross sectional area (V_g / h_w) (division by h_w due to gas mass conservation) of the porous medium

$$v_g = \frac{Q_g}{V_g} h_w. \quad (11)$$

Balancing Equations (10) and (11) gives a mean gas-phase residence time τ_g [s] through the medium:

$$\frac{Q_g}{V_g} = \tau_g^{-1} = \frac{K}{\eta} \frac{\Delta p_d}{h_w^2} \quad (12)$$

$$\Delta p_d = p_e - p_c - p_{atm}$$

Equation (12) expresses the inverse proportionality between $\tau_g \propto \Delta p_d^{-1}$.

Lazik et. al. [2002] found a linear relationship between Q_g and the moving gas-phase volume V_g inside a lysimeter filled with coarse-grained medium sand (Graph III., Fig. 1). Further, a linear correlation of V_g and the gas-entry pressure p_e was observed. Both observations could lead to the assumption of a Darcy-flow dependent pressure increase. However, *Lazik et. al.* [2002] found $\tau_g = const.$ Therefore, the assumption of a flux dependent increase of the number of incoherent moving gas clusters should be more valid. On the opposite, for coherent gas flow, the non-linearity between V_g and Q_g (Graph II., Fig. 1) indicates the validity of Darcy's law according to Equation 12.

During buoyancy-driven incoherent bubbly flow, a certain volume of gas will be trapped as immobile gas clusters in the pore space. An increase in Q_g will increase the number of mobile gas bubbles, whereas V_g stays relatively constant (Graph III., Fig. 1).

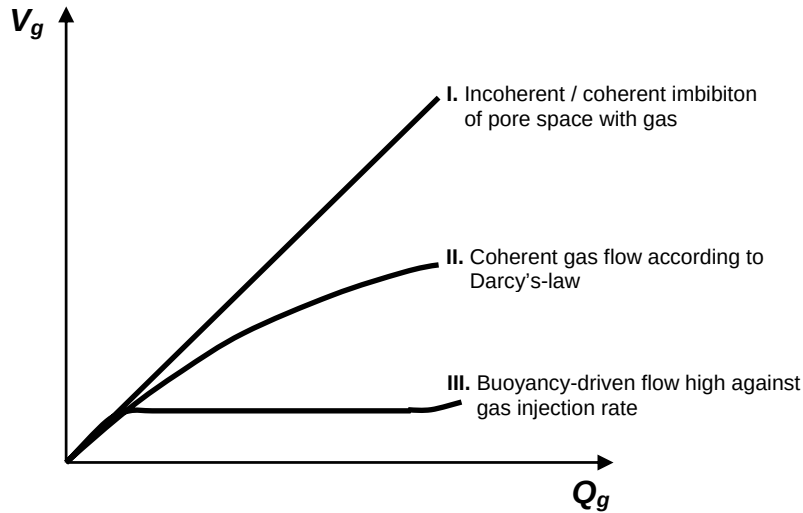


Figure 1. Classification of gas flow pattern in porous media due to relationship between gas flow rate Q_g and gas phase volume V_g .

2.2. Experimental setup

The experimental setup is shown in Figure 2. Gas injection rate Q_{inj} was controlled by a mass flow controller (Mass Flow Controller MFC 8712, $Q_{inj} = 10\text{-}5000 \text{ cm}^3(\text{st})/\text{min} \pm 0.5 \%$; Fa. Bürkert GmbH & Co. KG; (st)...standard conditions for calibration of the mass flow rate of the gas; 1.013 bar(a), 20°C). The gas was saturated with water vapor in a pre-sparging column prior to entering the flow cell to avoid water loss due to evaporation. The gas source volume V_s [L] (i.e. gas phase volume from the sparge point of the pre-column to the injection point) was kept constant during each experimental run. Gas entry pressure p_e [Pa] of the gas source volume was measured against lab air by a pressure transmitter (HCXM350D6V, difference pressure $p_d = 0\text{-}35.0 \text{ kPa} \pm 0.035 \text{ kPa}$; Sensortech GmbH).

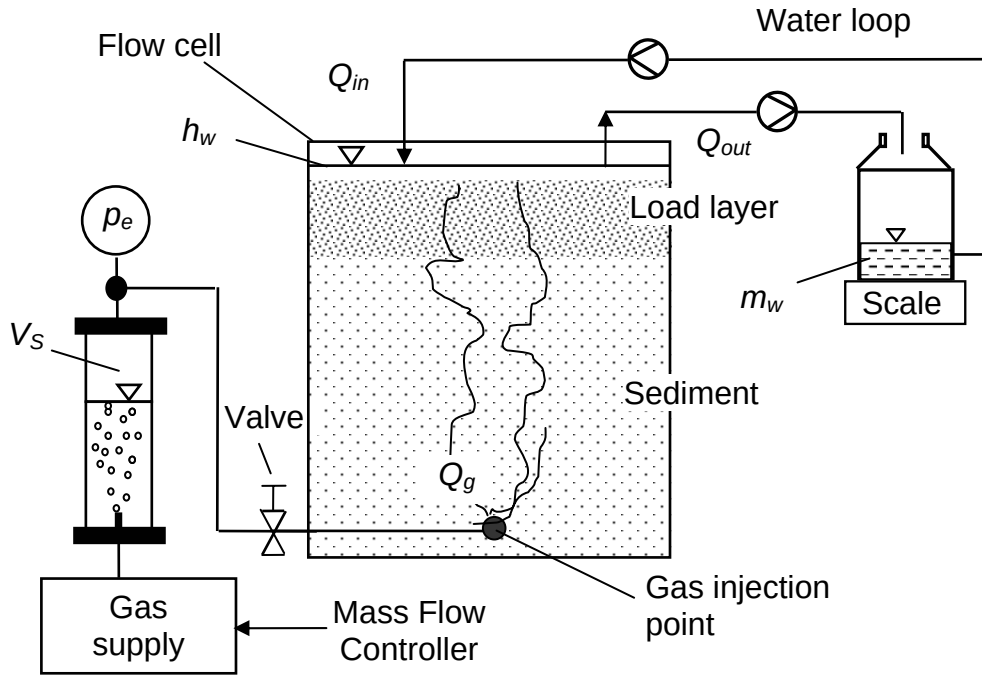


Figure 2. Experimental setup used for gas injection experiments; (cameras and LED-arrays are located in front of the flow cell and are not shown in the schematic).

All experimental data were automatically stored with a temporal resolution of $\Delta t = 1$ sec using the data acquisition software DasyLABV6.0.

A Plexiglas flow cell (inner dimensions: 400 x 450 x 12 mm) was used as the 2D observation chamber (Figure 3). The flow cell was sealed with 1 mm silicon foil placed between the porous media chamber frame and the front/back walls.

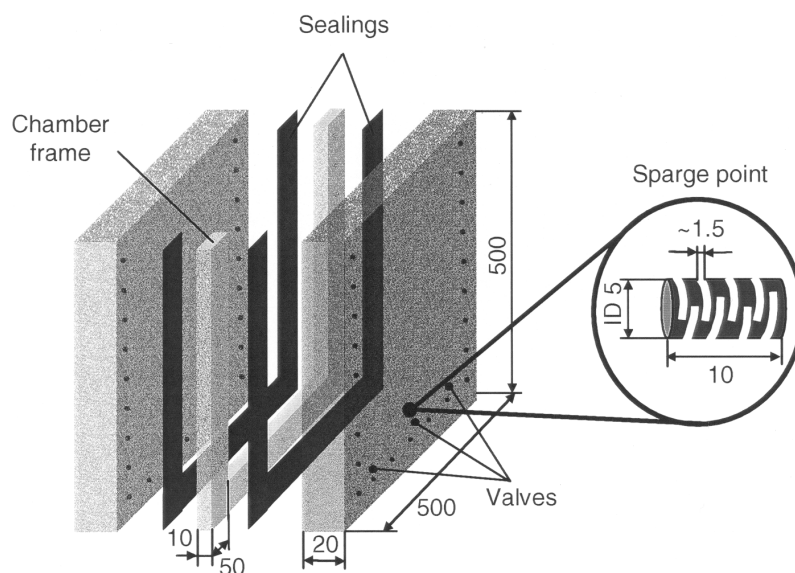


Figure 3. Modular design of the Plexiglas flow cell (dimensions are in mm). Enlarged is the geometry of the sparge point.

Phase displacement processes that are observed at the optical surface must correspond to the displacement inside the bulk volume of the porous media. Therefore, the influence of tank material has to be

minimized. To have an adhesion between the tank material and the two fluid phases equivalent to a contact angle of 90° , we used Plexiglas, which forms a contact angle to the gas-water interface of $\sim 70^\circ$ - 78° [e.g. *Mozes et al.*, 1987; *Holländer et al.*, 2003]. On the opposite, when using glass as tank material water will preferentially wet the tank surface.

2.2.1. Pressure measurements

Gas was injected with a cylindrical brass diffuser (inner diameter 5 mm, wall thickness 1 mm) with radial incised slots of an aperture of ~ 1.5 mm. The total injection area A_s at the sparge point was $A_s \sim 75$ mm². For finer-grained porous media ($d_g < 1.5$ mm), high-porosity non-woven material was added into the sparge point to minimize clogging. The gas injection point was placed 50 mm from the bottom of the flow cell.

To measure porous media dependent capillary pressures, the smallest mean radius of curvature R_m of the gas-water interface at the sparge point

$$R_m = 2 \frac{R_1 \cdot R_2}{R_1 + R_2} \quad (13)$$

(R_1, R_2 [mm] – radii of principal curvature) has to be larger than the radius of curvature at the minimum pore throat of the porous media. We assumed that (1) the curvature of the gas-water interface is determined by the geometry of the injection slots and (2) differences in contact angles for brass and porous medium are negligible. Hence, we estimated a maximum $R_m \sim 1.2$ mm. Assuming, that the minimum pore throat radius of the porous medium is also defined by R_m , a value of 1.2 mm corresponds to a loose packing of 6 mm glass beads around the sparge point. All porous media used in this study were smaller than 3 mm, which excludes an influence of the sparge point on capillary pressure. Assuming that the glass spheres are covered with a flexible, thin water film, the mean radius of curvature R_m of the gas-water interface is associated with the dimensions of the minimum pore throat diameter $d_{g,min} = 2R_m$ [mm], which can be estimated for a regular mono-disperse sphere packing ($U \sim 1$) from the porous media structure (see Equation 3). A relationship between the porosity ϕ and $d_{g,min}$ is given by *Busch et al.* [1993]:

$$d_{g,min} = 0.45 \frac{\phi}{1-\phi} d_g. \quad (14)$$

(Note: Prior to packing the flow cell with porous media, the injection pressure in the water filled flow cell was measured with high-porosity non-woven material ($p_c \sim 0.5$ kPa) and without ($p_c \sim 0.1$ kPa)).

2.2.2. Overflow system

Hydrostatic head h_w [mm] inside the flow cell was kept constant at 370 mm during the experiments by using two previously calibrated peristaltic pumps (MCP/IPC, $Q_w = 0 - 230$ mL/min-per channel, Ismatec GmbH). One pump sucked water and gas with $Q_{out} \sim 115$ ml/min from the pre-defined hydrostatic head

level to a weighted bottle (scale LP6200Master^{pro}, 0-6200 g $\pm$ 0.01 g; Sartorius GmbH), whereas the other re-injected the water with $Q_{in} \sim 15$ ml/min from that bottle back into the tank. The Q_{in} tube was connected with the water bottle. The tube was fixed at a tripod to avoid influences on the weight measurements due to vibration of the tube caused by the peristaltic pump. Test runs before the displacement experiments ($Q_{inj} = 0$) confirmed that the weight measurements of m_w (standard deviation $\sigma \sim 0.25$ g) was minimal affected by the Q_{in} and/or Q_{out} tubes.

For constant hydraulic head, the volume change of water measured on the scale is equivalent to the one of gas inside the flow cell,

$$V_g(t) - V_{g0} = \frac{1}{\rho_w} (m_w - m_{w0}) \quad (15)$$

(m_{w0} , V_{g0} - initial water mass and gas volume, respectively). For derivation of the equation see *Lazik et al.* [2005a, submitted to *J. Contam. Hydrol.*].

If V_P [cm³] is the total pore volume of the porous medium below h_w and the experiment was started water saturated ($V_{g0} = 0$), the mean gas saturation $\bar{S}_g(t)$ given by

$$\bar{S}_g(t) = \frac{V_g(t)}{V_p} \quad (16)$$

describes the amount of gas-phase filled pore space.

2.2.3. Optical observation

Optical observations were carried out by two computer-controlled CCD-cameras. The optical system allows the 2D-scanning of bench scale objects with a spatial resolution better than 0.01 mm [see *Lazik et al.*, 2005a, submitted to *J. Contam. Hydrol.*]. At one observation scale, defined by the dimensions of the physical flow cell, macroscopic fluid phase distribution and flow pattern are investigated. Simultaneously, porous media structure, interfacial areas and fluid phase displacement in the pore space are visualized at the pore scale.

The distance between flow cell and camera plane was ~ 500 mm. The cameras were run with exposure times of ~ 0.5 s and a temporal resolution of $\Delta t \sim 1$ s.

LED-arrays (WU-7-750 SWC, Luminous Intensity 5.6 kmcd; Wustlich Opto-Elektronik GmbH; total luminous intensity of $\sim 10^6$ mcd) were uniformly distributed around the flow cell for illumination with negligible tank-heating. The setup was surrounded by non-reflecting black curtains to eliminate reflection on the tank walls and to exclude influences of lighting due to daylight variations. In contrast to previous visualization studies [e.g. *Ji et al.*, 1993], front lighting was used for all experiments to develop a consistent method for observation of transparent as well as opaque porous media.

3. Experiments

3.1. Porous media, tank filling

We used spherical glass beads (Carl Roth GmbH + Co. KG) as granular porous media (Table 1). Particle sizes ranged from medium sand to fine gravel. The glass beads are named throughout the paper according to the grain size classification: medium sand (0.25-0.5 mm), coarse sand (0.75-1 mm), fine gravel (2-2.2 mm) and gravely sand (0.25-2.2 mm), respectively.

Table 1. Properties of porous media

Porous media type	medium sand	coarse sand	fine gravel	gravely sand
Grain size d_g [mm]	0.25-0.50	0.75-1.00	2.0-2.2	0.25-2.2
Particle density ρ_G [g/cm ³] ⁺	2.459	2.453	2.438	2.450
Bulk density ρ_B [g/cm ³] ^{&}	1.564	1.506	1.553	1.618
Porosity ϕ	0.36	0.39	0.36	0.34
Pore volume [cm ³]	708.48	767.52	639.36	636.48
Object plane [cm ²]	1640	1640	1480	1560
Min. pore throat diameter $d_{g,min}$ [mm] [§]	0.095	0.252	0.532	0.197
Capillary pressure p_c [kPa] [*]	1.74	0.66	0.31	0.84
Uniformity coefficient U	~1	~1	~1	2.6
Permeability $K^\#$ [m ²]	$8.90 \cdot 10^{-11}$	$6.78 \cdot 10^{-10}$	$2.79 \cdot 10^{-09}$	$3.62 \cdot 10^{-10}$

⁺measured with gas-pycnometer (MICROMERITICS, AccuPyc 1330); [&]dry mass of porous media per tank volume without load layer; [#]after KOZENY-CARMAN; [§]after equation (14); ^{*}Laplace-equation with $R_1 = d_{g,min}/2$, $R_2 = \infty$, $\sigma_{w,g} = 0.072$ N/m²; $\theta = 55^\circ$ for glass-water-air is taken from *Palzer et al.* [2001].

The glass beads were initially cleaned with acetone, rinsed with distilled water, dried at 105°C, and packed in 10-20 mm layers into the flow cell. Finally, in order to produce a tight pack, a small hammer was used to shock the flow cell from the back.

A mixture of glass beads (0.25-2.2 mm) was used as an analogue to gravely silica sand. These hetero-disperse beads were poured humidified into the tank to minimize gradation of the porous media.

The porous media packing was overlain by a litho-static load layer (~ 60-mm thickness) of lead beads ($d_g = 3$ mm, $\rho_G = 11.2$ g/cm³). Gauze was inserted below the load layer to prevent mixing of porous media and load. We filled the flow cell with porous medium and load to ~ 410 mm over bottom.

The porosities ϕ were calculated using the bulk density ρ_B and the grain density ρ_G ($\phi = 1 - \rho_B/\rho_G$). The calculated porosities (0.34 to 0.39) are in the range of close random to pour random packing [*Haughey and Beveridge*, 1969] and fit with the values obtained in previous experiments [*Ji et al.*, 1993; *Brooks et al.*, 1999].

3.2. Experimental procedures

We performed the following sets of experiments: (1) first, we applied low gas injection rates to observe gas entry behaviour and stationary states of gas phase distribution under low flow conditions. Once steady

state was reached, the injection rate was step-wise increased; (2) second, we investigated the influence of different initial gas injection rates on gas flow geometries and saturations.

Prior to the experiments, the porous medium was fully water-saturated by (1) pre-flooding the tank with gaseous carbon dioxide (several pore volumes) and (2) displacing the CO_2 by distilled degassed water from bottom to top. The saturation process was stopped when the water mass m_0 on the scale became constant (i.e. any residual CO_2 -bubbles were resolved). The saturation procedure was repeated before each experimental run. During all experiments, the bulk water flow was only depending on the phase displacement processes. The hydraulic head was set to $h_w = 370$ mm above the injection point. The sparge point was opened when the gas pressure reached the hydrostatic pressure at the injection point. Then compressed air was injected into the porous media. This procedure prevented changes of water mass balance due to intrusion of water into the gas source volume. After gas injection was stopped (i.e. closure of the injection valve) water infiltrated back and gas was displaced until stationary residual gas saturation was reached. The experiment was stopped after steady state of the residual gas phase.

During the experimental series, lab temperature ranged from 21-25 °C and was considered to estimate the water density for each experimental run. Within one experimental run (~ 2 -7 hours), temperature changes were neglected.

Image acquisition was started simultaneously with data acquisition. When gas phase entered the porous medium, images were captured with a temporal resolution of $\Delta t \sim 1$ s until the gas displacement front reached the top of the flow cell. Gas phase distribution was recorded once the sparging process became stationary (Fig. 4a). The algorithm of image processing that was applied consistently for all images is shown in Figure 4. Moreover, the background reduction equilibrates spatial differences of illumination. To improve the contrast within images, histogram sliding and stretching were applied (Fig. 4d). Image processing was done with UTHSCSA ImageTool_V3.00 (by D. Wilcox, B. Dove, D. McDavid, D. Greer; University of Texas Health Science Centre) and IMAGEJ 1.33x (Wayne Rasband; National Institutes of Health; free download from <http://rsb.info.nih.gov/ij/>).

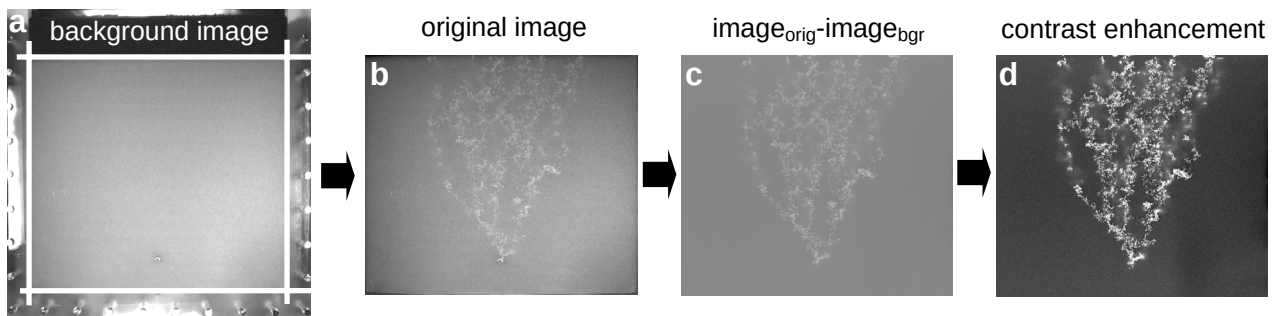


Figure 4. Algorithm of image processing (comparison between background-reduced images through difference is not shown in this schematic).

We quantified the mean zone of influence (ZOI) (i.e. gas-affected area) in steady state A_{inj} [cm²] by tracing by hand the outer edges of the gas plume. One single image was analyzed 10 different times to obtain an average. Gas saturation $S_{g,inj}$ within the ZOI was calculated from the pore volume of the

estimated A_{inj} . The pore volume $V_{p,inj}$ of the gas plume was determined by $V_{p,inj} = \varphi (D_f \cdot A_{inj})$ (D_f ...depth of the flow cell = 12 mm]; φ ...porosity). Gas saturation inside the gas plume was determined by $S_{g,inj} = V_g/V_{p,inj}$.

To get information on the lateral advancement of the gas phase, we measured the maximum horizontal axis l_{axis} [mm] of gas phase distribution.

4. Results and Discussion

4.1. Sequential stages of gas injection

Results of the first set of experiments are listed in Table 2. Experiments were started with a low gas injection rate of $Q_{inj} \sim 10 \text{ cm}^3/\text{min}$. The plateau of the $V_g(t)$ -curves indicated that within all porous media stationary conditions (note: the term “stationary” is used synonymously to “steady state”) were reached (Figure 5a-d). The transition between transient and stationary flow pattern was determined when 95 % of V_g were reached.

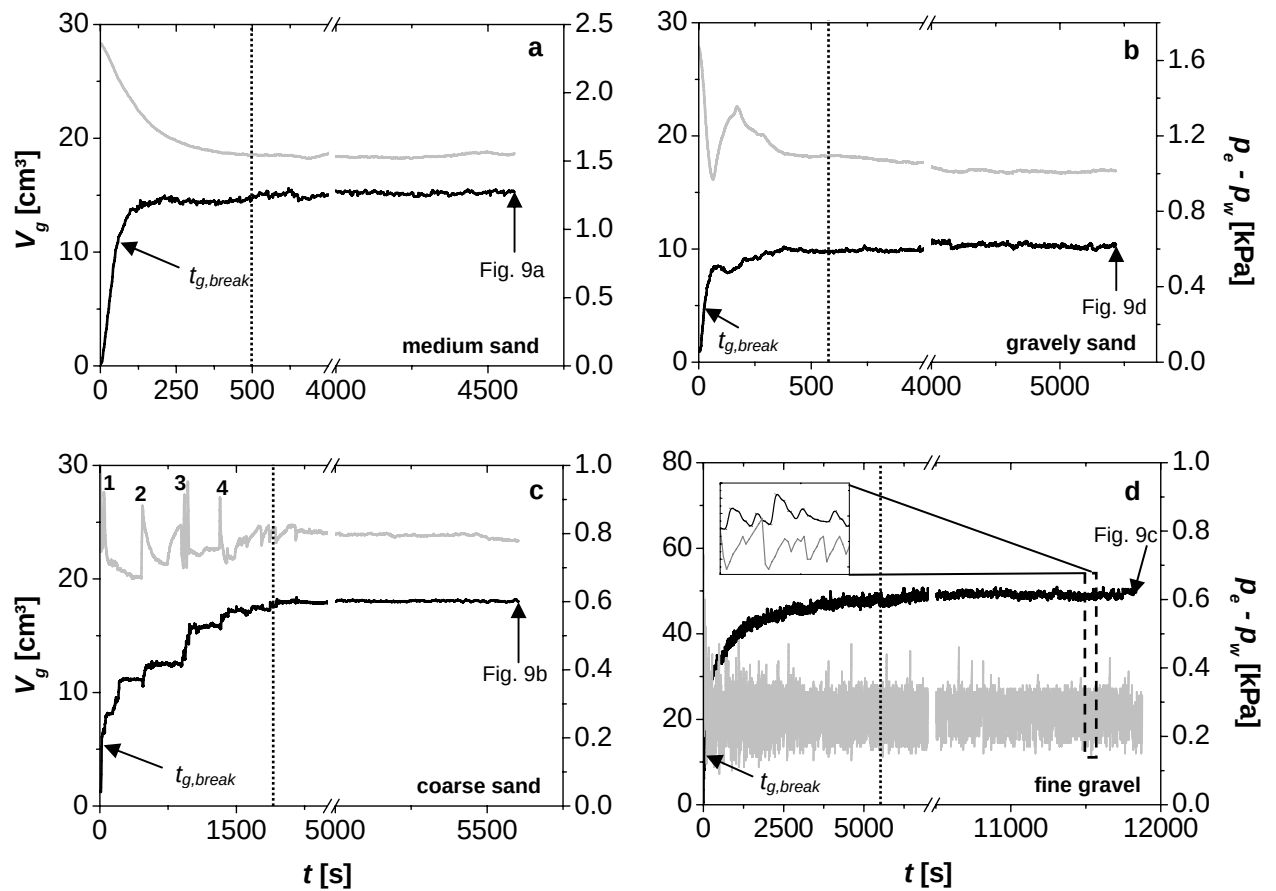


Figure 5. Gas volume (black curve) and gas pressure over hydrostatic pressure (grey curve) versus time for $Q_{inj} \sim 10 \text{ cm}^3/\text{min}$. Dotted lines mark the transition between transient and steady state flow pattern. Numbers (1-4) in Figure 5c correspond to images shown in Figure 8.

Different time intervals are needed to attain steady state depending on porous media size. The transient drainage phase in medium sand was about 500 s, whereas with increasing grain size the transient phase became significantly longer.

Steady state in coarse sand and fine gravel was attained at ~1800 and ~5400 s, respectively (see also Fig. 5c-d). In coarse sand ($V_g \sim 20 \text{ cm}^3$) and fine gravel ($V_g \sim 50 \text{ cm}^3$), only ~5 % of the total amount of gas $V_{inj} (= Q_{inj} \cdot t_{steady_state}$; ~310 cm^3 and 920 cm^3 , respectively) that was injected up to steady state was trapped. In gravely sand, which has a more heterogeneous grain size distribution, steady state was attained ~600 s after gas entry.

In the following sections, we will characterize and discuss the observations made for the different sequential stages of the gas injection process.

Table 2. Results of the first set of experiments.

d [mm]	Q_{inj} [cm ³ (st)/min]	p_e [kPa]	V_g^+ [cm ³]	$V_{g,break}$ [cm ³]	τ_g [min]	$\tau_{g,theor}$ [min]	$t_{g,break}$ [s]	A_{inj} [cm ²]	$S_{g,inj}$	l_{axis} [mm]
medium sand										
0.25-0.50	9.54±0.37	5.194±0.036	15.48±0.27	11.42	1.62	1.12	63	579.32±5.29	0.062	210
	69.06±0.32	5.246±0.020	38.18±0.54	-	0.55	0.99	-	752.68±9.12	0.117	270
	129.46±0.37	5.661±0.033	51.10±0.41	-	0.40	0.51	-	817.00±15.62	0.146	290
	189.37±0.64	5.895±0.026	62.84±0.61	-	0.33	0.46	-	859.65±11.04	0.169	320
	816.12±0.54	6.595±0.014	133.94±0.83	-	0.16	0.27	-	1268.40±8.11	0.244	390
	0	0	65.00±0.08	-	-	-	-	1268.40±8.11	0.119	390
coarse sand										
0.75-1.00	9.51±0.39	4.418±0.014	18.25±0.25	5.10	1.92	0.24	14	653.82±7.52	0.060	260
	69.20±0.34	4.383±0.013	22.85±0.17	-	0.33	0.28	-	667.77±7.16	0.073	260
	129.48±0.38	4.458±0.013	27.96±0.21	-	0.22	0.20	-	664.79±8.18	0.090	260
	188.13±0.41	4.425±0.006	32.09±0.30	-	0.17	0.23	-	655.27±8.69	0.105	260
	808.60±0.90	4.700±0.015	66.00±1.38	-	0.08	0.11	-	837.71±9.33	0.168	310
	1376.86±0.39	5.059±0.013	93.33±0.61	-	0.07	0.06	-	921.48±8.49	0.216	340
	1912.05±0.81	5.459±0.009	110.29±0.57	-	0.06	0.04	-	939.56±8.71	0.251	340
	2416.80±0.98	5.918±0.011	122.91±0.50	-	0.05	0.03	-	970.96±12.29	0.271	340
	2901.16±1.50	6.329±0.015	134.15±0.38	-	0.05	0.03	-	977.95±5.53	0.293	350
	0	0	48.92±0.11	-	-	-	-	977.95±5.53	0.107	350
fine gravel										
2-2.2	10.22±0.34	3.894±0.049	49.23±0.69	11.52	-	-	33	547.62±6.82	0.208	260
	70.97±0.44	3.857±0.042	52.03±0.81	-	-	-	-	566.50±6.59	0.213	260
	132.04±0.31	3.909±0.011	53.77±0.35	-	-	-	-	558.14±3.63	0.223	260
	191.60±0.38	3.894±0.019	55.24±0.49	-	-	-	-	570.66±3.76	0.224	270
	813.15±0.55	4.258±0.015	57.83±0.70	-	-	-	-	568.80±6.30	0.235	280
	1385.75±0.53	4.562±0.018	65.56±1.25	-	-	-	-	594.94±8.10	0.255	300
gravely sand										
0.25-2.2	9.47±0.33	4.668±0.024	10.27±0.22	4.62	1.08	2.31	27	354.19±5.57	0.071	150
	94.45±0.45	4.693±0.006	26.77±0.44	-	0.29	1.51	-	569.71±7.04	0.115	230
	177.09±0.35	4.969±0.004	41.25±0.31	-	0.23	0.31	-	709.51±5.05	0.143	260
	261.32±0.41	5.103±0.010	55.47±0.82	-	0.21	0.22	-	954.22±5.31	0.143	350
	345.54±0.27	5.185±0.020	64.22±0.50	-	0.19	0.19	-	1046.59±3.31	0.151	380
	428.03±0.42	5.303±0.004	70.85±0.38	-	0.17	0.16	-	1047.85±10.19	0.166	390
	512.75±0.45	5.406±0.009	77.65±0.38	-	0.15	0.14	-	1056.15±4.47	0.180	390
	597.07±0.48	5.430±0.016	81.60±0.51	-	0.14	0.13	-	1070.26±5.58	0.187	390
	1105.79±0.51	5.755±0.032	114.58±0.77	-	0.10	0.10	-	1204.38±6.88	0.233	400
	0	0	53.51±0.61	-	-	-	-	1204.38±6.88	0.109	400

p_e ...mean gas entry pressure in steady state $\pm$ standard deviation; V_g ...gas volume in steady state $\pm$ standard deviation; $^+$ after equation (15) with $\rho_w = 997.8 \text{ kg/m}^3$; $V_{g,break}$...gas volume at gas breakthrough; τ_g ...experimentally determined mean gas residence time; $\tau_{g,theor}$...mean gas residence time after Equation (12); $t_{g,break}$...time at gas breakthrough; A_{inj} ...mean gas-affected area; $S_{g,inj}$...gas saturation in gas-affected area; l_{axis} ...maximum lateral axis of gas-affected area.

4.1.1. Gas entry

Gas entry is expressed by an initial pressure peak that was observed for all porous media (Figure 5). This can be explained by the primary drainage/displacement of water, i.e. since the flow rate was constant, a higher gas pressure was necessary due to the water viscosity being higher than that of gas [Lazik *et al.*, 2002].

In medium sand, a dense and uniformly distributed network of gas filled pore space was observed around the sparge point (Figure 6a). The pore-scale image clearly shows that the gas phase is distributed in areas with dense concentrations of gas-filled capillaries. Clayton [1998] described this type of gas flow conceptually as pore scale air fingering, which may occur in fine to medium sand.

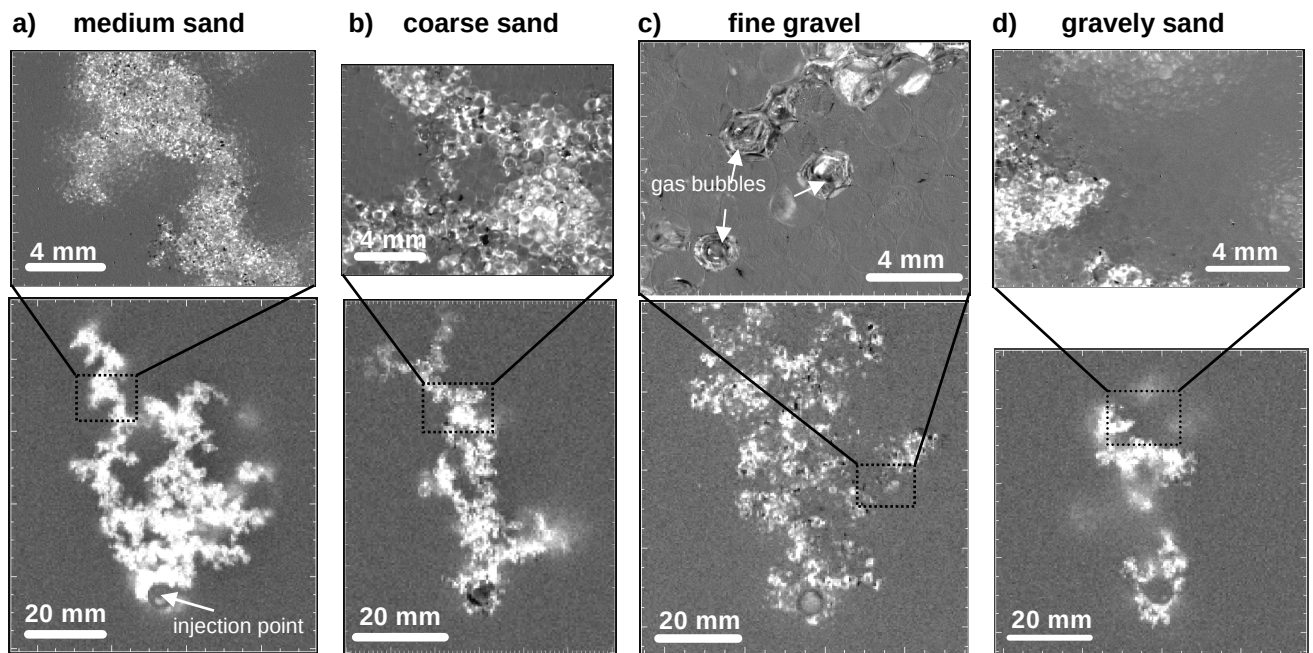


Figure 6. Gas phase distribution close to the sparge point captured a few seconds after gas entry. Top and bottom represent images at pore- and bench-scale, respectively. (a) $\Delta t = 13$ s, (b) $\Delta t = 1.2$ s, (c) $\Delta t = 3$ s, (d) $\Delta t = 12.5$ s.

In coarse sand, a macroscopic gas channel developed, which was strongly aligned with the direction of bulk gas flow (Figure 6b). With further gas advancement from the sparge point, the channel splits and additional dendritic branches occurred. Some of these branches terminated as “dead-ends”, and can greatly affect water relative permeabilities [Clayton, 1999]. As the macroscopic channel developed in coarse sand has almost the same cross-sectional diameter than that visualized in medium sand (Figure 6a, 6b), it must contain fewer pores. These observations confirm the conceptual model proposed by Clayton [1998], that macroscopic channelling, occurring in coarse sand, and pore-scale fingering are transitional expressions of similar behaviour.

In fine gravel, gas phase entered the pore space step-like and incoherently as discrete bubbles. Bubbles became stuck, were trapped among the beads, and did not move through the entire height of the porous medium. Further injected bubbles collided with trapped gas clusters, and caused them to rise. This resulted in “slugs” or “bubble-chains” arising to the porous medium surface. Gas bubbles with diameters close to single pores as well as macro-sized gas clusters (~ 1 -2 cm) with variable shapes were immobilized

(Figure 6c). As gas bubbles were trapped just one or two pores away from the injection point, snap-off occurred close to the sparge point.

In gravely sand, gas entry was characterized by non-uniform gas distribution (Figure 6d). Gas entered the porous medium in coherent channels within a narrow zone. Here, the more heterogeneous grain size distribution ($U \sim 2.6$) causes a more homogeneous pore size distribution. Thus, the bulk gas flow is more restricted to the centre line due to a more homogeneous flow resistance.

4.1.2. Transient gas advancement

Gas flow geometries visualized at gas breakthrough (i.e. time until gas first entered the load layer) compared to stationary gas flow pattern are shown in Figure 7. The ratio ($V_{g,break}/V_g$) between gas volume at breakthrough $V_{g,break}$ and in steady state V_g is shown in Figure 7a.

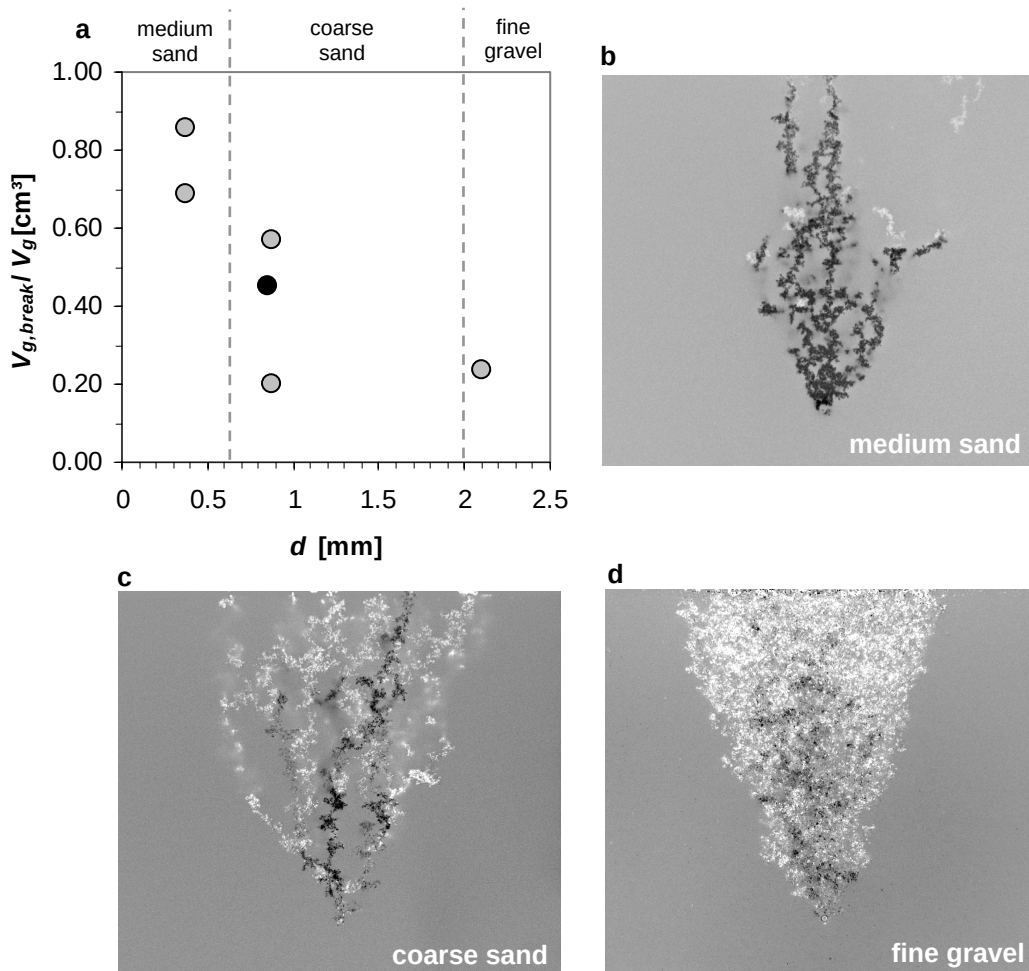


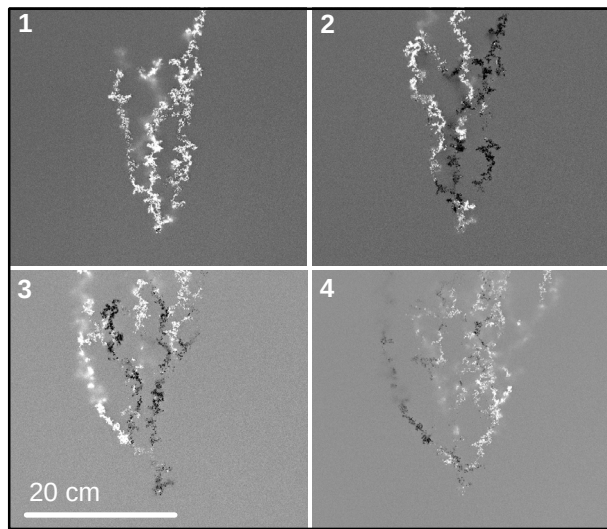
Figure 7. Comparison of gas phase distribution at gas breakthrough and steady state ($image_{t(steady_state)} - image_{t,breakthrough}$). Dark (gas breakthrough) and light (steady state) indicate different flow fields. (a) $V_{g,break}/V_g$ as a function of mean grain size (repetition experiments are included in the diagram; black point: gravely sand).

In medium sand, the gas-affected area remained almost constant after gas breakthrough (Figure 7b). $V_{g,break}$ was about 73 % of V_g in steady state (Figure 7a). In medium sand, gas advancement and gas breakthrough took longer than in the coarse sand and fine gravel (60 s, 14 s, 33 s, respectively). In

medium sand, the coherence length given by Equation 7 ($h_c \sim 80\text{--}330\text{ mm}$ ($\theta = 0^\circ$) and $h_c \sim 70\text{--}270\text{ mm}$ ($\theta = 30^\circ$)) is significantly higher than in the coarser grained media. Until this coherence length is reached, the gas invasion front has to overcome the capillary forces. A larger coherence length means, that for a given Q_{inj} more time is needed to establish the gas-filled network (strands) than in porous media with smaller h_c .

In coarse sand, gas moved in macroscopic channels in a narrow zone from the sparge point to the top (Figure 7c). At gas breakthrough, only 20 % of V_g was stored in the porous medium (Figure 7a). These results represent different saturation behaviors similar to those hypothesized by *Clayton* [1998], who conducted laboratory column experiments to measure air saturations at initial air breakthrough $S_{g,break}$. The author proposed a conceptual model and concluded that low values of $S_{g,break}$ imply the development of a small number of pore-scale air fingers and the existence of air channeling at the macro-scale. On the opposite, high values of $S_{g,break}$ imply a dense spacing of pore scale air fingers and an absence of macro-scale air channeling. Including other experimental results on gas invasion in porous media [e.g., *Chen et al.*, 1996] the transition between these behaviors trends to occur at air entry pressure heads of $\sim 15\text{--}20\text{ cm-H}_2\text{O}$ ($\sim 1.5\text{--}2\text{ kPa}$). For the first time, our experiments provide process images showing this transition in saturation behavior between medium and coarse sand ($p_c \sim 1.5\text{ kPa}$ and $p_c \sim 0.8\text{ kPa}$, respectively).

After gas breakthrough, gas volume in coarse sand was further increased, which was expressed by transient behaviour of the $V_g(t)$ - and $p_e(t)$ -curves (Figure 5c). Pressure peaks of $\sim 0.15\text{ kPa}$ correlated to a step-like increase in gas volume. Optically we observed that new gas flow paths were formed during a pressure peak, whereas other gas channels remained as dead-end branches (Figure 8). This indicates a change in coherent gas network due to random testing of different flow paths during the initial drainage phase. Snap-off can occur at small critical pores and the gas pathway is broken. *Glass et al.* [2000] have shown, that pressure within the nonwetting gas phase must rebuild ~ 2 times wetting entry to reinvade this



critical pores and to develop coherent channels. Our observations in coarse sand indicated, that the gas-water interface can be discontinuous (i.e. p_e -fluctuations) until “stabilized” coherent flow paths were explored (i.e. disappearance of p_e -peaks, $V_g \sim \text{const}$). Some of these channels were not reconnected to the gas flow and were partially refilled by water. Discontinuous flow pathways can be the reason for small fluctuations in mass removal rates, as *Johnson et al.* [1999] observed it in column experiments.

Figure 8. Transient formation of gas filled capillary network in medium sand for low injection rate ($Q_{inj} \sim 10\text{ cm}^3/\text{min}$). The images correspond to the peaks labeled 1-4 in Figure 5c (light: new channels; dark: refilled channels). Image₁ = Image _{$t_{breakthrough}$} - Image _{$t=0$} ; Image₂ = (Image _{$t(\text{peak2})$} - Image₁) - Image _{$t=0$} ; Image₃ = (image _{$t(\text{peak3})$} - image₂) - image _{$t=0$} ; Image₄ = (image _{$t(\text{peak4})$} - image₃) - image _{$t=0$} .

Similar to coarse sand, only $\sim 20\%$ of V_g was measured at gas breakthrough in fine gravel (Figure 7a). In contrast to the finer-grained medium and coarse sand, no continuous gas channels developed. Thus, gas breakthrough in fine gravel occurred when the first incoherent gas clusters reached the porous medium surface. With further injection, more gas was trapped, and the gas plume boundaries advanced laterally (results not shown). Immobilized gas clusters at the boundaries were not reconnected to gas phase movement.

