

# **Bedeutung der bodenphysikalischen Eigenschaften für die Eignung von Deponie-Abdeckschichten zur mikrobiellen Oxidation von Methan**

**Julia Gebert und Alexander Gröngröft**

Universität Hamburg, Institut für Bodenkunde

## **Gas Diffusivity as Limiting Factor for Methane Oxidation in Landfill Cover Soils**

### **Abstract**

Microbial oxidation of methane in landfill covers relies on effectual diffusive ingress of oxygen into the soil. In order to derive design criteria for soils intended for use as methane oxidizing biocovers, the study aimed at analysing the relationship between soil physical properties (texture, pore size distribution, compaction) and soil diffusivity. Soil diffusivity was strongly correlated with air capacity and is thus impacted by texture and degree of compaction. Using a simple box model, the diffusive oxygen ingress was simulated for various scenarios of diffusivity and advective landfill gas flux. The study results show that for the effective oxidation of methane fluxes as low as  $0.5 \text{ l m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  the air capacity should not be lower than 18 vol.% and that finely textured or highly compacted soils are thus unsuitable for biocover application due to constricted oxygen supply to methanotrophs. Diffusivity data provide a tool both for the selection of suitable cover materials and the choice of the appropriate construction method to minimize compaction.

### **Zusammenfassung**

Die mikrobielle Oxidation von Methan in Deponie-Abdeckschichten setzt eine hinreichende, diffusive Versorgung der methanotrophen Bakterien mit atmosphärischem Sauerstoff voraus. Ziel der vorliegenden Studie war die Untersuchung der Bedeutung bodenphysikalischer Parameter (Textur, Porengrößenverteilung, Verdichtung) für die Diffusivität ungestörter Bodenproben. Erwartungsgemäß korreliert die Gas-Diffusivität stark mit der Luftkapazität und damit dem Anteil des wasserfreien, dem Gastransport zur Verfügung stehenden Porenraumes, und wird wesentlich von der Textur und dem Verdichtungsgrad eines Substrats bestimmt. Die Simulation der Sauerstoffdiffusion mit Hilfe eines einfachen Boxmodells zeigt, dass zur vollständigen Oxidation selbst geringer Methanströme von  $0.5 \text{ l m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  eine Luftkapazität von etwa 18 Vol.% nicht unterschritten werden sollte. Feiner texturierte Substrate sind daher als Methanoxidationsschicht ungeeignet. Die Gas-Diffusivität kann als Kriterium zur Auswahl geeigneter neuer Substrate und zur Beurteilung der Eignung bereits installierter Materialien herangezogen werden.

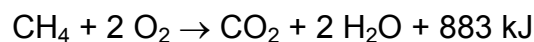
### **Keywords**

Deponie-Abdeckschichten, Methanoxidation, Diffusion

Landfill cover soils, methane oxidation, gas diffusivity

## 1 Hintergrund und Zielsetzung

Die Nutzung oder Abfackelung deponiebürtigen Methans ist bei älteren Deponien aufgrund des verminderten Methangehalts und Gasaufkommens oft nicht mehr möglich. Jedoch bergen auch so genannte Schwachgase, die noch Jahrzehnte nach Abschluss der Deponierung emittiert werden, ein erhebliches Gefährdungs- und klimawirksames Potenzial und sollten behandelt werden. Gleiches gilt für Deponien, deren abgelagertes Gut von vorneherein eine geringere Gasbildung aufweist. Das Potenzial der mikrobiellen Methanoxidation in Biofiltern oder Deponieabdeckschichten zur Verminderung dieser Emissionen wurde vielfach erkannt (z. B. BARLAZ et al. 2004; SCHEUTZ et al. 2004; HUBER-HUMER et al. 2008) und hat Eingang in den seit Kurzem vorliegenden Referentenentwurf für die Integrierte Deponieverordnung gefunden. Der jüngste IPCC Bericht führt die Methanoxidation in Biofiltern oder optimierten Deponieabdeckschichten, so genannten biocovers, als Schlüsseltechnologie zur Mitigation deponiebürtiger Methanemissionen an (BOGNER et al. 2007). Dennoch fehlen bislang Empfehlungen für den technischen Aufbau von entsprechend optimierten Deponieabdeckschichten. Die mikrobielle Methanoxidation vollzieht sich nach der vollenden Reaktionsgleichung:



Eine der Grundvoraussetzungen für die Oxidation deponiebürtigen Methans in der Abdeckschicht ist damit der diffusive Einstrom atmosphärischen Sauerstoffs in die Abdeckschicht. Die Diffusionsrate wird gemäß des 1. Fick'schen Gesetzes durch den Konzentrationsgradienten und die Diffusivität, gegeben durch den effektiven Diffusionskoeffizienten, des Materials bestimmt:

$$J = -D_{\text{eff}} \times dc/dx$$

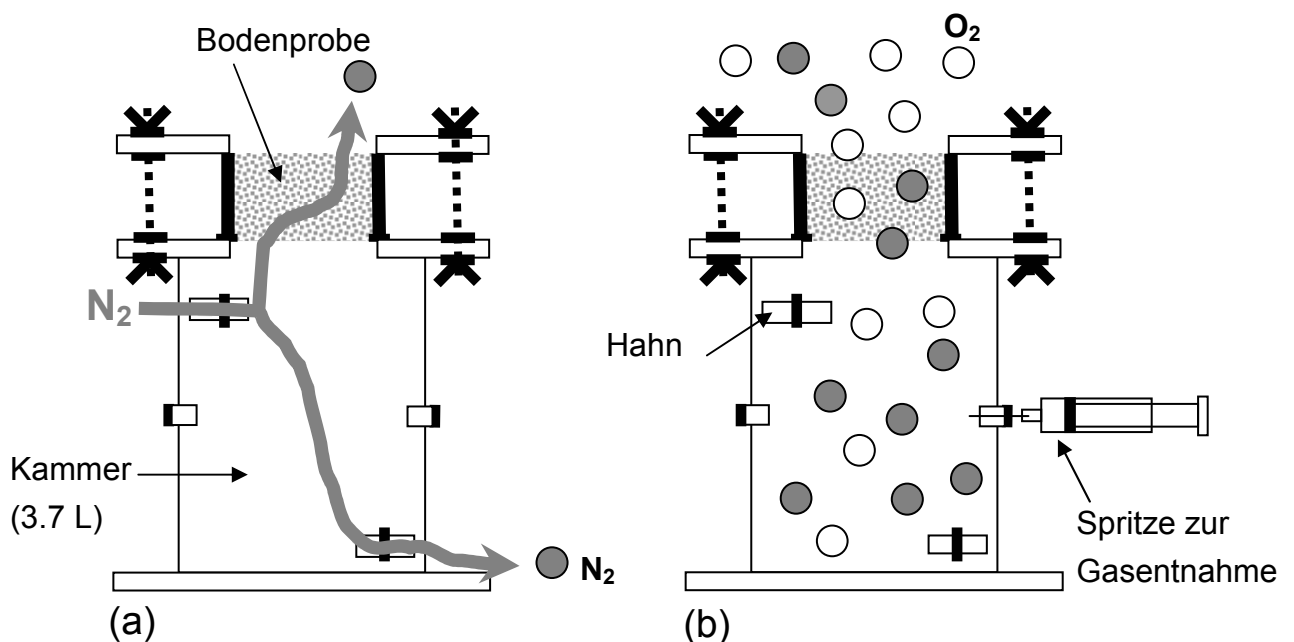
mit  $J$  = Diffusionsstrom ( $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ),  $D_{\text{eff}}$  = effektiver Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $dc/dx$  = Konzentrationsgradient ( $\text{mol m}^{-3} \text{m}^{-1}$ ).

Der Diffusionskoeffizient hängt in starkem Maße vom Anteil des luftgefüllten Porenraumes und damit von der Porengrößenverteilung, von der Verdichtung und vom Wasserhaushalt ab. Ziel der hier vorgestellten Untersuchungen war daher die Beleuchtung der Bedeutung der bodenphysikalischen Eigenschaften für die Diffusivität von Böden. Daten zur Diffusivität dienen als Grundlage für die Modellierung des Eintrags von atmosphärischem Sauerstoff gegenüber verschieden starken konvektiven Deponiegasströmen.

## 2 Material und Methoden

### 2.1 Diffusionsversuche

Aus Abdeckschichten von fünf Altdeponien wurden mit Hilfe von  $100 \text{ cm}^3$  Stechringen ungestörte Bodenproben entnommen. Nach Wässerung auf einem Sandbett wurden die Proben mittels Druckentwässerung (nach RICHARDS & FIREMAN 1943) auf Wassergehalte entsprechend einer Wasserspannung von 60 hPa entwässert (auch  $pF 1.8 =$  Feldkapazität). Das bei diesem Wassergehalt noch luftgefüllte Porenvolumen (Luftkapazität, entspricht dem nach dem schwerkraftgeleiteten Abfluss des Niederschlags im Boden vorhandene luftgefüllte Porenvolumen) wurde mit einem Vakuum-Luftpyknometer bestimmt. Die Stechringe wurden anschließend in eine Diffusionskammer eingesetzt, deren Gasraum mit Stickstoff gefüllt wurde (siehe Abb. 1 a). Das diffusive Eintreten atmosphärischen Sauerstoffs über die Bodenprobe in die Kammer wurde durch gaschromatographische Analyse über die Zeit verfolgt (Abb. 1b).