4.1.3. Stationary gas flow pattern

Stationary gas flow patterns for low flow conditions are illustrated in Figure 9. The results confirm previous investigations showing that parabolic shaped gas plumes develop as they grew upward from the injection point [e.g., *Ji et al.*, 1993; *Semer et al.*, 1998; *Brooks et al.*, 1999; *Dror et al.*, 2004]. This indicates that the gas/water-phase displacement is buoyancy-influenced [*Clayton*, 1998]. *Selker et al.* [2005] concluded from their analysis, that the parabolic shape of the gas plumes is a simple outcome of the sum of many random lateral displacements of the many independent strands of gas.

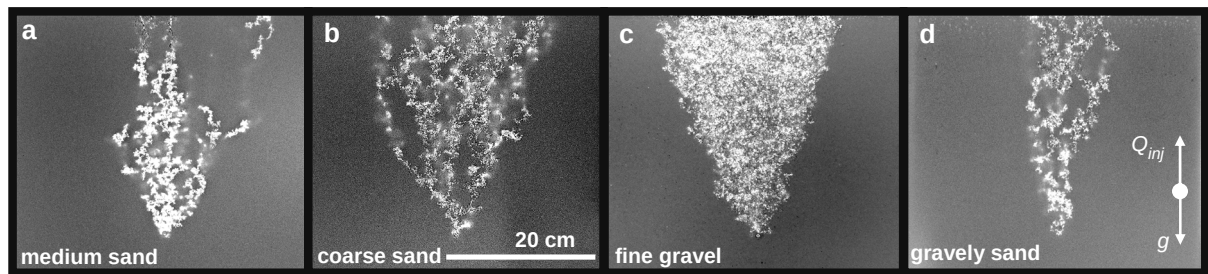


Figure 9. Stationary gas flow pattern in glass beads for low injection rate ($Q_{inj} \sim 10 \text{ cm}^3/\text{min}$).

Within the medium and gravely sand, where a dense network of pore-scale gas fingers occurred (Figure 9a/d), the gas-affected zone was narrower than in the coarser grained media (coarse sand, fine gravel, Figure 9b/c). In coarse sand, a network of macroscopic gas channels with significant bypassing (i.e. larger parts of the porous medium inside the gas plume that were not affected by gas) was visualized (Figure 9b). In fine gravel, a homogenous distribution of isolated gas clusters over the entire area of the gas plume was observed. Measurements of gas-affected area and of lateral advancement of the gas plume show only little differences between the porous media (Figure 10a).

On the opposite, significant differences were observed for gas saturations estimated for the injection area (Figure 10b). In fine gravel, the gas volume is 2-4 times higher than in the finer-grained porous media. These observations are similar to those of *Peterson et al.* [1999], who found that a maximum gas-affected area occurred in fine gravel ($d \sim 2\text{-}3 \text{ mm}$).

In steady state, gas phase movement was coherent in all porous media except for the fine gravel. In fine gravel, strong fluctuations in gas saturation and gas pressure ($\sim 0.1\text{-}0.2 \text{ kPa}$) were recorded (enlarged section in Figure 5d). These pressure fluctuations were most likely due to snap-off effects and incoherent gas movement. Small fluctuations of gas saturation were similar to those observed by *Glass et al.* [2000]. In contrast to the rise of mainly discrete single bubbles, reported for 4 mm porous media [*Ji et al.*, 1993;

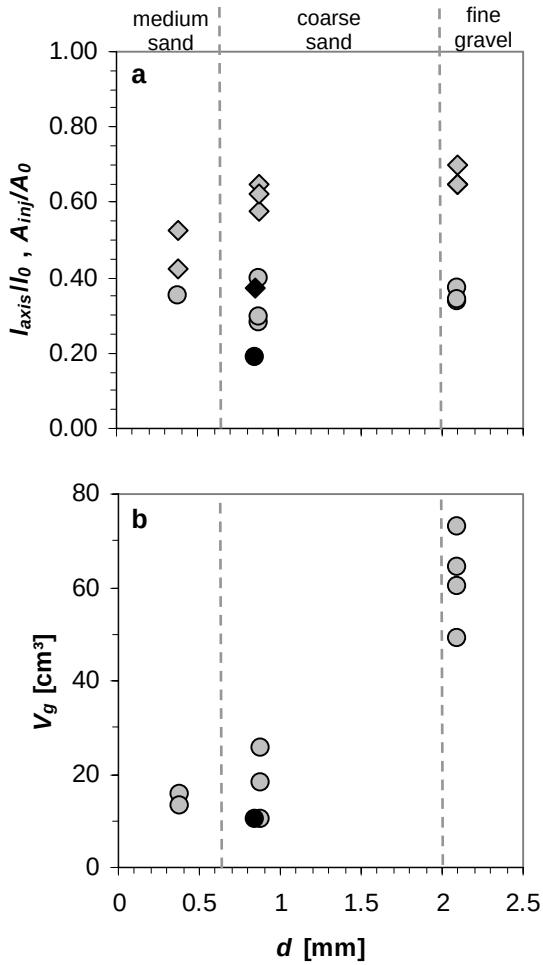


Figure 10. Gas flow geometry and gas volume as a function of porous media size (grey: mono-disperse porous media; black: hetero-disperse porous medium). (a) gas-affected area (circles) and lateral gas advancement axis (diamonds), (b) gas volume; repetition experiments are included in the diagram.

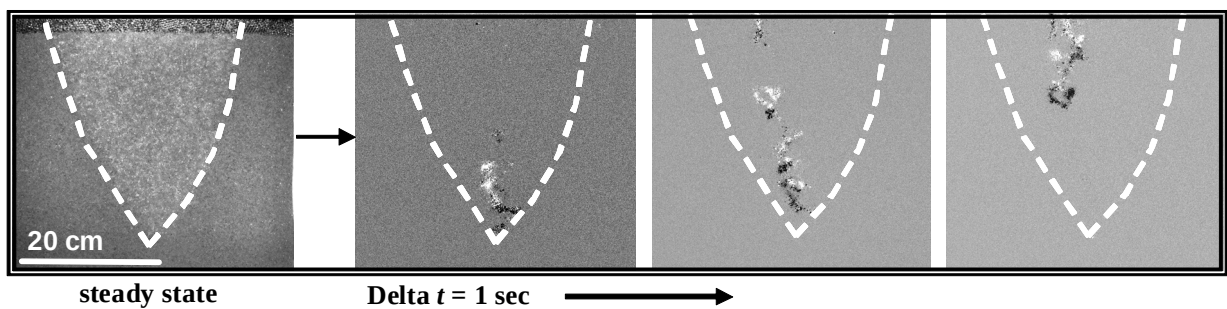


Figure 11. Gas bubble movement in fine gravel in steady state ($Q_{inj} \sim 10$ cm³/min). Difference images show consecutive frames between times 0 and 1, 1 and 2, 2 and 3 s, respectively.

4.1.4. Step-wise increase in gas injection rate

Results of the first set of experiments (Table 2) are plotted against Q_{inj} in Figure 12a-d. V_g significantly increased with increasing Q_{inj} for all porous media except for the fine gravel (Figure 12a). For all media types, an increase in gas pressure was observed (Figure 12b). Results of the gravimetrical measurements were also supported by the optical measurements (Figure 12c/d), that are indicating the widening of the gas-affected area.

Table 3. Results of the second set of experiments.

d_g [mm]	Q_{inj} [cm ³ /min]	p_e [kPa]	V_g [cm ³]	A_{inj} [cm ²]	$S_{g,inj}$	l_{axis} [mm]
medium sand						
0.25-0.50	9.54±0.37	5.194±0.036	15.48±0.27	579.32±5.29	0.062	210
	30.54±1.37	5.366±0.007	44.88±0.47	841.29±7.36	0.114	320
coarse sand						
0.75-1.00	9.51±0.38	4.418±0.014	18.25±0.25	653.82±7.52	0.060	260
	118.35±0.48	4.337±0.005	24.92±0.24	521.64±9.12	0.102	170
fine gravel						
2-2.2	10.22±0.34	3.894±0.049	49.23±0.69	547.62±6.82	0.208	260
	201.56±0.96	3.897±0.007	45.74±0.55	505.19±4.84	0.210	220

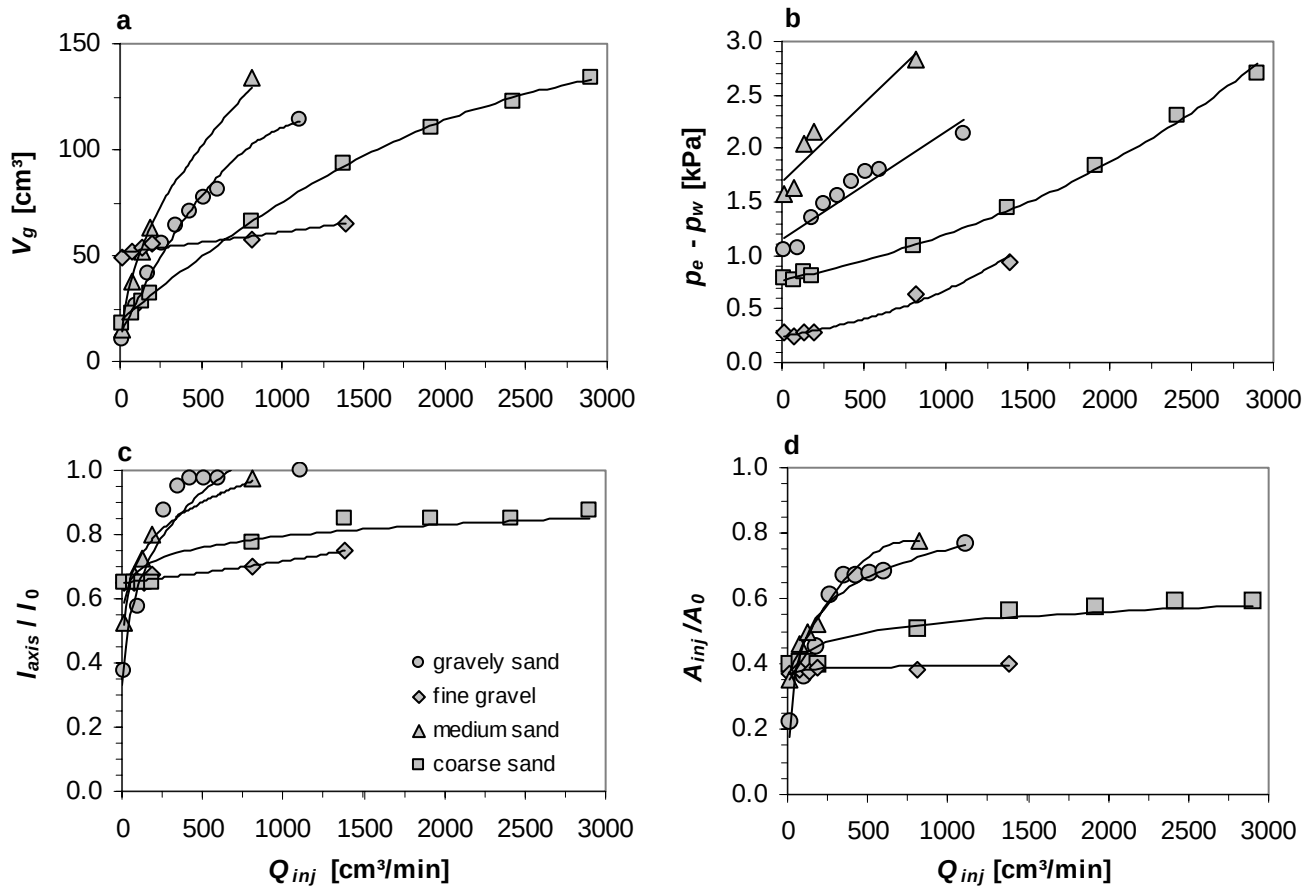


Figure 12. Step-wise increase in gas injection rate versus (a) gas volume, (b) gas pressure over hydrostatic pressure, (c) lateral axis of gas-affected area, (d) gas-affected area; [legend in (c) for all diagrams].

In fine gravel, a large amount of gas was already stored for the initial flow rate. Fluctuations in the p_e - V_g -curves (see Figure 5d) even at higher Q_{inj} indicated that the gas flow regime was incoherent. Gas volume could not be significantly increased with higher injection rates, like conceptually shown in Figure 1 (Graph III). An increase in Q_{inj} led to an increase of mobile gas bubbles inside the gas plume. This means that if the flow regime does not become turbulent, increasing Q_{inj} could lead to coherent flow like conceptually proposed by *Geistlinger et al.* [2006]. This was not the case for the range of Q_{inj} applied in this study.

In coarse sand, the instabilities in gas flow (see Figure 5c) did not occur at flow rates higher than 10 cm³/min. This indicated a Q_{inj} -dependent transition from incoherent to coherent gas flow. These observations are similar to those reported by *Brooks et al.* [1999], who qualitatively described air flow pattern in column experiments. The authors observed that in coarse sand a change from incoherent slug flow to coherent channel flow occurred between $Q_{inj} \sim 20$ -70 mL/min. Note, that gas injection rates cannot be directly compared to our study because of different injection geometries. Nevertheless, their results indicated a Q_{inj} -dependent transition in flow regimes. Thus, a transition between incoherent bubbly/slug flow and coherent channel flow is not only a function of porous media size like previously classified by several authors [e.g., *Ji et al.*, 1993, *Brooks et al.*, 1999, *Peterson et al.*, 1999]. Our observations in coarse sand led to the conclusion that increasing the gas flow rate for a certain porous medium size to a critical threshold will lead to coherent flow pattern. The standard conceptual models are mainly based on quasi-static arguments (e.g. *Bond-Number*) that are only valid in the limit $Q_{inj} \rightarrow 0$, i.e. they can only describe the onset of bubbly flow as done by *Brooks et al.* [1999]. Therefore, these models do not describe the d_g - Q_{inj} -dependent transition from incoherent to coherent channel flow because this flow type is determined by the competition between stabilizing viscous forces and destabilizing capillary and gravitational forces. For a detailed theoretical analysis of this d_g - Q_{inj} -dependent transition in gas flow regimes we refer to *Geistlinger et al.* [2006].

With increasing Q_{inj} , new gas flow paths developed around the channels initially formed inside the gas plume (Figure 13: Q_{inj2} to Q_{inj4}). Once all available capillaries around the sparge point and inside the gas plume were filled with gas (Q_{inj4}), the zone of influence was extended further outside (Q_{inj5} to Q_{inj6}).

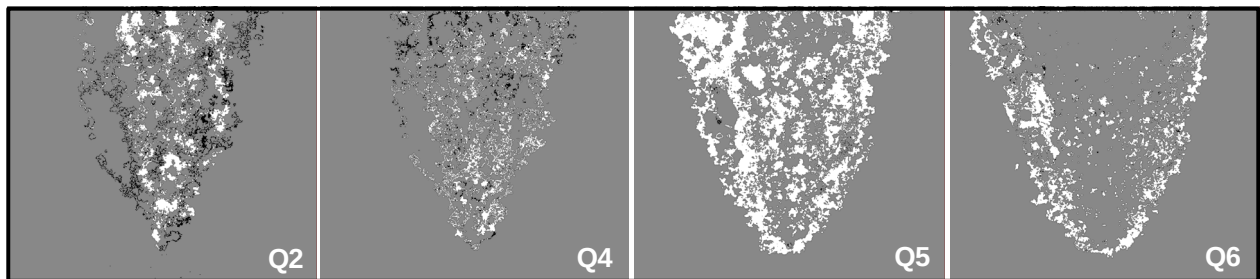


Figure 13. Development of gas filled pore space during stepwise increase in gas injection rate in coarse sand. Q_2 - Q_6 represent difference images between Q_{inj2} - Q_{inj1} , Q_{inj4} - Q_{inj3} , Q_{inj5} - Q_{inj4} , Q_{inj6} - Q_{inj5} , respectively. white: new capillaries; black: refilled capillaries.

In the fine-grained media (medium sand, coarse sand, gravelly sand) gas flow was coherent, and we observed a non-linear relationship between Q_{inj} and V_g (Figure 12a). From the gas pressure increase $p(Q_{inj})$ one obtains Δp_d for a given Q_{inj} (see Equation 12). For very low injection rates $Q_{inj} \rightarrow 0$, viscous forces are negligible and sediment-dependent capillary pressures are measured [see *Geistlinger et al.*, 2006]. According to Equation 12, the mean gas phase residence time τ_g should be inversely proportional to Δp_d (Figure 12b). This is exactly what we observed in fine-grained porous media. Figure 14a-c shows the development of the experimentally determined $\tau_g (=V_g/Q_{inj})$ with increasing Q_{inj} . The decrease of $\tau_g(Q_{inj})$ indicates an increase of the Darcy-velocity. The experimental results are in good agreement to the theory (i.e. $\tau_{g,theor}$ derived from the right part of equation 12 using the permeabilities given in Table 1)(Figure 14d-f).

Our results are in contrast to the observations of *Chen et al.* [1996] and *Lazik et al.* [2002], who found a linear relationship between gas-filled pore space and discharge ($\tau_g = const$). Therefore, the assumption of a flux-dependent increase of the number of incoherent moving gas clusters should be more valid.

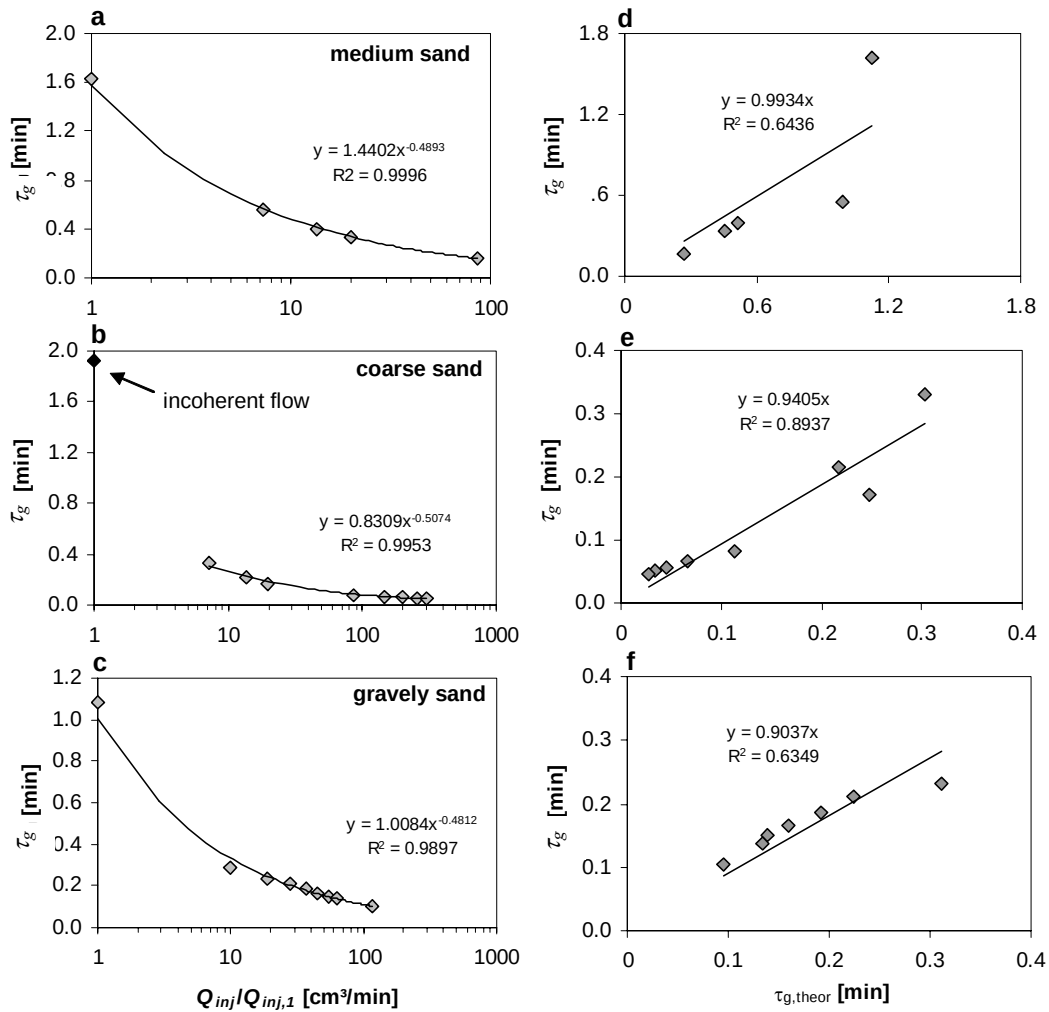


Figure 14. Relationship between mean gas residence time τ_g and gas injection rate Q_{inj} (a-c); and comparison between experimentally determined τ_g and theoretically derived $\tau_{g,theor}$ (d-f).

4.1.5. Injection stop

After gas injection was stopped, residual trapped gas volume developed. Immediately after gas shutdown, gas flow channels collapsed and residual gas clusters were immobilized in the pores of coarse sand, gravely sand and fine gravel. On the opposite, in medium sand, gas continued to flow after injection shutdown. The duration of this additional gas flow was dependant on (1) the final gas injection rate and (2) the extent of the capillary network before shutdown. Gas discharge after gas-shutdown was estimated with 7-36 cm³/min, which corresponds to ~4-10 % of steady state gas flow. *Tomlinson et al.* [2003] reported similar observations from an air sparging field experiment. 5 h after shutdown of the sparging system, the estimated flow rate was ~5 % of the steady state flow. The authors attributed this effect to a substantial amount of air that was stored in air pockets created during sparging within the aquifer.

In medium, coarse and gravely sand, residual gas saturations $S_{g,inj}$ ranged from 10 to 12 %, and were ~20 % in fine gravel. These values fit with the experimental results reported by *Fry et al.* [1997] or *Geistlinger et al.* [2005], who determined residual gas saturations in natural sands between 9-17 %.

4.2. Change of initial gas injection rate

Results of the second set of experiments are listed in Table 3 (i.e. each row presents an individual experimental run).

Gas flow pattern obtained for different initial flow rates are shown in Figure 15a-c. In medium sand, a 3-times higher initial injection rate caused a strong expansion of gas-affected area (Figure 15a). In the coarse-grained porous media (i.e. coarse sand, fine gravel), a significant influence of changing initial flow rate was a narrowing and reduction of gas-affected area A_{inj} and lateral gas advancement axis l_{axis} (Figure 15b, 15c). The change of these optically obtained spatial parameters with the applied injection rate is illustrated in Figure 15d. Negative values of $(A_{inj,2}/A_{inj,1})$ and $(l_{axis,2}/l_{axis,1})$ indicate an decrease in gas phase distribution with increasing initial injection rate.

Figure 15e shows the relationship between applied gas injection rates $(Q_{inj,2}/Q_{inj,1})$ and mean gas saturations $(S_{g,inj,2}/S_{g,inj,1})$. The efficiency E of a higher gas injection rate with respect to achieved gas saturation, expressed by the ratio between $(S_{g,inj,2}/S_{g,inj,1})$ and $(Q_{inj,2}/Q_{inj,1})$, indicates significant differences between the porous media. In medium sand, increase in the initial injection rate 3 times of $Q_{inj,1}$ led to a significant increase in gas saturation ($S_{g,inj}$ was doubled). On the opposite, in the coarser-grained porous media (i.e. coarse sand, fine gravel) a much larger ratio between $Q_{inj,2}$ and $Q_{inj,1}$ (~10 and ~20 times $Q_{inj,1}$, respectively) led only to a small increase in gas saturation (~ 2 times).

Generally, the results indicate that in coarse porous media, high initial injection rates can reduce the zone influenced by gas compared to lower injection rates, which can be a disadvantage for the remediation efficiency in field applications. On the opposite, in fine-grained porous media, high initial injection rates can be a benefit for field applications because the zone of influence can be enlarged. Nevertheless, care should be taken by choosing a maximum flow rate in order to avoid rearrangement/fracturing of the

sedimentological units [e.g., *Lundegard and Anderson, 1996; Tsai and Lin, 2004*] as well as short-circuit of gas flow along the injection wells [e.g., *Berkey et al., 2003*].

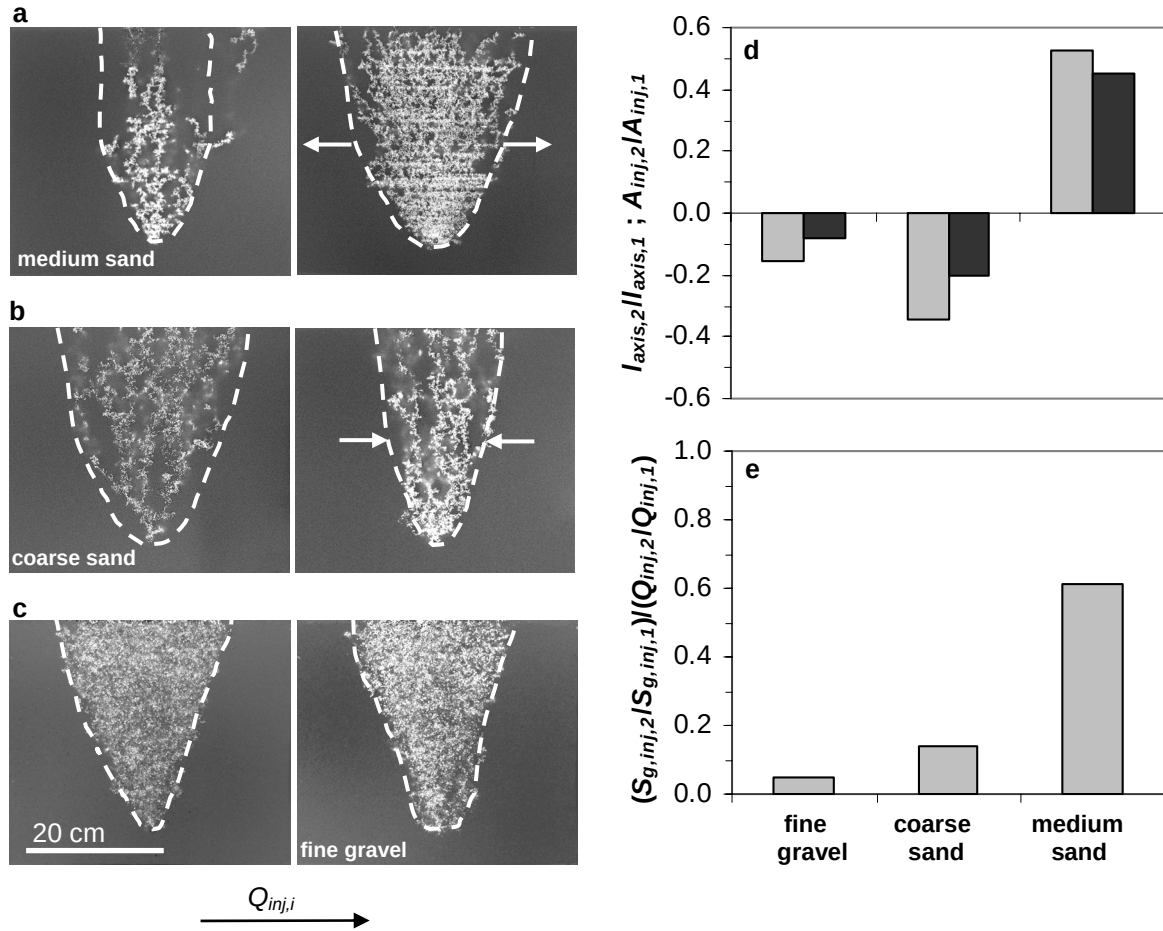


Figure 15. Influence of initial gas injection rate on gas flow geometry in mono-disperse glass beads: (a) - (c) gas flow pattern; (d) relationship between injection rate and gas advancement axis (grey columns) and gas-affected area (black columns), (e) relationship between initial gas flow rates and obtained gas saturations.

5. Summary and Conclusions

We experimentally investigated sequential stages of gas injection in porous media. As porous media, we used spherical glass beads as an analogue to silica sand. We observed significant differences in gas flow pattern under low flow conditions ($Q_{inj} \sim 10 \text{ cm}^3/\text{min}$).

In medium and gravelly sand, the gas plume consisted of a dense, coherent network of pore scale fingers. In coarse sand, a macroscopic dendritic network of gas channels with bypassed regions was formed. In contrast to this, gas flow in fine gravel was incoherent, which was expressed by small fluctuations in gas entry pressure and gas saturation. Gas phase moved as bubble-chains or gas-cluster to the porous media surface. Residual gas phase was homogeneously distributed inside the gas plume.

Based on Hagen-Poiseuille's-law [see also *Geistlinger et al., 2006*] we derived Darcy's law to theoretically describe coherent gas flow in fine-grained porous media. Our experimental results are in good agreement to the theory within a range of grain sizes and permeabilities, respectively.

With respect to porous media characteristics (glass beads 0.25-2.2 mm) and injection geometry (point-like), the following conclusions can be derived from this study:

1. Parabolic shaped gas plumes developed for all media types.
2. Fluctuations of gas phase volume and gas entry pressure indicate incoherent gas movement.
3. For larger pore dimensions and low gas injection rates, gas entry pressures can be described with the static concept of capillary pressure by using the pore size geometry (i.e. minimum pore throat diameter).
4. For coherent gas flow, the non-linearity between V_g and Q_{inj} shows the validity of Darcy's law. The experimentally determined mean gas residence time τ_g in dependence to the gas pressure gradient can be used to classify the gas flow regime (coherent/incoherent).
5. A transition in gas flow regimes between incoherent and coherent gas flow can occur within one porous medium size as a function of gas injection rate [see also *Geistlinger et al.*, 2006].
6. An increase in the initial gas injection rate can extend the gas-affected area in fine-grained media (e.g. medium sand), but a significant narrowing of the gas plume can occur in coarse-grained media (e.g. coarse sand, fine gravel).
7. The results of the majority of bench-scale experiments (based on air injection rate) reported in the literature are not comparable with each other. Due to different injection and flow field geometries (i.e. flow-cell/columns dimensions, geometries of sparge-point), similar gas injection rates Q_{inj} lead to different gas phase velocities, which significantly influence the flux behavior and the distribution of gas filled pore space. Thus, it should be subject of further research to find out the condition for a better comparability of gas injection experiments (i.e. relationship between the geometrically dimensions of the physical flow model, the applied gas injection rates and the resulting geometries of the gas plumes).

Acknowledgement

Prof. Ludwig Luckner & co-workers deserve our thanks for cooperation, Prof. Mario Schirmer and Dr. Sascha Oswald for critical hints concerning the manuscript, respectively. The work was funded by the German Federal Ministry of Research and Technology and is part of the SAFIRA-project.

References

- Ahlfeld, D. P., Dahmani, A., and W. Ji (1994), A conceptual model of field behavior of air sparging and its implications for application, *Ground Water Monit. Rem.*, 14(4), 132-139.
- Brooks, M. C., Wise, W. R., and M. D. Annable (1999), Fundamental changes in situ air sparging flow patterns, *Ground Water Monit. Rem.*, 19(2), 105-113.
- Berkey, J. S., Lachmar, T. E., Doucette, W. J., and R. Ryan Dupont (2003), Tracer studies for evaluation of in situ air sparging and in-well aeration system performance at a gasoline-contaminated site, *J. Hazard. Mater.*, 98(1-3), 127-144.
- Busch, K. F., Luckner, L., and K. Tiemer (1993), *Geohydraulik*, Lehrbuch der Hydrogeologie Bd. 3, 496 pp., Gebrüder Bornträger Verlag, Berlin-Stuttgart.

- Chen, M. R., Hinkley, R. E., and J. E. Killough (1996), Computed tomography imaging of air sparging in porous media, *Water Resour. Res.*, 32(10), 3013-3024.
- Clayton, W. S. (1998), Field and laboratory investigation of air fingering during air sparging, *Ground Water Monit. Rem.*, 18(3), 134-145.
- Clayton, W. S. (1999), Effects of pore scale dead-end air fingers on relative permeabilities for air sparging in soils, *Water Resour. Res.*, 35(10), 2909-2919.
- Dror, I., Berkowitz, B., and S. M. Gorelick (2004), Effects of air injection on flow through porous media: Observations and analyses of laboratory-scale processes, *Water Resour. Res.*, 40, W09203, doi:10.1029/2003WR002960.
- Fry, V. A., Selker, J. S., and S. M. Gorelick (1997), Experimental investigations for trapping oxygen gas in saturated porous media for in situ bioremediation, *Water Resour. Res.*, 33(12), 2687-2696.
- Geistlinger, H., Beckmann, A., and D. Lazik (2005), Mass transfer between a multi-component trapped gas phase and a mobile water phase: Experiment and theory, accepted for publication in *Water Resour. Res.*
- Geistlinger, H., Krauss, G., Lazik, D., and L. Luckner (2006), Direct gas injection into saturated glass beads: Transition from incoherent to coherent gas flow pattern, accepted for publication in *Water Resour. Res.*
- Glass, R. J., Conrad, S. H., and W. Peplinski (2000), Gravity-destabilized nonwetting phase invasion in macroheterogeneous porous media: Experimental observations of invasion dynamics and scale analysis, *Water Resour. Res.*, 36(11), 3121-3137.
- Haughey, D. P. and G. S. G. Beveridge (1969), Structural Properties of Packed Beds - A Review, *Canad. J. Chem. Eng.*, 47, 130-140.
- Holländer, A., Klein, W., and M. Keusgen (2003), Polymeroberflächen für biomedizinische Anwendungen, *Biospektrum*, 9(1), 39-41.
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D. P., Lin, J. D., and E. Hill (1993), Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization, *Ground Water Monit. Rem.*, 13(4), 115-126.
- Johnson, R. L., Johnson, P. C., McWhorther, D. B., Hinchee, R. E., and I. Goodman (1993), An Overview of In Situ Air Sparging, *Ground Water Monit. Rem.*, 13(4), 127-135.
- Johnson, P. C., Das, A. and C. Bruce (1999), Effect of flow rate changes and pulsing on the treatment of source zones by in situ air sparging, *Environ. Sci. Technol.*, 33(10), 1726-1731.
- Johnson, R. L., Johnson, P. C., Johnson, T. L., Thomson, N. R., and A. Leeson (2001), Diagnosis of In Situ Air Sparging Performance Using Transient Groundwater Pressure Changes during Startup and Shutdown, *Bioremediation Journal*, 5(4), 299-320.
- Johnston, C. D., Rayner, J. L., Patterson, B. M., and G. B. Davis (1998), Volatilisation and biodegradation during air sparging of dissolved BTEX-contaminated groundwater, *J. Contam. Hydrol.*, 33(3-4), 377-404.
- Johnston, C. D., Rayner, J. L., and D. Briegel (2002), Effectiveness of in situ air sparging for removing NAPL gasoline from a sandy aquifer near Perth, Western Australia, *J. Contam. Hydrol.*, 59(1-2), 87-111.
- Kirtland, B. C., Aelion, C. M., and M. A. Widdowson (2001), Long-term AS/SVE for petroleum removal in low-permeability Piedmont saprolite, *J. Environ. Eng.*, 127(2), 134-144.
- Lazik, D., Geistlinger, H., Krauss, G., Beckmann, A., and M. Schirmer (2002), Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“, *Grundwasser*, 3, 146-155.
- Lazik, D., Krauss, G., Schultze, R., and H. Geistlinger (2005a), Gravimetrically balanced high-resolution visualization of gas/water-phase displacement in porous media. submitted to *J. Contam. Hydrol.*
- Lazik, D., Krauss, G., and H. Geistlinger (2005b), Time series analysis of gas-bubble residence times in porous media, submitted to *Water Resour. Res.*
- Lee, C. H., Lee, J. Y., Jang, W. Y., Jeon, Y. H., and K. K. Lee (2002), Evaluation of air injection and extraction tests at a petroleum contaminated site, Korea. *Water Air and Soil Pollution*, 135(1-4), 65-91.
- Lundegard, P. D., and G. Andersen (1996), Multiphase numerical simulation of air sparging performance, *Ground Water*, 34(3), 451-460.
- McCray, J. E. (2000), Mathematical modeling of air sparging for subsurface remediation: state of the art, *J. Hazard. Mater.*, 72(2-3), 237-263.

- Morrow, N. R. and B. Songkran (1981), Effect of viscous and buoyancy forces on nonwetting phase trapping in porous media, In: Shah, D.O. (Editor), *Surface Phenomena in Enhanced Oil Recovery*, Plenum, New York, 387-411.
- Mozes, N., Marchal, F., Hermesse, M. P., Van Haecht, J. L., Reuliaux, L., Leonard, A. J., and P. G. Rouxhet (1987), Immobilization of Microorganisms by Adhesion: Interplay of Electrostatic and Nonelectrostatic Interactions. *Biotechnology and Bioengineering*, 30, 439-450.
- Murray, W. A., Lunardini Jr., R. C., Ullo Jr., F. J., and M. E. Davidson (2000), Site 5 air sparging pilot test, Naval Air Station Cecil Field, Jacksonville, Florida, *J. Hazard. Mater.*, 72(2-3), 121-145.
- Palzer, S., Hiebl, C., Sommer, K., and H. Lechner (2001), Einfluss der Rauigkeit einer Feststoffoberfläche auf den Kontaktwinkel, *Chemie Ingenieur Technik*, 73(8), 1032-1038.
- Peterson, J. W., Lepczyk, P. A., and K. L. Lake (1999), Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach, *Environ. Geol.*, 38(1), 1-6.
- Peterson, J. W., Murray, K. S., Tulu, Y. I., Peuler, B. D., and D. A. Wilkens (2001), Airflow geometry in air sparging of fine-grained sands, *Hydrogeology Journal*, 9(2), 168-176.
- Rabideau, A. J., Blayden, J. M., and C. Ganguly (1999), Field performance of air sparging system for removing TCE from groundwater, *Environ. Sci. Technol.*, 33(1), 157-162.
- Rogers, S. W., and S. K. Ong (2000), Influence of porous media, airflow rate, and air channel spacing on benzene NAPL removal during air sparging, *Environ. Sci. Technol.*, 34(5), 764-770.
- Roosevelt, S. E. and M. Y. Corapcioglu (1998), Air bubble migration in a granular porous medium: Experimental studies, *Water Resour. Res.*, 34(5), 1131-1142.
- Salanitro, J. P., Johnson, P. C., Spinnler, G. E., Maner, P. M., Wisniewski, H. L., and C. Bruce (2000), Field scale demonstration of enhanced MTBE bioremediation through aquifer bioaugmentation and oxygenation, *Environ. Sci. Technol.*, 34(19), 4152-4162.
- Selker, J. S., M. Niemet, N. G. McDuffie, S. M. Gorelick, and J. Y. Parlange (2005), The Local Geometry of Gas Injection into Saturated Homogeneous Porous Media, *Transport in Porous Media*, in press.
- Semer, R., Adams, J. A., and K. R. Reddy (1998), Experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging, *Geotech. Geol. Eng.*, 16(1), 59-75.
- Tomlinson, D. W., Thomson, N. R., Johnson, R. L., and J. D. Redman (2003), Air distribution in the Borden aquifer during in situ air sparging, *J. Contam. Hydrol.*, 67(1-4), 113-132.
- Tsai, Y. J. and D. F. Lin (2004), Mobilizing particles in a saturated zone during air sparging, *Environ. Sci. Technol.*, 38(2), 643-649.
- Wan, J. M., Veerapaneni, S., Gadelle, F., and T. K. Tokunaga (2001), Generation of stable microbubbles and their transport through porous media, *Water Resour. Res.*, 37(5), 1173-1182.

Time series analyses of gas-bubble residence time in porous media

DETLEF LAZIK, GUNNAR KRAUSS, HELMUT GEISTLINGER

Department of Hydrogeology, UFZ-Centre for Environmental Research Leipzig-Halle in the Helmholtz Association, Halle, Germany

Abstract

Gas injection into coarse, water saturated sediments results in bubble movement and formation of an incoherent trapped gas phase. Small fluctuations of gas entry pressure into, and gas volume inside the observation space, respectively, are characteristic for that type of incoherent gas movement. Based on these fluctuations measured in a bench scale – 2D flow cell, two independent methods are derived for the quantification of bubble residence time distribution inside of porous media. The gas injection system developed for the investigation provides both a simple control of frequency of gas bubble entry and the analysis of gas phase behavior when entering the pore space. The gas volume inside the flow cell was quantified by a fast overflow and weighting system as function of time. Therefore, the methods described in this paper estimate the bubble residence time-distribution quantitatively. The methods are independent from the type of sediment and the geometry of flow cell, respectively. First results obtained for 2 mm glass-bead sediment are in agreement as well between the methods developed as with simultaneously performed optical control measurements. They confirm the expected bubble velocity range.

Keywords: porous medium, gas bubble, residence time, time series analysis

1. Introduction

Direct gas injection into contaminated aquifers can be a cost-effective in situ remediation technology. Spatial distribution, extent and geometry of the gas-water interfacial area, and the capillary pressure corresponding to the sediment control the mass transfer rate between the gaseous and aqueous phase and influences hydraulic aquifer properties. The gas bubble rise determines the bubble residence time (the time for mass transfer) inside of aquifers, influences the renewal of a trapped gas phase and is the basis for the removal efficiency of the contaminants.

In the last decade, numerous authors extensively investigated gas/water-phase interaction in sediments. Our studies focused on the analysis of microscopic mass transfer characteristics between gas- and water phase [Geistlinger *et al.*, 2005], the dynamics of gas/water-phase displacement under a variety of injection conditions in granular porous media [Lazik *et al.*, 2002; Krauss *et al.*, 2005], the development of a suitable in-situ gas monitoring technique [Lazik *et al.*, 2005], and the numerical simulation of gas bubble dissolution in bench and field scale [Geistlinger *et al.*, 2005].

It has been shown that the mode of gas flow in porous media strongly depends on the pore and grain size, respectively [e.g., Ji *et al.*, 1993, Semer *et al.*, 1998, Roosevelt and Corapcioglu, 1998, Brooks *et al.*, 1999, Peterson *et al.*, 1999]. In fine-grained sediments ($d_g < 1$ mm) gas flows in discrete channels, whereas in coarse sediments ($d_g > 4$ mm) gas flow takes place in the form of discrete bubbles. For mono-disperse porous media the transition between buoyancy-driven bubbly flow and capillary pressure

dominated channelized flow was found within a grain size of about 2 mm [e.g., *Ji et al.*, 1993, *Peterson et al.*, 1999].

Most of the experiments referred in the literature were gas flux controlled. Note, that different injection systems were used in field applications like Teflon tubing [ID 10 mm, e.g., *Tomlinson et al.*, 2003] or PVC-pipes [ID ~ 50-100 mm, e.g., *Johnston et al.*, 1998; *Benner et al.*, 2002].

Roosevelt and Corapcioglu [1998] studied the rise velocity of a gas bubble in porous media. They optically observed the motion of discrete bubbles that were injected in water-saturated 4 mm glass beads (randomly packed) inside of glass columns (inner diameters 3.6 cm / 3.9 cm, height of packed beads 90 cm). The authors determined a bubble rise velocity in the range of 16.7 to 20.2 cm/s. Based on the balance equation for forces acting on a bubble rising in porous media, *Corapcioglu et al.* [2004] showed that the (mean) bubble rise velocity has to be constant after a short travel distance. They theoretically estimated a terminal rise velocity of gas bubbles of 18.5 cm/s, which can not be exceeded in porous media. *Stark and Manga* [2000] theoretically investigated the motion of long bubbles through a water filled tube-network model. With increase of the volumetric fraction of the gas phase, they found a wider range of bubble residence times in the network, whereas no correlation between fluctuations of the number of bubbles in the network and the volumetric gas flux occurred.

In 4 mm porous media bubble flow is pervasive and entrapment of large gas phase aggregates is not probable resulting in small content of residual gas phase [*Ji et al.*, 1993; *Peterson et al.*, 1999]. Beside the rise of single bubbles, *Roosevelt and Corapcioglu* [1998] mainly observed the movement of (temporarily entrapped) bubble chains with a lower rise velocity of about 13.8 cm/s. *Krauss et al.* [2005] studied the dynamics of gas-water phase displacement for 2 mm glass beads for a low gas injection rate of $Q_{inj} \approx 10 \text{ cm}^3(\text{stc})/\text{min}$ (stc-standard conditions: $T = 20^\circ\text{C}$, $p = 0.103 \text{ MPa}$). In concordance with the literature [e.g., *Brooks et al.*, 1998; *Peterson et al.*, 1999] we see the entrapment of a relatively high amount of incoherent gas phase in comparison at that of the buoyancy-driven moving bubbles. Moreover, short-term fluctuations of the gas entry pressure and the gas volume inside the flow cell were registered. These fluctuations for the flow cell geometry used in this study are small with respect to the hydrostatic pressure at the injection point or the total volume of gas phase stored. Based on these fluctuations, we develop a quantitative method for the measurement of residence time distribution of incoherent moving gas phase (bubbles) in porous media.

2. Theory

2.1. Injection dynamics

The injection system contains a gas source volume V_s composed of the gas filled part of the pre-column, the tube and injection point interior and, a certain part of connected pore space [for details see *Krauss et al.*, 2005]. A pressure-gauge, installed inside V_s enables the real-time observation of gas pressure at the gas-water interface inside the porous medium (gas entry pressure p_g).

At the reproducible minimum of the pressure fluctuations recorded during an experimental run (see Figure 7) the volume of the injection system is assumed to be restricted by the first pore neck available by the gas phase within the sediment

$$V_s(t = t_0 + k\tau_p) = V(p_{g0}) = V_{s0}, \quad k = 1, 2, \dots \quad (1)$$

(τ_p - length of a pressure pulse). According to the ideal gas law, a small increase in pressure dp_g inside the fixed volume V_{s0} is for $T = \text{const}$ equivalent to a small increase in volume

$$dV_s = Q_{inj} dt, \quad (2)$$

assuming a fixed pressure p_{g0} and yields

$$dp_g = \frac{p_{g0}}{V_{s0}} Q_{inj} dt. \quad (3)$$

As long as the gas phase not enters the first pore neck, changes of gas volume will be neglected ($V_s(t_0 \leq t < t_1) = V_{s0}$) and the pressure increase has to be nearly linear with time

$$\begin{aligned} \Delta p_g &= p_g(t) - p_{g0} = \frac{p_{g0}}{V_{s0}} Q_{inj} (t - t_0), \quad t_0 \leq t < t_1, \\ (p_g &= p_{g,abs} - (\rho_w g h_w + p_{atm})). \end{aligned} \quad (4)$$

If the pressure exceeds the capillary pressure (defined by the pore neck) at time t_1 , the coherent gas phase expands into the pore space up to t_2 (bubble release time: $\tau_{bf} = t_2 - t_1$), whereas the pressure decreases to p_{g0} again. The gas source volume increases to

$$V_s = V_{s0} + Q_{inj} \tau_p, \quad \tau_p = t_2 - t_0, \quad (5)$$

snap-off occurs, and a gas bubble cluster of the size V_{bf} :

$$V_{bf} = Q_{inj} \tau_p \quad (6)$$

is formed ("bubble cluster" is called "bubble" in the following). Immediately after snap-off the gas pressure increases again.

Due to the experimental conditions and the small pressure changes observed (0.1...0.3 kPa), an adiabatic drop in gas temperature during expansion (Joule-Thomson effect), with $\Delta T = -\mu_g \Delta p$, ($\mu_g \approx 2.5$ K/MPa - Joule-Thomson coefficient, air is used as gas phase), and a consecutive gas temperature equilibration with the surrounding [see e.g. *Gostiaux et al.*, 2002] will be neglected in this consideration.

2.2. Gravimetric gas phase balancing

The entrapment of the gas phase volume V_g inside the flow cell was observed by measurements of the displaced water mass. Therefore, an overflow system [see *Lazik et al.*, 2002; *Krauss et al.*, 2005]

containing two high flux peristaltic pumps was developed. One pump sucks water and gas with Q_p^{out} at different positions from the hydrostatic head level h_w

$$h_w = const \quad (7)$$

of the flow cell to a weighed bottle, and the other re-injects water with Q_p^{in} from that bottle back into the flow cell. After adjustment of the fluxes Q_p^{in} and Q_p^{out} (see below), we assumed that the dynamic overflow system enables a sufficient experimental realization of a constant hydrostatic head condition (equation (7)). For this dynamic range, the small and very fast fluctuations of gas-volume inside the flow cell are represented by the corresponding changes of water mass m_w of the weighted bottle

$$\frac{dV_g(t)}{dt} = \frac{1}{\rho_w} \frac{dm_w(t + \tau_s)}{dt}. \quad (8)$$

Equation (8) considers the time shift τ_s between an event inside the flow cell and its registration on the scale. Neglecting the gas compressibility, τ_s is given by

$$\tau_s = \frac{V_{tube}}{Q_p^{out}} \quad (9)$$

and has found to be almost independent from the phases composition inside the transfer line (tubes) to the scale. Thus, τ_s only depends on the adjusted experimental setup. For the given initial conditions

$$m_w(t_0 + \tau_s) = m_{w0}, \quad V_g(t_0) = V_{g0}, \quad (10)$$

and the dynamic range $0 \ll Q_p^{in} + dV_g(t)/dt \ll Q_p^{out}$ of the overflow system (see Figure 3-4), equation (8) yields

$$V_g(t) = \frac{m_w(t + \tau_s)}{\rho_w} + \left(V_{g0} - \frac{m_{w0}}{\rho_w} \right), \quad (11)$$

between water mass on the scale and gas volume in the flow cell.

2.3. Conceptual model of bubble movement

Has a porous media a) over time a stable (or reproducible) pore geometry around the gas injection point and, b) proceeds the formation of consecutive bubbles independent from each other, then both the pressure hysteresis

$$p_g(t) = p_g(t + k\tau_p) = \begin{cases} p_{g0} \left(1 + \frac{Q_{inj}}{V_{s0}} (t - t_0) \right), & t_0 \leq t < t_1 \\ p_{g1} \left(1 + \frac{Q_{inj} - Q_g^{in}(t)}{V_{s0}} (t - t_1) \right), & t_1 \leq t < t_2 \end{cases} \quad (12)$$

($p_{g1} = p_g(t_1)$), in equation (4)), and the consecutive gas bubble formation process

$$V_{bf}(t) = V_{bf}(t + k \tau_p) = V_s(t) - V_{s0} = \int_{\tau_{bf}} Q_g^{in}(t) dt, \quad k = 1, 2, \dots \quad (13)$$

(Q_s - flux of the expanding gas phase through the pore neck) are time-independent for $t - t_0 > \tau_p$. For a given mean volume of trapped gas phase over a short time range of e.g. (5...10) $\bar{\tau}_b$ ($\bar{\tau}_b$ is the mean residence time of gas bubbles), and a stationary gas injection process, we assume the time independency of bubble formation and discharge, whereas the development of trapped gas phase could be instationary.

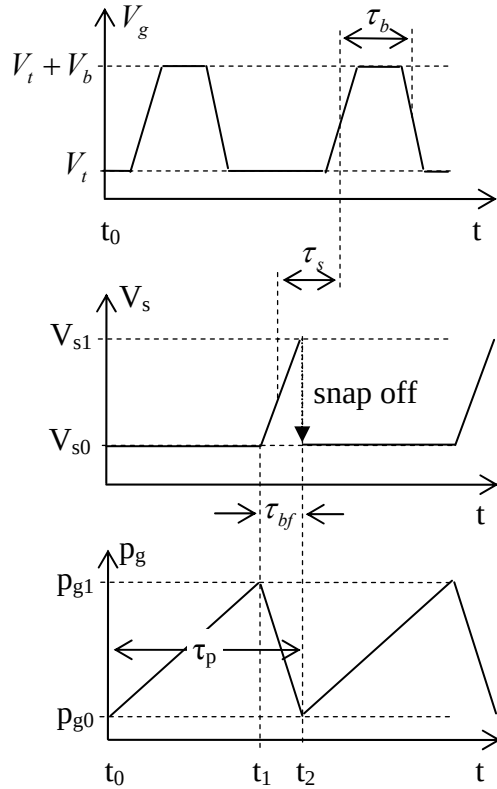


Figure 1 show schematically the assumed hysteretic process, which is subdivided into (from bottom to top):

- 1) periodic fluctuation of the gas entry pressure (equation (12)),
- 2) periodic fluctuation of the gas source volume (equation (13)) and
- 3) time-shifted, the periodicity of the observed gas phase volume inside the flow cell (equation (11)).

Figure 1. Fluctuations of gas entry pressure, of gas source volume and of the gas phase volume inside the flow cell (from bottom to top).

Supported by the non correlation- argument of *Stark and Manga* [2000], the gas volume V_g stored at time t is assumed to be composed of two fractions: the incoherent trapped gas phase V_t and the actually moving bubble volume V_b :

$$V_g(t) = V_b(t) + V_t(t). \quad (14)$$

The conceptual balance model (Figure 2) shows the volumetric gas fluxes between the different fractions inside the model and the ones over the model boundary expressed by:

$$\begin{aligned}
\frac{dV_g}{dt} &= \frac{dV_b}{dt} + \frac{dV_t}{dt}, \\
\frac{dV_b}{dt} &= Q_g^{in} - Q_g^{out} + Q_r - Q_t, \\
\frac{dV_t}{dt} &= Q_t - Q_r
\end{aligned} \tag{15}$$

(Q_t, Q_r - gas fluxes which result in gas entrapment or in removal of previously trapped gas, respectively).

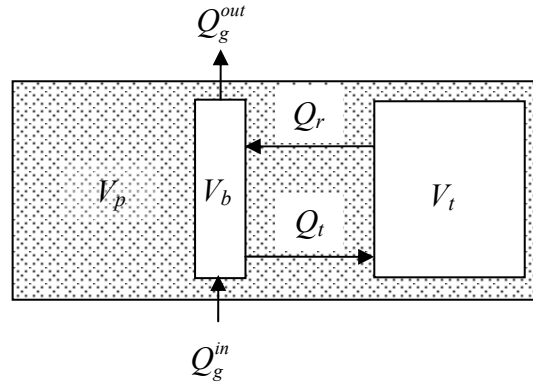


Figure 2. Conceptual balance model of incoherent gas movement (V_p - pore space of the porous matrix).

The entrapment/remobilization of gas bubbles is assumed fast with respect to the mean bubble velocity. The development of the incoherent trapped gas phase behaves asymptotic for a given set of experimental conditions ($Q_{inj} = const, h_w = const, V_{g0} = const, p_{g0} = const, T = const$)

$$\bar{V}_t(t \rightarrow t_\infty) = const \tag{16}$$

(t_∞ - gas phase entrapment reaches steady state). If its variation in time

$$\delta V_t \propto \delta Q_{t,r} = Q_t - Q_r \ll \{Q_t, Q_r\} \tag{17}$$

for a given time interval of about τ_b is smaller than the variation of the gas bubble volume, one obtains single gas volume pulses of the shape

$$\begin{aligned}
V_g(t + k\tau_b) - \bar{V}_t &= \int_{\lambda=0}^t (Q_g^{in}(k\tau_b + \lambda) - Q_g^{out}(k\tau_b + \lambda)) d\lambda - \delta V_t(t + k\tau_b) = V_b(t + k\tau_b), \\
t + k\tau_b &> t_\infty, \quad 0 \leq t \leq \tau_b, \quad k = 1, 2, \dots
\end{aligned} \tag{18}$$

For a given gas injection rate, the change of gas volume should fluctuate around zero and, corresponds generally with the bubble formation at the sparge point and the bubble discharge at the open water surface. If the time of single bubble formation t_b^{in} is defined by the maximum increase in gas volume

$$t_b^{in} = t \left(Q_g^{in} = \frac{dV_g}{dt} \Big|_{Max} \right), \tag{19}$$

and, the subsequent discharge time t_b^{out} of this bubble is expressed by the maximum decrease in gas volume

$$t_b^{out} = t \left(Q_g^{out} = \frac{dV_g}{dt} \Big|_{Min} \right), \quad (20)$$

the residence time of a single gas bubble inside the porous medium is given by

$$\tau_b = t_b^{out} - t_b^{in}. \quad (21)$$

We cannot distinguish between different gas flow paths inside the flow cell. Taking into account the point-like injection geometry and the V-shaped gas phase distribution, a range of the rise velocity with respect to the simple travel distance yields

$$v_b = \frac{h_w}{\tau_b \cos \alpha}, \quad (22)$$

($0 \leq \alpha \leq \alpha_{\max}$ - deflection angle of the incoherent trapped gas phase).

The gas injection process is assumed ergodic, which means that with time the gas-water interface inside the porous medium is able to reach each status that correlates with its energy. Ergodicity results in the equivalence of the expectancy values derived from simultaneous observed process realizations (in a number of experiments) to the ones of realization repetitions over time (one experiment).

2.4. Time domain analysis

2.4.1. Multiple peak shape analysis

To estimate the residence time distribution of τ_b , the experimentally obtained time series (see equation (11))

$$V_g = \left\{ V_g(k \Delta t) = V_{g,k} \right\}_{k=1}^n, \quad \Delta t = \text{const} \quad (23)$$

has to be differentiated numerically to extract the constraints equation (19) and equation (20) from equation (15). The common way to perform the derivation of a numerical record consists in the piecewise differentiation of a polynomial of the order m , which is previously fitted to the respective section of the record. If j supporting points are included, the ratio $m/j < 1$ defines the smoothing behavior for the desired depression of statistical fluctuations. If the record is formed by different dynamic components according to equation (14) it is sometimes difficult to define m with respect to the conservation of the original signal dynamics. The same problem (loss in signal dynamics) occurs, e.g. when applying Fourier series analysis. Moreover, smoothing of asymmetrical signals could cause a signal shift in time. Therefore, a record-non-deformable method is developed based on interpolation by cubic splines. Thereby, $n-1$ polynomials S_i

$$S_i = a_i + b_i(t - t_i) + c_i(t - t_i)^2 + d_i(t - t_i)^3 \quad t_{i-1} \leq t \leq t_i, \quad (24)$$

were applied to interpolate between the supporting values $V_{g,i}$ (see Appendix). The first deviation of equation (24) represents the requested approximation to equation (15) in each time interval. Moreover, at the interval boundaries (for $t \rightarrow t_i$) the members of higher order disappear

$$\left\{ \frac{dV_{g,i}}{dt} \right\}_i = \left\{ \frac{dS_i}{dt} \Big|_{t \rightarrow t_i} \right\}_i = b = \{b_i\}_i, \quad i = 1, \dots, n, \quad (28)$$

$$t_i = i \Delta t.$$

Due to the exact interpolation of the supporting values $V_{g,i}$ by equation (24), the reminder term R^b

$$\{R_i^b\}_i = \left\{ \frac{\Delta t}{1!} \frac{d^2 S_i}{dt^2} \Big|_{t \rightarrow t_i} + \frac{\Delta t^2}{2!} \left(\frac{d^3 S_i}{dt^3} \right) \Big|_{t \rightarrow t_i} \right\}_i = \Delta t \{2c_i + 3\Delta t d_i\}_i, \quad i = 1, \dots, n-1 \quad (29)$$

of b according to Taylor for $t \rightarrow t_i$ completely contains the uncertainties of data and concept, respectively. The mean uncertainty $\bar{R}^b$ of b

$$\bar{R}^b = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n-1} |R_i^b| \quad (30)$$

in equation (29) is further used to split equation (28) into the probable sub-rows

$$\left\{ \frac{dV_{g,i+j}}{dt} \right\}_{i+j} = \begin{cases} \{Q_{g,i}^{in}\}_i, & dV_{g,i}/dt > \frac{1}{2} \bar{R}^b \\ \{Q_{g,j}^{out}\}_j, & dV_{g,i}/dt < -\frac{1}{2} \bar{R}^b \end{cases}, \quad i \neq j, \quad 1 \leq i+j \leq n, \quad (31)$$

which have to satisfy the gas volume balance (equation (18)). To complete the identification of a single gas pulse, consecutive local maxima-minima tuples of the flux

$$P_k = \{Q_{g,k}^{in}, Q_{g,k+j}^{out}\}_k, \quad j = 1, 2, \dots \quad (32)$$

$$\tau_{b,k} = j \Delta t$$

were separated. Thereby, only these values were set into relation that

(I) exceed $Q_{g,i}^{in} > (\lambda + 1) \bar{Q}_g^{in}$ or fall below $Q_{g,i}^{out} < (\lambda + 1) \bar{Q}_g^{out}$, respectively, the λ -fold of the particular series-mean $\bar{Q}_g^{in}$ and $\bar{Q}_g^{out}$ and,

(II) have a mean residence time lower than a predefined threshold $\tau_{b,i} < \tau_b^{\max}$.

The single pulse shapes differ from each other depending on the random paths of the moving gas bubbles and its interaction with gas traps or trapped gas phases (resulting in small shifts δV_i). Therefore, to roughly estimate the volume of a rising gas pulse, we define

$$V_b(P_k) = 2 \text{Max}\{V_g\}_k^{k+j} - (V_{g,k} + V_{g,k+j}) \quad (33)$$

(index j in equation (32) specified for a given k). To verify the results obtained from this peak shape analysis, an independent second algorithm is formed.

2.4.2. Correlation analysis

If $\{\xi_i\}_1^n$, $\{\psi_i\}_1^n$ are stochastic series of an ergodic process, $r_{\xi\psi}^{(\omega, \varphi, \chi)}$:

$$\begin{aligned} r_{\xi\psi}^{(\omega, \varphi, \chi)} &= \sum_{i=\chi-\omega}^{\chi+\omega} \frac{(\xi_i - \bar{\xi}_{\chi, \omega}) (\psi_{i+\varphi} - \bar{\psi}_{\chi, \omega, \varphi})}{(\xi_i - \bar{\xi}_{\chi, \omega})^{1/2} (\psi_{i+\varphi} - \bar{\psi}_{\chi, \omega, \varphi})^{1/2}}, \\ \bar{\xi}_{\chi, \omega} &= \frac{1}{2\omega+1} \sum_{i=\chi-\omega}^{\chi+\omega} \xi_i, \\ \bar{\psi}_{\chi, \omega, \varphi} &= \frac{1}{2\omega+1} \sum_{i=\chi-\omega}^{\chi+\omega} \psi_{i+\varphi} \end{aligned} \quad (34)$$

(called: $r_{\xi\psi}$) represents the approximation of their cross correlation function for the time lag

$$t_\varphi = \varphi \Delta t, \quad \varphi = 0, 1, 2, 3, \dots, \varphi_{\max}, \quad (35)$$

the time window

$$\tau_\omega = 2\omega \Delta t, \quad \omega = \omega_{\min} + \{1, 2, 3, \dots\} \Delta \omega, \quad \omega < \frac{1}{2}(n - \varphi_{\max}) \quad (36)$$

and the reference time

$$t_\chi = \chi \Delta t, \quad \chi = \omega + 1, \dots, n - (\omega + \varphi_{\max}). \quad (37)$$

Assuming the strict time independence, an expansion of the time window τ_ω for the correlation of process-dependent variables reduces the impact of uncorrelated signals (destructive interference) and amplifies the impact of correlated signals on $r_{\xi\psi}$ (constructive interference), respectively.

Cross correlation of fluctuations ρ

$$\rho = \left\{ p_{g,i} - \frac{1}{n} \sum_j p_{g,j} \right\}_{i=1}^n \quad (38)$$

of the gas injection pressure set as $\xi = \rho$ in equation (34) with the change of gas volume $\psi = b$, should show a strong maximum for a positive $\bar{\tau}_{pb} = t_\varphi$, if $b(\rho)$ represents a physical (causal) system, and form the most probable signal correlation for

$$b(t - \bar{\tau}_{pb}) = f(\rho(t)). \quad (39)$$

Moreover, a shift of $\bar{\tau}_{pb}$ over the time range of the experiment would indicate changes of the experimental conditions.

For $\psi = \xi = \rho$, the cross correlation function (equation (34)) is called auto correlation function of the injection pressure dynamics (equation (38)). First, one expects a minimum for a time lag where positive and negative points of gravity, formed by the positive/negative values of the pressure pulse sequence ρ , fall together. The consecutive maximum of $r_{\rho\rho}$ confines the mean pressure pulse length at

$$\bar{\tau}_p = t_\varphi. \quad (40)$$

The auto correlation function of the volumetric change inside the flow cell (equation (28)) with $\psi = \xi = b$ should give the first minimum in r_{bb} for the time lag of the mean bubble residence time

$$\bar{\tau}_b = t_\varphi. \quad (41)$$

The different extremes in $r_{\xi\psi}$ can be simply specified by the analysis of a second order polynomial previously fitted to the relevant range of the correlation function.

3. Experiments

Experimental setup and procedures are described in detail in *Krauss et al.* [2005].

The experiments were conducted with 2.0 - 2.2 mm spherical glass beads filled into a Plexiglas flow cell (inner dimensions 40 x 45 x 1.2 cm). A small hammer was used to vibrate the tank from the back in order to produce a tight pack ($\varphi \sim 0.4$). The glass beads were overlain by a litho-static load layer of lead beads ($d_g = 3$ mm, density 11.2 g/cm³). Gauze was inserted between that load layer and beads to prevent mixing.

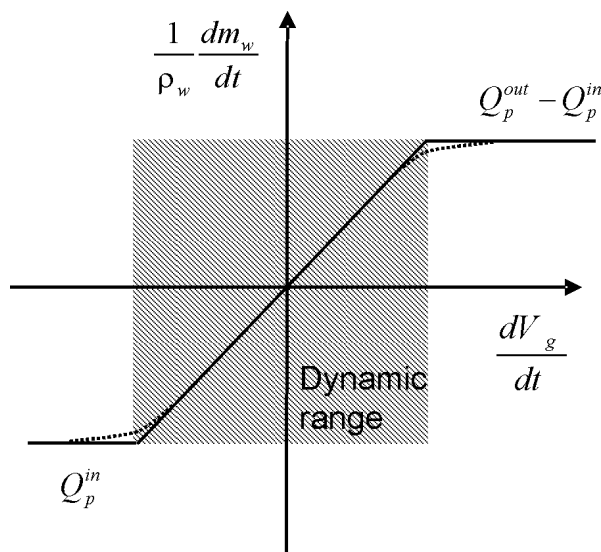
During the experiments, the bulk water flow was only depending on phase displacement processes. The hydraulic head was set ~ 1 cm above the load layer at $h_w = 37$ cm with respect to the injection point.

A constant gas flux of $Q_{inj} \approx 10$ cm³(stc)/s was adjusted inside the previously water saturated flow cell.

Prior to entering the flow cell, the gas was pre-saturated with water vapor in a pre-sparging column to avoid evaporation of water from the flow cell. The gas source volumes $V_{s0} \approx 10^1 \dots 10^3$ cm³ were kept constant during the individual experimental runs.

The fluxes Q_p^{in} , Q_p^{out} of the overflow system have to be adjusted to define the validity (dynamic) range (s. Figure 3) of equation (11).

Therefore, we assume that entry and discharge fluxes of the gas phase are of similar maximum amount



$Max(Q_g^{in}) \approx Max(Q_g^{out}) = Q_g^{max}$. Moreover, we

consider the nonlinearity of the real dynamics of the overflow system near the ends of the dynamic range (symbolized by the dashed lines in Figure 3).

Therefore, the fluxes were adjusted at

$$\frac{1/2 Q_p^{out}}{Q_g^{max}} = \frac{Q_p^{in}}{Q_g^{max}} = f \geq 1.5. \quad (42)$$

Figure 3. Ideal (solid line) and real (dashed line) dynamic scale behavior of the overflow & weighting system.

The absolute entry pressure (gas source pressure $p_{g,abs}$) reduced by the pressures of water and atmosphere $p_g = p_{g,abs} - (\rho_w g h_w + p_{atm})$ and the gas volume inside the flow cell (measured indirectly according equation (11)) were monitored computer-based with a temporal resolution of $\Delta t = 0.1, \dots, 0.2$ s using DasyLAB V6.0. Within one experimental run, the small shifts of both the temperature (lab temperature) and the air pressure were neglected. The time series obtained were processed by codes written with Mathematica 5.1 (Wolfram Research).

An optical reference-determination of gas bubble movement was performed by two CCD-cameras [see *Lazik et al.*, 2005].

4. Results and discussion

4.1. Test of the developed methods

The application of the methods developed is demonstrated at short parts of experimental records taken with a temporal resolution of $\Delta t = 0.2$ s, a gas source volume $V_{s0} \approx 3500$ cm³, and a load layer thickness of about 6 cm.

4.1.1. Flux adjustment of the overflow system

Figure 4 shows the influence of the flux-adjustment of the overflow system on the measurement of gas volume.

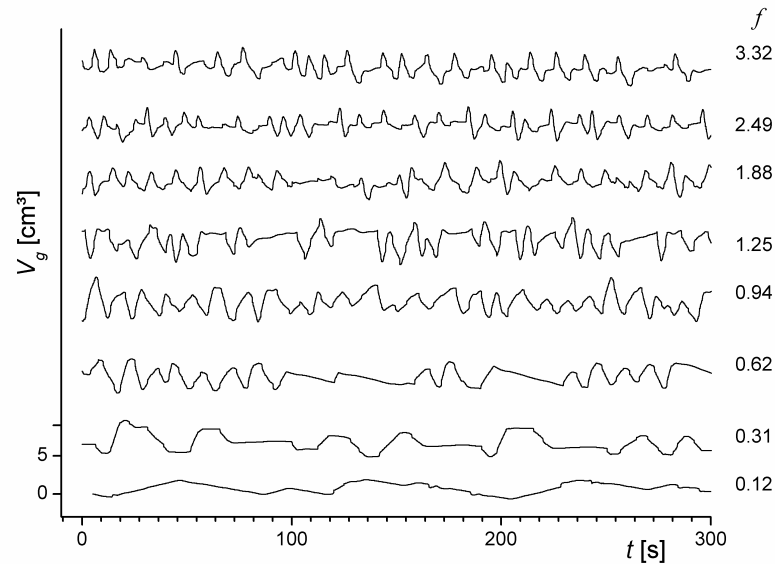


Figure 4. Influence of the flux of the overflow system on the measurement of gas volume ($Q_g^{\max} \approx 4$ cm³/s.). The flux of the overflow system increases with f .

For small water fluxes ($f < 0.5$), a short-term volumetric change inside the flow cell is compensated by the next without registration. With increasing flux, fluctuations of gas volume inside the flow cell are changing significantly and show higher dynamics. Due to a comparably too slow re-adjustment of the hydrostatic head (constant head condition equation (7)) the peak shape is modified by the dynamics of the

overflow system. If the fluxes of the overflow system exceed the maximum gas-fluxes over the cell boundaries ($f > 1$), the peak shape will be independent from f and is therefore be assumed as the true peak shape.

The fluxes of the overflow system were adjusted with $f \approx 1.5$ assuming a maximum gas flux of $Q_g^{\max} \approx 4 \text{ cm}^3/\text{s}$.

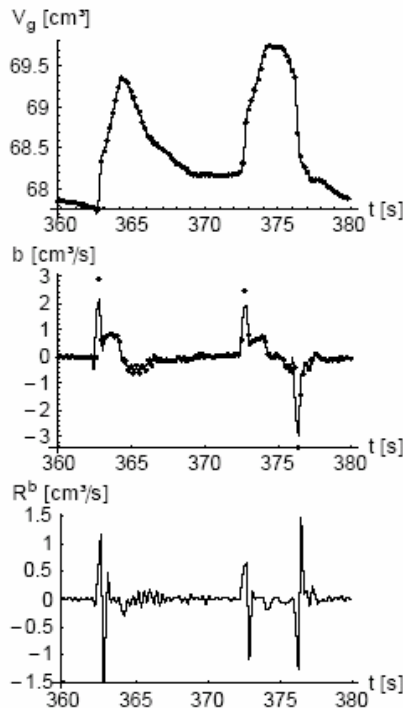
4.1.2. Multiple peak shape analysis

Figure 5 shows the interpolation behavior of S for a section of a V_g -record followed by the deviation in time represented by b in comparison with the simple numeric differentiation of V_g

$$\frac{1}{\Delta t}(V_{g,i+1} - V_{g,i}) = b_i + R_i^b, \quad i = 1, \dots, n-1, \quad (43)$$

and, the uncertainty in b , respectively.

Due to the water cycle induced by the overflow system, experimental uncertainties like surface water waves inside the flow cell, capillary effects of the suction tubes or scale agitation by rinsing water define the statistics of gas flux measurements and contribute to the reminder term R^b . Capillary effects can also lead to a sudden increase of the measured gas flux and volume, respectively. This effect has to be taken into account for flux adjustment of the overflow system and led to the comparable high value assumed for $Q_g^{\max}$. The mean uncertainty of b for the data shown in Figure 5 was estimated to $\bar{R}^b = 0.144 \text{ cm}^3/\text{s}$.



Taking into account the water surface area in the flow cell and assuming that the reminder term is only influenced by fluctuations of the water table, $\bar{R}^b$ corresponds with a mean fluctuation of about $dh_w/dt = 30 \mu\text{m/s}$.

Moreover, Figure 5 (V_g) shows two peaks with significant differences in shape. The volumetric increase of the first peak changes immediately into a slower long term volumetric decrease (e.g. after bubble entry a cascade of gas removal from trapped gas phase is induced, similar to the bubble chains discussed by *Roosevelt and Corapcioglu [1998]*). The second peak represents the time-shifted signals expected for the process conceptually described above, i.e (1) bubble formation, (2) bubble movement through the porous medium and (3) discharge at the water surface.

Figure 5. Spline-interpolated section (line) of measured gas volume (dots) V_g ; its derivation b (line) compared with the simple numeric derivation (dots) according to equation (42); and the uncertainty R^b of b .

4.1.3. Correlation analysis

Figure 6 shows the application of the auto correlation r_{bb} with the following steps:

- (1) spline interpolation of $V_g(t)$,
- (2) approximation of dV_g/dt by b ,
- (3) estimation of the auto correlation r_{bb} of the δ -formed stochastic signal series b and,
- (4) analysis of the partial auto correlation function.

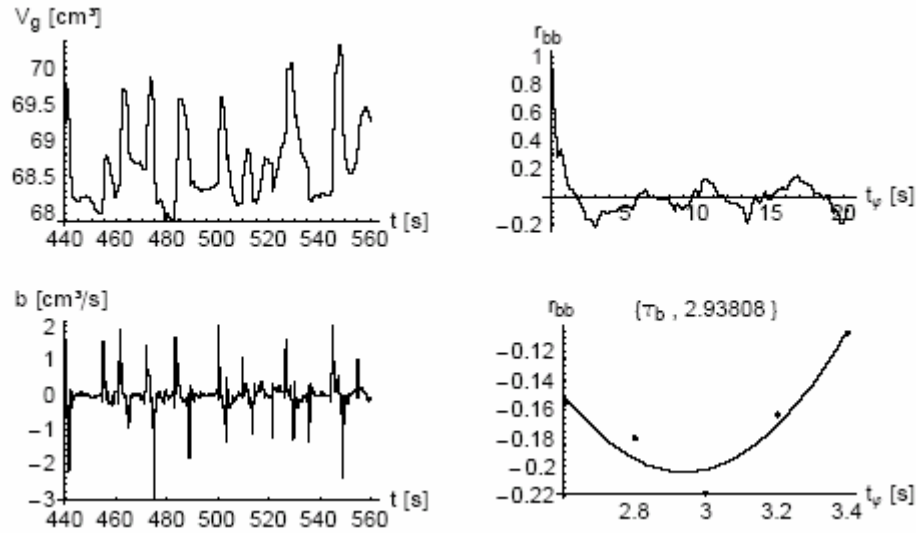


Figure 6. Estimation of mean bubble residence time $\bar{\tau}_b$ by auto correlation (r_{bb}) analysis of the first time deviation b of the gas volume – time series V_g .

In this case, the analysis consists of localization of the first minimum $\bar{\tau}_b = t_\varphi(\text{Min}(r_{bb})|_{\varphi \rightarrow 0})$ where the points of gravity of bubble formation and bubble discharge, formed by the positive/negative values of the sequence b , fall together.

Moreover, r_{bb} oscillates with increasing time lag t_φ , which indicates a possible correlation of a certain number of consecutive bubbles. We observed differences of this behavior between different sediments.

The cross correlation of the pressure fluctuations of the injection system with the gas volume changes (equation (28)) yields the mean time shift $\bar{\tau}_{pb} = 6.64$ s of b with respect to the pressure signal (equation (38)). Note, that $\bar{\tau}_{pb}$ provides the correlation of positive and negative points of gravity inside the signals series ρ and b , respectively.

The time series of $\rho(t)$ and $b(t - \bar{\tau}_{pb})$ are plotted in Figure 7. The plot illustrates the strong correlation of pressure pulses with bubble entry and discharge, respectively for the given experimental conditions.

Due to the linear drop of the pressure pulses shown in Figure 7, as first approximation one expects a constant gas flux

$$Q_g^{in} = \frac{\bar{\tau}_p}{\bar{\tau}_{bf}} Q_{inj} \quad (44)$$

into the sediment. The pressure pulse equation (12) can be simplified with respect to the sediment dependent pressure change $p_{g1} - p_{g0} = \Delta p \ll p_{g0}$ to

$$\frac{p_g(t + k\bar{\tau}_p)}{p_{g0}} = 1 + \begin{cases} \frac{Q_{inj}}{V_{s0}} t, & 0 \leq t < \bar{\tau}_p - \bar{\tau}_{bf} \\ \frac{\Delta p}{p_{g0}} - \left(\frac{\bar{\tau}_p}{\bar{\tau}_{bf}} - 1 \right) \frac{Q_{inj}}{V_{s0}} (t - (\bar{\tau}_p - \bar{\tau}_{bf})), & \bar{\tau}_p - \bar{\tau}_{bf} \leq t \leq \bar{\tau}_p \end{cases} \quad (45)$$

$$k = 1, 2, \dots$$

We note: equation (45) contains only parameters available from the injection system. Auto correlation of the pressure dynamics shown in Figure 7 (equation (38)) provides the mean pressure pulse length of $\bar{\tau}_p = 14.4$ s and from peak shape analysis a mean bubble release time of $\bar{\tau}_{bf} = 2.7$ s is derived. Therefore, one expects a (mean) gas pulse flux into the pore space of about $Q_g^{in} = 0.9$ cm³/s (about the half of the measure, see b in Figures 5 and 6).

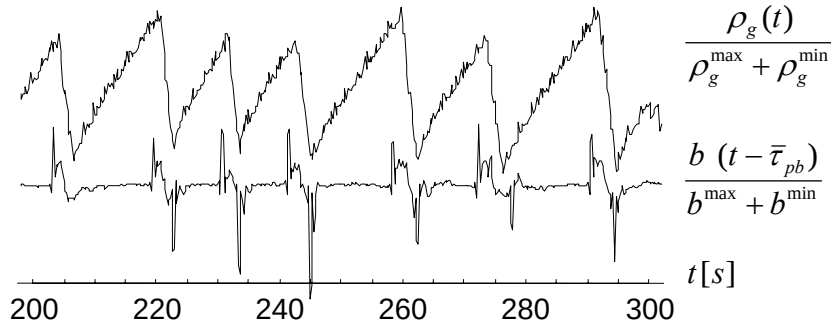


Figure 7. Comparison of injection pressure (top) with the time shifted record of b (bottom), $\bar{\tau}_{pb} = 6.64$ s.

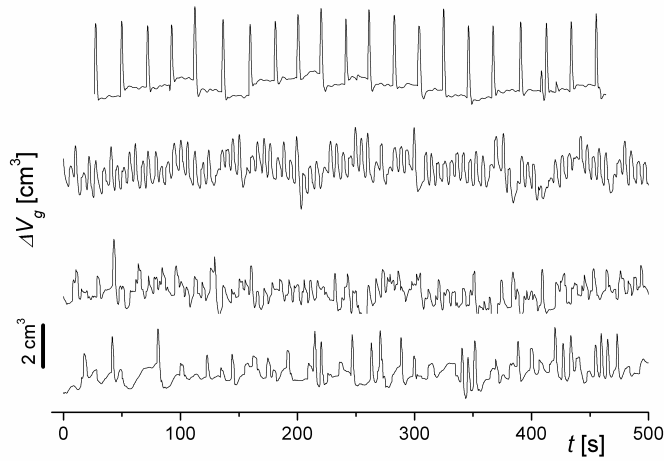
$b(t - \bar{\tau}_{pb})$ is back-shifted in time with $\bar{\tau}_{pb}$

4.2. Gas bubble behavior

Four experiments were performed with different gas source volumes V_{g0} (s. Table 1) to generate size differences of the injected gas phase pulses (i.e. injected bubble sizes V_{bf} according to equation (6)). The glass bead layer was elevated to 35 cm over the sparge point and the load layer thickness was reduced to 1 cm.

Table 1. Experimental conditions for the observation of gas bubble movement

Exp.	$Q_{inj} \pm s_Q$ [cm ³ /min]	$V_{g0} \pm \delta V_g$ [cm ³]	τ_{exp} [s]
1	11.03 ± 0.62	$9. \pm 1.$	3600
2	8.81 ± 0.26	$102. \pm 2.$	3600
3	8.45 ± 0.33	$996. \pm 5.$	3600
4	10.04 ± 0.40	$5004. \pm 10.$	7200

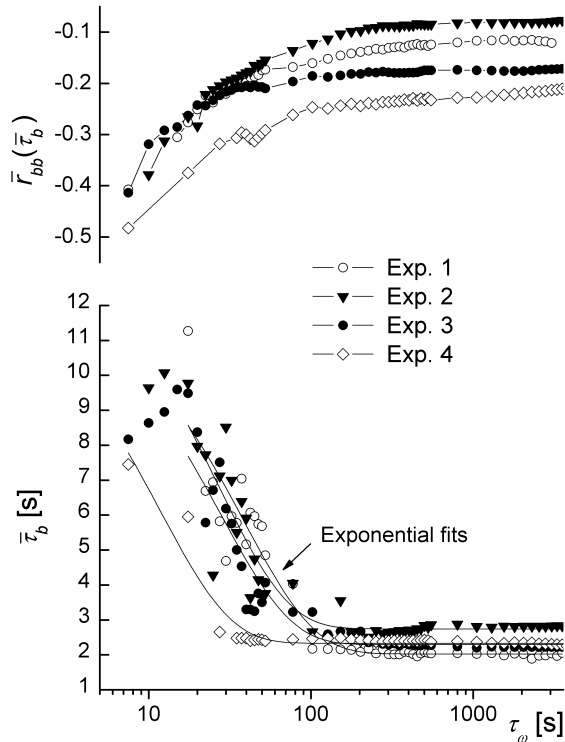


Exp. 4 After one day of dynamic equilibration of phase displacement, the gas bubble movement was monitored for τ_{exp} per

3 adjusted source volume V_{g0} with a

2 temporal resolution of 0.1 s. Figure 8

1 shows a section of the gas volume–time series observed.

Figure 8. Sections of the recorded time series of gas volume changes inside the flow cell (same scales).

To estimate the minimal representative time window for the time series analysis, the influence of the correlation time window τ_ω on the auto correlation r_{bb} was analyzed at a number of positions ($n \leq 20$ depending on the actually window size τ_ω) of the volume records. The resulting correlation coefficient $\bar{r}_{bb}(\bar{\tau}_b)$ and the estimated mean residence time $\bar{\tau}_b$ are shown as function of the size of the correlation time window τ_ω in Figure 9.

Figure 9. Auto correlation coefficient $\bar{r}_{bb}(\bar{\tau}_b)$ and mean residence time $\bar{\tau}_b$ in dependence on the correlation time window τ_ω .

Simple exponential fits of $\bar{\tau}_b(\tau_\omega)$:

$$\bar{\tau}_b(\tau_\omega) = a_0 + a_1 e^{-\tau_\omega / a_2} \quad (46)$$

document the asymptotic behavior of the correlation method (Figure 9). Whereas the fit constants a_1 , a_2 (Table 2) describe the (exponential) decrease of uncorrelated noise, the constant a_0 trends asymptotic against the mean bubble residence time: $a_0 \rightarrow \bar{\tau}_b|_{\omega \rightarrow \infty}$. For an approximation error of $\bar{\tau}_b(\tau_\omega)/a_0 - 1 = \varepsilon$, the corresponding correlation time window has to be

$$\tau_\omega^\varepsilon = a_2 \ln \left(\frac{a_1}{\varepsilon a_0} \right), \quad (47)$$

and is included into Table 2 for $\varepsilon = 0.01$.

Table 2. Set of fit parameters of $\bar{\tau}_b(\tau_\omega)$, fit to data correlation r^2 and correlation time window $\tau_\omega^{0.01}$ for $\varepsilon = 0.01$

Exp.	$a_0 \pm s_{a\tau}$ [s]	a_1 [s]	a_2 [s]	r^2	$\tau_\omega^{0.01}$ [s]
1	2.03 ± 0.13	10.2	39.1	0.90	243
2	2.74 ± 0.13	11.2	26.9	0.91	162
3	2.29 ± 0.12	10.1	28.1	0.92	171
4	2.33 ± 0.04	10.2	11.9	0.93	72

From the graphs in Figure 9 and values of $\tau_\omega^{0.01}$ (see Table 2), sufficient noise suppression is assumed for a 200 s - time window, which is used consistently throughout the time series analysis. Due to $200 \text{ s} = \tau_\omega \ll \tau_{\text{exp}}$, relevant (long term) trends inside the time series, if available, will be expressed in the mean residence time behavior $\bar{\tau}_b(t)$.

The correlation analyses of the pressure records yield the mean pressure pulse lengths $\bar{\tau}_p$ (Table 3). From the mean bubble volume according to equation (6) and Q_{inj} (Table 1), the range $\Delta V_g \approx 0.1 \dots 5 \text{ cm}^3$ per pressure pulse is expected. For the approximation of bubble residence times, the mean offset between consecutive bubbles has to be equal to $\bar{\tau}_p$.

The results listed in Table 3 show the independence of the pressure difference $\Delta p = p_{g1} - p_{g0}$ from the injection system as well as the relative small deviation of the characteristic pressure pulse constants $\bar{\tau}_p$ and $\bar{\tau}_{bf}$, respectively. Experiments 2 – 4 yield a strong dependency of $b(t + \tau_{pb}) = f(p(t))$ characterized by a small deviation of $\bar{\tau}_{pb}$.

As seen from Tables 2 and 3, the pressure pulses of experiment 1 are noticeable narrow with respect to the expected mean residence time of gas bubbles in the flow cell. Hence, one expects the superposition of gas bubbles inside the flow cell formed at different gas source pulses. Due to the similarity of $\bar{\tau}_p \approx a_0$,

experiment 2 presents the boundary condition for the pressure-correlated bubble formation (see Figure 1). In contrast to this, experiments 3 and 4 show a high self-similarity of the peak shapes (see Figure 8) that appear well correlated in time (i.e. with the pressure pulses).

Table 3. Results of the time series analysis of pressure records

Exp.	$p_{g0} \pm s_p$ [kPa]	$p_{g1} \pm s_p$ [kPa]	$\bar{\tau}_p \pm s_\tau$ [s]	$\bar{\tau}_{bf} \pm s_\tau$ [s]	n_p	$\bar{\tau}_{pb} \pm s_\tau$ [s]
1	0.136 ± 0.04	0.264 ± 0.032	1.24 ± 0.04	0.45 ± 0.25	3404	4.39 ± 1.80
2	0.122 ± 0.010	0.248 ± 0.010	2.25 ± 0.02	0.49 ± 0.12	1604	4.25 ± 0.49
3	0.156 ± 0.010	0.251 ± 0.001	5.71 ± 0.18	0.59 ± 0.13	631	4.67 ± 0.11
4	0.102 ± 0.007	0.242 ± 0.001	28.4 ± 1.4	2.68 ± 0.31	253	4.59 ± 0.07

(The number n_p denotes the observed pressure pulses inside the analyzed time range τ_{exp} of the time series.)

The multiple peak shape analysis (parameterized with $\lambda = 0$ and $\tau_b^{\text{max}} = 8$ s) and the correlation analysis are shown exemplarily for experiment 4 in Figure 10. Both analyses behave equivalent in axis-intercepts (correlation analysis: (2.377 ± 0.007) s, peak shape analysis: (2.381 ± 0.045) s) as well as in trends (correlation analysis: $(1.43 \pm 0.17) 10^{-5}$, peak shape analysis: $(1.60 \pm 1.07) 10^{-5}$) of the mean residence time represented by linear fits. For further comparison, the residence times $\tau_b(t_i)$ obtained from the individual peaks i from the multiple peak shape analysis were smoothed by a simple moving average with $n = n_b \tau_\omega / \tau_{\text{exp}} \approx 9$ (bubble number $n_b = 287$). Figure 10 also shows that for the smoothed graph high similarity to the mean residence time curve $\bar{\tau}_b(t)$ was obtained from correlation analysis.

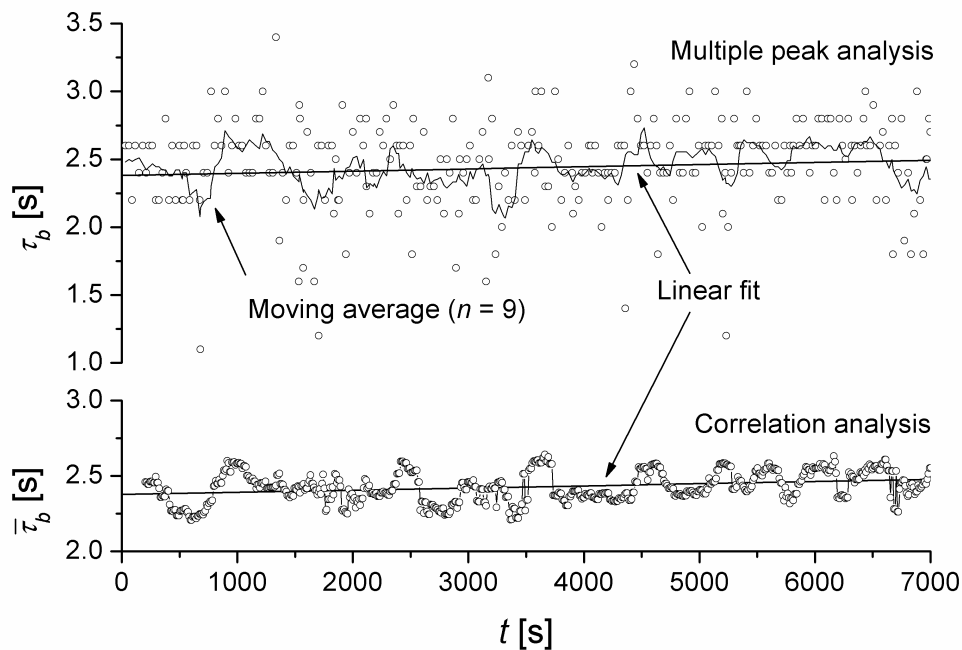


Figure 10. Comparison of the residence time obtained from the different analyses methods for experiment 4.

Thus, we conclude that both methods provide comparable results. The main advantages of correlation analysis consist in the shape independence of the wanted signal and the mean estimation of residence time with respect to the correlation time window τ_ω . As the multiple peak shape analysis (which highly depends on the peak shape) provides equivalent mean results, this method enables the estimation of real residence times of the individual gas bubbles. Moreover, this condition can be used as calibration condition for λ and $\tau_b^{\max}$. The high correlation of the results of the time series analyses by both independent methods is documented in Table 4.

Table 4. Results of the time series analysis of gas volume records

Analysis:	Correlation	Multiple peak shape ($\tau_b^{\max} = 8$ s, $\lambda = 0$)			
Exp.	$\bar{\tau}_b \pm s_\tau$ [s]	$\bar{\tau}_b \pm s_\tau$ [s]	$\bar{\tau}_{b,fit} \pm 1.96 \sigma_\tau$ [s]	n_b	n_b / n_p
1	2.12 ± 0.20	2.42 ± 1.01	2.20 ± 0.68	280	0.08
2	2.65 ± 0.55	2.19 ± 1.09	2.29 ± 1.12	557	0.35
3	2.33 ± 0.13	2.51 ± 0.51	2.37 ± 0.63	469	0.74
4	2.43 ± 0.10	2.44 ± 0.38	2.57 ± 0.37	287	1.13

(The number n_b denotes the observed bubbles inside the analyzed time range τ_{exp} of the time series.)

The bubble residence time distribution $n(\tau_b)/n_b$ obtained from the multiple peak shape analysis and a fitted Gaussian are shown in Figure 11. The relevant fit parameters $\bar{\tau}_{b,fit}$ and σ_τ are listed in Table 4.

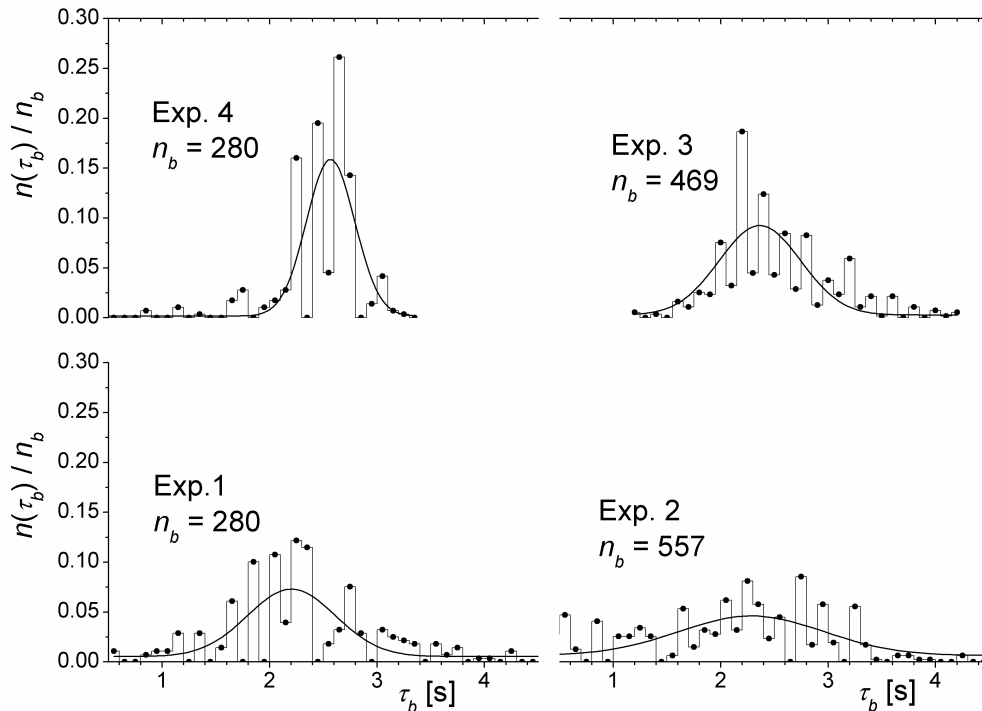


Figure 11. Bubble residence time-distributions from multiple peak shape method and Gaussian fits.

The analyses indicate no significant differences in the mean residence times for the different bubble formation volumes V_{bf} except for the corresponding residence time distributions. The pressure-correlated experiments 2 – 4 show a decreasing variability of bubble residence times with increasing bubble formation volume V_{bf} , and an increasing ratio n_b/n_p obtained for constant calibration $\tau_b^{\max} = 8$ s, $\lambda = 0$ of the multiple peak shape method. We attribute this effect to decreasing entrapment efficiency at the bubble movement path.

Experiment 1 resulted in a comparatively small number of non-pressure-correlated bubble releases. This can be attributed to the interaction of the entering small bubbles with (increasingly dense distributed) trapped ones near the injection point. Thus, bubble movement results from the partial remobilization (cascade) of trapped gas phase near the injection point.

Optical observations performed with a temporal resolution of $\Delta t = 0.7$ s illustrate the correlation of V_{bf} with the visualized incoherent moving gas volume (Figure 12). Due to the dependency of the injection pressure variation from the sediment, the injection system does not change the flow regime.

The envelopes drawn into Figure 12 mark the moving bubble clusters. We geometrically estimated a mean bubble rise velocity $\bar{v}_b^{opt} = (13.6 \pm 1.3)$ cm/s by setting the distance between consecutive points of gravity of the envelopes in relation to the time interval between the images. A similar result was found by *Roosevelt and Corapcioglu* [1998] for bubble chains in 4 mm glass beads. Assuming an insignificant increase in the velocity when the bubbles passing the 1 cm water-layer above the sediment, we calculated a mean residence time $\bar{\tau}_b^{opt} = (2.7 \pm 0.5)$ s that is in good correlation with the values listed in Table 4.

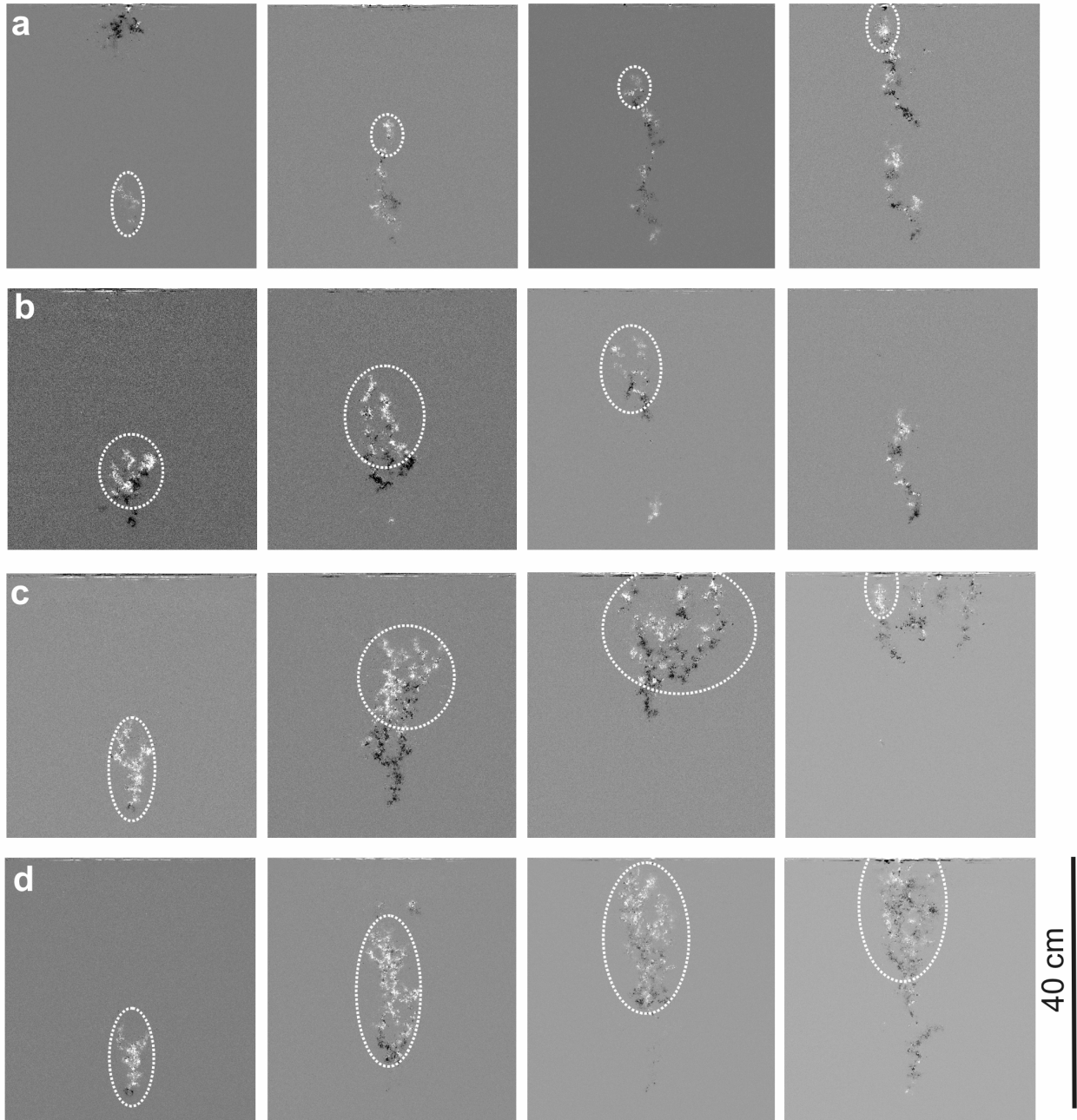


Figure 12. Visualization of gas bubble movement as a function of the gas source volume: a) Exp. 1: $V_{s0} \approx 10$ mL, b) Exp. 2: $V_{s0} \approx 100$ mL, c) Exp. 3: $V_{s0} \approx 1000$ mL, d) Exp. 4: $V_{s0} \approx 5000$ mL; (time between consecutive images: $\Delta t = 0.7$ s).

5. Conclusions

The independent methods developed enable the analysis of bubble behavior not only for transparent porous media (glass beads) but also in nontransparent natural sediments, and moreover, for different flow cell geometries, respectively. Due to the observation of the total change of gas volume inside the flow cell, the derived parameters determine the bubble residence time-distribution quantitatively. Further investigations are necessary with respect to natural sediments, reactor fillings, and other porous structures.

The multiple peak shape method is suitable for investigation of gas phase entrapment-mechanisms by additional analyzing the development of the gas phase volume $V_g(t)$ of the detected gas bubbles. Therefore, our experimental setup has to be improved especially by minimizing of capillary effects to reduce the error of gas volume measurement.

A simple control of the bubble (cluster) size and of the offset time between consecutive bubbles enables the variation of the parameters of the injection system developed. Due to the dependency of the pressure variations inside the injection system from phase's interaction inside the porous media, the estimation of relevant parameters for the bubble behavior (e.g. bubble (cluster) size, coherence volumes of the formed gas phase, and pressure dependencies of bubble movement) will be possible. With respect to the real gas behavior, the injection method described will be also applicable for investigations of gas bubble behavior in field experiments.

Appendix

Due to the demanded equivalence of the boundary conditions between consecutive polynomials:

$$\begin{aligned} S_i(t_i) &= V_{g_i}, & i = 0, \dots, n, \\ S_i(t_i) &= S_{i-1}(t_i), & i = 1, \dots, n, \\ \frac{dS_i}{dt}(t_i) &= \frac{dS_{i-1}}{dt}(t_i), & i = 1, \dots, n-1, \\ \frac{d^2S_i}{dt^2}(t_i) &= \frac{d^2S_{i-1}}{dt^2}(t_i), & i = 1, \dots, n-1, \end{aligned} \quad (25)$$

the spline interpolation advances to the smoothest interpolation rule. Insertion of these conditions into equation (24) with respect to the one

$$\frac{d^2S}{dt^2}(t_0) = \frac{d^2S}{dt^2}(t_n) = 0 \quad (26)$$

at the ends of the data record, result in a symmetrical trigonal equation system for the polynomial coefficients $\{a_i, b_i, c_i, d_i\}$:

$$\begin{aligned} a_i &= V_{g_i} & i = 0, \dots, n, \\ b_i &= \frac{1}{\Delta t}(a_{i+1} - a_i) - \frac{1}{3}\Delta t(c_{i+1} + 2c_i) & i = 0, \dots, n-1, \\ c_i &= \frac{3}{4\Delta t^2}(a_{i-1} - 2a_i + a_{i+1}) - \frac{1}{4}(c_{i+1} + c_{i-1}) & i = 1, \dots, n-1, \\ d_i &= \frac{1}{3\Delta t}(c_{i+1} - c_i) & i = 0, \dots, n-1, \\ c_0 &= c_n \equiv 0. \end{aligned} \quad (27)$$

Notation

a_i, b_i, c_i, d_i	coefficients of spline function
$\alpha_{\max}, \alpha$	(maximum) deflection angle of trapped gas phase
b, b_i	numeric representation of first derivation of gas phase volume with time, cm ³ /s
d_g	particle size, mm
δV_g	absolute error of source gas volume, cm ³
ε	relative error
f	flux ratio for adjustment the overflow system
h_w	hydraulic head level over gas injection point, cm
i, j, k, n, m	indices
λ	factor, integration variable
m_w, m_{w0}	mass of water, g
n_p, n_b	number of observed pressure pulses / bubbles
$p_{g,abs}, p_g, p_{g0}, p_{g1}$	absolute / relative gas source pressure, kPa
P_k	sorted set of gas fluxes, cm ³ /s
$Q_g^{\max}$	maximum gas flux, cm ³ /s
$\overline{Q}_g^{in}, Q_{g,i}^{in}, \overline{Q}_g^{out}, Q_{g,i}^{out}$	(mean) entry / (mean) discharge fluxes of gas bubble, cm ³ /s
Q_{inj}	Constant gas injection rate, cm ³ /s
Q_p^{in}, Q_p^{out}	fluxes of the overflow system, cm ³ /s
Q_r, Q_t	gas fluxes resulting in removal / trapping of gas bubbles, cm ³ /s
$r_{\xi\psi}, r_{\xi\psi}^{(\omega, \varphi, \chi)}$	numeric representation of correlation function
$\overline{R}^b, R^b$	(mean) reminder term for b , cm ³ /s
ρ	conditioned pressure signal, kPa
ρ_w	density of water, kg/m ³
s_x	standard deviation of x
S_i	spline polynomial
σ_τ	variance of the fitted $\overline{\tau}_b$, s
t, t_i	time, s
t_b^{in}, t_b^{out}	time of gas bubble entry / discharge, s
t_χ, t_φ	reference time, time lag of correlation, s
t_1, t_2	time of beginning / ending of gas phase release, s
t_∞	time of beginning of stationary process, s
T	temperature, K
$\overline{\tau}_b, \tau_b, \tau_{b,i}, \overline{\tau}_b^{opt}$	(mean) gas bubble residence time, s
τ_{exp}	monitored time range of experiment, s
$\tau_b^{\max}$	upper threshold for τ_b , s
$\overline{\tau}_{bf}, \tau_{bf}$	(mean) gas bubble release time, s
$\overline{\tau}_p, \tau_p$	(mean) length of a pressure pulse, s

$\bar{\tau}_{pb}$	mean time lag of the time series of pressure pulse and gas flux, s
τ_s	time lag between a volumetric change and its registration, s
τ_ω	correlation time window, s
$v_b, \bar{v}_b^{opt}$	gas bubble velocity cm/s
V_b	moving gas bubble volume in the flow cell, cm ³
V_{bf}	gas bubble volume formed at the injection point, cm ³
$V_g, V_{g0}, V_{g,i}$	gas phase volume in the flow cell, cm ³
V_p	pore volume, cm ³
V_s, V_{s0}	gas source volume, cm ³
V_t	trapped gas phase volume in the flow cell, cm ³
ξ_i, ψ_i	time series representations of a ergodic process

Acknowledgement

Prof. Ludwig Luckner & co-workers deserve our thanks for cooperation, Prof. Mario Schirmer and Dr. Sascha Oswald for critical hints concerning the manuscript, respectively. The work was funded by the German Federal Ministry of Research and Technology and is part of the SAFIRA-project.

References

- Benner, M. L., Mohtar, R. H., and L. S. Lee (2002), Factors affecting air sparging remediation systems using field data and numerical simulations, *J. Hazard. Mater.*, 95(3), 305-329.
- Brooks, M. C., Wise, W. R., and M. D. Annable (1999), Fundamental changes in situ air sparging flow patterns, *Ground Water Monit. Rem.*, 19(2): 105-113.
- Corapcioglu, M. Y., Cihan, A., and M. Drazenovic (2004), Rise velocity of an air bubble in porous media: Theoretical studies, *Water Resour. Res.*, 40(4).
- Geistlinger, H., Beckmann, A., and D. Lazik (2005), Mass transfer between a multi-component trapped gas phase and a mobile water phase: Experiment and theory, accepted for publication in *Water Resour. Res.*
- Gostiaux, L., Gayvallet, H., and J.-C. Géminard (2002), Dynamics of a gas rising through a thin immersed layer of granular material: an experimental study, *Granular Matter* 4, 39-44.
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D. P., Lin, J. D., and E. Hill (1993), Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization, *Ground Water Monit. Rem.*, 13(4), 115-126.
- Johnston, C. D., Rayner, J. L., Patterson, B. M., and G. B. Davis (1998), Volatilisation and biodegradation during air sparging of dissolved BTEX-contaminated groundwater, *J. Contam. Hydrol.*, 33(3-4), 377-404.
- Krauss, G., Geistlinger, H., and D. Lazik (2005), Observations of gas/water-phase displacement dynamics in porous media, submitted to *Water Resour. Res.*
- Lazik, D., Geistlinger, H., Krauss, G., Beckmann, A., and M. Schirmer (2002), Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“, *Grundwasser*, 3, 146-155.
- Lazik, D., and H. Geistlinger (2005a), A new method for membrane-based gas measurements, *Sensors and Actuators A: Physical*, 117(2), 241-251.
- Lazik, D., Krauss, G., Schultze, R., and H. Geistlinger (2005b), Gravimetrically balanced high-resolution visualization of gas/water-phase displacement in porous media, submitted to *J. Contam. Hydrol.*
- Peterson, J. W., Lepczyk, P. A., and K. L. Lake (1999), Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach, *Environ. Geol.*, 38(1), 1-6.

Roosevelt, S. E. and M. Y. Corapcioglu (1998), Air bubble migration in a granular porous medium: Experimental studies, *Water Resour. Res.*, 34(5), 1131-1142.

Semer, R., Adams, J. A., and K. R. Reddy (1998), Experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging, *Geotech. Geol. Eng.*, 16(1), 59-75.

Stark, J. and M. Manga (2000), The motion of long bubbles in a network of tubes, *Transp. Porous Media*, 40(2), 201-218.

Tomlinson, D. W., Thomson, N. R., Johnson, R. L., and J. D. Redman (2003), Air distribution in the Borden aquifer during in situ air sparging, *J. Contam. Hydrol.*, 67(1-4), 113-132.

Untersuchungen zum Strömungsverhalten und zur Lösungskinetik von Gasen im Mehrphasensystem „Aquifer“

LAZIK, D.*, GEISTLINGER, H.*, KRAUSS, G.*, BECKMANN, A.* & SCHIRMER, M.*

*UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Dept. Hydrogeologie, T.-Lieser-Str. 4, D-06120 Halle

Kurzfassung

Die in situ-Sanierung von KW-belasteten Aquifern durch Direktinjektion reaktiver Gase basiert auf heterogenen Lösungsreaktionen zwischen Komponenten der Gas- und Wasserphase und auf dem Vermögen des Aquifers, Gase im Porenraum zu speichern (~ 10% des Porenraumes). Die bereitstellbare Gelöstgaskonzentration wird sedimentabhängig durch das Strömungsverhalten und die residuale Verteilung der Gasphase sowie durch die Lösungskinetik der Gaskomponenten und den Reaktionsraten bestimmt.

Es werden die thermodynamischen und kinetischen Charakteristika (Henry-Koeffizienten, Ratenkonstanten) von Mischgasphasen, die Grundgleichungen eines neuen kinetischen Modells (variable-volume-Modell) und die Ergebnisse der Säulenexperimente mit einem Ein-Komponenten-Gas zur Auflösungskinetik einer residualen Gasphase vorgestellt.

Anhand von grossskaligen Gasinjektionsexperimenten wird ein konsistentes Bild über die Entwicklung des gasdurchströmten Kapillarnetzwerkes entwickelt. Dieses wird in Abhängigkeit vom Gasvolumenstrom und der Injektionstiefe untersucht. Der Vergleich aus gemessenem und nach dem Ein-Kugel-Modell abgeschätzten Kapillardruck zeigt, dass die Entwicklung des Kapillarnetzwerkes von Korngerüstumordnungen begleitet sein muss, da sonst die geringen Kapillardrücke nicht erklärbar sind. Die nachgewiesene Linearität zwischen Volumenstrom und dynamischem Gasvolumen bedeutet, dass eine Erhöhung des Volumenstromes eine Ausweitung des Kapillarnetzwerkes bewirkt. Die experimentell bestimmte Kapillardruck-Gasvolumen-Korrelation zeigt, dass dabei auch kleinere Kapillaren für die dynamische Gasspeicherung beansprucht werden.

Abstract

In situ remediation techniques like oxygen sparging, air sparging or bio sparging are based on mass transfer reactions between multi-component phases and use the ability of the aquifer to capture gas phases of significant amount (~ 10% of the pore space).

The oxygen releasing process is governed by the flow pattern of the gas phase (bubbly flow, channelized flow, capillary-fingering-flow), the distribution of the residual gas phase, and the mass transfer kinetics.

The characteristics (Henry coefficients, rate constants) of multi-component gas phases, the governing equations of a new kinetic model (variable-volume-model), and the results of column experiments on dissolution kinetics of a residual gas phase (one-component gas) are presented.

A consistent picture of the vertical gas flow, of the stability and extension of the capillary network used by the gas flow is derived from large-scale lab experiments on gas injection. We investigate the capillary network used by the gas flow in dependence on the injection rate and injection depth.

The comparison between the measured capillary pressure and the calculated one due to the pore size distribution, which was derived from sieve analysis (single-sphere-model), shows that the formation of the capillary network is accompanied by particle rearrangement. Otherwise the small measured capillary pressures are not explainable.

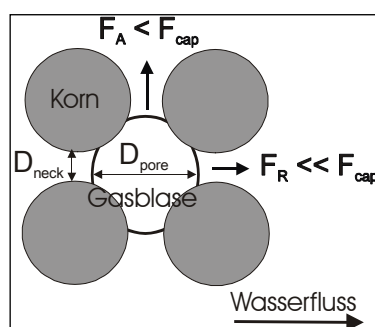
The proven linearity between the gas flux and the dynamical gas phase volume means that an increase in the flux leads to an extension of the capillary network, where also smaller capillaries are used to store dynamical gas phase volume. This hypothesis is supported by the experimental capillary pressure-gas volume-correlation.

Einführung

In situ-Sanierungsmaßnahmen in Kohlenwasserstoff (KW)-belasteten Aquiferen sind an die Einstellung eng limitierter Milieubedingungen gekoppelt. Diese Bedingungen können durch den Eintrag von Prozessgasen (Sauerstoff, Methan etc.) realisiert werden (Luckner, 2001). Aus Feldstudien zum natürlichen Abbau und Rückhalt („Natural Attenuation“) ist bekannt (siehe z.B. Teutsch et al., 1997), dass das Fehlen von Sauerstoff der eigentlich limitierende Faktor für den KW-Abbau ist. Folglich könnte für eine Vielzahl von Schadensfällen die Injektion von Sauerstoff im Sinne einer Beschleunigung der natürlichen Abbauprozesse („Enhanced Natural Attenuation“) eine technologische Alternative sein. Dies betrifft nicht nur den aeroben Abbau von BTEX und chlorierten Benzolen bzw. Phenolen, sondern auch den des sehr persistenten Schadstoffs MTBE. Nach kontroverser Diskussion in der Literatur (siehe z.B. Butler et al., 2000) konnte von Mackay et al. (2001) der experimentelle Nachweis (Feldexperiment) erbracht werden, dass MTBE aerob abbaubar ist.

Technologisch werden „Reaktive Sauerstoffwände“ durch verschiedene Injektionsmethoden realisiert. Die jüngste Arbeit (Wan et al., 2001) diskutiert Vor- und Nachteile verschiedener Sauerstoff-Injektionsmethoden. Für großflächige Kontaminationen wird man sicher auf die kostengünstigste Variante der direkten Gasinjektion zurückgreifen. Im Allgemeinen werden unterschiedliche Geometrien von vertikalen Injektionsbrunnen (auch Horizontal-Brunnen-Injektion ist technologisch realisierbar) mit überlappendem Wirkungsradius („Radius-of-Influence“ (ROI)) im Feldexperiment verwendet (Johnson, 1999, Bakker et al., 2000).

Wichtig für die Anwendung der direkten Gasinjektion ist die Kenntnis der 2-Phasen-Strömungsmuster in Abhängigkeit vom Sedimenttyp und der Injektionsrate. Das injizierte Gas wird sich entsprechend der Kraftresultierenden aus Kapillarkräften, Reibungskräften und Auftriebskräften bewegen. Die wesentlichen Zusammenhänge zur quantitativen, analytischen Charakterisierung und Klassifizierung der Strömungsmuster wurden von Brooks et al. (1999) und Clayton (1998) diskutiert. Brooks et al. führen eine modifizierte Bindungszahl ein, die das Verhältnis von Porenhals- zu Porendurchmesser



berücksichtigt. Eine einfache Rechnung zeigt, dass für $v = 1.16 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$, $D_{pore} = 0.5 \text{ mm}$, $D_{neck} = 0.1 \text{ mm}$ die Kapillarkräfte für Feinsand ($D_{grain} = 0.06 - 0.2 \text{ mm}$) und Mittelsand ($D_{grain} = 0.2 - 0.6 \text{ mm}$) eindeutig dominieren (Abb. 1). Erst für Grobsand ($D_{grain} = 0.6 - 2.0 \text{ mm}$) erreichen die Auftriebskräfte die Größenordnung der Kapillarkräfte; der kritische Kornradius liegt bei 1 – 2 mm.

Abb. 1: Kapillarkräfte (F_{cap}) versus Auftriebs (F_A)- und Reibungskräfte (F_R): Die Gasblase wird aufgrund der dominierenden Kapillarkräfte in der Matrix festgehalten (D_{pore} – Poren-Durchmesser, D_{neck} – Porenhals-Durchmesser).

Daraus leiten sich zwei technologisch wichtige Schlussfolgerungen ab: i) Die horizontale Ausdehnung des gasdurchströmten Kapillarnetzwerkes („radius of influence“) ist im Fein- und Mittelsand grösser als im Grobsand (Clayton, 1998, Peterson et al., 2001). ii) Die residual gespeicherte Gasmenge (FRY ET AL. (1997): 14 – 17 % des Porenraumes; Luckner et al. (2001): 2 – 6 % des Porenraumes) ist ausreichend, um den Aquifer über einen längeren Zeitraum mit Sauerstoff zu versorgen. Eine numerische Simulation (Geistlinger et al., 2001b) zeigt, dass eine Sauerstoffwand (ROI = 1.5 m, residuale Gassättigung = 5 %, Abstandsgeschwindigkeit = $1.16 \cdot 10^{-5}$ m/s) über 5 Tage 10 mg/L Chlorbenzol vollständig zu mineralisieren vermag, d.h. im Fall von bio-sparging wäre eine diskontinuierliche Injektion aller 5 Tage ausreichend.

Bei Experimenten zur direkten Gasinjektion muss die Sedimentoberfläche einem lithostatischen Druck ausgesetzt werden, um Gerüstumbildungen zu verhindern. Experimente ohne diese Korngerüstfixierung werden in der jüngsten Literatur als nicht repräsentativ für air-sparging bzw. bio-sparging diskutiert (Clayton, 1998, Lazik et al., 2001). In diesem Zusammenhang betont Clayton, dass die vereinzelt Luftaustrittspunkte in gefluteten („geflutet“ bedeutet hier, dass der Sedimentkörper bis unter die Grundwasseroberfläche abgetragen wird) air-sparging-Feldversuchsflächen keinen experimentellen Beweis für eine entsprechend geringe horizontale Flächendichte der Kapillaren im Untergrund liefern. Da zur freien Oberfläche hin die Vertikalspannung σ_v des Sedimentes klein wird, können Kapillarkräfte leicht das Korngerüst umordnen. Um die *Freie Energie* des Gesamtsystems zu minimieren, werden sich nur wenige Gaskanäle etablieren.

Die Effizienz von Gasinjektionen im Feldmaßstab wird mit der vertikalen und horizontalen Unabhängigkeit der Injektionspunkte (ROI) korrelieren. Wichtige Fragen von technologischer Relevanz sind:

- Formt ein einmal gasdurchströmtes Kapillarnetzwerk (im weiteren kurz ‚Kapillarnetzwerk‘ genannt) den für den Gasphasentransport thermodynamisch günstigsten Transportpfad, der durch spätere Injektionen (gegebenenfalls auch in anderer Position) wieder aktiviert und genutzt wird?
- Hat die Injektionsmethode (z.B. diskontinuierliche Druckvariation) Einfluss auf die räumliche Ausbildung des Kapillarnetzwerkes und korreliert diese, ggf. methodenabhängig, mit dem speicherbaren Gasvolumen? Experimente weisen darauf hin, dass eine Erhöhung des Volumenstroms sowohl zur Erweiterung des Kapillarnetzwerkes führt, als auch den Gasstrom in den einzelnen Kapillaren erhöht.
- Wie weit müssen Injektionspunkte voneinander entfernt sein, damit sie unabhängige Kapillarnetzwerke erschließen?

Neben den Untersuchungen zum *Gastransport* sind Kenntnisse zum *Massentransfer* zwischen den benachbarten Mischphasen ‚Gasphase-Wasserphase-Festphase‘ (siehe Luckner, 2001) für das Prozessverständnis des bio-sparging wesentlich. Gute Schätzwerte für die Ratenkonstante k_0 bzw. den mikroskopischen Transferkoeffizient α bilden die experimentelle Basis, um Prognosemodelle zur

Computer-Simulation von Feldexperimenten zu entwickeln. Um konzeptionelle Modelle zum Massentransfer zu validieren, werden in der Literatur vor allem Ein-Komponenten (z.B. O₂)- und Zwei-Komponenten (z.B. O₂, N₂)-Gase untersucht. Ein Prozessverständnis für oxygen-sparging zum aeroben Abbau von Chlorbenzol erfordert die Beschreibung einer Mischgasphase, zusammengesetzt aus den wesentlichen Gelöst-Gaskomponenten, den volatilen Schadstoffen im Aquifer und den injizierten Gaskomponenten.

Der Auflösungsprozess von residualen Gasphasen (Luft, Stickstoff, Helium) wurde von Donaldson et al., (1997) mit Hilfe von Säulenexperimenten untersucht, wobei zur Parameteridentifikation ein kinetisches Modell (constant-volume-Modell) verwendet wurde. Neben dem kinetischen Modell wurde von Cirpka und Kitandis, (2001) die lokale Gleichgewichtsnäherung zur Beschreibung der Auflösung eingefangener, residualer Gasphasen volatiler Organika verwendet.

In Geistlinger et al. (2001a) wurde der experimentelle Datensatz von Donaldson et al. neu interpretiert und gezeigt, dass die Größenordnung der abgeleiteten Massentransfer-Koeffizienten durch das stagnant-film-Modell abgeschätzt werden kann: $\alpha_i \approx D_i / \delta \cdot H_i$ (D_i – Diffusionskoeffizient der Komponente 'i' in der wässrigen Phase, H_i – Henry-Koeffizient, δ – Schichtdicke). Basierend auf eigenen Säulenexperimenten mit einem Ein-Komponenten-Gas wird ein neues kinetisches Modell (variable-volume-Modell) vorgestellt.

Die thermodynamischen und kinetischen Charakteristika von Mischgasphasen, die Grundgleichungen des kinetischen Modells und die Ergebnisse der Säulenexperimente zur Auflösungskinetik einer residualen Gasphase werden im ersten Teil des Artikels übersichtsartig dargestellt. Im zweiten Teil werden Tankexperimente zur Untersuchung des Gastransports und der Verteilung der Gasphase diskutiert.

Auflösungskinetik residualer Mischgasphasen

Thermodynamische und kinetische Charakteristika (Luckner, 2001)

Die k Komponenten einer Mischgasphase, z.B. N₂, O₂, Ar, CO₂ (Massenverhältnis: 75.52 : 23.14 : 1.29 : 0.05) in atmosphärischer Luft, bewirken entsprechend dem Daltonschen Gesetz einen Gesamtdruck

$$(1) \quad p_g = \sum_{i=1}^k p_i \cdot$$

Die Abweichung des in einer realen Mischgasphase herrschenden Partialdrucks (Berücksichtigung von intermolekularen Wechselwirkungen) vom idealen Partialdruck p_i^0 [Pa] sei im Aktivitätskoeffizienten γ_i^g [-] bereits berücksichtigt:

$$(2) \quad p_i = \gamma_i^g \cdot p_i^0 = \gamma_i^g \cdot X_i \cdot p_g \cdot$$

Die Partialdrücke p_i^0 sind entsprechend dem idealen Gasgesetz mit den molaren Konzentrationen c_i^g [mol/L] bzw. Molenbrüchen X_i [-] wie folgt verknüpft:

$$(3) \quad p_i^0 = RT \cdot c_i^g = X_i \cdot p_g$$

($R = 8.315 \text{ [J/(mol·K)]}$ - Gaskonstante, $T \text{ [K]}$ - absolute Temperatur). Für ideales Verhalten gilt:

$$(4) \quad \gamma_i^g \approx 1, \quad p_i \approx p_i^0$$

Der Massentransfer zwischen benachbarten Mischgasphasen wird solange ablaufen, bis sich die chemischen Potentiale ausgeglichen haben und sich die Aktivitäten

$$(5a) \quad a_i^w = \gamma_i^w \cdot c_i^w, \quad a_i^g = \gamma_i^g \cdot c_i^g$$

entsprechend dem Nernstschen Verteilungssatz (die Gleichgewichtsgrößen sind durch den Index ,eq‘ gekennzeichnet) eingestellt haben:

$$(5b) \quad a_{i,eq}^g = K_i \cdot a_{i,eq}^w.$$

($K_i [-]$ – Verteilungskoeffizient, $a_i^{g,w} \text{ [mol/L]}$ – Aktivität, $\gamma_i^{g,w} [-]$ – Aktivitätskoeffizienten, Indices g, w – Gas- bzw. Wasserphase). Für ideal verdünnte Lösungen ($\gamma_i^w, \gamma_i^g \approx 1$) gilt das Henrysche Gesetz

$$(5c) \quad c_{i,eq}^g = H_i \cdot c_{i,eq}^w.$$

In Tabelle 1 sind die durch Gleichung 5c definierten Henry-Koeffizienten für ausgewählte Gase angegeben (CRC-Handbook, 1998).

Tab. 1: Temperaturabhängige Henry-Koeffizienten nach Gl. 5 aus CRC-Handbook (1998). Die entsprechende Konzentration in der wässrigen Phase ist für $t = 15^\circ\text{C}$ und $p_i = 1.013 \cdot 10^5 \text{ Pa}$ ($= 1 \text{ atm}$) berechnet.

Gas	$H_i(15^\circ\text{C})$	$H_i(25^\circ\text{C})$	$c_{i,eq}^w \text{ [mg/L]}$
O ₂	27.620	32.090	49.00
N ₂	54.930	62.190	21.57
CO ₂	0.927	1.196	2007.40
CH ₄	24.380	28.830	27.83
H ₂ S	0.326	0.398	4421.20
H ₂	50.420	88.150	1.69

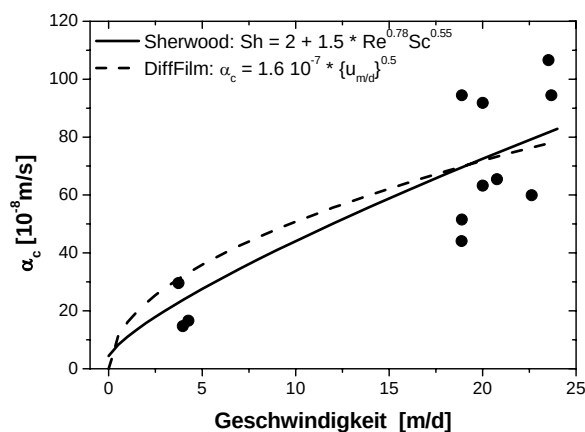


Abb. 2: Geschwindigkeitsabhängigkeit des Massentransferkoeffizienten α_c für Sauerstoff.

In Abbildung 2 ist eine empirische Sherwood-Zahl-Beziehung (durchgezogene Linie), welche durch Anpassung an die experimentellen Werte (schwarze Kreise) von Donaldson et al. (1997) abgeleitet wurde, dargestellt. Die gestrichelte Kurve zeigt die Parametrisierung mit Hilfe des diffusive-film-Modells (Geistlinger et al., 2001a), wobei man bei Verwendung der Formel beachten muss, dass $\{u_{m/d}\}$ der dimensionslose Zahlenwert der Geschwindigkeit bezogen auf $[m/d]$ bedeutet.

Ausgehend von einer Kinetik erster Ordnung ergeben sich die Transferraten $R_i^{g,w}$ [mol/(L s)] für den Übergang 'Gasphase → Wasserphase' bzw. vice versa zu

$$(6) \quad R_i^g = k_i(\theta_g) \cdot [H_i \cdot c_i^w - c_i^g] \equiv -R_i^w$$

Das single-bubble-Modell liefert für die sättigungsabhängige Ratenkonstante [1/s]

$$(7) \quad k_i(\theta_g) = \left(\frac{A_g}{V} \right)^* \cdot \alpha = \phi \cdot \frac{3 \cdot \theta_g(t)}{r_b(t)} \cdot \alpha_i$$

(θ_g – volumetrischer Gasphasengehalt, ϕ – Porosität, $(A_g/V)^*$ – effektive, spezifische Gas-Wasser-Phasengrenzfläche [m²/m³-bulk], α_i – mikroskopischer Transferkoeffizient [m/s], $r_b(t)$ – Gasblasenradius). In erster Näherung können die Transferkoeffizienten durch die einfache Beziehung des stagnant-film-Modells abgeschätzt werden (siehe unten Abb. 3, Geistlinger et al., 2001a):

$$(8) \quad \alpha_i \approx \frac{1}{H_i} \cdot \frac{D_i^w}{\delta_w}$$

Zur Berechnung der Massentransferkoeffizienten (Tab. 2) wurde angenommen, dass die Dicke der Diffusionsschicht (= stagnant-film) für alle Komponenten gleich ist. Bei Verwendung der empirischen Sherwood-Zahl-Beziehung (Abb. 2) ergibt sich: $\delta_w(15^\circ\text{C}) \approx 0.45 \text{ mm}$. Da die charakteristische Transferlänge durch δ_w bestimmt ist, können Tortuositätskorrekturen vernachlässigt werden, d.h. die retardierten Diffusionskoeffizienten der Porenwasserphase können in 1. Näherung durch die Diffusionskoeffizienten der freien Wasserphase berechnet werden. Diese sind in Tabelle 2 für verschiedene Gases angegeben.

Tab. 2: Diffusionskoeffizienten aus Boudreau (1997) für $t = 15^\circ\text{C}$ und $t = 25^\circ\text{C}$ und Massentransfer-Koeffizienten für $t = 15^\circ\text{C}$.

Gas	$D_i^w(15^\circ\text{C})$ [$10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$]	$D_i^w(25^\circ\text{C})$ [$10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$]	α_i [10^{-8} m/s]
O ₂	1.62	2.12	13.00
N ₂	1.42	1.86	5.74
CO ₂	1.36	1.78	325.63
CH ₄	1.35	1.77	12.30
H ₂ S	1.41	1.85	958.70
H ₂	1.60	2.10	7.04

Kinetisches Modell zum Massentransfer

Die meisten in der Literatur existierenden Modelle zur Beschreibung der Auflösung von residualen NAPL bzw. Gasphasen basieren auf dem stagnant-film-Modell (Abb. 3). Da der Massentransfer durch den diffusiven Transport in der wässrigen Phase bestimmt ist, lässt sich aus dem Diffusionsstrom durch die dünne, quasi-ruhende Diffusionsschicht (= stagnant-film) der Massentransferkoeffizient ableiten, wobei Stationarität vorausgesetzt wird. Der Massentransferkoeffizient ist damit als Verhältnis aus Diffusionskoeffizienten und Schichtdicke bestimmt.

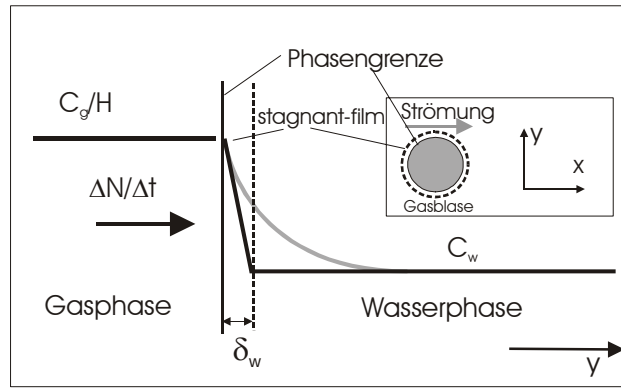


Abb. 3: Das stagnant-film-Modell: a) Exaktes Konzentrationsprofil (graue, durchgezogene Linie) und lineares Konzentrationsprofil (schwarze, durchgezogene Linie) innerhalb der dünnen Diffusionsschicht (gestrichelte Linie) (C_w , C_g - Volumen-Konzentrationen in der Wasser- bzw. Gasphase). ΔN bezeichnet die Zahl der Moleküle, die die Phasengrenze während der Zeit Δt passieren.

Damit ist die Transferrate (Gl. 6, Gl. 7 und Gl. 8) gegeben und die zu lösende nichtlineare Differentialgleichung für den Massentransfer der Komponente i lautet:

$$(9) \quad \frac{\partial}{\partial t} [\theta_g \cdot c_i^g] = k^i(\theta_g) \cdot (H_i \cdot c_i^w - c_i^g) \equiv -R_i^w \quad i = 1 \dots k.$$

Den advektiv-dispersiven Transport in der wässrigen Phase beschreibt

$$(10) \quad \frac{\partial}{\partial t} [\theta_w \cdot c_i^w] = \hat{T} c_i^w + R_i^w, \quad i = 1 \dots k$$

wobei $\hat{T}$ der entsprechende Transportoperator und θ_w der volumetrische Wasserphasengehalt ist. Die Lösung dieses gekoppelten, nichtlinearen Differential-Gleichungssystems erfolgte numerisch mittels einer zeit-adaptiven Operator-Splitting Methode (Geistlinger et al., 2001b, Geistlinger, 2001). Das Modell wird als *variable-volume-Modell* bezeichnet und bildet die Grundlage sowohl für die Simulationsmodelle einer reaktiven Sauerstoffwand als auch für die Parameteridentifikation von Gastracer-Experimenten (Abb. 4). Im Fall einer reaktiven Gaswand ist der Gasdruck der eingefangenen Gasblasen in der Tiefe h_w durch den hydrostatischen Druck $\rho_w \cdot g \cdot h_w$ (ρ_w [kg/m³] – Dichte des Wassers, g [m/s²] – Erdbeschleunigung) gegeben, d.h. der Gasdruck ist während des Auflösungsprozesses konstant, aber das Volumen ändert sich entsprechend den bekannten Gasgesetzen.

Das *constant-volume-Modell* wird wegen seiner mathematischen Einfachheit ausschließlich in der Literatur verwendet. Hier können θ_g , θ_w vor die zeitliche Ableitung in Gleichungen 8 und 9 gezogen werden und die Ratenkonstante ist sättigungsunabhängig.

Experimentelle Untersuchungen

Im folgenden werden Laborexperimente zur Gaslösung (Massentransfer) und zum Strömungsverhalten vorgestellt, die in Säulen und Tanks durchgeführt wurden.

Während die Säulenexperimente zur Auflösung einer residualen Sauerstoffgasphase (Ein-Komponenten-Gas) auf eine konsistente Anwendung der 1-Komponenten-Theorie abzielen, soll eine lösungsbedingte Massenänderung bei den Tank-Strömungsexperimenten minimiert werden. Deshalb wurde dort nicht

Sauerstoff sondern Luft als Injektionsgas eingesetzt (eingestelltes Gleichgewicht zwischen Umgebungsluft und Porenwasser).

Für beide Versuchsserien wurden mittelsandige Sedimente (Tab. 3) verwendet.

Tab. 3: Ausgewählte Parameter der untersuchten Sedimente

Parameter	Mittelsand Säulenexperimente	Grobsandiger Mittelsand Tankexperimente
d_{10} [mm]	0.17	0.25
d_{60} [mm]	0.35	0.6
Feststoffdichte [kg/m ³]	2653	2650
Volumen Sandkörper [m ³]	0.000113	0.161
Gesamtporenvolumen [m ³]	0.000081	0.056
BET-Oberfläche [m ² /g]	0.29	0.72
k_f -Wert [m/s] (Hazen, 20°C)	$3.3 \cdot 10^{-4}$	$9.4 \cdot 10^{-4}$

Säulenexperimente zum Massentransfer eines Ein-Komponenten-Gases (Sauerstoff)

Bei den durchgeführten Säulenexperimenten wurden dynamisch eingespannte Sedimente verwendet, um eine Umordnung der Lockergesteins-Matrix durch die dominierenden Kapillarkräfte zu verhindern. Letztere führen in ungespannten Sedimenten zu ‚air channeling‘ bzw. ‚preferential flow‘, wie Vorversuche mit versuchstechnisch dicht gepacktem Mittelsand gezeigt haben (siehe Lazik et al., 2001).

Der Gastracer-Versuch wurde mit einem Ein-Komponenten-Gas (Injektion von reinem Sauerstoff) durchgeführt, dies ist zwingend, da die oben skizzierte Theorie nur für eine Komponente ausgewertet wurde. Die Arbeiten in der Literatur sind insofern inkonsistent, da sie Versuche mit Luft durch ein Ein-

Komponenten-Modell interpretieren (Donaldson et al., 1997). Der notwendige Versuchsaufbau wird wegen des Sauerstoffgradienten wesentlich aufwendiger, da alle Verbindungen diffusionsdicht sein müssen, bzw. es sichergestellt sein muss, dass Diffusionsverluste vernachlässigbar sind.

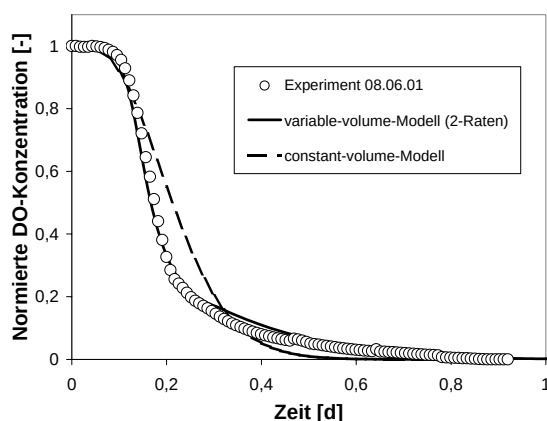


Abb. 4: Vollständige Auflösung einer residualen, reinen Sauerstoff-Gasphase aus Lazik et al. (2001). Die experimentelle Elutionskurve ist durch Kreise dargestellt, das 2-Raten-variable-volume-Modell durch eine durchgezogene Linie und das constant-volume-Modell durch eine gestrichelte Linie.

Wie Abbildung 4 zeigt, war nur ein 2-Raten-variable-volume-Modell in der Lage, das tailing-Verhalten der experimentellen Elutionskurve zu beschreiben. Wir weisen darauf hin, dass die relativ gute

Übereinstimmung des constant-volume-Modells ein Artefakt dieses Modells ist (abnehmender Partialdruck und folglich abnehmender Konzentrationsgradient im Verlauf des Lösungsprozesses).

Die konsequente Anwendung des variable-volume-Modells führt zu folgendem physikalischen Bild des Lösungsprozesses:

Zu Beginn werden getrappte Gasblasen relativ schnell aufgelöst (schnelle Kinetik, Transferkoeffizient α_1). Die Lösungsfront kommt schon nach kurzer Zeit ins Gleichgewicht mit der Gasphase, d.h. die Gelöst-Sauerstoffkonzentration ist für die ersten 0.1 Tage durch das Henry-Gesetz gegeben. Entgegen dem ursprünglichen Bild einer sequentiellen vollständigen Auflösung lösen sich die Gasblasen bis zu einem gewissen kritischen Radius auf und folgen dann einer wesentlich langsameren Kinetik ($\alpha_2 = 0.12\alpha_1$). Mit anderen Worten, solange die Gasblasen unmittelbaren Kontakt zu den Strombahnen haben, wird der Massentransfer durch einen großen Konzentrationsgradienten getrieben, da ständig Sauerstoff konvektiv von der Phasengrenzfläche abtransportiert wird.

Aus der homogenen Bläschenverteilung wird durch kleine Unregelmäßigkeiten im homogenen Strömungsfeld zunehmend eine in Lage und Größe heterogen(er)e Bläschenverteilung, d.h. Bahnen mit höherer Geschwindigkeit lösen Gasblasen schneller und erhöhen damit die hydraulische Durchlässigkeit des Fließpfades. Damit wird der konvektive Massentransfer mit der Zeit abnehmen und der diffusiv-limitierte Massentransfer bestimmend. Phänomenologisch muss dies eine signifikante Abnahme des mittleren Transferkoeffizienten bewirken.

Untersuchung des Gasphasentransports

Versuchskonzept und Durchführung

In Großsäulen (Tanks) wurde Ausbildung, Verteilung und Stabilität von gasdurchströmten Kapillaren in einem statisch und dynamisch eingeregelter Sedimentkörper ($d = 0.58$ m, $h = 0.67$ m, ca. 3-jährige Konsolidierung) untersucht. Im Experiment wurde das Volumenäquivalent einer in einen wassergesättigten Sedimentkörper eingeleiteten Gasphase als Masse verdrängten Porenwassers

dynamisch erfasst.

Die Injektionsbedingungen (Injektionstiefe, Volumenstrom, Lufteintrittsdruck) wurden gemessen. Eine Aufzeichnung der Luftaustrittspunkte diente als Maß für die horizontale Flächendichtevertelung des Kapillarnetzwerks (Kapillardichte). Die für die Versuchsserie entwickelte Versuchsanordnung zeigt Abbildung 5; Abbildung 6 dokumentiert den Aufbau des Sedimentkörpers.

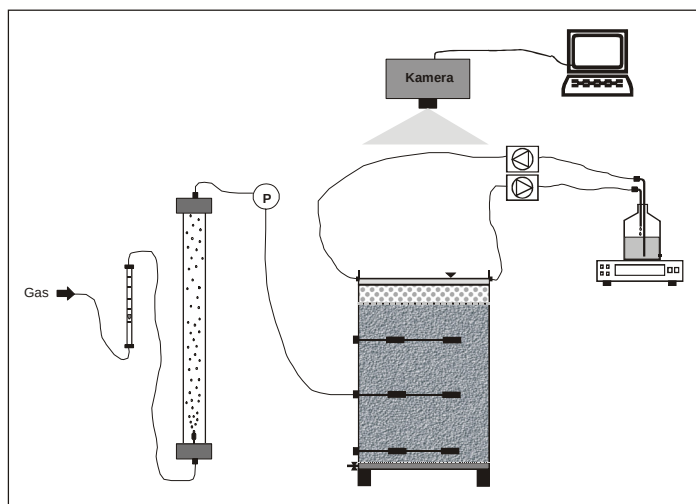


Abb. 5: Versuchsaufbau der Tankexperimente zur direkten Gasinjektion.

Das Sediment (Tab. 3) wurde in einen Tank schichtweise, feucht eingestampft und nach abgeschlossenem Aufbau über mehrere Monate wasserdurchströmt. Nach Absenkung des Wasserspiegels und Entnahme der oberen ca. 0.1 m mächtigen Sandschicht, wurde der verbliebene, 0.67 m hohe Schichtkörper (Abb. 6a) mit einem feinen Stoffnetz (Maschenweite 1.5 mm) bedeckt (Abb. 6b), worüber 5 cm gut gerundeter Mittelkies aufgetragen wurde (Abb. 6c).

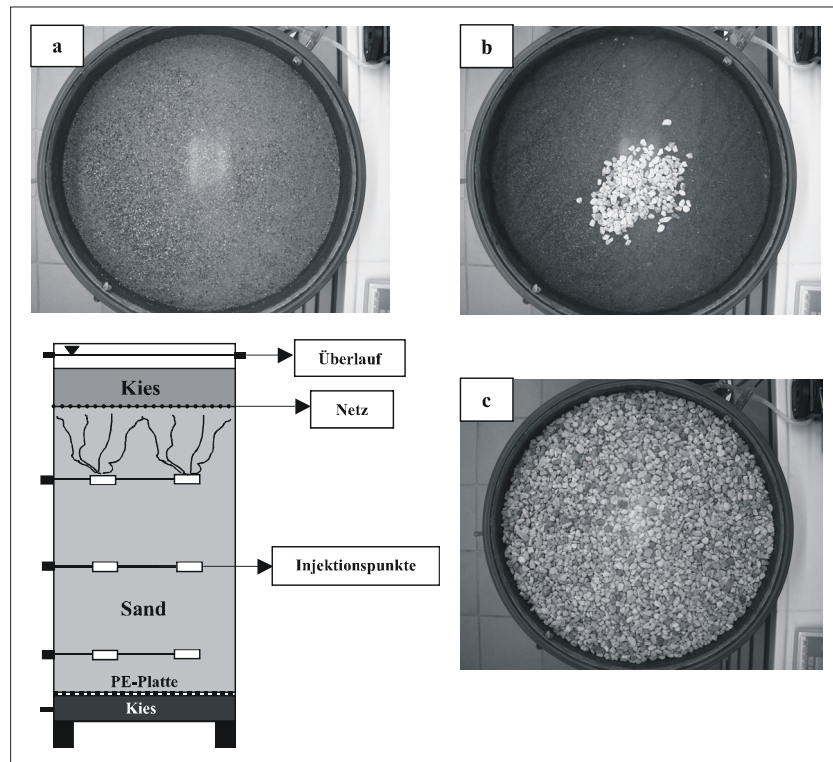


Abb. 6: Aufbau des Sedimentkörpers im Tank.

Das Netz diente dem ebenflächigen Einbau des als Last aufgetragenen Kiesel und unterdrückt die Durchmischung der Sedimente während der Strömungsexperimente.

Wegen der Porenradiengrößen von Netz und Kies > 1 mm, ($\rightarrow$ Auftriebskräfte dominieren) und der vergleichsweise geringen Höhe gilt in der Kies-Lastschicht:

- Luftbläschen werden nicht getrappt,
- der Gasstrom fließt im statistischen Mittel senkrecht,
- der volumetrische Anteil der bewegten Gasphase ist klein.

Im Tank wurde nun über Zu- und Ablaufstutzen ein konstanter, 2 cm hoher Wasserüberstand eingestellt. Durch je zwei miteinander verbundene Aquariensteine (ca. $0.8 \times 0.8 \times 1.5$ cm, weitporig ausgelegt, um den Kapillardruck des engerporigen Sedimentkörpers zu erfassen) wurde Luft in je einer der Tiefen $z_1 = 0.36$ m, $z_2 = 0.45$ m und $z_3 = 0.66$ m injiziert. Eine Schlauchpumpe transportierte das, durch die Luft dynamisch im Tank verdrängte Wasser über den Ablaufstutzen in eine wägbare Flasche und von dieser mit vergleichsweise großer Volumenstromkapazität zurück. Die Masseänderung der wägbaren Flasche liefert damit das exakte Maß für das Volumenäquivalent der eindringenden Luft, wird der durch die freie Wasseroberfläche im Tank entstehende verdunstungsbedingte Masseverlust korrigiert. Hierzu wurde

unmittelbar benachbart ein zweiter, baugleicher Tank als Referenzgefäß unter gleichen Versuchsbedingungen betrieben.

Der Volumenstrom des Gases wurde mit einem Schwebekörper-Durchflussmesser erfasst, der Eintrittsdruck der Luft p_E als Differenz zum Luftdruck gemessen. Eine Digitalkamera diente der Aufzeichnung der Luftaustrittspunkte. Die Messwerterfassung (Druck, Wägung) und Korrektur erfolgte PC-gestützt.

Es wurden 3 Versuchsserien durchgeführt:

Serie Q_1 : Luftinjektion in 3 Injektionsebenen mit $Q_1 = 0.42 \text{ cm}^3/\text{s}$.

Serie Q_5 : Luftinjektion in 3 Injektionsebenen mit $Q_5 = 2.17 \text{ cm}^3/\text{s}$.

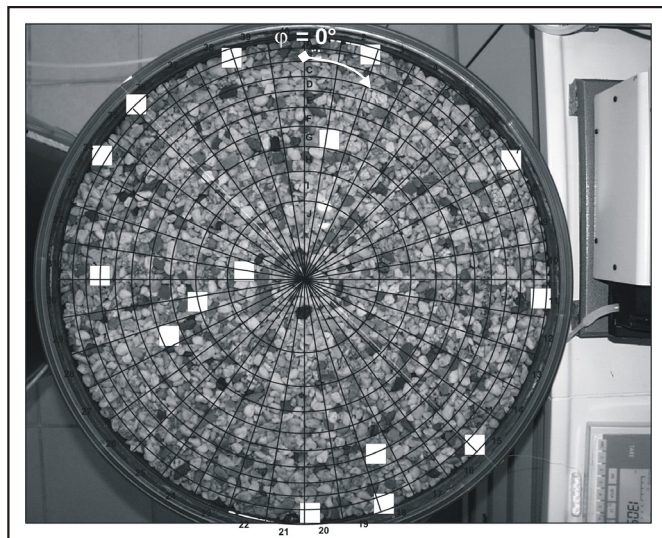
Zwischen den einzelnen Injektionsversuchen und Versuchsserien wurde der Tank von unten nach oben mit Wasser durchströmt, bis das Entweichen von getrappten Gasbläschen gravimetrisch nicht mehr nachweisbar war.

Serie Q_{26} : Der Volumenstrom über die untere Injektionsebene wird schrittweise bis auf das 26-fache ($Q_{26} = 10.83 \text{ cm}^3/\text{s}$) von Q_1 erhöht.

Ergebnisse und Diskussion

Verteilung der Luftaustrittspunkte

Es wird angenommen, dass die nicht sichtbaren Sandkörper-Austrittspunkte der Bläschen statistisch um die Lage der speisenden Kapillare variieren und dass der Ort der Kapillare aus den visuell zugänglichen Kieskörper-Austrittspunkten der Bläschen nur unscharf ermittelt werden kann. Setzt man als



wahrscheinliche Lage der Austrittspunkte eine Fläche im Kontaktbereich von 4-5 sichtbaren Kieskörnern an, so liefert ein polares Netz (10×40 flächengleiche Elemente; $A = 6.61 \text{ cm}^2$) eine Schätzung für die Flächendichteverteilung der Kapillaren. Die in Abbildung 7 exemplarisch dargestellten Luftaustrittspunkte wurden nun nach ihrer Schwerpunktlage einem der Netzsegmente (schwarz umrissen) zugeordnet.

Abb. 7: Luftaustrittspunkte (weiß) und polares Netz zur Ermittlung der Flächendichteverteilung der Kapillaren (beispielhaft dargestellt für Experiment Q_9 innerhalb Versuchsserie Q_{26}).

Abbildung 8 zeigt die über den Winkel integrierte Verteilung der Luftaustrittspunkte $N_\phi(r)$ (= Summe der Austrittspunkte in einem Kreisring je Kreisringfläche $A_{KR} = 264.2 \text{ cm}^2$), wobei die Beobachtungen aus allen Experimenten zugrunde gelegt wurden.

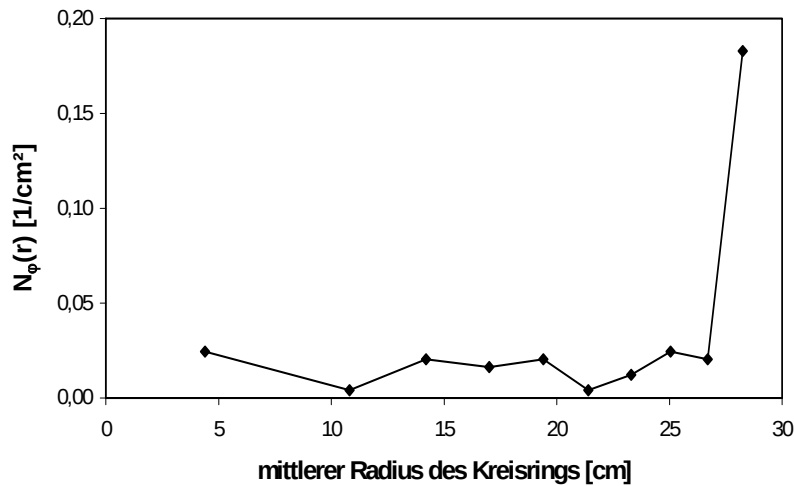


Abb. 8: Azimutal-integrierte Verteilung von Luftaustrittspunkten je Kreisringfläche.

Der Rand des Tanks liegt etwa bei $r = 0.29 \text{ m}$. Die Abbildung belegt: etwa 56 % aller Gastransportpfade befanden sich in unmittelbarer Nähe zur Gefäßwandung. Wir schlussfolgern, dass trotz aufwendiger Vorbereitung des Sedimentkörpers im Randbereich eine geringere Lagerungsdichte vorhanden sein muss. Dies bedeutet jedoch nicht, dass der Kapillardruck im stationären Zustand durch die wandnahen Fließpfade und damit durch die geänderten Benetzungsverhältnisse bestimmt ist, sondern im Sedimentinnern überwunden werden muss, d.h. bei der Migration vom Injektionspunkt zum Gefäßrand. Für die naheliegende Vermutung, dass injizierte Luft entlang der Schlauchverbindungen (liegen bei $\phi \approx 320^\circ$, Abb. 9) bevorzugt zum Gefäßrand migriert, liefert die radial-integrierte Verteilung der Austrittspunkte $N_r(\phi)$ (= Summe der Austrittspunkte in einem Kreissektor je Kreissektorfläche $A_{KS} = 66.1 \text{ cm}^2$) keine Bestätigung (Abb. 9).

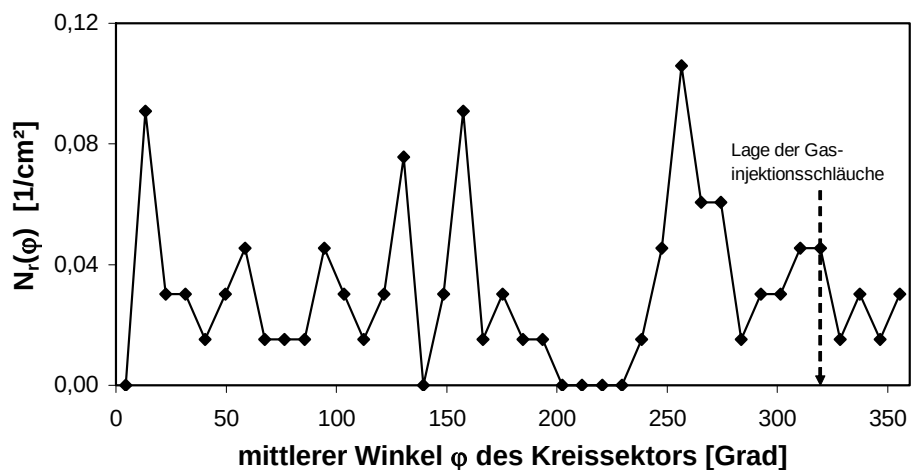


Abb. 9: Radial-integrierte Verteilung von Luftaustrittspunkten je Kreisringfläche

Gasphasendynamik im Sedimentkörper*Serie Q_1 und Q_5*

Abbildung 10 zeigt mit Beginn der Luftinjektion, betrachtet wird Serie Q_5 , die Herausbildung einer Druckspitze, hinter der der Druck um 0.3 – 0.4 kPa absinkt. An der Oberfläche kommt es fast zeitgleich zu den ersten Luftaustritten. Dieses Verhalten wurde in allen Experimenten beobachtet und ist auf die instationäre 2-Phasenströmung zurückzuführen. Der erhöhte Druck ist notwendig, um die flüssige Phase mit ihrer um 3 Größenordnungen höheren Viskosität zu verdrängen. Im stationären Zustand stabilisiert sich das gasdurchströmte Kapillarnetzwerk und damit der Eintrittsdruck sowie die Anzahl und Lage der Luftaustrittspunkte.

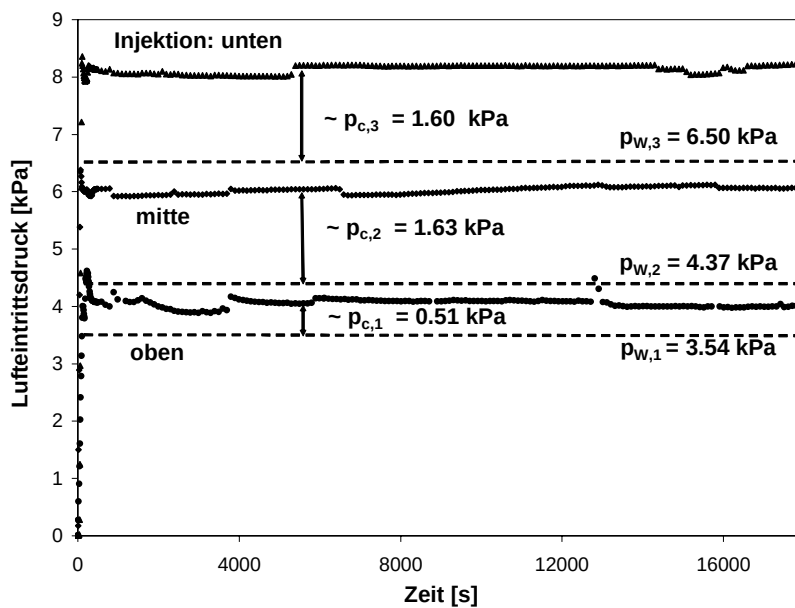


Abb. 10: Zeitliche Entwicklung des Lufteintrittsdrucks p_E am Beispiel der Serie Q_5 .

Die folgenden Ausführungen basieren auf dem physikalischen Bild, dass der Druckgradient entlang einer gasdurchströmten Kapillare im stationären Zustand konstant und durch den hydrostatischen Druckgradienten vorgegeben ist. Dies zeigt die folgende Ableitung (FALTA 2000).

Der hydrostatische Druck bzw. sein Gradient ist:

$$(11) \quad p_w(z) = \rho_w g \cdot z, \quad \frac{\partial p_w}{\partial z} = \rho_w g.$$

Der Gasdruck ist entlang der Kapillare über den Gas-Wasser-Kapillardruck $p_c(z)$ mit dem hydrostatischen Druck verknüpft:

$$(12) \quad p_g(z) = p_w(z) + p_c(z).$$

Da die Phasengrenzfläche die Einhüllende der gasdurchströmten Kapillare bildet, wirkt der Kapillardruck senkrecht zur Strömungsrichtung und kann in 1. Näherung als konstant angenommen werden. Hervorgerufen durch die Auftriebskraft, ergibt sich ein die Gasströmung antreibender konstanter Gradient des Druckes in der Gasphase:

$$(13) \quad \frac{\partial p_g(z)}{\partial z} = \frac{\partial p_w(z)}{\partial z} = \rho_w g.$$

Aus dem mittleren Lufteintrittsdruck $p_g(z_i)$ im stationären Zustand und dem hydrostatischen Druck p_w an der jeweiligen Injektionsstelle können die Kapillardrücke nach Gleichung 12 berechnet werden (Tab. 4).

Tab. 4: Kapillardrücke Experiment Q_1 und Q_5

Injektionsebene	hydrostatischer Druck p_w [kPa]	Kapillardruck p_c [kPa]	
		Experiment Q_1	Experiment Q_5
oben	3.54	0.58	0.51
mitte	4.37	1.44	1.63
unten	6.50	1.00	1.60

Serie Q_{26}

Die zeitliche Entwicklung des dynamisch gespeicherten Luftvolumens in Abhängigkeit zum Volumenstrom ist in Abbildung 11 dargestellt.

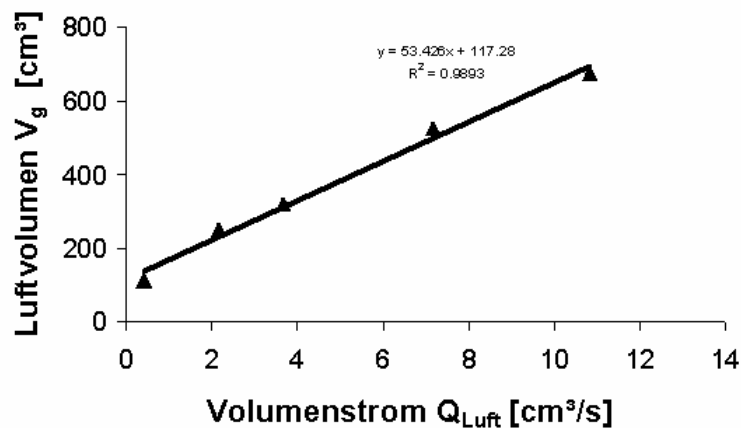


Abb. 11: Abhängigkeit des Luftvolumens V_g vom Volumenstrom Q_{Luft} .

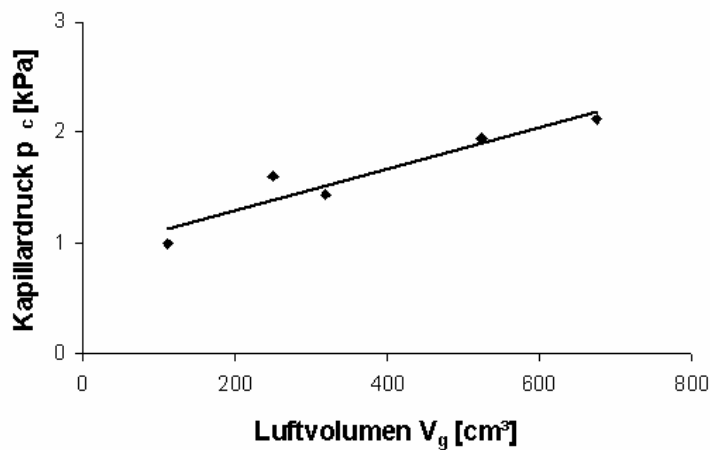


Abb. 12: Abhängigkeit des Kapillardruckes p_c vom Luftvolumen V_g .

Abbildung 12 zeigt die zeitliche Entwicklung des Kapillardruckes p_c in Abhängigkeit vom dynamisch gespeicherten Luftvolumen V_g . Man erkennt, dass sich p_c mit Zunahme des Luftvolumens ebenfalls vergrößert. Die Zusammenhänge von $V_g(Q_g)$ sowie $p_c(V_g)$ verdeutlichen: das Kapillarnetzwerk wird bei Erhöhung des Volumenstroms Q_g ausgeweitet und kleinere Kapillaren werden erschlossen.

Aus dem konstanten Anstieg der $V_g(Q_{Luft})$ -Kurve lässt sich eine untere, mittlere Grenzgeschwindigkeit $\bar{v}_g$ für den Gasvolumenstrom abschätzen:

$$(14) \quad \frac{\Delta V_g}{Q_g} = \frac{A_g \cdot L_{Kap}}{A_g \cdot \bar{v}_g} = \frac{L_{Kap}}{\bar{v}_g} = const.$$

(A_g = durchströmter Querschnitt). Setzt man für die Kapillarlänge L_{Kap} die untere Grenze (= Injektionstiefe z_3) ein, erhält man $\bar{v}_g = 1.24 \text{ cm/s}$.

Der Bereich der experimentell beobachteten Kapillardrücke (Abb. 12) liegt zwischen 1.0 und 2.0 kPa. Es ist instruktiv, aus der experimentellen Kornverteilungslinie (Abb. 13) die zu erwartenden Kapillardrücke abzuschätzen. Da die Kornzahldichte-Verteilung ein Maximum bei einem mittleren Korndurchmesser von 0.3 mm aufweist, liegen die minimalen Porenkanaldurchmesser für lockere bzw. dichte Packung (gestrichelte Kurven Abb. 13) zwischen 0.05 und 1.2 mm und damit die Kapillardrücke zwischen 1.7 und 4.1 kPa (Benetzungswinkel $\approx 45^\circ$).

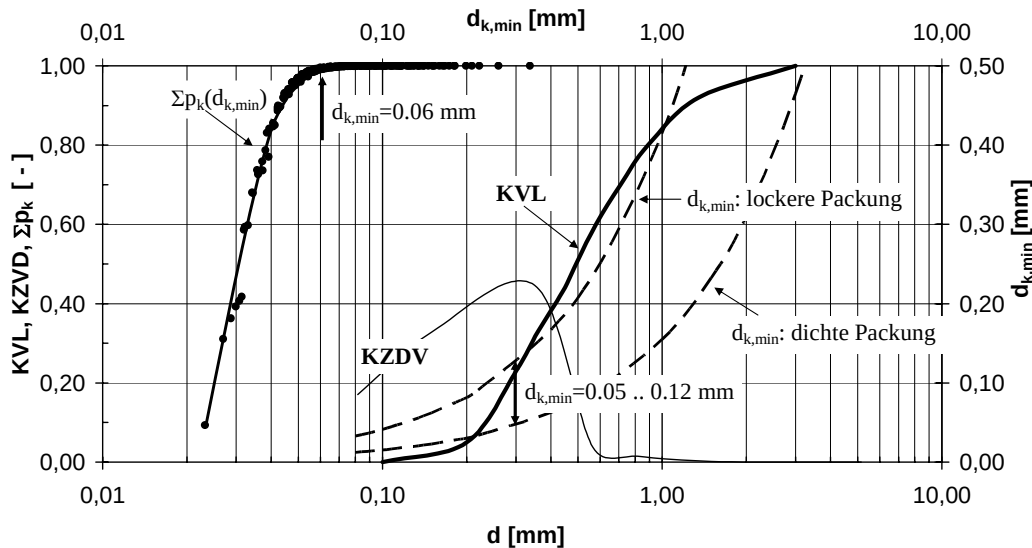


Abb. 13: Kornverteilung (KV: experimentell – schwarze Kreise; gemittelt – dicke Linie), Kornzahldichte-Verteilung (KZDV – dünne Linie) und die Verteilung Σp_k der relativen Minima der Porenkanaldurchmesser $d_{k,min}$ nach PENCENKIN. Die gestrichelten Kurven entsprechen den $d_{k,min}(d)$ im Ein-Kugel-Modell für lockere und dichte Packung (rechte Ordinate).

Der Kapillardruck wurde nach dem LAPLACE'schen Gesetz berechnet:

$$(15) \quad p_c = \frac{4\sigma \cdot \cos \delta}{d_{k,min}}$$

(σ - Grenzflächenspannung Wasser-Luft (= 72 mN/m); $d_{k,min}$ - minimaler Porenkanaldurchmesser, δ - Kontaktwinkel).

Da das Ein-Kugel-Modell die realen Packungsverhältnisse nur sehr idealisiert abbildet, wurde mit Hilfe eines heterodispersiven Modells (10 Korngrößen-klassen) die Wahrscheinlichkeitsverteilung der minimalen Porendurchmesser nach PENCENKIN (siehe Busch et. al., 1993) berechnet. Die dargestellte Kurve zeigt, dass mit einer Wahrscheinlichkeit nahe 1 die Porenkanaldurchmesser im Sediment kleiner 0.06 mm sind, d.h. Kapillardrücke grösser 3.4 kPa auftreten müssen. Wir glauben, dass die kleinen experimentellen Kapillardrücke auf eine Korngerüstumordnung (Erweiterung der gasdurchströmten Kapillaren) zurückzuführen sind.

Schlussfolgerung

Das variable-volume-Modell wurde anhand von Säulenexperimenten zur Lösungskinetik von residualen Gasphasen (reiner Sauerstoff) validiert. Die Ergebnisse führen zu folgendem physikalischen Bild des Lösungsprozesses: in der Anfangsphase kommen Gasphase und Wasserphase schnell ins Gleichgewicht (schnelle Kinetik, konvektiv-kontrollierter Massentransfer) danach zeigt die Elutionskurve ein ausgeprägtes Tailing, welches wie folgt erklärt wird: Aus der anfangs vorhandenen homogenen Bläschenverteilung wird durch kleine Unregelmäßigkeiten im homogenen Strömungsfeld zunehmend eine in Lage und Größe heterogen(er)e Bläschenverteilung, d.h. Bahnen mit höherer Geschwindigkeit lösen Gasblasen schneller und erhöhen damit die hydraulische Durchlässigkeit des Fließpfades. Damit wird der konvektive Massentransfer mit der Zeit abnehmen und der diffusiv-limitierte Massentransfer bestimmend.

Dieses Bild bedarf einer weiteren experimentellen und theoretischen Untersuchung unter Berücksichtigung der Porenverteilung, welche zu einem multi-rate-Modell führt (Log-Normal-Verteilung), wie es derzeit intensiv in der Literatur diskutiert wird. Welchen Einfluss die Porenverteilung, das heterogene Geschwindigkeitsprofil und die Auslösung und Wiedervereinigung von kleinen Gasbläschen auf den Lösungsprozess haben, kann nur mit hochauflösenden Visualisierungsexperimenten entschieden werden.

Zukünftige Arbeiten zur Lösungskinetik müssen sich auf die Erweiterung von Säulenexperimenten und Theorie für typische Mischgasphasen, wie sie beim bio-sparging zu erwarten sind, konzentrieren.

Die grossskaligen Tankexperimente zeigen im Bereich geringer Volumenströme und geringer Gassättigungen, dass eine Erhöhung des Gasvolumenstromes über eine Erweiterung des gasdurchströmten Kapillarnetzwerkes realisiert wird. Eine Berechnung der Porenverteilung aus der Siebkurve auf der Grundlage eines heterodispersiven Packungs-Modells belegt, dass infolge der Gasinjektion selbst bei kleinen Gasvolumenströmen lokale Umlagerungen im Kornbestand stattfinden müssen, infolgedessen sich relativ stabile, weite Kapillaren formen. Die abgeleitete Hypothese muss durch 2D-Visualisierungs-Experimente überprüft werden.

Danksagung

Für die Bereitstellung des mathematischen Algorithmus zur Berechnung der Wahrscheinlichkeitsverteilung der minimalen Porenkanaldurchmesser sind wir dem GFI Dresden und insbesondere Herrn Dipl.-Ing. Lutz Weber zu Dank verpflichtet.

Die vorliegenden Untersuchungen wurden im Rahmen des SAFIRA-Projektes (Teilprojekt C1.1; Förderkennzeichen: 02WT9947/8) durchgeführt. Wir danken für die finanzielle Unterstützung durch das BMBF und dem Projektträger Wassertechnologie und Entsorgung.

Literatur

- Bakker, L. M., Tonnaer, H., Michelberger, H.S., Pijls, C.G. & Filipponi, P. (2000): Full Scale Operation of Aerobic biobarriers.- In: Proc. CONSOIL-Conference, Leipzig, Sept. 2000: 932 – 938.
- Boudreau, B.P. (1997): Diagenetic Models and their Implementation.- Springer-Verlag, Berlin.
- Brooks, M. C., Wise, W.R. & Annable, M. D. (1999): Fundamental changes in situ air sparging flow patterns.- Ground Water Monitoring and Remediation 19 (2): 105-113.
- Busch, K.-F., Luckner, L. & Tiemer, K. (1993): Geohydraulik.- in: Lehrbuch der Hydrogeologie, Hrsg. G. Matthes, Bd. 3, 3., neubearbeitete Auflage, Gebrüder Borntraeger Verlag, Berlin-Stuttgart, 497 S.
- Butler, B.J., Schirmer, M. & Barker, J.F. (2000): The fate of MTBE in the Borden aquifer.- EPA/API MTBE Biodegradation Workshop, Cincinnati, OH, 3.2.2000.
- Cirpka, O.A. & Kitanidis, P.K. (2001): Transport of volatile compounds in porous media in the presence of a trapped gas phase.- J. Contaminant Hydrology 49, 263 – 285.
- Clayton, W. S. (1998): Field and laboratory investigation of air fingering during air sparging.- Ground Water Monitoring & Remediation 18 (3): 134-145.
- CRC-Handbook of Chemistry and Physics (1998), 78th Edition, ed. D.R. Lide, CRC Press, New York.
- Donaldson, J. H., Istok, J.D., Humphrey, M.D., O'Reilly, K.T., Hawelka, C.A. & Mohr, D.H. (1997): Development and testing of a kinetic model for oxygen transport in porous media in the presence of trapped gas.- Ground Water 35: 270-279.
- Falta, R. W. (2000): Numerical modeling of kinetic interphase mass transfer during air sparging using a dual-media approach.- Wat. Resour. Res. 36(12): 3391-3400.
- Fry, V. A., Selker, J. S., & Gorelick, S. M. (1997): Experimental investigations for trapping oxygen gas in saturated porous media for in situ bioremediation.- Wat. Resour. Res. 33: 2687 - 2696.
- Geistlinger, H. (2001): Kinetic interphase mass transfer with saturation-dependent rate constant: Process Modeling of an Oxygen Bubble Wall.- submitted to Water Resour. Res.
- Geistlinger, H., Lazik, D., Krauss, G. & A. Beckmann (2001a): Experimental and Theoretical Investigations of Oxygen Phase Transfer.- Proc. Internat. Conference GQ 2001, Sheffield, June 2001, IAHS –RedBook Series No. 275, im Druck
- Geistlinger, H., Lazik, D., Eisermann, D. & Weiss, H. (2001b): Process Modelling of Oxygen Supply for Aerobic Biodegradation in the Presence of an Oxygen Bubble Wall.- Proc. Internat. Conference GQ 2001, Sheffield, June 2001, IAHS –RedBook Series No. 275, im Druck.
- Johnson, P. C., Das, A. & Bruce, C. (1999): Effect of flow rate changes and pulsing on the treatment of source zones by in situ air sparging.- Environmental Science & Technology 33(10): 1726-1731.
- Lazik, D., A. Beckmann, D. Eisermann, H. Geistlinger & G. Krauss (2001): Direkte Sauerstoffinjektion in natürliche Aquiferausschnitte und poröse Medien.- UFZ-Forschungsbericht, www.hdg.ufz.de.
- Luckner, L. (2001): Wirkung von Gasen auf den reaktiven Stofftransport im Mehrphasensystem Untergrund.- Grundwasser 6 (4): 155 – 162.
- Luckner, L., Weber, L. & Giese, R. (2001): Untersuchung des vertikalen und horizontalen Gastransport im Grundwasserleiter im Bench-Scale.- UFZ-Report 08/99, April 2001.

Mackay, D.M., Wilson, R.D., Naas, C., Wood, I., Scow, K., Smith, A., Gandhi, D., Hristova, K., Watanabe, B. & Einarson, M. (2001): In-situ treatment of MTBE-contaminated groundwater at two sites in California.- Proc. Internat. Conference GQ 2001, Sheffield, June 2001.

Peterson, J. W., Murray, K.S., Tulu, Y.I., Peuler, B.D. & Wilkens, D.A. (2001): Airflow geometry in air sparging of fine-grained sands.- Hydrogeology Journal 9(2): 168-176.

Teutsch, G., Gratwohl, P. & Schiedik, T. (1997): Literaturstudie zum natürlichen Rückhalt/Abbau von Schadstoffen im Grundwasser.- Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle, 12, Zentraler Fachdienst Wasser-Boden-Abfall bei der Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg, 51 S.

Wan, J. M., Veerapaneni, S., Gadelle, F. & Tokunaga, T.K. (2001): Generation of stable microbubbles and their transport through porous media.- Wat. Resour. Res. 37(5): 1173-1182.

III

ANLAGEN

A1 Poröse Medien

Charakterisierung von korngestützten porösen Medien

Grundlage für die Beschreibung von Strömungs- und Transportprozessen in geologischen Strukturen ist eine detaillierte Analyse der mineralischen Zusammensetzung und Struktur des Kornverbandes. Das Material, aus dem die feste Phase besteht, liegt in der Regel nicht als Kontinuum vor. Die mineralischen Bestandteile von Lockersedimenten liegen als definierte Körner verschiedenster Größen und Formen vor. Die Art und relative Größenverteilung der Körner beeinflussen die Lagerungseigenschaften und damit auch Größen und Formen der Zwischenräume (Porenraum). Von diesen letzteren wiederum hängt das Verhalten von fluiden Phasen wie Wasser oder Luft, und den mit diesen transportierten Stoffen im Boden ab [Hartge, 1978].

Beschreibung des Kornverbandes

Die Morphologie von Körnern wird durch Form, die Kugeligkeit und die Rundung bestimmt. Dabei sind mineralische Zusammensetzung, die Art des Herkunftsgesteins, der Verwitterungsgrad sowie die Art des Korn-Transportes bestimmende Faktoren [Tucker, 1985]. Die Korngestalt bestimmt man normalerweise durch Einordnen in eine der vier Hauptklassen nach Zingg [1935] (Abb. A1-1a). Es gibt ebenfalls die Möglichkeit einer Klassifizierung über Vergleichsbilder, bei denen Rundungsgrad und Sphärizität gleichzeitig ablesbar sind (Abb. A1-1b).

Die Korndichte ρ_s des Lockergesteins als das Verhältnis der Trockenmasse m_d zum Feststoffvolumen V_K entspricht der mittleren Dichte aller am Aufbau des Feststoffes beteiligten Minerale [Förster, 1996]:

$$\rho_s = \frac{m_d}{V_K} \quad (\text{A1-1})$$

mit m_d - Trockenmasse der festen Einzelbestandteile des Sedimentes [g]; V_K - Volumen der festen Einzelbestandteile [cm^3].

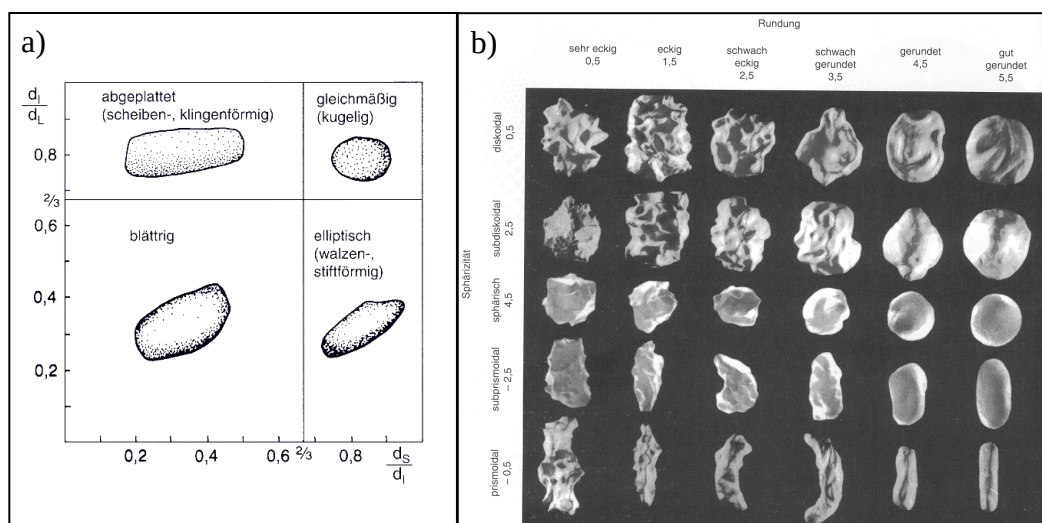


Abb. A1-1: a) Hauptformenklassen sedimentärer Körner; d_S, d_b, d_L sind der kürzeste, der mittlere bzw. der längste Durchmesser; b) Vergleichstafel zur Abschätzung von Rundungsgrad und Sphärizität [aus Tucker, 1996].

Einen wesentlichen Bestandteil für weiterführende Beschreibungen des porösen Mediums bildet neben mineralogischer und morphologischer Charakterisierung der Einzelkörner die Analyse des Kornverbandes hinsichtlich Korngrößen, Sortierung oder Textur.

Zur Einteilung von Korngrößen finden im Wesentlichen zwei logarithmische Skalenmaßstäbe Anwendung, die Udden-Wentworth-Skala sowie in Deutschland die DIN 18 123 [1996] (Abb. A1-2). Da die Größe der Körner in Sedimenten von mehreren Metern bis hinunter zu weniger als 1 µm reicht, würde eine metrische Skala mit normaler Unterteilung die großen Körner über- und die kleinen Körner unterbetonen [Tucker, 1996]. Die graphische Darstellung der Werte aus der Korngrößenanalyse erfolgt in halblogarithmischer Darstellung. Die Kornfraktionen sind auf der Abszisse logarithmisch eingeteilt, die Häufigkeit ihres Auftretens erscheint auf der Ordinate in normaler Einteilung. Krumbein [1934] kennzeichnete die Fraktionsgrenzen der UDDEN-WENTWORTH-Skala als ganze Zahlen. Diese Phi-Skala bildet den negativen Logarithmus der Skalenwerte zur Basis 2 ab:

$$\Phi = -\log_2 \cdot d / d_0 \quad [-] \quad (\text{A1-2})$$

wobei d – Korndurchmesser der Fraktion [mm], d_0 – Korndurchmesser 1 mm. Die arithmetische Form der Phi-Skala erleichtert die statistische Berechnung und Präsentation von Korngrößenanalysen [Tucker, 1996]. In der vorliegenden Arbeit erfolgt die Analyse und Beschreibung der Korngrößen jedoch ausschließlich nach DIN 18 123 [1996].

Eine weit verbreitete Darstellungsmethode von Kornverteilungen sind Histogramme oder Häufigkeitskurven (Abb. A1-2b/oben). Dabei werden die gemessenen Gewichtsanteile direkt über der entsprechenden Kornfraktion aufgetragen. Da aber aus der Häufigkeitsverteilung nur eine begrenzte Menge an statistischen Informationen abgeleitet werden kann, werden die Werte der Korngrößenanalyse alternativ dazu oft als Summenkurve dargestellt [Tucker, 1996]. Bei der Kornsummenkurve werden die prozentualen Gewichtsanteile aufsummiert und über die Korngröße aufgetragen (Abb. A1-2b/unten).

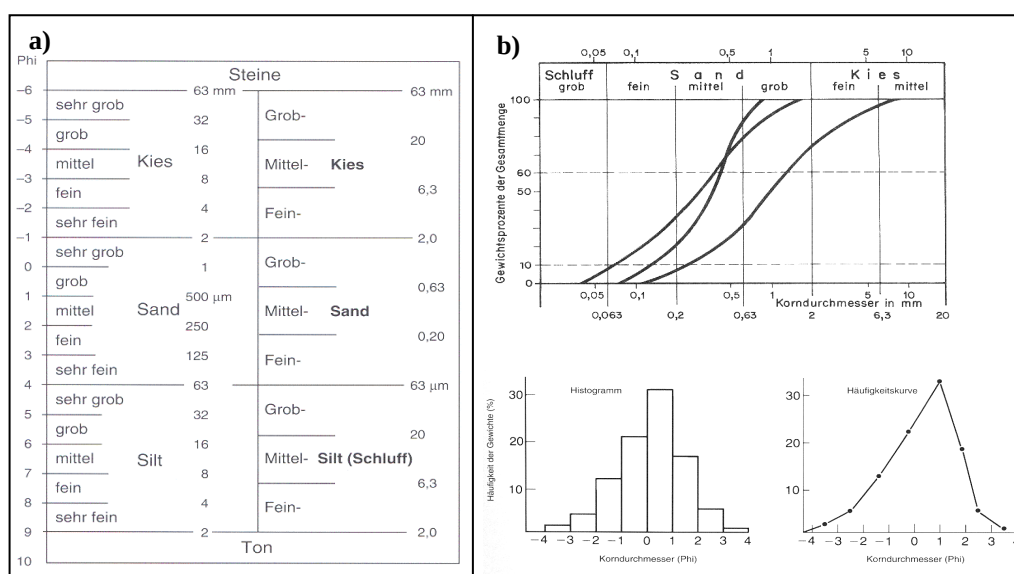


Abb. A1-2: a) Korngrößeneinteilung nach Udden-Wentworth-Skala (links) und DIN 18123 (rechts) [aus Tucker, 1996]; b) Kornsummenkurve [oben; aus Hölting, 1989] und Häufigkeitskurve [unten; aus Tucker, 1996].

Aus der Kornsummenkurve können unterschiedliche statistische Parameter abgeschätzt werden. Der

Ungleichförmigkeitsgrad U ($U = \frac{d_{60}}{d_{10}}$) und die Sortierung So ($So = \sqrt{\frac{d_{75}}{d_{25}}}$) sind ein Maß für die

Streuung der Korngrößenverteilung und somit ein wichtiger Parameter, um Aussagen über das Ablagerungsmilieu zu treffen. Aus bodenmechanischer Sicht lassen sich über den Ungleichförmigkeitsgrad U Abschätzungen über die Verdichtbarkeit machen. Je kleiner U , umso gleichkörniger ist das Lockergestein. Mit steigendem Ungleichförmigkeitsgrad nimmt die Verdichtbarkeit von Sand-Kies-Gemischen zu. Bis zu $U \leq 7$ ist die Verdichtbarkeit zumeist vom Wassergehalt unabhängig

[Förster, 1996]. Die Schiefe S_k ($S_k = \frac{d_{25} + d_{75}}{(d_{50})^2}$) ist ein Maß für die Symmetrie der Kornverteilung, d.h.

herrschen gröbere oder feinere Kornklassen vor.

Die räumliche Anordnung der Körner bestimmt die Lagerungsdichte und den Porenanteil bzw. Porosität des Lockergesteins. Die Lagerungsdichte bezeichnet die Trockenmasse m_{Tr} der Festsubstanz je Volumeneinheit V des Gesteinsverbandes:

$$\rho_L = \frac{m_{Tr}}{V} \quad (A1-3)$$

mit m_{Tr} - Trockenmasse des Sedimentes [g]; V - Volumeneinheit [cm³]

Je nachdem wie dicht die mineralische Feststoffsubstanz gelagert ist folgt aus Gleichung A1-1 und A1-3 der Porenanteil φ :

$$\varphi = 1 - \frac{\rho_L}{\rho_s} \quad (A1-4)$$

Die so definierte totale Porosität umfasst das gesamte Porenvolumen des Sedimentes. Im Unterschied dazu erfasst die effektive Porosität nur den Porenanteil des Gesteins, der aus allen untereinander verbundenen Poren besteht. Bei locker gelagerten unverfestigten Kornschüttungen, wie sie auch in der vorliegenden Arbeit verwendet werden, ist die effektive Porosität praktisch gleich der totalen Porosität [Voigt und Bamberg, 1985].

Geometrien des Porenraumes

Entscheidend für die Strömungs- bzw. Verteilungsmuster der fluiden Phasen im Porenraum ist die Verteilung und Größe der Porenkanäle bzw. Porenräume. Die Lage der Einzelkörner zueinander entscheidet über die Stabilität der Lagerung sowie die Geometrie der Porenraumstruktur. Im Gegensatz zu den festen Lockergesteinsbestandteilen ist es nicht möglich, einzelne Poren abzugrenzen, weil ein Kontinuum vorliegt.

Mit Hilfe von Kugelmodellkonzepten lassen sich nichtbindige Lockersedimente bezüglich ihrer Porenraumgeometrien theoretisch beschreiben [z.B. Haughey und Beveridge, 1969; Gvirtzman und Roberts, 1991; Busch et al., 1993]. Einkugel-Modelle sind für die Struktur natürlicher Sande und Kiese mit kleinem Ungleichförmigkeitsgrad und kugeligter Form geeignet. Nichtbindige Lockersedimente mit

einem größeren Ungleichförmigkeitsgrad können realistisch nur mit Hilfe statistischer und wahrscheinlichkeitstheoretischer Überlegungen (heterodisperse Zufallspackung) beschrieben werden [Busch et al., 1993].

Einkugel-Modelle

Die Lagerungsdichte regulärer Einkorn-Sedimente kann zwischen der lockersten, kubischen Lagerung (Abb. A1-3a) und der dichtesten, tetraedrischen Lagerung (Abb. A1-3b) variieren. Die Porositäten können entsprechend der Lagerung zwischen $\varphi = 0,259 \dots 0,476$ variieren.

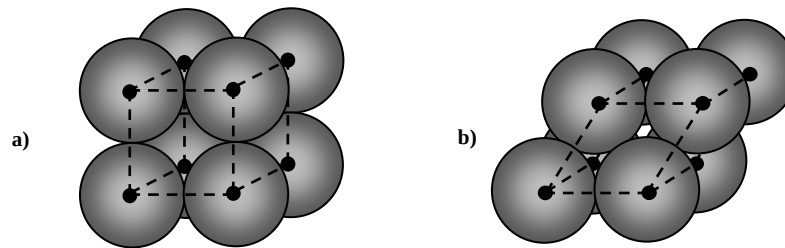


Abb. A1-3: Einkugel-Modelle a) kubische, lockerste Packung; b) tetraedrische, dichteste Packung.

Die Anzahl der Berührungspunkte der Kugeln, beschrieben durch die Koordinationszahl, spiegelt die Lagerungsdichte des Kornverbandes wieder. Die Koordinationszahl liegt für reguläre Einkugel-Schüttungen zwischen 6 (lockerste Lagerung) und 12 (dichteste Lagerung). In Zufallsschüttungen existiert eine große Spanne der Koordinationszahl, je nachdem wie eng- bzw. weitständig die Kugeln gelagert sind. Die Koordinationszahl kann nach Gleichung A1-5 abgeschätzt werden [Haughey und Beveridge; 1969]:

$$n \approx 26.49 - \frac{10.73}{1 - \varphi}; \quad 0.2595 \leq \varphi \leq 0.4764 \quad (\text{A1-5})$$

Aus zahlreichen Experimenten konnten für unterschiedliche Schüttungsszenarien mittlere Porositäten abgeschätzt werden (siehe Tab. A1-1).

Tab. A1-1: Lagerungsstrukturen und Porositäten für Einkorn-Zufallsschüttungen [nach Haughey und Beveridge, 1969].

Schüttungsszenario	Lagerungsstruktur	Mittlere Porosität φ [-]
Sedimentation von Kugeln in fluidisierten Schichten	<i>„very loose random packing“</i>	0,44
Schüttung von kleinen Volumina, so dass die Kugeln individuell auf ähnlich gelagerte Kugeln rollen	<i>„loose random packing“</i>	0,40 – 0,41
Schüttung von Kugeln in Container	<i>„poured random packing“</i>	0,375 – 0,391
Verdichtung von Kugelschüttungen durch Vibration	<i>„close random packing“</i>	0,359 – 0,375

Die Kenntnis über Verteilung, Größe und Konnektivität von Porenkanälen liefert einen wesentlichen Hinweis zur Charakterisierung und Quantifizierung von Strömungsvorgängen im Porenraum, insbesondere bei der Mehrphasen-Strömung. Ausgehend von den Kugel- bzw. Korndurchmessern d können über geometrische Ableitungen minimale und maximale Durchmesser der Porenräume

abgeschätzt werden. Die minimalen Porenkanaldurchmesser $d_{k,min}$ [mm] für eine homodisperse Kugelpackung (Einkugel-Modell) können für dichteste bzw. lockerste Lagerung nach Busch et al. [1993] ermittelt werden:

$$d_{k,min} = (0.155...0.414)d \quad (A1-6)$$

Die maximalen Porendurchmesser $d_{k,max}$ (mm) ergeben sich durch analoge Betrachtung der Elementarzellen zu:

$$d_{k,max} = (0.458...0.732)d \quad (A1-7)$$

Für reguläre Kugelpackungen können die mittleren Porenradien $\bar{R}$ [mm] nach Gleichung A1-8 abgeschätzt werden:

$$\bar{R} = \frac{1}{4}(d_{k,min} + d_{k,max}) \quad (A1-8)$$

Für $\bar{R}$ folgt nach Gleichungen A1-6 und A1-7:

$$\bar{R} = (0.153...0.286)d \quad (A1-9)$$

Ein Zusammenhang zwischen Packungsdichte bzw. Porosität φ und minimalem Porenkanaldurchmesser kann nach Busch et al. [1993] über folgende Beziehung erstellt werden:

$$d_{k,min} = 0.45 \cdot e \cdot d \quad \rightarrow \quad \text{Porenzahl } e = \frac{\varphi}{1 - \varphi} \quad (A1-10)$$

Heterodisperse Zufallspackung

Mit zunehmender Abweichung der Kornform von der Kugel sowie bei heterogenen Kornschüttungen bzw. Korngemischen ist es erheblich schwieriger, Aussagen über die Lage und Stabilität der Körner zueinander zu treffen. Die Beschreibung einer heterodispersen Zufallspackung erfolgt in geeigneter Weise mit Hilfe statistischer und wahrscheinlichkeitstheoretischer Überlegungen. Da das homogene Einkugelmodell die realen Packungsverhältnisse natürlicher Korngemische nur sehr idealisiert abbildet, kann mit Hilfe eines heterodispersen Modells die Wahrscheinlichkeitsverteilung der minimalen Porenkanaldurchmesser innerhalb natürlicher Kornschüttungen ermittelt werden. Die Berechnung folgt dem in Busch et al. [1993] aufgezeigten Algorithmus:

Als relatives Minimum des Porenkanaldurchmessers wird der Durchmesser des Kreises definiert, der sich zwischen drei (dichteste Lagerung) bzw. vier (lockerste Lagerung) berührenden Kugeln in der Mittelpunktsebene einschreiben lässt. Damit ist die Größe des minimalen Porenkanaldurchmessers eine Funktion der betroffenen drei bzw. vier Korndurchmesser. Die Anzahl J möglicher Porenkanaldurchmesser richtete sich nach der Fraktionierung des Lockersedimentes in I -Kornklassen:

$$J = \frac{I \cdot (I+1) \cdot (I+2)}{3!} \quad (A1-11)$$

Die Wahrscheinlichkeit des Vorkommens eines Korndurchmessers kann aus der Anzahl der Körner der betrachteten Körngrößenfraktion abgeleitet werden. Die Berechnung der Fraktile $\Delta p_{z,i}$ der Kornzahlverteilungslinie erfolgt nach:

$$\Delta p_{z,i} = \frac{(\Delta m_i / d_i^3)}{\sum (\Delta m_i / d_i^3)} \quad (\text{A1-12})$$

mit Δm_i [g] – Masse der Fraktion mit dem mittleren Korndurchmesser d_i [mm].

Die Wahrscheinlichkeit p_k des Auftretens des Porenkanaldurchmessers $d_{k,m}$ entspricht der des Vorkommens einer Dreiergruppe von Körnern (d_1, d_2, d_3) und kann wie folgt ermittelt werden:

$$p_k = \frac{3!}{t_1!t_2!t_3!} \cdot \Delta p_{z,i}^{t_1} \cdot \Delta p_{z,i}^{t_2} \cdot \Delta p_{z,i}^{t_3} \quad (\text{A1-13})$$

mit t_1-t_3 – Anzahl des Auftretens der Korndurchmesser d_1-d_3 in der Dreiergruppe, wobei $t_i = 0;1;2;3$ und $t_1+t_2+t_3=3$. Für das Modell der relativen Minima der Porenkanaldurchmesser $d_{k,m}$ bei dichtester Lagerung folgt:

$$d_{k,m} = \left[\frac{1}{d_1} + \frac{1}{d_2} + \frac{1}{d_3} + 2 \left(\frac{1}{d_1 d_2} + \frac{1}{d_1 d_3} + \frac{1}{d_2 d_3} \right)^{1/2} \right]^{-1} \quad (\text{A1-14})$$

mit d_1-d_3 – Korndurchmesser der sich berührenden Kugeln [mm].

In heterogenen Kornmischungen kann der wirksame Korndurchmesser d_w nach Gleichung A1-15 über die Massenanteile der den Kornverband bildenden Korngrößenfraktionen berechnet werden:

$$d_w = \frac{\sum \Delta m_i}{\sum \left(\frac{\Delta m_i}{d_i} \right)} \quad (\text{A1-15})$$

mit Δm_i – Masse der Fraktion mit dem mittleren Korndurchmesser d_i .

Nach Gleichung A1-16 ergibt sich der minimale Porenkanaldurchmesser $d_{k,min}$ aus der Porosität bzw. Porenzahl nach:

$$d_{k,min} = 0.44 \cdot e \cdot d_w \quad (\text{A1-16})$$

Hydraulische Durchlässigkeit

Zur laborativen Bestimmung des Durchlässigkeitsbeiwertes stehen unterschiedliche Verfahren zur Verfügung [siehe DIN 18 130-1, 1998]. Eine sehr verbreitete Methode zur Ermittlung der k_f -Werte nichtbindiger Lockersedimente geht von den Ergebnissen der Siebanalyse aus. Nach HAZEN ergibt sich der k_f -Wert nach:

$$k_f = 0,0116 \cdot (0,7 + 0,03 \cdot T) \cdot (d_{10})^2 \quad (\text{A1-17})$$

mit T – Temperatur des Fluids [°C]; d_{10} – Korndurchmesser bei 10 % der Kornsummenkurve [mm]. Bedingung für diese Berechnung sind nichtbindige Sedimente mit einem Ungleichförmigkeitsgrad $U < 5$. Eine häufige Anwendung findet auch folgende Beziehung nach BEYER:

$$k_f(10^\circ\text{C}) = C^{**} \cdot (d_{10})^2 \quad (\text{A1-18})$$

wobei C^{**} - Proportionalitätsfaktor [-] (siehe Abb. A1-4).

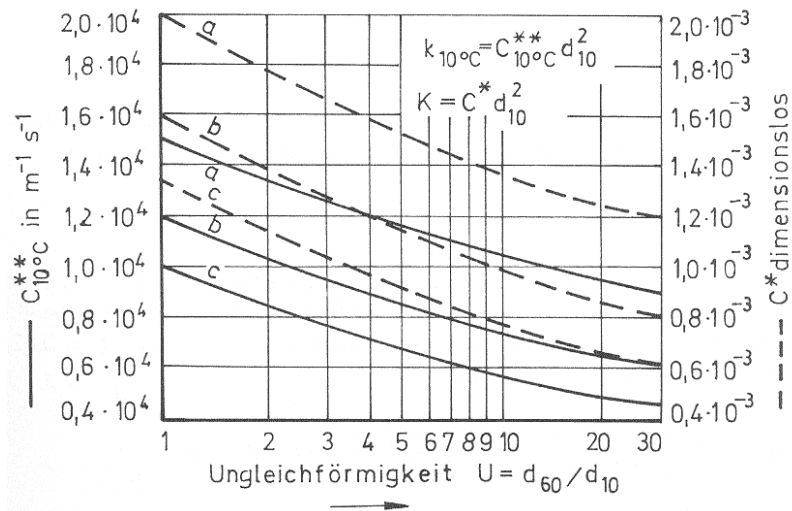


Abb. A1-4: Proportionalitätsfaktoren nach BEYER; a) lockere Lagerung; b) mittlere natürliche Lagerung; c) dichteste Lagerung [aus Busch et al., 1993].

Der temperaturabhängige k_f -Wert kann ermittelt werden über:

$$k_f(T) = \frac{k_f(10^\circ\text{C}) \cdot v(10^\circ\text{C})}{v(T)} \quad (\text{A1-19})$$

Eine theoretische Abschätzung der Permeabilität k kann mit Hilfe der KOZENY-CARMAN-Gleichung erfolgen [Bear, 1972]:

$$k = \frac{\varphi^3 / (1 - \varphi)^2}{5M_s^2} \quad (\text{A1-20})$$

mit M_s ...Spezifische Kornoberfläche [m^{-1}]; φ - Porosität [-]. Mit dem mittleren Partikeldurchmesser

$d_m = \frac{6}{M_s}$ (für d_m kann d_{50} verwendet werden) folgt nach Gleichung A1-20:

$$k = \frac{d_m^2}{180} \frac{\varphi^3}{(1 - \varphi)^2} \quad (\text{A1-21})$$

Verwendete Poröse Medien

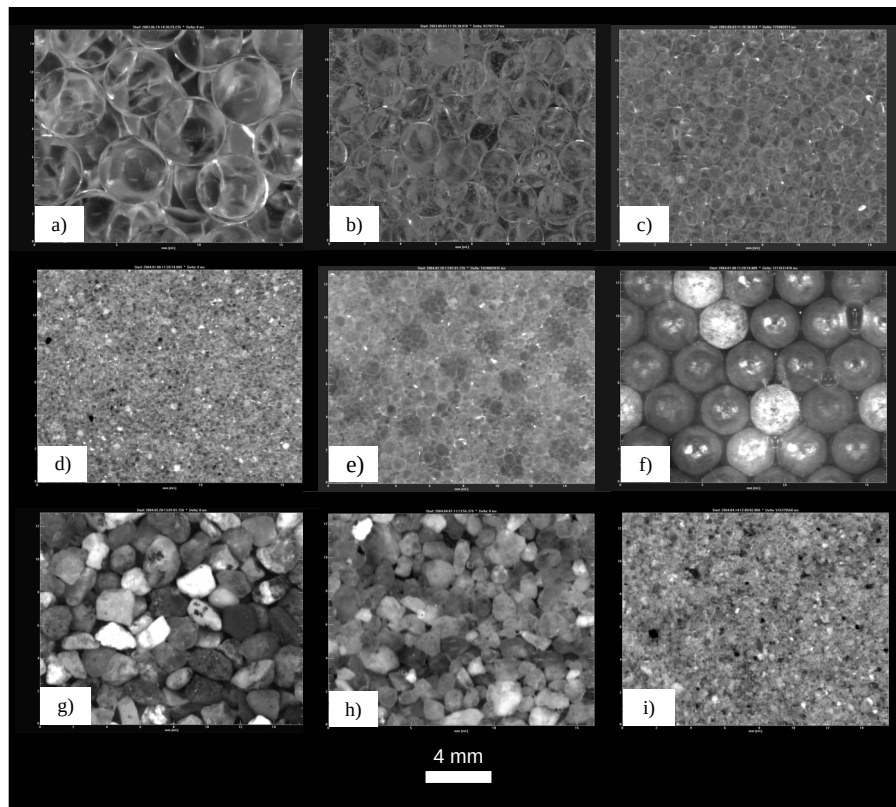


Abb. A1-5: Korncharakteristik der verwendeten porösen Medien:

Glaskugeln: a) 4 mm; b) 2-2,2 mm; c) 0,75-1 mm; d) 0,25-0,5 mm; e) 0,25-2,2 mm; f) 3 mm Bleikugeln;
 Sand: g) 1,6-2 mm; h) 0,5-20 mm; i) 0,1-0,7 mm.

Abbildung A1-5 veranschaulicht die Größenverhältnisse, aber auch Kornformen der verwendeten Sedimente. Die Glaskugeln wurden als Analog zu natürlichen Quarzkörnern verwendet. Der hohe Rundungsgrad und die nahezu kugelige Form erleichtern eine theoretische Beschreibung des Kornverbandes, der Porenraumstruktur sowie relevanter physikalischer Prozesse, bei denen der Korndurchmesser berücksichtigt wird.

Für die Gasinjektionsexperimente innerhalb der vorliegenden Arbeit wurden künstlich gefertigte Glaskugeln und natürliche Sedimente verwendet. Die Spanne des Korndurchmessers der verwendeten Sedimente umfasst den Bereich Mittelsand-Feinkies ($\sim 0,1\text{--}4\text{ mm}$) (Abb. A1-6). Sediment-mischungen dieses Korngrößenbereichs stellen typische Aquifersedimente dar. Bei den durchgeführten Modellversuchen wurden nur Lockersedimente mit steilen Kornverteilungskurven verwendet, die auf der einen Seite gute Voraussetzungen für eine Gasdurchströmung im gesättigten Zustand bieten, andererseits hinsichtlich ihrer bodenmechanischen Eigenschaften genau beschreibbar sind.

Bei den verwendeten Glaskugeln handelt es sich um Reflexperlen aus bleifreiem Glas der Firma ROTH. Die Glasperlen besitzen einen hohen Rundungsgrad ($\approx 90\%$) und bestehen aus Quarzglas ($72\% \text{ SiO}_2$; $13,8\% \text{ Na}_2\text{O}$; $9,0\% \text{ CaO}$; $4,0\% \text{ MgO}$; $1,0\% \text{ Al}_2\text{O}_3$; $0,1\% \text{ K}_2\text{O}$; $0,1\% \text{ Fe}_2\text{O}_3$). Im Gegensatz zu den Glaskugelsedimenten sind die Körner der natürlichen Sande sehr kantig und kaum gerundet. Die Körner weichen zum Teil stark von der Kugelform ab.

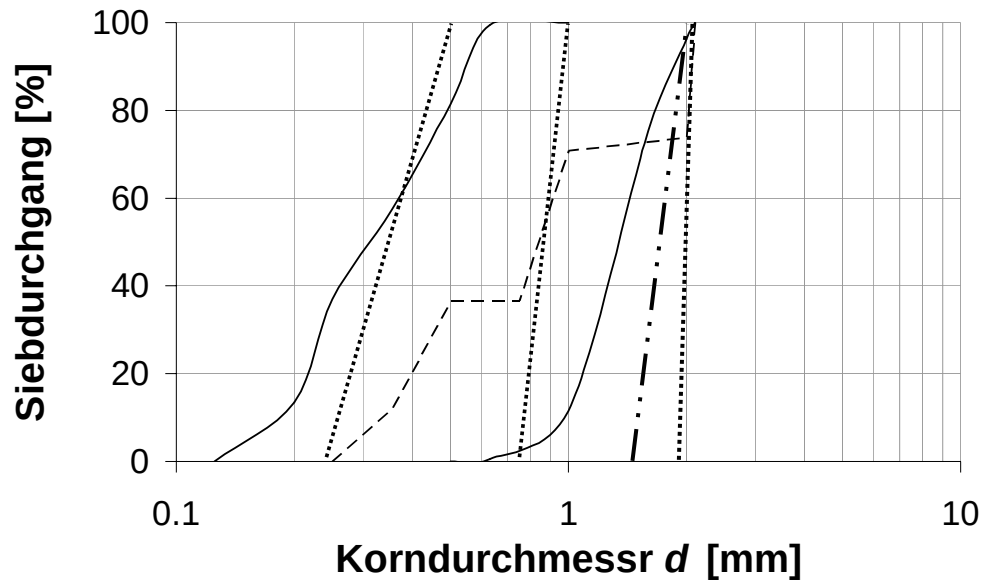


Abb. A1-6: Korngrößenverteilung der verwendeten Sedimente (durchgezogen: natürliche Sande; gepunktet: monodisperse Glaskugeln; gestrichelt: heterodisperse Glaskugeln; punkt-strich: monodisperser Sand).

Die natürlichen Mischsande stammen vom Standort Ottendorf-Okrilla der EUROQUARZ GmbH. Bei den Sanden und Kiesen an diesem Standort handelt es sich um Lagerstätten, deren Bildung im Jungtertiär einsetzte. Die Sedimente wurden über das alte Elbe-Flußsystem („Senftenberger Elbelauf“) vom Erzgebirge her nach Norden transportiert und abgelagert. Eine weitere Sedimentationsperiode setzte zur Elster-Kaltzeit ein, als sich durch von Süden kommende Entwässerungssysteme immer wieder Eisstauseen und Schmelzwässersysteme bildeten, in denen je nach Transportregime Feinsande-Kiese ablagerten [EUROQUARZ-GMBH, 2004]. Die Sande bestehen zu über 90 % aus SiO_2 . Die glazi-fluviatilen Sande sind sehr eckig und besitzen nur geringe Kugeligkeit. Die Ausbildung des natürlichen Einkornsandes (1,6-2 mm) lässt ebenfalls darauf schließen, dass dieser glazi-fluviatil entstanden ist. Der SiO_2 -Anteil ist etwas geringer, kalkige Bruchstücke sind zu finden. Die Körner sind sehr eckig und wenig gerundet, so dass die Morphologie der der Körner der Sande aus Ottendorf-Okrilla gleicht (Feststoffdichte ebenfalls $\approx 2,65 \text{ g/cm}^3$).

Da die Spanne der verwendeten Korndurchmesser im Mittel-Grobsand-Bereich lag, wurde die Korngrößenverteilung der Mischsedimente (Glaskugeln 0,25-2,2 mm, Mittelsand 0,1-0,7 mm; Grobsand 0,5-2 mm) mittels Siebung (trocken) nach DIN 18 123 [1996] bestimmt. Zur Siebung wurden Analysensiebe mit Metalldrahtgewebe nach DIN ISO 3310-Teil 1 [1992] verwendet. Es handelt sich bei allen Kornmischungen um sehr gleichförmige Sedimente ($U \approx 1,5\text{-}2,6$).

Die Feststoffdichte ρ_s der Sedimente wurde mit Hilfe eines Gasverdrängungs-Pyknometers der Firma *Micromeritics, AccuPyc 1330*, bestimmt. Dabei wurden ca. 100 g des jeweiligen Sedimentes in Wiederholungsmessungen untersucht.

Die Bestimmung des hydraulischen Durchlässigkeitswertes k_f erfolgte nach Gleichungen A1-17 und A1-18 aus der Korngrößenverteilung.

Tabelle A1-2 fasst die aus der Charakterisierung der porösen Medien ermittelten boden-physikalischen Parameter zusammen.

Tab. A1-2: Sedimentparameter Gasinjektions-Experimente

Typ	d [mm]	$d_{50}^{\dagger}$ [mm]	$d_{k,min}$ [mm]	U [-]	M^* [m ² /g]	ρ_s [g/cm ³]	$k_f^{\times}(20^{\circ}\text{C})$ [m/sec]	$k_f^{\#}(22^{\circ}\text{C})$ [m/sec]
Glaskugeln	4	4	0,620 ¹ 1,656 ²	1	#	2,5297±0,0003	$2,50 \cdot 10^{-1}$	$2,52 \cdot 10^{-1}$
Glaskugeln	2-2,2	2,1	0,326 ¹ 0,869 ²	~1	#	2,4375±0,0104	$6,88 \cdot 10^{-2}$	$6,31 \cdot 10^{-2}$
Glaskugeln	0,75-1	0,875	0,136 ¹ 0,362 ²	~1	#	2,4525±0,0009	$1,21 \cdot 10^{-2}$	$1,21 \cdot 10^{-2}$
Glaskugeln	0,25-0,5	0,375	0,058 ¹ 0,155 ²	~1	#	2,4594±0,0009	$2,25 \cdot 10^{-3}$	$2,22 \cdot 10^{-3}$
Glaskugeln	0,25-2,2	0,85	0,132 ¹ 0,352 ²	2,6	#	2,4500	$1,59 \cdot 10^{-3}$	$1,93 \cdot 10^{-3}$
Sand	1,6-2	1,8	0,279 ¹ 0,745 ²	~1	1,9541	2,6543±0,0038	$5,05 \cdot 10^{-2}$	$5,11 \cdot 10^{-2}$
Sand	0,5-2	1,30	0,120-0,240 ³	1,5	0,4570	2,6523±0,0018	$1,43 \cdot 10^{-2}$	$1,42 \cdot 10^{-2}$
Sand	0,1-0,7	0,29	0,024-0,048 ³	2,1	0,2858	2,6531±0,0002	$5,20 \cdot 10^{-4}$	$6,31 \cdot 10^{-4}$
Blei	3	3	0,465 ¹ 1,242 ²	1	n.b.	11,1953±0,0006	$1,40 \cdot 10^{-1}$	$1,42 \cdot 10^{-1}$

[×] ... hydraulische Leitfähigkeit [nach BEYER für mittlere natürliche Lagerung];

[#] ... hydraulische Leitfähigkeit [nach HAZEN];

[†] ... für heterodisperse Sedimente d_w ;

^{*} ... Spezifische Oberfläche nach BET-Methode bestimmt;

n.b. ... nicht bestimmt;

... nicht messbar;

¹ ... Ein-Kugelmodell (Gleichung A1-6) dichteste Lagerung;

² ... Ein-Kugelmodell (Gleichung A1-6) lockerste Lagerung;

³ ... Aus Verteilung der relativen Minima der Porenkanaldurchmesser (nach Gleichungen A1-11 – A1-15; siehe Abb. A3/4).

Die künstlich gefertigten Glaskugelsedimente wurden vor dem Probeneinbau gereinigt, um eventuelle Verschmutzungen durch z.B. Fette zu beseitigen. Die Glasperlen wurden zunächst 24 h lang in einem Aceton-Bad gewaschen. Danach wurden die Kugeln mit destilliertem Wasser gespült und bei 105°C getrocknet.

Die natürlichen Kornmischungen (Mittelsand; Grobsand) wurden ebenfalls mit destilliertem Wasser gespült, um Feinstkornanteile (Ton-Schluff), die durch die mechanische Beanspruchung beim Transport entstanden sind, zu entfernen. Die Sedimente wurden so lange gespült, bis keine Trübung des Wassers mehr erkennbar war. Nach dem Spülvorgang wurden die Sedimente bei 105°C getrocknet. Verbleiben die Feinstpartikel im Sediment können Suffosion und Kolmation zur Veränderung der hydraulischen Verhältnisse im Kornverband führen. Arbeiten von Wan und Wilson [1994] oder Tsai und Lin [2004]

zeigen, dass über die Gas-Wasser-Phasengrenzfläche kolloidale Partikel gebunden und transportiert werden können.

Die von den Lagerungsbedingungen innerhalb der Strömungsmodule abhängigen Größen Porosität, Lagerungsdichte und Permeabilität sind Anlage 3 zu entnehmen.

Ermittlung der Verteilungslinie der relativen Minima der Porenkanaldurchmesser dk_m
(Tankexp_PHASIM-Mittelsand)

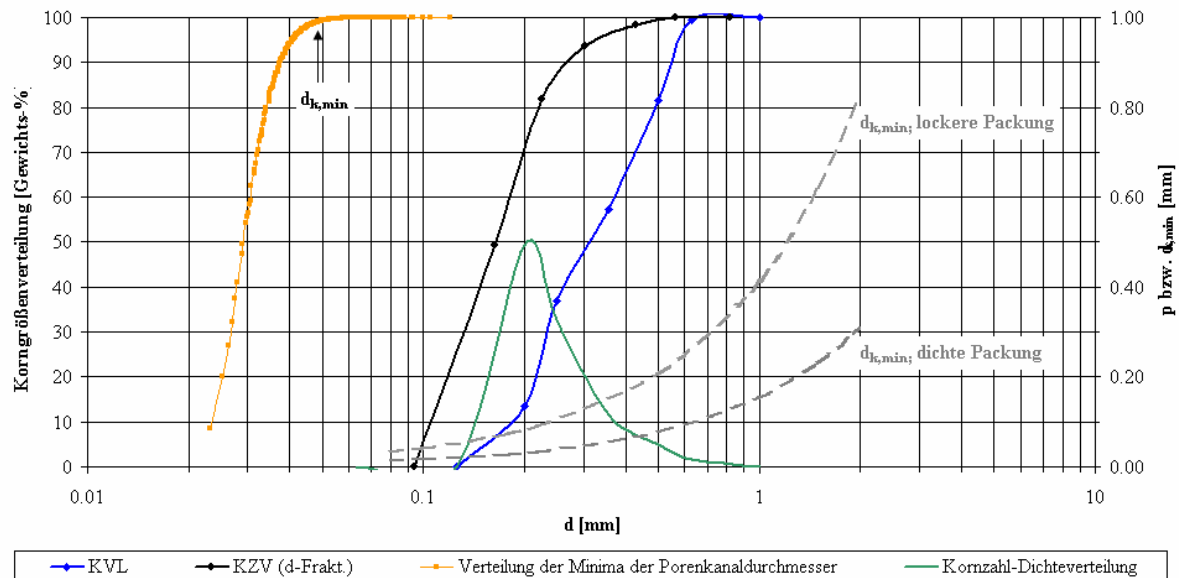
[illegible]

Abb. A1-8: Mittelsand 0,1-1 mm; Kornverteilung, Kornzahldichte-Verteilung und die Verteilung der relativen Minima der Porenkanaldurchmesser $d_{k,min}$ nach PENCENKIN. Die gestrichelten Kurven entsprechen den $d_{k,min}(d)$ im Ein-Kugel-Modell für lockere und dichte Packung (rechte Ordinate).

Literatur

- Bear, J., 1972. Dynamics of Fluids in Porous Media. Dover Publications, Inc., New York, -764 pp.
- Busch, K.-F., Luckner, L., und Tiemer, K., 1993. Geohydraulik - Lehrbuch der Hydrogeologie Bd. 3. Lehrbuch der Hydrogeologie Bd. 3, Gebrüder Bornträger Verlag, Berlin-Stuttgart.
- DIN 18 123, 1996. Baugrund - Untersuchung von Bodenproben: Bestimmung der Korngrößenverteilung. Beuth, Berlin, 273-284 pp.
- DIN 18 130-1, 1998. Baugrund - Untersuchung von Bodenproben: Bestimmung des Wasserdurchlässigkeitsbeiwertes. Beuth, Berlin, 336-355 pp.
- DIN ISO 3310-Teil 1, 1992. Analysensiebe: Anforderungen und Prüfung. Beuth, Berlin, 413-419 pp.
- EUROQUARZ-GMBH. 19-7-2004. Quartz-Lagerstätten der Euroquarz GmbH.
http://www.euroquarz.de/de/main/quarz_lagerstaetten.html .
- Förster, W., 1996. Mechanische Eigenschaften der Lockergesteine. B.G.Teubner Studienbücher Bauwesen, Stuttgart-Leipzig, 0-228 pp.
- Gvirtzman, H. und Roberts, P. V., 1991. Pore scale spatial analysis of two immiscible fluids in porous media. Water Resources Research, 27 (6): 1165-1176.
- Hartge, K. H., 1978. Einführung in die Bodenphysik. Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 0-364 pp.
- Haughey, D. P. und Beveridge, G. S. G., 1969. Structural Properties of Packed Beds - A Review. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 47 130-140.
- Hölting, B., 1989. Hydrogeologie. Ferdinand-Enke-Verlag, Stuttgart, 0-396 pp.
- Krumbein, W. C., 1934. Size frequency distributions of sediments. Journal of Sedimentary Petrology, 4 65-77.
- Tsai, Y. J. und Lin, D. F., 2004. Mobilizing particles in a saturated zone during air sparging. Environmental Science & Technology, 38 (2): 643-649.
- Tucker, M. E., 1985. Einführung in die Sedimentpetrologie. Enke-Verlag, Stuttgart, 0-265 pp.
- Tucker, M. E., 1996. Methoden der Sedimentologie. Ferdinand-Enke-Verlag, Stuttgart, 0-366 pp.
- Voigt, H. D. und Bamberg, H. F., 1985. Hydrodynamische Eigenschaften poröser Medien. In: Geohydrodynamische Erkundung von Erdöl-, Erdgas- und Grundwasserlagerstätten. Wissenschaftlich-Technischer Informationsdienst, Zentrales Geologisches Institut, Berlin pp. 9-17.
- Wan, J. und Wilson, J. L., 1994. Colloid transport in unsaturated porous media. Water Resources Research, 30 (4): 857-864.
- Zingg, T., 1935. Beiträge zur Schotteranalyse. Min.Petrogr.Mitt.Schweiz, 15 39-140.

A2 Fluide Phasen

Im folgenden Abschnitt werden die bei der Gasinjektion relevanten fluiden Phasen in Hinblick auf ihre physikalischen Eigenschaften charakterisiert. Bei den Fluiden handelt es sich um Wasser als flüssige Mischphase sowie Luft als gasförmige Mischphase. Die fluiden Mischphasen unterscheiden sich physikalisch und damit bezüglich ihrer Dynamik durch ihre Phasencharakteristika Dichte, Viskosität und Kompressibilität. Die Stoffeigenschaften von Wasser und Luft sind in Abhängigkeit zur Temperatur in Tabelle A2-1 zusammengefasst.

Luft ist eine Mischgasphase der Komponenten Stickstoff, Sauerstoff, Argon, CO₂ sowie Spurenanteilen anderer Gase. Die wesentlichen Unterschiede in den thermodynamischen Eigenschaften zu Wasser liegen in der Dichte, Viskosität und Kompressibilität. Mit zunehmender Temperatur verringert sich die Viskosität von Wasser, wogegen bei Gasen die Viskosität mit steigender Temperatur zunimmt.

Das Verhältnis M der dynamischen Viskositäten der Fluide Luft und Wasser ergibt sich nach:

$$M = \frac{\eta_L}{\eta_w} = 0,018 \quad (\text{A2-1})$$

Die Kompressibilität κ bei Flüssigkeiten ist größer als im Festkörper. Im Verhältnis zur Kompressibilität bei Gasen ist κ von Flüssigkeiten immer noch sehr klein. Typische Werte für die Kompressibilität von Flüssigkeiten sind rund zwei Größenordnungen höher als bei Festkörpern. Für ein ideales Gas ist die Kompressibilität $\kappa = 1/p$, bei Normaldruck also $10^{-5} \text{ m}^2/\text{N}$ und damit um rund 4 Größenordnungen über dem entsprechenden Wert für eine typische Flüssigkeit (Luft: $\kappa \approx 10^7 [10^{-12} \text{ m}^2 \text{ N}^{-1}]$; Wasser: $\kappa \approx 500 [10^{-12} \text{ m}^2 \text{ N}^{-1}]$). Die Größenordnung der Kompressibilität ist somit, neben Dichte und Viskosität, das wesentliche Kriterium, welches Flüssigkeiten von Gasen unterscheidet.

Tab. A2-1: Eigenschaften von Wasser und Luft [Kinzelbach and Bühler, 2004].

	Wasser				Luft		
$T [^\circ\text{C}]$	$\rho_w [\text{kg}/\text{m}^3]$	$\sigma [10^{-3} \text{ N}/\text{m}]$	$\nu [10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}]$	$\eta_w [10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}]$	$\rho_L [\text{kg}/\text{m}^3]$	$\nu [10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}]$	$\eta_L [10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s}]$
0	999,87	75,6	1,78	1,78	1,29	13,3	17,16
5	999,99	74,9	1,49	1,45	1,27	13,6	17,26
10	999,73	74,2	1,30	1,30	1,25	14,0	17,46
15	999,13	73,5	1,12	1,12	1,23	14,5	17,75
20	998,23	72,7	1,00	1,00	1,21	15,1	18,14
25	997,07	72,0	0,88	0,88	1,19	15,5	18,34
30	995,67	71,2	0,79	0,78	1,17	16,1	18,73

T ...Temperatur; ρ_w ...Dichte; σ ...Oberflächenspannung; ν ...kinematische Viskosität; η ...dynamische Viskosität

Abbildung A2-1 zeigt die Funktion der Temperatur-Abhängigkeit der Dichte von Wasser $\rho_w(T)$.

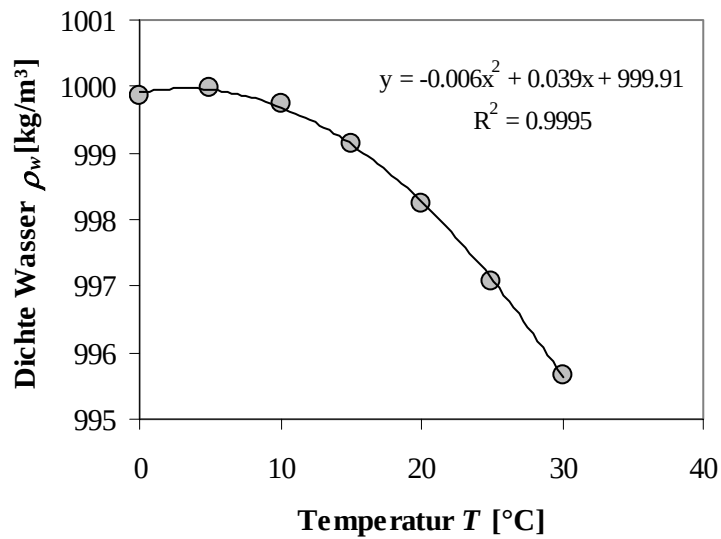


Abb. A2-1: Funktion der Temperatur-Abhängigkeit der Wasser-Dichte (Daten siehe Tabelle A2-1).

Literatur

Kinzelbach, W. and Bühler, J. Hydraulik I - Skript zur Vorlesung.
http://www.ihw.ethz.ch/GWH/education/undergraduate/Hydraulik_I/Vorlesungen/kapitel0.pdf . 3-6-2004.

A3 Strömungsmodule („Aquifer-Analog“-Modelle)

Die Visualisierungs-Experimente zur Direkt-Gasinjektion wurden in 2D-Plexiglas-Tanks durchgeführt. Aufgrund der optischen Eigenschaften und des im Vergleich zu Glas geringeren Gewichts sowie der guten Bearbeitungsmöglichkeiten findet Plexiglas sowohl in Säulenexperimenten [z.B. Brooks et al., 1999] als auch in Tankexperimenten [z.B. Brauns und Wehrle, 1989, Ji et al., 1993, Peterson et al., 1999, Peterson et al., 2001] Verwendung. Abbildung A3-1 zeigt die Strömungsmodule, die für die Experimente entwickelt wurden.

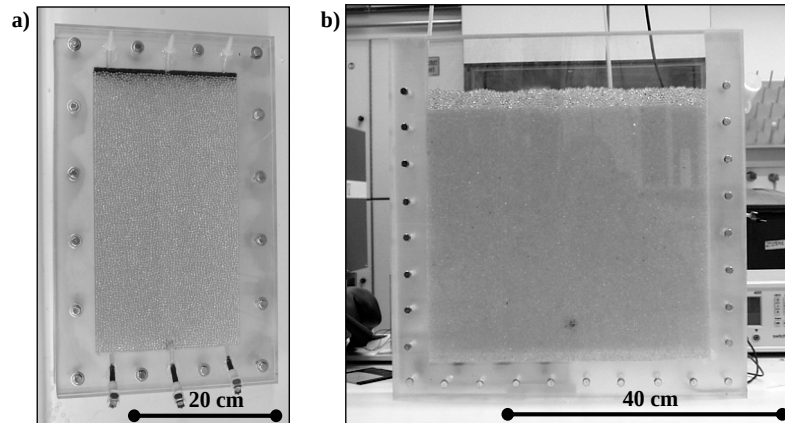


Abb. A3-1: a) Strömungsmodul geschlossen; b) Strömungsmodul offen.

Abbildung A3-1a zeigt ein geschlossenes Strömungsmodul (Innenmaße: 20 x 37 x 1,1 cm), das als Test-Modul zu Beginn der experimentellen Arbeiten entwickelt wurde. Zwischen den 2cm-mächtigen Front- und Rückplatten befindet sich ein 1 cm tiefer Rahmen aus Plexiglas, in den das Sediment eingebaut werden kann. Beim Glaskugelsediment $d=4$ mm wurde ein 2 cm starker Rahmen verwendet. Mit Hilfe einer ca. 1 mm starke elastischen Silikon-Membran zwischen Rückplatte und Sedimentkörper kann das Sediment flächig eingespannt werden. Dadurch ist es möglich, lithostatischen Druck zu simulieren um das Korngerüst stabil zu halten. Die durchgeführten Experimente fanden zunächst unter ungespannten Verhältnissen statt. Jeweils 3 Ventile am oberen und unteren Rand ermöglichen die Simulation verschiedener Strömungsszenarien. Das Modul besaß ein Innenvolumen von $V = 814 \text{ cm}^3$. Bei einigen Modulen wurde ein poröses Vlies als Auslaufverteiler verwendet (siehe Abb. A3-1a), welches das Modellvolumen auf $V = 803 \text{ cm}^3$ reduzierte. Aufgrund der experimentellen Ergebnisse wurde ein neues, modifiziertes Strömungsmodul für die weiteren Arbeiten entwickelt. Der Hauptteil der Gasinjektionsexperimente wurde mit einem nach oben hin offenen Strömungsmodul (Abb. A3-1b) durchgeführt (Innenmaße: 45 x 40 x 1,2 cm). Abbildung A3-2 zeigt den modularen Aufbau der Strömungszelle.

Das Sediment kann in eine Kammer zwischen die Front- und Rückplatte eingebaut werden. Zur Abdichtung der Platten gegeneinander wurde Silikon-Folie verwendet. Die Platten sind wie beim geschlossenen Strömungsmodul gegeneinander verschraubt. Somit lassen sich die Strömungsmodule mit relativ geringem zeitlichen Aufwand wieder reinigen und neu befüllen. Neben dem Injektionspunkt

befinden sich am unteren Modul-Rand 3 Ventile, über die das Modell aufgesättigt und eine Strömung initiiert werden kann.

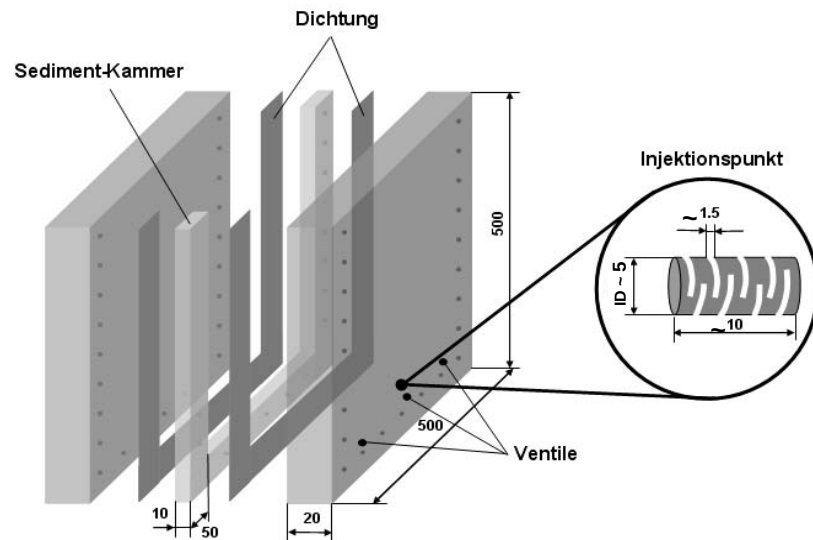
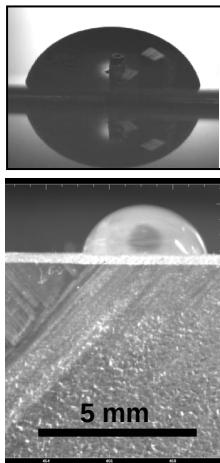


Abb. A3-2: Modularer Aufbau des offenen Strömungsmoduls.

Eigenschaften Plexiglas

Für eine quantitative Diskussion der Ergebnisse der Mehrphasenströmungsmuster ist es wichtig, die Unterschiede in den Benetzungseigenschaften von Glaskugelsediment oder natürlichem silikatischen Sand als poröses Medium und Plexiglas (Material der Strömungsmodelle) in Bezug auf die fluiden Phasen Wasser und Gas zu bestimmen. Das unter der Bezeichnung Plexiglas® bekannte Polymethylmethacrylat (PMMA) ist ein harter, glasartiger Kunststoff. PMMA hat keine Eigenfarbe, eine hohe Lichtdurchlässigkeit und ist nicht trüb. Somit eignet sich dieser Kunststoff sehr gut für optische Visualisierungsexperimente. Um zu zeigen, dass an der optischen Beobachtungsfläche (Plexiglas-Sediment) die für das jeweilige Sediment repräsentativen Gasverteilungsmuster visualisiert werden, wurde ein Experiment zur Charakterisierung der Benetzbarkeit der verwendeten Plexiglascharge durchgeführt. Die Grenzflächenspannung des Plexiglasses® (PMMA) in Bezug zur Gas- bzw. Wasserphase bestimmt die Phasenverteilung an der optischen Beobachtungsfläche. Abbildung A3-4 zeigt einen Wassertropfen auf einer Plexiglas-Oberfläche. Mit Hilfe einer axialsymmetrischen Tropfen-



Analyse wurde ein Kontaktwinkel für das System Plexiglas-Wasser-Luft von $\delta = 73^\circ$ bestimmt [University of Toronto; <http://www.mie.utoronto.ca/labs/last/kwok/drop.html>]. Weitere in der Literatur gefundene Kontaktwinkel liegen alle im Bereich von $\delta \approx 70^\circ$ -78 [z.B. van Pelt et al., 1985; Mozes et al., 1987; Holländer et al., 2003]. Demnach ist die Plexiglasoberfläche durch Wasser nur geringfügig stärker benetzbar als durch Gas.

Abb. A3-4: Wassertropfen auf Plexiglas (PMMA): oben) Computer-Foto des Profils eines Wassertropfens auf einer PMMA-Oberfläche (Quelle: <http://www.mie.utoronto.ca/labs/last/kwok/drop.html>); unten) Aufnahme eines Wassertropfens auf Plexiglas mit Detailkamera am optisch-gravimetrischen Messplatz.

Neben dem Randwinklexperiment (Abb. A3-4/unten), wurde ein Experiment zum kapillaren Aufstieg durchgeführt (Abbildung A3-5). Zwischen zwei Plexiglasplatten, welche auch für die Strömungsmodelle verwendet wurden, wurde mit Hilfe von starrer PVC-Folie ein ca. 0,2 mm breiter Kapillarraum geschaffen. Die Platten wurden in ein mit Wasser gefülltes Gefäß getaucht. Nach 24h wurde der kapillare Aufstieg im Zwischenraum der Plexiglasplatten gemessen.

Das Experiment ergab eine kapillare Steighöhe $h_{c,exp} = 20$ mm, die mit der theoretisch berechneten Steighöhe von $h_{c,theor} = 19$ mm (für $\delta = 75^\circ$; $r = 0,1$ mm; $\sigma_{w,L} = 72 \cdot 10^{-3}$ N/m) gut übereinstimmt. Wasser wirkt demnach wie erwartet schwach benetzend und Luft ist vergleichsweise zum Feststoff „Glas“ besser in der Lage den angenommenen Porenraum zu verlassen.

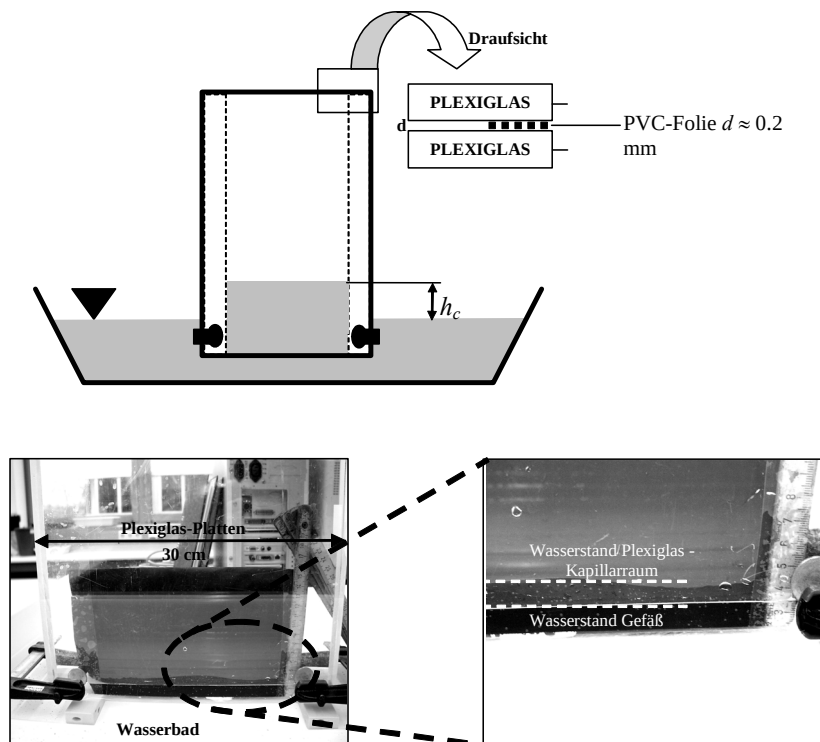


Abb. A3-5: Aufbau des Experiments zum kapillaren Aufstieg zwischen zwei Plexiglas-Platten; unten: links) Übersicht; rechts) Detailansicht kapillare Steighöhe.

Abbildung A3-6 zeigt einen schematischen Schnitt durch die Grenzfläche Plexiglas-Sedimentkörper. Diese schematische Darstellung soll verdeutlichen, dass aufgrund der Benetzungseigenschaften von Plexiglas und eines Kontaktwinkel nahe 90° keine der fluiden Phasen bevorzugt an der optischen Beobachtungsfläche abgebildet wird. Dementsprechend ist davon auszugehen, dass das Gas-Wasser-Verteilungsmuster in der Beobachtungsebene repräsentativ für das jeweilige Sediment ist.

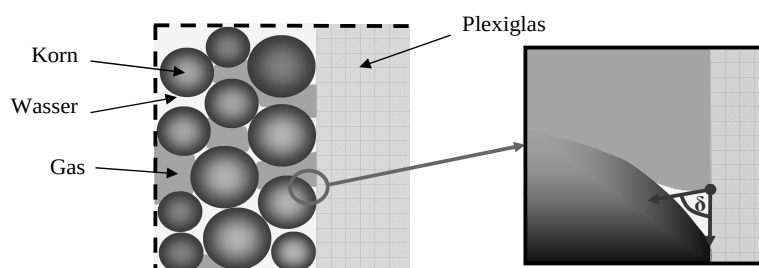
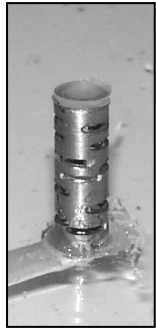


Abb. A3-6: Schematischer Schnitt durch die Grenzfläche Sediment-Plexiglas

Gas-Injektionspunkt

Abbildung A3-7 zeigt den zur Gasinjektion in das Modell verwendeten Diffuser (siehe auch Abb. A3-8). Die Diffuseröffnungen sollten so groß sein, dass am Gaseintragspunkt der sedimenttypische

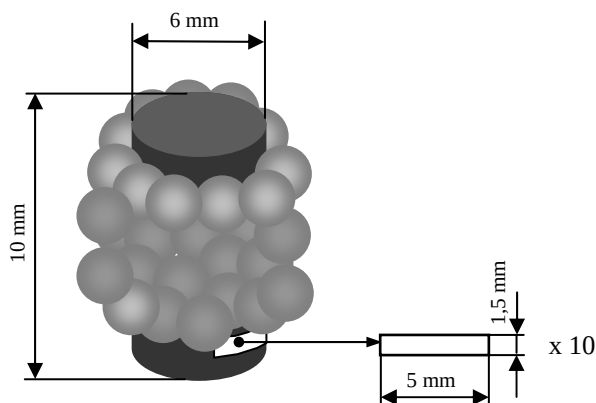


Gaseintrittsdruck ermittelt werden kann. Somit müssen die Öffnungen groß gegenüber den Porenkanal-Durchmessern des Sedimentes sein. Bei dem verwendeten Injektionspunkt handelt es sich um ein geschlitztes Messing-Rohr mit einem Innendurchmesser $ID \approx 5 \text{ mm}$ und einer Wandstärke von ca. 1 mm. Die in den Hohlzylinder eingebrachten Schlitz besitzen einen Durchmesser von ca. 1,5 mm mit einer Länge von ca. 5 mm.

Abb. A3-7: Diffuser zur Gasinjektion.

Abbildung A3-8 zeigt schematisch die Anlagerung der Körner um den Injektionspunkt. Ausgehend von der Geometrie des Diffusers bzw. der Schlitzöffnungen wurde die Fläche abgeschätzt, über die Luft ins Sediment eintreten kann. Da ca. 10 Schlitz in den Hohlzylinder eingebracht wurden, ergibt sich eine effektive Gasaustritts-Fläche $A_S \approx 75 \text{ mm}^2$.

Um ein Zusetzen der Schlitzöffnungen mit feinem Sediment zu verhindern, wurde bei den Gasinjektionsexperimenten mit einer Korngröße kleiner 1 mm der Hohlzylinder mit einem Filter-Vlies



ausgekleidet. Als Filter-Vlies wurde Farbschliff-Pad der Firma 3M™ verwendet. Dieses Vlies ist sehr flexibel, rostfrei und beständig. Es besitzt eine hohe Porosität und eignet sich aufgrund seiner faserigen Struktur sehr gut als Filter zum Schutz vor dem Austrag von Feinkornanteilen.

Abb. A3-8: Schema der Geometrie am Lufteintrittspunkt

Die in Abbildung A3-9 aufgetragenen Eichkurven erfassen die Druckverluste in der Leitung zwischen Druckmesser und Injektionspunkt für den verwendeten Versuchsaufbau. Dabei wurde die Druck-Durchfluss-Beziehung gegen Luft und für das nur mit Wasser gefüllte Modell bestimmt. Eine weitere Eichkurve wurde für den mit Vlies verfilterten Injektionspunkt aufgenommen. Der Abstand zwischen den Eichkurven für verfilterten und unverfilterten Injektionspunkt spiegelt den Unterschied in den Eintrittskapillardrücken wieder. Unverfiltert bildet der Injektionspunkt für kleine Gas-Volumenströme nahezu keinen kapillaren Widerstand. Dagegen zeigt sich bei Nutzung des Filter-Vlieses ein erhöhter Eintrittskapillardruck von ca. 5 mbar über hydrostatischem Druck bei einem Gasvolumenstrom $Q_g \sim 20 \text{ ml/min}$. Das Filter-Vlies kam nur in feinkörnigen Sedimenten mit kleinen Porenkanaldurchmessern zum Einsatz, wobei die resultierenden Lufteintrittsdrücke bei dem kleinsten

technisch realisierten Volumenstrom $Q_g = 10 \text{ ml/min}$ deutlich über 5 mbar lagen und somit sedimentcharakteristisch sind.

Q_a [ml/min]	p_c [mbar]	Q_g [ml/min]	p_c [mbar]
10	1.10	21	5.07
94	0.84	656	7.74
178	0.97	1188	11.51
262	1.10	1693	15.79
347	1.31		
430	1.53		
514	1.77		
599	2.01		
683	2.28		
768	2.54		
1324	5.27		
1848	8.49		
2340	13.20		

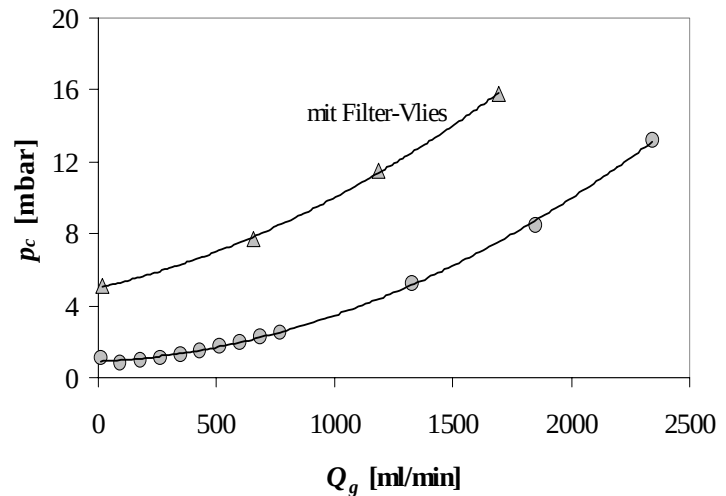


Abb. A3-9: Abhängigkeit zwischen Gas-Volumenstrom und Strömungsdruck am Injektionspunkt mit Filter-Vlies (Dreiecke) und ohne Filter (grau unterlegt, Tabelle; Kreise).

Probeneinbau und Lagerungsstruktur

Im Folgenden wird der Einbau der Sedimente in Abhängigkeit zur Bauweise der für die 2D-Visualisierungsexperimente verwendeten Strömungsmodule beschrieben. Für die unterschiedlichen Versuchsserien wurden die Module z.T. mit dem gleichen Sediment neu befüllt. Die Modulbezeichnungen sind so gewählt, dass sie jeder Modulart und Versuchsserie eindeutig zugeordnet werden können: *G*...Geschlossenes Modul; *O*...Offenes Modul; *E*...Ein-Schicht-Modul; *2mm*...Maß für Korngrößendurchmesser, *V*...Versuchsbezeichnung.

Die Bestimmung der Lagerungsdichte ρ_L erfolgte nach Gleichung A1-3 über die Trockenmasse an eingebautem Sediment bezogen auf das Gesamtvolumen, dass die Feststoffphase im Strömungsmodul nach Einbau einnahm. Nach Gleichung A1-4 wurde die Porosität des Sedimentkörpers ermittelt. Die Porositäten sind im natürlichen Sediment größer als bei Glaskugelsediment gleichen Durchmessers. Grund dafür ist die Morphologie der Körner. Im Gegensatz zu Glaskugeln mit hohem Rundungsgrad und Kugeligkeit weichen die pleistozän entstandenen Sand-Körner z.T. stark von der Kugel-Form ab und sind scharfkantig. Somit sind die Porenvolumina sind wegen der größeren Abstützmöglichkeiten im dreidimensionalen Raum im natürlichen Sediment größer [Hartge, 1978]. Die Permeabilität der Sedimente wurde nach Gleichung A1-21 abgeschätzt.

Die Strömungsmodule wurden zum Teil mehrfach befüllt. Die Aufbaudaten der Strömungsmodule sind in Tabellen zusammengefasst.

Geschlossenes Strömungsmodul (20 x 37 x 1,1 cm)

Abbildung A3-10 zeigt beispielhaft die Befüllung der geschlossenen Strömungsmodule. Das Sediment wurde trocken in die waagrecht liegende Zelle eingeschichtet und die Zelle danach verschlossen. Durch Einrütteln und Klopfen wurde das Sediment weiter verdichtet. Über eine Schrägbohrung am Rand der Strömungszelle konnte mit Hilfe eines Trichters weiteres Sediment nachgefüllt werden. Durch die zusätzliche Verdichtung des trockenen Sedimentes wurden noch etwa 5 % Sediment bezogen auf das Gesamtvolumen nachgefüllt.

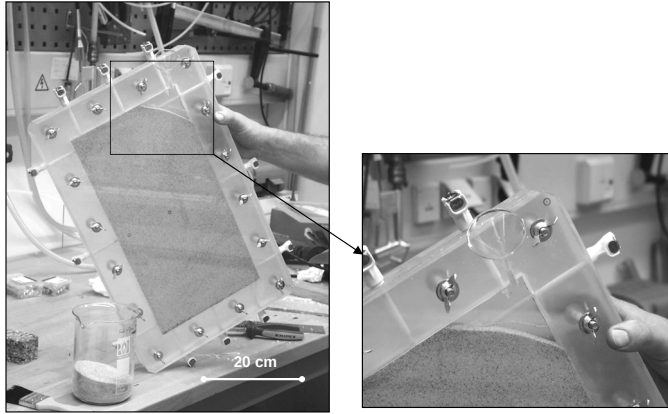


Abb. A3-10: Befüllung des geschlossenen Strömungsmoduls

Tabelle A3-1 fasst die Aufbaudaten der geschlossenen Strömungsmodule zusammen.

Tab. A3-1: Aufbaudaten der geschlossenen Strömungsmodule

Modul	d [mm]	$d_{k,min}^*$ [mm]	m_{Tr} [g]	V_{Modul} [cm ³]	ρ_L [g/cm ³]	φ [-]	n^+ [-]	V_P [cm ³]	k^s [m ²]
G1_4mmGK	4	1,013	2490,1	1533	1,62	0,36	9,72	548,77	$1,01 \cdot 10^{-8}$
G2_4mmGK	4	1,013	2523,9	1554	1,62	0,36	9,72	556,41	$1,01 \cdot 10^{-8}$
G1_2mmGK	2-2,2	0,487	1310,98	814	1,61	0,34	10,23	276,71	$2,21 \cdot 10^{-9}$
G2_2mmGK	2-2,2	0,532	1247,05	803	1,55	0,36	9,72	291,91	$2,79 \cdot 10^{-9}$
G3_2mmGK	2-2,2	0,555	1236,28	803	1,54	0,37	9,46	296,33	$3,13 \cdot 10^{-9}$
G4_2mmGK	2-2,2	0,532	1261,36	814	1,55	0,36	9,72	297,05	$2,79 \cdot 10^{-9}$
G1_1mmGK	0,75-1	0,221	1263,18	803	1,57	0,36	9,72	287,42	$4,84 \cdot 10^{-10}$
G1_0.5mmGK	0,36-0,5	0,109	1290	814	1,58	0,36	9,72	289,61	$1,17 \cdot 10^{-10}$
G2_0.5mmGK	0,36-0,5	0,114	1241,66	803	1,55	0,37	9,46	298,26	$1,31 \cdot 10^{-10}$
G3_0.5mmGK	0,36-0,5	0,109	1257,48	803	1,57	0,36	9,72	291,83	$1,17 \cdot 10^{-10}$

m_{Tr} ...Trockenmasse Sediment; V_{Modul} ...Volumen Sedimentkörper; V_P ...Porenvolumen Sedimentkörper; k^s ...nach KOZENY-CARMAN; *...nach Gleichung A1-10; +...Koordinationszahl nach Gleichung A1-5.

Offenes Strömungsmodul (40 x 45 x 1,2 cm)

Der Einbau der Sedimente in diese Module erfolgte bis zu einer Höhe von ca. 35 cm vom Boden. Der Einbau der homogenen Glaskugelsedimente (0,25-0,5 mm; 0,75-1 mm; 2-2,2 mm; 4 mm) und des natürlichen Ein-Kornsandes (1,6-2 mm) erfolgte trocken. Dabei wurden die Körner in ca. 2 cm mächtigen Lagen in das Modul gefüllt und nach jedem Einfüllvorgang durch Vibration des Modells mittels eines Gummihammers eingerüttelt und verdichtet. Das Glaskugel-Mischsediment (0,25-0,5 mm) sowie die natürlichen Sande wurden feucht eingebaut. Dabei wurde das angefeuchtete Sediment in ca. 2 cm mächtigen Lagen in das Strömungsmodul gefüllt und mit einem Stampfer verdichtet. Es wurde beobachtet, dass es beim trockenen Einbau oder einer Befüllung mit Wasserüberstand zu einer gravitativ bedingten Separierung des Kornverbandes kommt. Eine Gradierung der Körner erzeugt sehr inhomogene Struktureinheiten unterschiedlicher Permeabilität. Um das Aufschwimmen von Körnern im oberen Modellbereich zu verhindern, wurde zunächst eine ca. 5 cm mächtige Lage an größeren Glaskugeln ($d = 4$ mm) als Stüttschicht aufgebracht (Abb. A3-11links). Während der Gasinjektionsexperimente zeigte sich aber, dass bei höheren Gasinjektionsraten eine Umordnung des Kornverbandes in den oberen 1-2 cm nicht verhindert werden konnte. Um stabile Lagerungsverhältnisse zu erreichen, wurde für alle weiteren Experimente eine ca. 6 cm-mächtige Stüttschicht aus 3 mm-Bleikugeln aufgebracht (Abb. A3-11rechts). Bleikugeln mit einer ca. 5-mal höheren Korndichte als Quarzglas verhinderten ein Aufschwimmen und Aufbrechen des Kornverbandes. Um zu gewährleisten, dass der lithostatische Druck gleichmäßig auf den unterlagernden Sedimentkörper übertragen wird, befand sich zwischen Bleischicht und Sedimentkörper ein Netz aus PVC mit einer Maschenweite von ca. 1 mm. Beim Sediment mit einem Korngrößendurchmesser $< 0,75$ mm wurde poröses Vlies zwischen Bleischicht und Sedimentkörper eingefügt.

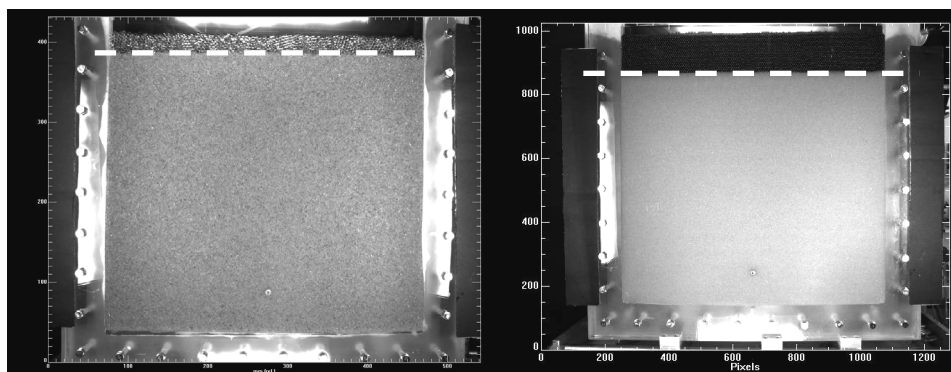


Abb. A3-11: Aufbau der offenen Strömungsmodule: links) Stüttschicht Glaskugeln; rechts) Stüttschicht Blei

In Tabelle A3-2 sind die Aufbaudaten der offenen Module zusammengestellt. Das Volumen des Sedimentkörpers V_{Modul} wurde aus Einbauhöhe und Modellbreite/-tiefe berechnet.

Tab. A3-2: Aufbaudaten der offenen Strömungsmodule

Modul	d [mm]	$d_{k,min}^*$ [mm]	m_{Tr} [g]	V_{Modul} [cm ³]	ρ_L [g/cm ³]	φ [-]	n^+ [-]	V_p [cm ³]	k^s [m ²]
O1_2mmGK	2-2,2	0,532	2609,76	1680	1,55	0,36	9,72	610,43	$2,79 \cdot 10^{-9}$
O1_1mmGK	0,75-1	0,241	2553,83	1680	1,52	0,38	9,18	637,62	$6,07 \cdot 10^{-10}$
O2_1mmGK	0,75-1	0,252	2529,62	1680	1,51	0,39	8,90	647,50	$6,78 \cdot 10^{-10}$
O1_0.5mmGK	0,25-0,50	0,095	2632,81	1680	1,57	0,36	9,72	609,75	$8,90 \cdot 10^{-11}$
O2_0.5mmGK	0,25-0,50	0,095	2627,42	1680	1,56	0,36	9,72	611,94	$8,90 \cdot 10^{-11}$
O3_0.5mmGK	0,25-0,50	0,108	2510,27	1680	1,49	0,39	8,90	659,57	$1,25 \cdot 10^{-10}$
O4_0.5mmGK	0,25-0,50	0,103	2579,56	1680	1,54	0,38	9,18	631,40	$1,11 \cdot 10^{-10}$
O1_MischGK	0,25-2,2	0,193 [#]	2562,93	1584	1,62	0,34	10,23	537,91	$3,62 \cdot 10^{-10}$
O1_Blei	3	0,844	11035	1608	6,86	0,39	8,90	621,85	$7,97 \cdot 10^{-9}$
O1_2mmSand	1,6-2	0,636	2475,05	1680	1,47	0,44	7,33	746,02	$4,89 \cdot 10^{-9}$
O1_Grobsand	0,63-2	0,397 [#]	2576,32	1656	1,56	0,41	8,30	678,96	$1,86 \cdot 10^{-9}$
O1_Mittelsand	0,2-0,63	0,082 [#]	2642,82	1632	1,62	0,39	8,90	636,48	$7,45 \cdot 10^{-11}$

m_{Tr} ...Trockenmasse Sediment; V_{Modul} ...Volumen Sedimentkörper (ohne Stützsicht); V_p ...Porenvolumen Sedimentkörper; k^s ...nach KOZENY-CARMAN; *...nach Gleichung A1-10; #...nach Gleichung A1-16; +...Koordinationszahl nach Gleichung A1-5.

Protokolle Einbaudaten der Strömungsmodule

Glaskugeln 0,25-0,5 mm

Einbaudatum	01.06.2002	26.10.2002	06.03.2003	20.10.2003	10.11.2003	12.12.2003	08.03.2004
Korndurchmesser d [mm]	0,36-0,50	0,36-0,50	0,36-0,50	0,25-0,5	0,25 - 0,5	0,25 - 0,5	0,25 - 0,5
Modul	G1_0.5mmGK	G2_0.5mmGK	G3_0.5mmGK	O1_0.5mmGK	O2_0.5mmGK	O3_0.5mmGK	O4_0.5mmGK
Modell leer [g]	8466	8475	8517.8				
Modell gefüllt [g]	9752	9716.66	9773.8				
Trockenmasse Sediment [g]	1286	1241.66	1256				
Sediment vor Einbau [g]	3305	2562.83	1870.02	3723.13	3920.68	4068.73	4507.03
Sediment nach Einbau [g]	2015	1321.17	612.54	1090.32	1293.26	1558.46	1927.47
Trockenmasse Sediment [g]	1290	1241.66	1257.48	2632.81	2627.42	2510.27	2579.56
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	814	803	803	1680	1680	1680	1680
Porenvolumen [cm³]	289.61	298.26	291.83	609.75	611.94	659.57	631.40
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.58	1.55	1.57	1.57	1.56	1.49	1.54
Feststoffdichte [g/cm³]	2.46	2.46	2.46	2.46	2.46	2.46	2.46
Porosität [%]	0.36	0.37	0.36	0.36	0.36	0.39	0.38
				4 mm Stützsicht			
Sediment vor Einbau [g]				603.97			
Sediment nach Einbau [g]				242.89			
Trockenmasse Sediment [g]				361.08			
Trockenmasse Sediment [g]							Stützsicht Blei
							1851.68
Volumen Zelle [cm³]							264
Porenvolumen [cm³]							98.52
Lagerungsdichte [g/cm³]							7.01
Feststoffdichte [g/cm³]							11.19
Porosität [%]							0.37

Glaskugeln 0,75-1 mm

Einbaudatum	06.03.2003	15.07.2003	14.11.2003
Korndurchmesser d [mm]	0,75 - 1	0,75 - 1	0,75 - 1
Modul	G1_1mmGK	O1_1mmGK	O2_1mmGK
Modell leer [g]	8326.33		
Modell gefüllt [g]	9589.29		
Trockenmasse Sediment [g]	1262.96		
Sediment vor Einbau [g]	2447.08	4510.61	3614.69
Sediment nach Einbau [g]	1183.9	1956.78	1085.07
Trockenmasse Sediment [g]	1263.18	2553.83	2529.62
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	803	1680	1680
Porenvolumen [cm³]	287.42	637.62	647.50
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.57	1.52	1.51
Feststoffdichte [g/cm³]	2.45	2.45	2.45
Porosität [%]	0.36	0.380	0.39
		Stützsicht 4 mm GK	Stützsicht Blei
Trockenmasse Sediment [g]		308.16	2000
Einbau-Volumen Zelle [cm³]			288
Porenvolumen [cm³]			109.27
Lagerungsdichte [g/cm³]			6.94
Feststoffdichte [g/cm³]			11.19
Porosität [%]			0.38

Glaskugeln 2mm

Einbaudatum	14.02.2002	06.03.2003	19.05.2003	11.06.2003	15.07.2003
Korndurchmesser d [mm]	2-2,2	2-2,2	2-2,2	2-2,2	2-2,2
Modul	G1_2mmGk	G2_2mmGk	G3_2mmGk	G4_2mmGk	O1_2mmGk
Modell leer [g]	8215.27	8302.35			
Modell gefüllt [g]		9552.46			
Trockenmasse Sediment [g]		1250.11	0		
Sediment vor Einbau [g]	3438.06	3056.23	2692.66		3765.09
Sediment nach Einbau [g]	2127.08	1809.18	1456.38		1155.33
Trockenmasse Sediment [g]	1310.98	1247.05	1236.28	1261.36	2609.76
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	814	803	803	814	1680
Porenvolumen [cm³]	276.71	291.91	296.33	297.05	610.43
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.61	1.55	1.54	1.55	1.55
Feststoffdichte [g/cm³]	2.44	2.44	2.44	2.44	2.44
Porosität [%]	0.34	0.36	0.37	0.36	0.36
					Stützschiicht 4 mm GK
Sediment vor Einbau [g]					559.88
Sediment nach Einbau [g]					393.03
Trockenmasse Sediment [g]					166.85

Glaskugeln 4 mm

Einbaudatum	15.05.2003	11.06.2003
Korndurchmesser d [mm]	4	4
Modul	G1_4mm	G2_4mm
Sediment vor Einbau [g]	3660.25	
Sediment nach Einbau [g]	1170.15	
Trockenmasse Sediment [g]	2490.1	2523.9
Volumen Zelle [cm³]	1533	1554
Porenvolumen [cm³]	548.77	556.41
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.62	1.62
Feststoffdichte [g/cm³]	2.53	2.53
Porosität [%]	0.36	0.36

Bleikugeln 3 mm

Einbaudatum	13.01.2004
Korndurchmesser d [mm]	2
Modul	O1_Blei
Sediment vor Einbau [g]	11727
Sediment nach Einbau [g]	692
Trockenmasse Sediment [g]	11035
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	1608
Porenvolumen [cm³]	621.85
Lagerungsdichte [g/cm³]	6.86
Feststoffdichte [g/cm³]	11.19
Porosität [%]	0.39

heterodisperse Mischung Glaskugeln 0,25-2,2 mm

Einbaudatum	07.01.2004
Korndurchmesser d [mm]	0,25-2,1
Modul	O1_MischGK
Sediment vor Einbau [g]	4551.61
Sediment nach Einbau [g]	1988.68
Trockenmasse Sediment [g]	2562.93
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	1584
Porenvolumen [cm³]	537.91
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.62
Feststoffdichte [g/cm³]	2.45
Porosität [%]	0.34
Stützschiicht Blei [g]	2000
Volumen Zelle [cm³]	288
Porenvolumen [cm³]	109.27
Lagerungsdichte [g/cm³]	6.94
Feststoffdichte [g/cm³]	11.19
Porosität [%]	0.38

Einkornsand 1,6-2 mm

Einbaudatum	28.01.2004	26.05.2005	
Korndurchmesser d [mm]	1,6-2	1,6-2	
Modul	O1_2mmSand	O2_2mmSand	
Sediment vor Einbau [g]	2919.71	2898.75	754.17
Sediment nach Einbau [g]	444.66	404.6	638.37
Trockenmasse Sediment [g]	2475.05	2494.15	115.8
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	1680	1680	
Porenvolumen [cm³]	746.02	695.11	
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.47	1.55	
Feststoffdichte [g/cm³]	2.65	2.65	
Porosität [%]	0.44	0.41	
Stüttschicht Blei [g]	2004.68	1981.84	
Volumen Zelle [cm³]	288	288	
Porenvolumen [cm³]	108.85	110.89	
Lagerungsdichte [g/cm³]	6.96	6.88	
Feststoffdichte [g/cm³]	11.19	11.19	
Porosität [%]	0.38	0.39	

Mittelsand 0,1-0,7 mm

Einbaudatum	16.04.2004
Korndurchmesser d [mm]	0,1-1
Modul	O1_Mittelsand
Sediment vor Einbau [g]	4315.47
Sediment nach Einbau [g]	1672.65
Trockenmasse Sediment [g]	2642.82
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	1632
Porenvolumen [cm³]	634.71
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.62
Feststoffdichte [g/cm³]	2.65
Porosität [%]	0.39
Stüttschicht Blei [g]	1779.37
Volumen Zelle [cm³]	264
Porenvolumen [cm³]	104.99
Lagerungsdichte [g/cm³]	6.74
Feststoffdichte [g/cm³]	11.19
Porosität [%]	0.40

Grobsand 0,5-2 mm

Einbaudatum	29.03.2004
Korndurchmesser d [mm]	0,5-2,1
Modul	O1_Grobsand
Sediment vor Einbau [g]	4512.23
Sediment nach Einbau [g]	1935.91
Trockenmasse Sediment [g]	2576.32
Einbau-Volumen Zelle [cm³]	1656
Porenvolumen [cm³]	683.80
Lagerungsdichte [g/cm³]	1.56
Feststoffdichte [g/cm³]	2.65
Porosität [%]	0.41
Stüttschicht Blei [g]	1981.75
Volumen Zelle [cm³]	288
Porenvolumen [cm³]	110.90
Lagerungsdichte [g/cm³]	6.88
Feststoffdichte [g/cm³]	11.19
Porosität [%]	0.39

Literatur

- Brauns, J. und Wehrle, K., 1989, Untersuchung der Drucklufteinblasung in die gesättigte Bodenzone (In-situ-Strippen)-Modellversuche. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben (AZ: 12/0415.1) der Landesanstalt für Umweltschutz B.-W.; Karlsruhe, 56.
- Brooks, M. C., Wise, W. R., und Annable, M. D., 1999. Fundamental changes in situ air sparging flow patterns. *Ground Water Monitoring and Remediation*, 19 (2): 105-113.
- Hartge, K. H., 1978. Einführung in die Bodenphysik. Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 0-364 pp.
- Holländer, A., Klein, W., und Keusgen, M., 2003. Polymeroberflächen für biomedizinische Anwendungen. *Biospektrum*, 9 (1): 39-41.
- Ji, W., Dahmani, A., Ahlfeld, D. P., Lin, J. D., und Hill, E., 1993. Laboratory Study of Air Sparging: Air Flow Visualization. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 13 (4): 115-126.
- Mozes, N., Marchal, F., Hermesse, M. P., Van Haecht, J. L., Reuliaux, L., Leonard, A. J., und Rouxhet, P. G., 1987. Immobilization of Microorganisms by Adhesion: Interplay of Electrostatic and Nonelectrostatic Interactions. *Biotechnology and Bioengineering*, 30 439-450.
- Peterson, J. W., Lepczyk, P. A., und Lake, K. L., 1999. Effect of sediment size on area of influence during groundwater remediation by air sparging: A laboratory approach. *Environmental Geology*, 38 (1): 1-6.
- Peterson, J. W., Murray, K. S., Tulu, Y. I., Peuler, B. D., und Wilkens, D. A., 2001. Airflow geometry in air sparging of fine-grained sands. *Hydrogeology Journal*, 9 (2): 168-176.
- van Pelt, A. W. J., Weerkamp, A. H., Uyen, M. H. W. J. C., Busscher, H. J., de Jong, H. P., und Arends, J., 1985. Adhesion of *Streptococcus sanguis* CH3 to Polymers with Different Surface free energies. *Applied and Environmental Microbiology*, 49 (5): 1270-1275.

A4 Mess- und Regeltechnik

Tab. A4-1: Technische Daten der Mess- und Regeltechnik

Messparameter	Gerät	Technische Daten
Volumenstrom Gas Q_{Gas}	MFC 8712 (FA. BÜRKERT GMBH & CO. KG)	$Q_{Gas} = 0,01 \dots 5 \text{ L/min}$, $\pm 0,5 \%$ vom Messwert
Gaseintrittsdruck p_E	HCXM100D6V HCXM350D6V (SENSORTECHNICS GMBH)	$p = 0 \dots 100 \text{ mbar} \pm 0,1 \%$ vom Messwert $p = 0 \dots 350 \text{ mbar} \pm 0,1 \%$ vom Messwert
Volumenstrom Überlaufsystem	MCP-Standard/IPC-4-Kanal (ISMATEC)	$Q_{W,max} \sim 0 \dots 230 \text{ ml/min-pro Kanal}$
Wasservolumen V_w	LP 6200 S Master ^{pro} (SARTORIUS GMBH)	$0 \dots 6200 \text{ g} \pm 0,01 \text{ g}$

Durchflussmessung Gas

Die Regelung des Gas-Volumenstromes erfolgte mit einem Durchflussmessgerät (MFC) der Firma BÜRKERT GMBH UND CO. KG (MFC 8712) (Abb. III.4-1a). Das Gerät regelt einen vorgegebenen Durchfluss-Sollwert unabhängig von Störgrößen wie Druckschwankungen oder zeitlich veränderlichen Strömungswiderständen aus. Das thermische Messprinzip garantiert, dass der MFC weitgehend unabhängig von Druck- und Temperaturschwankungen den jeweiligen Massendurchfluss ausregelt. Mit dem verwendeten MFC-Modell 8712 lässt sich ein Gasfluss von 0,01-5 L/min realisieren. Der Durchflusscontroller wurde für das Betriebsmedium Luft werksseitig kalibriert (Abb. III.4-2). Abbildung III.4-1b zeigt die Steuereinheit des MFC. Die Versorgungsspannung beträgt 24 V. Die Sollwert-Vorgabe zur Ausregelung der Gas-Volumenströme erfolgte über eine selbst gefertigte Steuereinheit (Steuerspannung 0-10 V). Mit dem Programm *MassFlowCommunicator* (Firma BÜRKERT GMBH UND CO. KG) wurden die Steuerparameter ausgelesen und gespeichert. Das Programm arbeitet auf der Windows-Plattform.

Die Kommunikation zum Gerät wird über eine RS232-Schnittstelle realisiert.

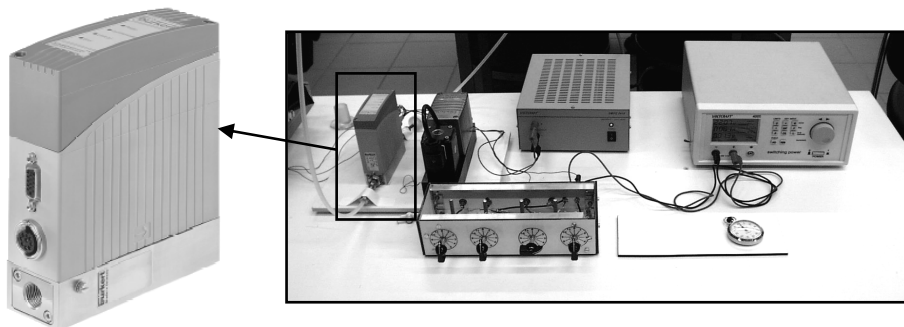


Abb. A4-1: a) Gas-Durchflussmessgerät MFC 8712; b) Steuereinheit zur Ausregelung des MFC.

Kalibrierprotokoll Mass Flow Controller Typ 8712

Geräte-Ident-Nr.: 161173
 Nenndurchfluß: 5 l/min Sauerstoff (O₂)
 Eingangssignal: 4.. 20 mA
 Ausgangssignal: 4.. 20 mA
 Kalibriernummer: 000180
 Seriennummer: 000180
 Kalibrierstandard: TSI 4100
 Meßbereich 0.. 20,00 SLPM
 Genauigkeit +/- 0,5 % v.M. (Luft)
 Kalibriermedium: Luft
 Eingangsdruck: 3.00 bar (relativ)
 dichtgehaltener Druck: 4.00 bar (relativ)
 Temperatur: 23.0 °C
 Einbaulage: Horizontal stehend

Prüfpunkte:	Istwert [%]	Durchfluß Referenz [l/min]	Abweichung [% v.E.]
	100	5.00	0.06
	75	3.75	0.04
	50	2.50	-0.06
	25	1.25	0.02
	0	0.00	0.00

Kalibrierdatum: 24.10.02

Prüfer:

J. Gunnerch

Diese Daten beziehen sich auf den Kalibrierzeitpunkt und die dabei vorliegenden oben genannten Bedingungen.

Abb. A4-2: Kalibrierprotokoll Massflow-Controller MFC 8712.

Zur Überprüfung der Dichtigkeit des experimentellen Aufbaus hinsichtlich der Gasphase (Luft) als fluides Medium wurde der über den Mass-Flow-Controller (MFC) vorgegebene Gasvolumenstrom ($Q_{g,in}$) mit dem Gasvolumenstrom am Modellausgang ($Q_{g,out}$) verglichen. Der Volumenstrom $Q_{g,out}$ wurde mit einem gekoppelten Flaschensystem (siehe Veröffentlichung 2) über Wägung des Durchsatzes an Gasvolumen V_g pro Zeit ermittelt. Abbildung A4-3 zeigt den zeitlichen Verlauf des Gasvolumenstromes $Q_{g,in}$ sowie die zeitliche Entwicklung des Gasvolumens, dass durch das System strömt beispielhaft für eine Versuchsserie. Über den Anstieg der Geraden innerhalb des jeweiligen Volumenstrombereiches erhält man am Modellausgang $Q_{g,out} \approx 0,2$ bzw. $0,7$ ml/s. Der Vergleich zum vorgegebenen Volumenstrom $Q_{g,in} \approx 0,2$ bzw. $0,7$ ml/s zeigt, dass der Versuchsaufbau dicht ist und der gesamte vorgegebene Gasvolumenstrom durchs Modell geleitet wird. Da das Wägesystem mit dem verwendeten Aufbau nur für kleine Volumenströme geeignet war, wurden der Grossteil der Gasinjektions-Experimente mit offenen Strömungsmodulen durchgeführt, bei denen keine Bilanzierung des Ausgangsvolumenstromes der Luft vorgenommen werden konnte.

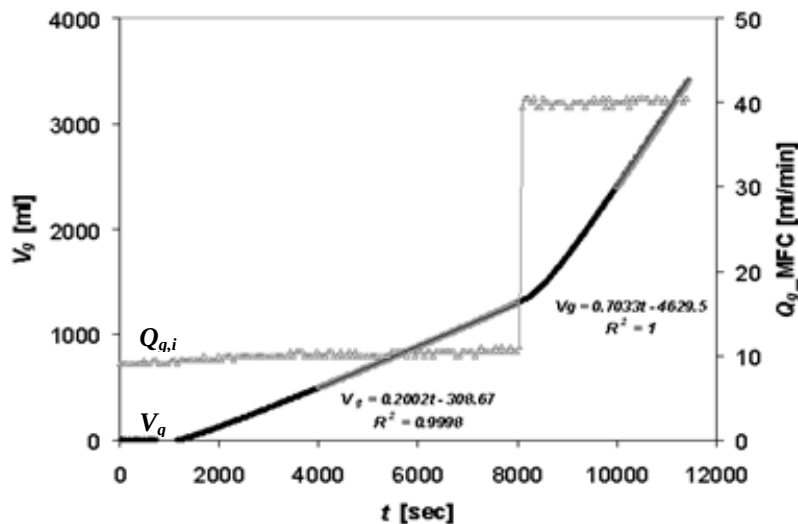


Abb. A4-3: Vergleich Luft-Volumenstrom MFC (grau) mit Luft-Volumenstrom am Modell-Ablauf über Wägung bestimmt (= Anstieg der gefitteten Geraden) (Exp. G2_2mmGK_V22).

Druckmessung

Der Lufteintrittsdruck wurde am Eingang des Strömungs-Moduls mit Differenzdruckmessern der Firma SENSORTECHNICS GmbH (HCM350D6V und HCM100D6V) bestimmt (A4-4a). Als Differenzdruck diente der Luftdruck, der parallel erfasst wurde. Die Ausgabe der Messwerte erfolgte über Spannungswerte zwischen 0...5 V. Die Werte wurden mit Hilfe eines 8-Kanal-Analog-Eingangsmoduls (NuDAM 6017) ausgelesen und über ein RS232-Kommunikationsmodul (NuDAM 6520) mit dem PC gekoppelt und in die Auslese-Software *DASYLab* eingebunden (Abb. A4-4b).

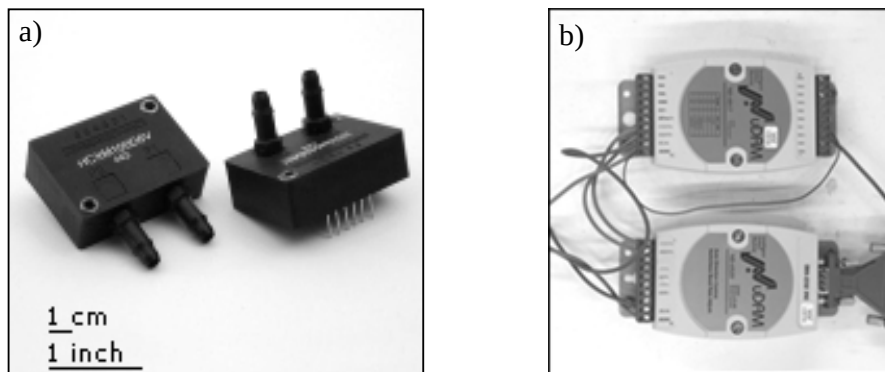
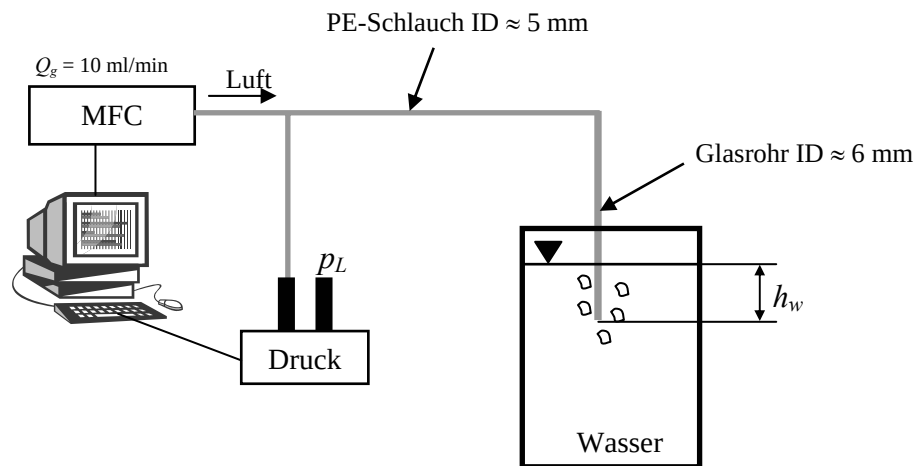
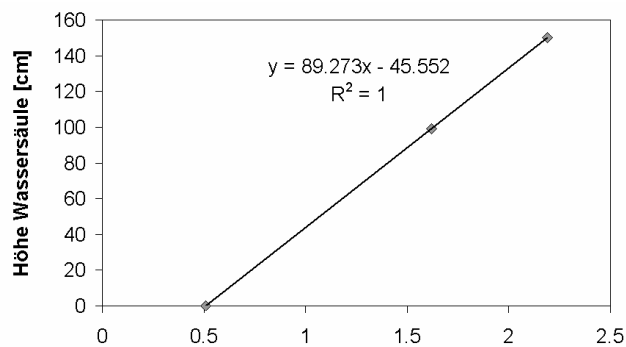
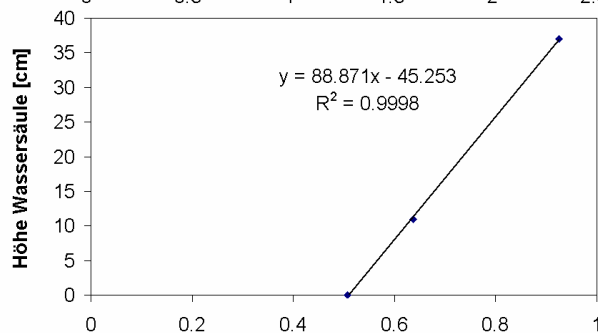


Abb. A4-4: a) Differenzdruckmesser; b) NuDAM-Module zum Auslesen/Übertragen der Messwerte in *DASYLab*.

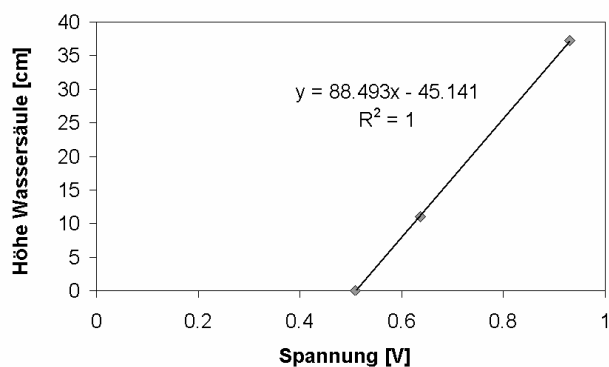
Vor Messbeginn wurde der Drucksensor kalibriert. Die Kalibration wurde im Laufe der Versuchsserien mehrfach überprüft und aktualisiert. Die Kalibrierfunktion wurde direkt in die Steuersoftware zum Auslesen der Daten der Druckmessung implementiert.

Aufbau Kalibration Drucksensoren:**Kalibrierfunktionen:**

15.04.2003		$T \approx 24^\circ\text{C}$
Spannung [V]	Höhe WS [cm]	
0.5100	0	
1.6200	99	
2.1900	150	



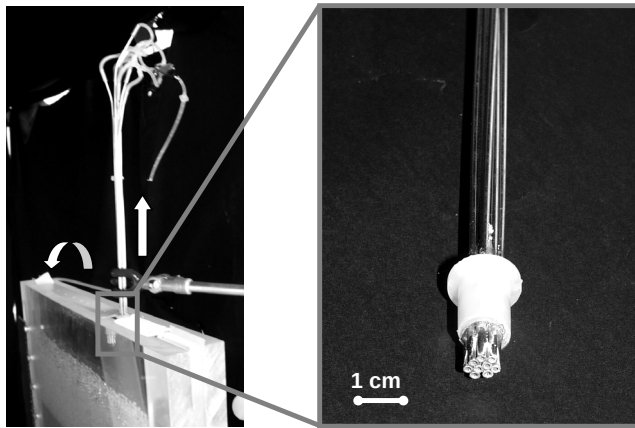
18.07.2003		$T \approx 28^\circ\text{C}$
Spannung [V]	Höhe WS [cm]	
0.5069	0	
0.6363	11	
0.9245	37	



14.11.2003		$T \approx 22^\circ\text{C}$
Spannung [V]	Höhe WS [cm]	
0.5090	0	
0.6360	11	
0.9300	37.2	

Überlaufsystem

Um den Wasserspiegel, d.h. die hydrostatische Druckhöhe während der Experimente konstant zu halten, wurde am Modellausgang der offenen 2D-Module ein Überlaufsystem installiert (Abb. A4-5a). Wasser wird am Modellausgang abgesaugt über ein Bündel von 10 Edelstahlkapillaren mit einem



Innendurchmesser von ca. 2 mm (Abb. A4-5b).

Mit Hilfe einer Peristaltik-Schlauchpumpe wird der Wasserstand im Modell durch Absaugen über die Kapillaren und Rückführung des Wassers über einen Schlauch (ISMATECH MPC) konstant gehalten.

Abb. A4-5: Überlaufsystem a) installiert am Tank; b) Detail Kapillaren.

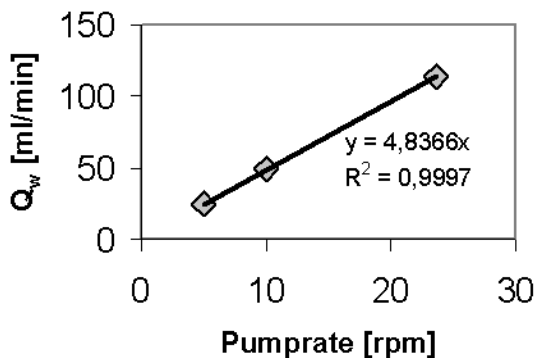
Kalibration Pumpe Ablauf-zur-Waage:

- 4-Kanäle mit Tygon-Schlauch, ID 3,17 mm
- Pumprate Experimente 23,6 = 114 ml/min

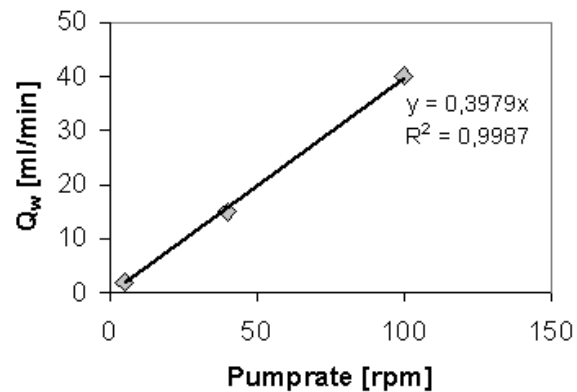
Kalibration Pumpe Zulauf-von-der-Waage:

- 1-Kanal mit Tygon-Schlauch, ID 3,17 mm
- Pumprate Experimente 30.00 = 12 ml/min und 40.00 = 15 ml/min

Kalibration IPC-Pumpe 4-Kanäle



Kalibration MCP-Pumpe 1-Kanal



Verdunstungskorrektur

Um zu quantifizieren, welches Volumen an Wasser durch Verdunstung verloren geht, wurde vor den jeweiligen Versuchen unter den gegebenen Labor-Temperaturbedingungen eine Verdunstungsfunktion aufgenommen. Dabei wurde das Überlaufsystem im Kreislauf geführt, ohne das Gas oder Wasser zusätzlich in das Modell gefördert wurden. Abbildung A4-6 zeigt die Verdunstungsfunktion bei einer Raumtemperatur von $T = 22\text{ °C}$ am Beispiel der Versuchsserie *Verd_10102003*. Der Wasser-Verlust durch Verdunstung ist mit einer Rate von ca. $4 \cdot 10^{-4}$ ml/s sehr klein und hat somit für die Versuchslaufzeiten von max. ~ 5 h einen vernachlässigbar kleinen Einfluss auf die Massenbilanz durch Wägung.

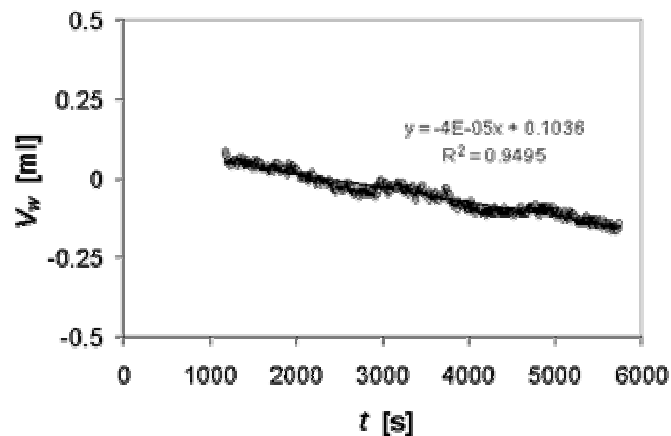
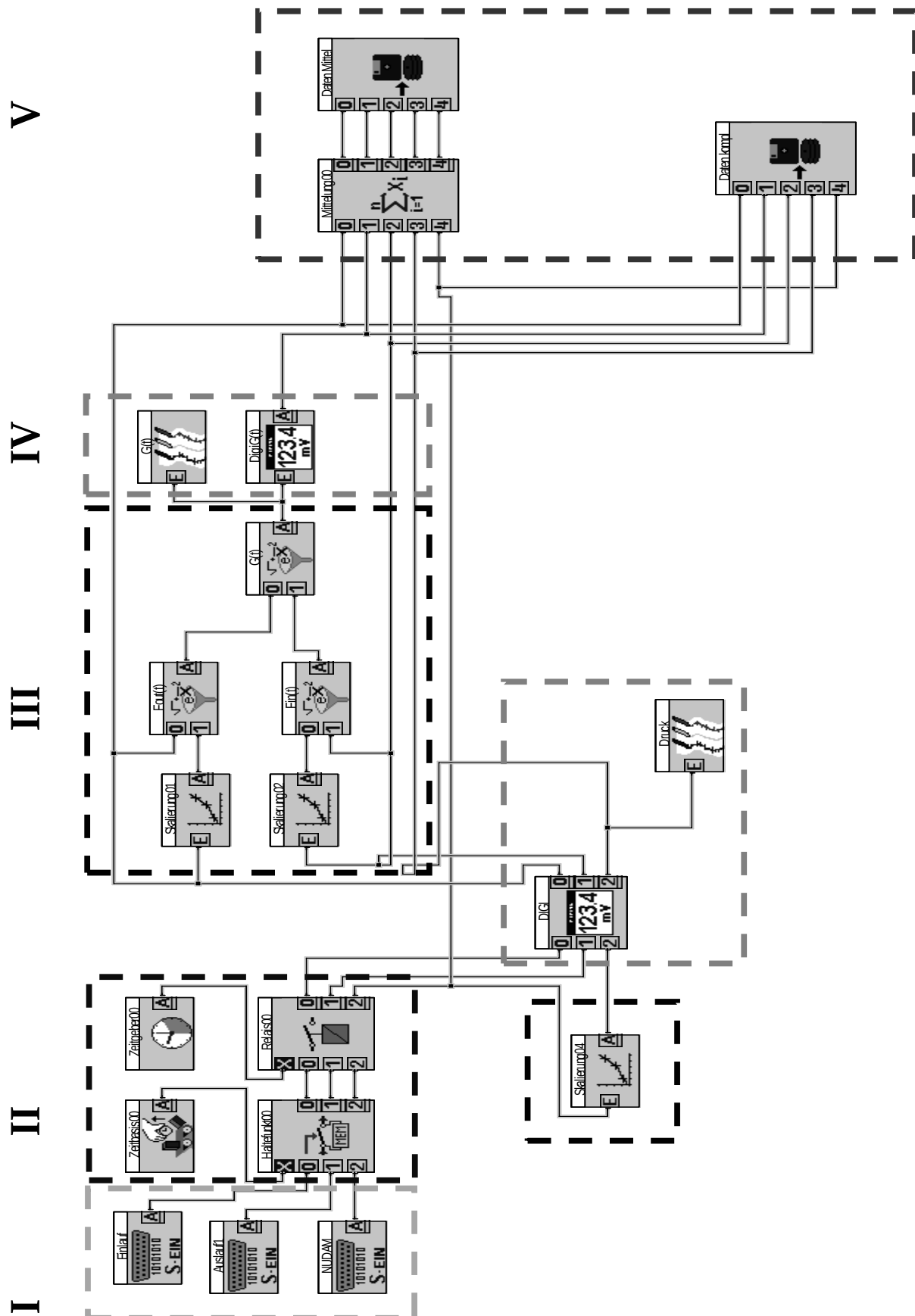


Abb. A4-6: Volumenverlust an Wasser V_w pro Zeiteinheit t für verwendeten Versuchsaufbau mit offenen Strömungsmodulen.

A.5 Messdatenerfassung DasyLAB

Schaltbild



Beschreibung der Module und Einstellungen

I. - Kommunikation zur Messtechnik

Modulname: Einlauf

Modultyp: Ein/Ausgänge; RS232 Eingang

Modulfunktion: Messsignal-Eingang von Waage 1

Einstellungen:



Optionen: Datenanforderung notwendig *Nein*
Ein Messwert pro *Kanalliste*

Modulname: Auslauf1

Modultyp: Ein/Ausgänge; RS232 Eingang

Modulfunktion: Messsignal-Eingang von Waage 2

Einstellungen:



Optionen: Datenanforderung notwendig *Nein*
Ein Messwert pro *Kanalliste*

Modulname: NUDAM

Modultyp: Ein/Ausgänge; RS232 Eingang

Modulfunktion: Messsignal-Eingang von NUDAM-Modulen (Druckmessung)

Einstellungen:



Optionen: Datenanforderung notwendig *Ja (1,00sec)*;
Ein Messwert pro *Kanal* ;
Anforderung wiederholen *Ja*
Bei Timeout neu aufsetzen (*1,00 sec*)

II. - Zeit-Synchronisation der Eingangsdaten

Modulname: Zeitbasis00
Modultyp: spezial; Zeitbasis
Modulfunktion: Erzeugung globaler Zeitbasis; Zeitinformation wird aus Abtastrate abgeleitet, die in Synchronisationsbasis eingestellt wurde

Zeitgeber00
 Steuern/Regeln; Zeitgeber
 generiert Signal mit separat einstellbaren Zeiten

Einstellungen:

Modulname: Haltefunkt00
Modultyp: Steuern/Regeln; Haltefunktion
Modulfunktion: Synchronisation der Werte der Eingangskanäle auf Datenrate des Steuer-Eingangs

Modulname: Relais00
Modultyp: Steuern/Regeln; Haltefunktion
Modulfunktion: Synchronisation der Werte der Eingangskanäle auf Datenrate des Steuer-Eingangs

IIIa/b - Skalierung/Kalibration der Eingangsdaten

Modulname: Skalierung01
Modultyp: Skalierung; Nullpunktabgleich
Modulfunktion: Die hereinkommenden Daten werden um einen einstellbaren Nullpunkt additiv korrigiert. Der Nullpunkt wird dabei aus den Daten selbst gewonnen
Einstellungen: Offset in globale Variable 1 speichern; Ersten Datenblock für Nullpunktabgleich verwenden

Modulname: Skalierung02
Modultyp: Skalierung; Nullpunktabgleich
Modulfunktion: Die hereinkommenden Daten werden um einen einstellbaren Nullpunkt additiv korrigiert. Der Nullpunkt wird dabei aus den Daten selbst gewonnen
Einstellungen: Offset in globale Variable 2 speichern; Ersten Datenblock für Nullpunktabgleich verwenden

Modulname: Fout(t)**Modultyp:** Formelinterpreter**Modulfunktion:** mathematischen Verknüpfung der an den Eingängen bereitstehenden Informationen**Einstellungen:**
Fin(t)**Formelinterpreter**
Modulname: G(t)**Modultyp:** Formelinterpreter**Modulfunktion:** mathematischen Verknüpfung der an den Eingängen bereitstehenden Informationen, im Versuch: Masse an verdrängtem Porenwasser als Äquivalent zum gespeicherten Gasvolumen**Einstellungen:**
Modulname: Skalierung04**Modultyp:** Skalierung; lineare Geradengleichung**Modulfunktion:** Für jeden Eingangswert x wird ein Ausgabewert Y nach der Formel $Y = a \cdot x + b$ berechnet**Einstellungen:** Kalibrierfunktion für Drucksensor

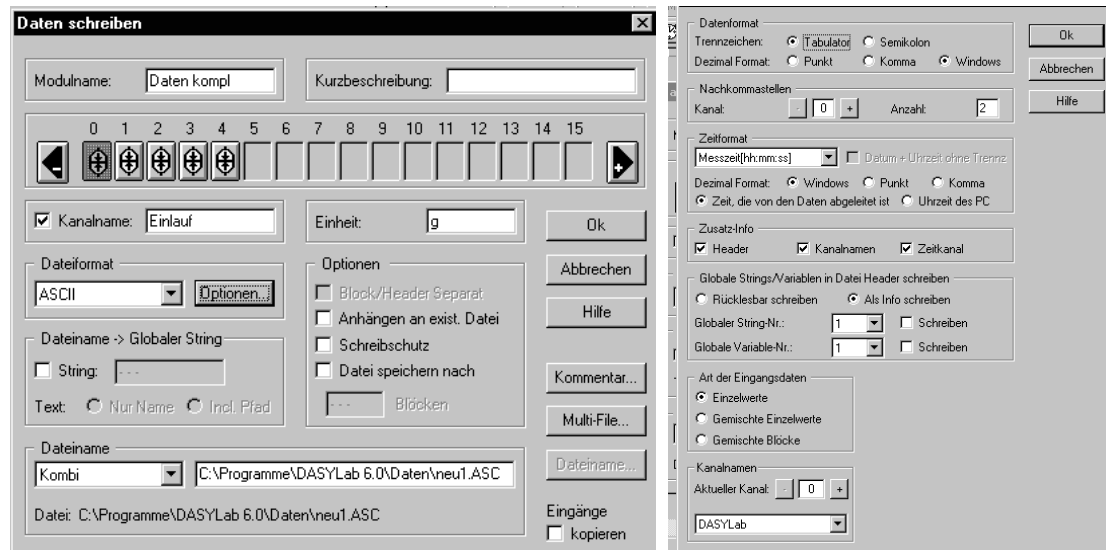
IVa/b - On-line Visualisierung der Messdaten

Modulnamen: DIGI/DIGIG(t)
Modultyp: Digitalinstrument
Modulfunktion: Digital-Anzeige der Meßwerte
Einstellungen: variabel

Modulnamen: Druck/G(t)
Modultyp: Linienschreiber
Modulfunktion: grafischen Darstellung der Daten über die Zeit
Einstellungen: variabel

V - Speicherung der Messdaten

Modulnamen: Daten kompl
Modultyp: Daten schreiben
Modulfunktion: Datenspeicherung als ASCII-Files in Datei
Einstellungen:



Modulnamen: Mittelung00
Modultyp: Mittelung
Modulfunktion: Mittelwert von eingehenden Messdaten
Einstellungen: arithmetisches Mittel über 5 Messwerte

Modulnamen: Daten Mittel
Modultyp: Daten schreiben
Modulfunktion: Datenspeicherung als ASCII-Files in Datei
Einstellungen: siehe oben

Die Verbindung zwischen Messgeräten und Computer wurde über RS232-Schnittstellen hergestellt. Die Eingangswerte der Druckmessung (NuDAM) wurden ausgehend von der ermittelten Eichfunktion direkt im Datenerfassungsprogramm kalibriert. Durch die Visualisierung der Parameter mittels Linienschreibern und Digitalanzeige konnte der experimentelle Verlauf verfolgt werden. Die Daten wurden in ASCII-Files abgespeichert und können zur Auswertung direkt in Programme wie MS-Excel eingelesen werden.

A6 Versuchsablauf

Versuchs-Durchführung 2-D-Visualisierungsexperimente

Die mit Sediment gefüllten Module wurden zunächst mit mehreren Porenvolumina CO_2 gespült und anschließend mit destilliertem, entgastem Wasser mit sehr kleinem Volumenstrom von unter her aufgesättigt. CO_2 besitzt gegenüber Luft eine deutlich höhere Löslichkeit in Wasser, wodurch sich gasgefüllte Porenbereiche besser mit Wasser aufsatzen lassen. Während des Aufsatzenprozesses wurde die Volumenbilanz zwischen einströmendem Wasser und aus dem Modell austretenden Wasser mittels Wägung aufgezeichnet. Von vollständiger Wassersättigung ($S_w \approx 1$) wurde ausgegangen, als zwischen der Wassermenge an Ein- und Auslauf des Modells Volumenkonstanz ($V_{w,in} = V_{w,out}$) ermittelt wurde. Der Aufsatzenprozess wurde ebenfalls optisch verfolgt, bis vollständige Sättigung an der optischen Beobachtungsfläche erreicht wurde. Nachdem das Modell wassergesättigt war, wurde das Sediment mit mehreren Porenvolumina luftgesättigtem, destilliertem Wasser durchströmt. Die Gasinjektions-Experimente wurden dann mit stagner Wasserphase durchgeführt, d.h. es wurde keine Wasserströmung initiiert. Der Wasserstand im Modell wurde durch das Überlaufsystem konstant gehalten. Zu Beginn einer jeden Versuchsserie wurden die computergestützte Erfassung der Messdaten (DASYLab) sowie die Aufzeichnung der optischen Bilder simultan gestartet. Das erste Bild zeigt jeweils als „Nullbild“ das sedimentgefüllte, wassergesättigte Modell. Abbildung A6-1 zeigt beispielhaft für eine Versuchsserie die unterschiedlichen Versuchsphasen.

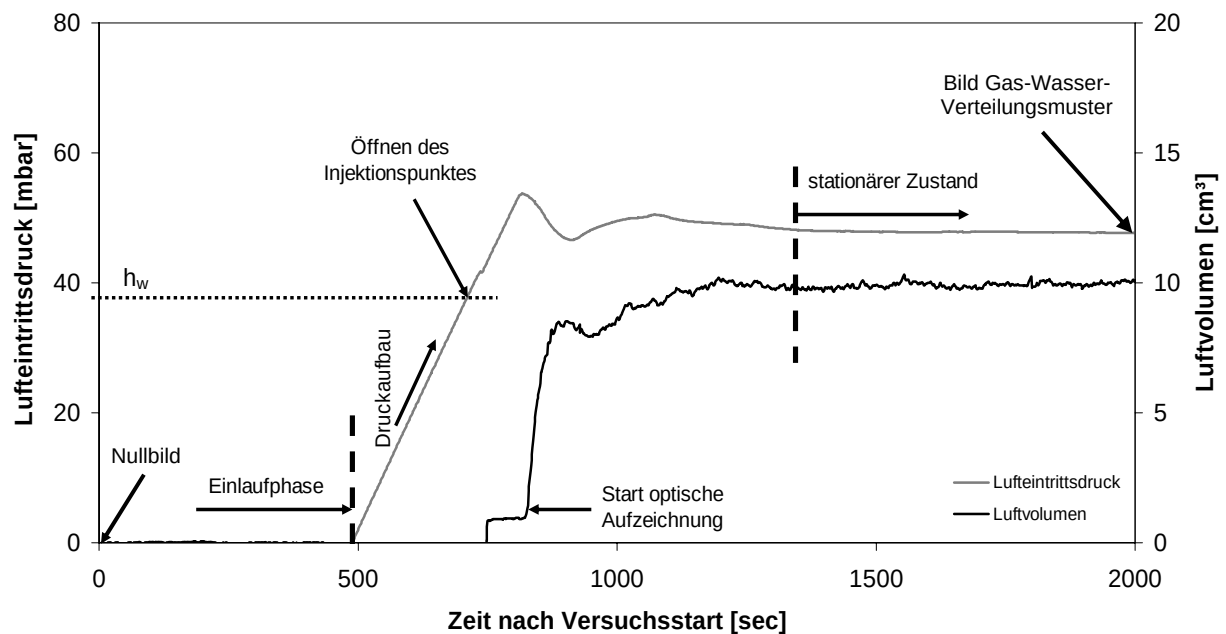


Abb. A6-1: Versuchsablauf der Gasinjektionsexperimente am Beispiel des zeitlichen Verlaufs von Lufteintrittsdruck (obere Kurve) und Luftvolumen der Versuchsserie *OI_MischGK_VI*.

Nach Versuchstart wurde nach einer Einlaufphase von einigen Minuten in der zum Modul hin noch geschlossenen Injektionsleitung mit der initialen Gasinjektionsrate Druck aufgebaut. Entsprechend der Druck in der Zulaufleitung dem hydrostatischen Druck am Injektionspunkt, wurde dieser geöffnet. Dadurch

konnte kein Wasser aus dem Sediment in die Injektionsleitung dringen. Gleichzeitig mit Öffnen des Injektionspunktes wurde die Aufnahme der Bildsequenzen gestartet, um den Gaseintritt und die Ausbreitung der Gasphase ins Sediment zu visualisieren. Die Bilder der Ausbreitung der Gasphase wurden bis zum Gasdurchbruch an der Oberfläche mit einer zeitlichen Auflösung von $\Delta t = 1 \text{ sec}$ aufgezeichnet. Nach Gasdurchbruch wurden im Abstand von mehreren Minuten Einzel-Bilder des gasgefüllten Kapillarnetzwerks aufgenommen, um weitere Veränderungen der Gas-Wasser-Verteilungsmuster zu visualisieren. Im stationären Zustand, in dem keine Veränderung des luftgefüllten Porenraumes stattfand (Volumen-, Druckkonstanz) wurde das stationäre Gas-Wasser-Verteilungsmuster aufgenommen. Nach Durchlaufen des stationären Strömungszustands von 30 min- 1 h wurde auf eine höhere Gasinjektionsrate umgeschaltet. Die Veränderung des gasgefüllten Porenraumes wurde optisch aufgezeichnet, bis der Strömungsprozess wieder stationär war. Die Versuchsdauer war Sediment- und Modell-abhängig. Die jeweilige Versuchsserie wurde abgebrochen, wenn das injizierte Gas den Randbereich des Modells erreichte oder es aufgrund des Strömungsdrucks der Gasphase zu Umlagerungen im Kornverband (Fluidisierung, hydraulischer Grundbruch) kam. Zum Versuchsende wurde die Volumenstromzufuhr von Gas unterbrochen und der Injektionspunkt geschlossen. Danach wurde die Wiederaufsättigung des gasgefüllten Porenraumes aufgezeichnet, bis sich das residuale Gasvolumen ausbildete. Es erfolgte der Stop der Messdatenerfassung.

A7 Verfahrens-Definitionen

In der überwiegend englischsprachigen Literatur zur beschriebenen Thematik existieren unterschiedliche Begriffe, die die Direkt-Gasinjektion in den geologischen Untergrund beschreiben. Tabelle A7-1 gibt eine Übersicht unterschiedlicher Verfahrensbezeichnungen, die im Folgenden kurz erläutert werden.

Im Allgemeinen spricht man bei Luftinjektion in Grundwasserleiter von ‚*Air Sparging*‘, ‚*in-Situ Air Sparging*‘ oder ‚*in-Situ-Aeration*‘ [z.B. Johnson et al., 1993; Ahlfeld et al., 1994]. Diese Verfahrensbezeichnung schließt zumeist die Absaugung und Behandlung der Bodenluft („*soil vapor extraction*“) mit ein. Beim ‚*Oxygen Sparging/Injection*‘ wird reiner gasförmiger Sauerstoff in den Untergrund injiziert [Salanitro et al., 2000]. Der Begriff ‚*Bio Sparging*‘ wird verwendet, wenn das Hauptziel des Betreibers die Bereitstellung von Sauerstoff in der gesättigten Zone und somit die Stimulation mikrobieller Abbauprozesse ist. Viele Anwender benutzen den Begriff ‚*Bio Sparging*‘ für Injektionssysteme, die ohne Bodenluftabsaugung auskommen [ESTCP, 2000].

Fry et al.[1997] benutzen den Begriff ‚*Direct Gas Injection*‘ im Sinne einer diskontinuierlichen Injektion von Luft/Sauerstoff in das Sediment, so dass nach Injektionsstopp so viel wie möglich Gas im Porenraum gespeichert bleibt, welches dann durch Lösung im Wasser biologischen Prozessen zur Verfügung steht.

Tab. A7-1: Übersicht über Verfahrens-Bezeichnungen zur Direkt-Gasinjektion

Verfahrens-Bezeichnung	Charakteristik
<i>Air Sparging/In-Situ-Air Sparging/ In-Situ-Aeration</i>	Luftinjektion in gesättigte Bodenzone; oft gekoppelt mit Bodenluft-Absaugung („ <i>soil vapor extraction</i> “)
<i>Oxygen Sparging/Injection</i>	Sauerstoff-Injektion in gesättigte Bodenzone
<i>Bio Sparging/Direct Gas Injection</i>	Luftinjektion in gesättigte Bodenzone mit kleiner Gasinjektionsrate; Hauptanierungsziel biologischer Abbau; keine Bodenluftbehandlung
<i>In-situ Stripping/In-Situ Vapor Stripping</i>	Luftinjektion in gesättigte Bodenzone; Hauptziel: Massen-Transfer gelöster Schadstoffe aus Wasser- in Gas-Phase (Volatilisierung)
<i>Bioventing</i>	Luft- oder Sauerstoffinjektion in ungesättigte Bodenzone; oft gekoppelt mit Bodenluftabsaugung
<i>Pneumatic Fracturing</i>	Luftinjektion mit hohem Eingangsdruck in gering permeable Schichten; Schaffung von Kluftsysteme mit höherer Permeabilität zur nachfolgenden Reinigung von Schadstoffen

Ist das Hauptziel der Luftinjektion in die gesättigte Bodenzone das Austreiben bzw. die Volatilisierung leichtflüchtiger Schadstoffverbindungen wird häufig von ‚*In-situ-Stripping*‘ oder ‚*In-situ-Vapor Stripping*‘ gesprochen [z.B. Gvirtzman und Gorelick, 1992].

‚*Bioventing*‘ bezeichnet die Zuführung von Luft oder Sauerstoff in die ungesättigte Zone, um mikrobielle Abbauprozesse anzuregen [Norris et al., 1994].

Eine weitere Möglichkeit Gas zu injizieren ist die Nutzung von Belüftungsgräben (*'aeration trenches'* bzw. *'aeration curtains'*), welche im rechten Winkel zur Bewegungsrichtung der Schadstofffahne eingebracht werden und diese unterbrechen. Dabei wird Luft mit horizontalen Diffusern am Boden der Gräben, die mit grobkörnigem Material gefüllt sind, injiziert [Pankow et al., 1993; Wilson und Norris, 1997].

Ziel der Luft-Injektion mit sehr hohem Injektionsdruck in die gesättigte Zone ist die Schaffung von höher permeablen, bevorzugten Fließwegen (Klüften) zur Behandlung von Kontaminationen in ursprünglich gering permeablen Schichten [*Pneumatic Fracturing'*; z.B. Suthersan, 1999].

Im deutschsprachigen Raum werden zusätzlich die Begriffe Grundwasserbelüftung und Drucklufteinblasung [Brauns und Wehrle, 1989] zur Beschreibung der Luftinjektion in die gesättigte Zone benutzt. Die koaxiale Grundwasserbelüftung (KGB) stellt eine besondere Variante der Lufteinblasung in den gesättigten Bereich dar. Die Lufteinblasung erfolgt dabei gezielt nicht in den natürlich anstehenden Untergrund, sondern in die zwischen Einblasstelle (Druckluftzufuhr) und Absaugeinrichtung (Doppelmantelfilter) durchgehende Filterkiesschüttung. Der gezielte Luftaufstieg in diesem Bereich soll eine Zirkulation des Grundwassers ähnlich der *in-situ*-Strippung bewirken (*Air-lift*-Effekt), welches durch die Luft gereinigt wird [Dörr et al., 1995].

Innerhalb der vorliegenden Arbeit werden die Begriffe *Direkt-Gasinjektion* bzw. *Direkte Gasinjektion* verwendet, unabhängig mit welcher Injektionsrate, Injektionsart bzw. mit welchem Sanierungs-Ziel (Biodegradation/Volatilisierung) das Gas eingebracht wird.

Literatur

- Ahlfeld, D. P., Dahmani, A., und Ji, W., 1994. A conceptual model of field behavior of air sparging and its implications for application. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 14 (4): 132-139.
- Brauns, J. und Wehrle, K., 1989, Untersuchung der Drucklufteinblasung in die gesättigte Bodenzone (In-situ-Strippen)-Modellversuche. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben (AZ: 12/0415.1) der Landesanstalt für Umweltschutz B.-W.; Karlsruhe, 56.
- Dörr, H., Hettler, A., Reiersloh, D., Brauns, J., Wehrle, K., Schmidt, B., Maier, D., Neumayr, V., Krause, I., Küstner, J., Ottenstein, J., Hötzel, H., Nahold, M., Zipfel, K., Pfeifer, R., Menig, M., und Krill, H., 1995. Hydraulische und pneumatische in-situ Verfahren. Materialien zur Altlastenbearbeitung, 16. Landesamt für Umweltschutz Baden-Württemberg, Karlsruhe.
- ESTCP, 2000, Multi-Site Air Sparging. ESTCP Cost and Performance Report, CU-9808, U.S. Department of Defense 29.
- Fry, V. A., Selker, J. S., und Gorelick, S. M., 1997. Experimental investigations for trapping oxygen gas in saturated porous media for in situ bioremediation. *Water Resources Research*, 33 (12): 2687-2696.
- Gvirtzman, H. und Gorelick, S. M., 1992. The concept of in-situ vapor-stripping for removing VOCs from groundwater. *Transport in Porous Media*, 8 71-92.
- Johnson, R. L., Johnson, P. C., McWhorter, D. B., Hinchey, R. E., und Goodman, I., 1993. An Overview of In Situ Air Sparging. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 13 (4): 127-135.
- Norris, R. D., Hinchey, R. E., Brown, R., McCarty, P. L., Wilson, J. T., Reinhard, M., Bouwer, E. J., Borden, R. C., Vogel, T. M., Thomas, J. M., und Ward, C. H., 1994. *Handbook of Bioremediation*. Robert S. Kerr Environmental Research Laboratory, CRC Press, Inc..

Pankow, J. F., Johnson, R. L., und Cherry, J. A., 1993. Air Sparging in Gate Wells in Cutoff Walls and Trenches for Control of Plumes of Volatile Organic Compounds (VOCs). *Ground Water*, 31 (4): 654-663.

Salanitro, J. P., Johnson, P. C., Spinnler, G. E., Maner, P. M., Wisniewski, H. L., und Bruce, C., 2000. Field scale demonstration of enhanced MTBE bioremediation through aquifer bioaugmentation and oxygenation. *Environmental Science & Technology*, 34 (19): 4152-4162.

Suthersan, S. S., 1999. Hydraulic and Pneumatic Fracturing. In: Suthersan, S.S. (Editor), *Remediation engineering: design concepts*. CRC Press, Boca Raton.

Wilson, D. J. und Norris, R. D., 1997. Groundwater cleanup by in-situ sparging .11. Engineered bioremediation with aeration curtains. *Separation Science and Technology*, 32 (16): 2569-2589.

V e r s i c h e r u n g

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht.

Bei der Auswahl und Auswertung des Materials sowie bei der Herstellung des Manuskripts habe ich Unterstützungsleistungen von folgenden Personen erhalten:

Prof. Dr. Helmut Geistlinger

Dr. Detlef Lazik

Weitere Personen waren an der Abfassung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Die Hilfe eines Promotionsberaters habe ich nicht in Anspruch genommen. Weitere Personen haben von mir keine geldwerten Leistungen für Arbeiten erhalten, die nicht als solche kenntlich gemacht worden sind.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Gunnar Krauß

Halle (Saale), 10.04.2006

Tabellarischer Lebenslauf

1. Persönliche Daten

Name: Gunnar Krauß
Titel: Dipl.-Geol.
Anschrift: Thaer-Str. 18, 06112 Halle/Saale
Geburtsdatum: 01.10.1974
Familienstand: ledig
Kinder: 1

2. Schulausbildung

9/81 - 8/89 Allgemeinbildende Oberschule „Ulrich von Hutten“ in Halle
9/89 - 8/93 Erweiterte Oberschule/Gymnasium Latina August Hermann Francke in Halle; Abitur (Leistungskurse Abitur: Englisch, Latein)

3. Hochschulstudium

10/93 Aufnahme des Studiums im Fach Geologie/Paläontologie an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg
7/96 Vordiplom (Nebenfächer: Geographie, Chemie)
7/96 – 9/96 Auslandspraktikum, University of New South Wales, Sydney, Australia, (Prof. J. Roberts)
10/97 - 3/99 Diplomkartierung, „Die Geologie im Raum Schwerz-Quetzdölsdorf bei Halle“; Kartierung von Rotliegend-Vulkaniten, quartären Ablagerungen, (Prof. M. Schwab)
2000 Diplomarbeit „Der Einfluss sedimentärer, geologischer Strukturen auf das Strömungsverhalten von Wasser“, MLU Halle/UFZ Leipzig-Halle, (Prof. P. Wycisk)
3/2001 Ende des Studiums, Diplom
Schwerpunkte: Hydrogeologie, Umweltgeologie, Ingenieurgeologie

4. Beruflicher Werdegang

04/2001-10/2002 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH; Department Hydrogeologie (Theodor-Lieser-Str. 4, 06112 Halle/Saale)
11/2002-10/2005 Doktorand am Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Dept. Hydrogeologie; Promotion zum Thema „Direkt-Gasinjektion in wassergesättigte poröse Medien: Visualisierung und Quantifizierung von Gas-Phasen-Verteilung und -Bewegung“, eingereicht an der TU Bergakademie Freiberg (Prof. B. Merkel)
seit 11/2005 Angestellter im Fachbereich Umwelt der Stadt Halle (Saale), Untere Bodenschutzbehörde

5. Mitgliedschaften

Fachsektion Hydrogeologie der Deutschen Geologischen Gesellschaft