**Abbildung 1** Aufbau des Diffusionsversuchs, schematisch.

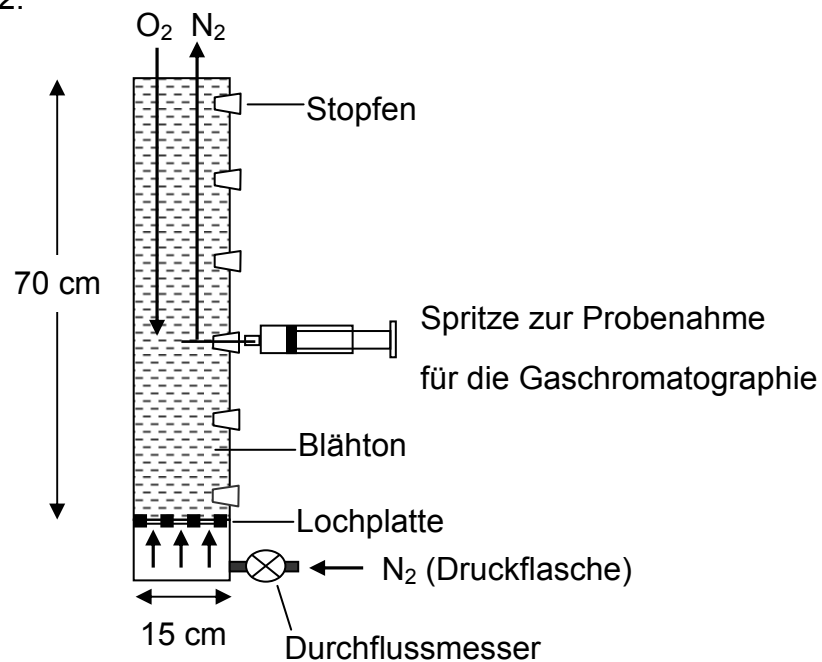
Um den Einfluss der Verdichtung auf die Gasdiffusivität zu untersuchen, wurde gestörtes, homogenisiertes Bodenmaterial in definierten Stufen von 75 %, 85 % und 95 % der Proctordichte in Stechringe eingebaut und diese wie oben beschrieben behandelt. Der eingestellte Wassergehalt entsprach ebenfalls Feldkapazität.

## 2.2 Säulenversuche

### 2.3 Modellierung

Das Programm *Gasdiffu.prg* (GRÖNGRÖFT 2003) berechnet mit vorgegebenen Materialeigenschaften (z.B. Gesamtporenvolumen, Wassergehalt, Diffusionskoeffizient) die Diffusion einer Gaskomponente durch das poröse System Boden. Das System wird dabei räumlich diskretisiert. Die Diffusionsrate wird anhand des Fick'schen Gesetzes für jede Schicht berechnet. Die in einer Schicht verbleibende Gasmenge ergibt sich aus der Differenz zwischen Diffusions-Zustrom und -Abstrom. Soll ein konvektiver Gegenstrom berücksichtigt werden, wird in die Gasmenge auch die Differenz des konvektiven Flusses eingerechnet. Am oberen Rand bleibt die Gaskonzentration konstant, für das untere Segment wird unterstellt, dass der Netto-Diffusionszustrom dem Element darüber entspricht. Die Materialeigenschaften sind über die Zeit konstant.

Zur Validierung des Modells wurden Säulenversuche durchgeführt, bei denen die sich gegenüber verschiedenen entgegen gerichteten konvektiven Gasströmen einstellenden Sauerstoffkonzentrationsprofile gaschromatographisch bestimmt wurden. Den Versuchsaufbau zeigt Abb. 2.



**Abbildung 2** Versuchsaufbau zur Untersuchung der Diffusion von Sauerstoff entgegen konvektiven Gasströmen.

### 3 Ergebnisse

#### 3.1 Diffusion von Sauerstoff in ungestörten Bodenproben

Die im Rahmen des MiMethox-Projektes ([www.mimethox.de](http://www.mimethox.de)) untersuchten, von der Altdeponie K stammenden Proben weisen eine weite Spanne der Luftkapazitäten von 8 Vol.% bis nahe 40 Vol.% auf. Abb. 4 zeigt die deutliche Abhängigkeit der effektiven Diffusivität vom Anteil des bei Feldkapazität noch luftgefüllten Porenraums: für die untersuchte Spanne steigt der Diffusionskoeffizient mit zunehmendem luftgefülltem Porenvolumen um den Faktor 30. Gröber texturierte Substrate wie reine, schwach lehmige oder schwach schluffige Sande sind unter dem Aspekt der Sauerstoffnachlieferung an methanotrophe Organismen damit geeigneter als Tone oder Lehme.

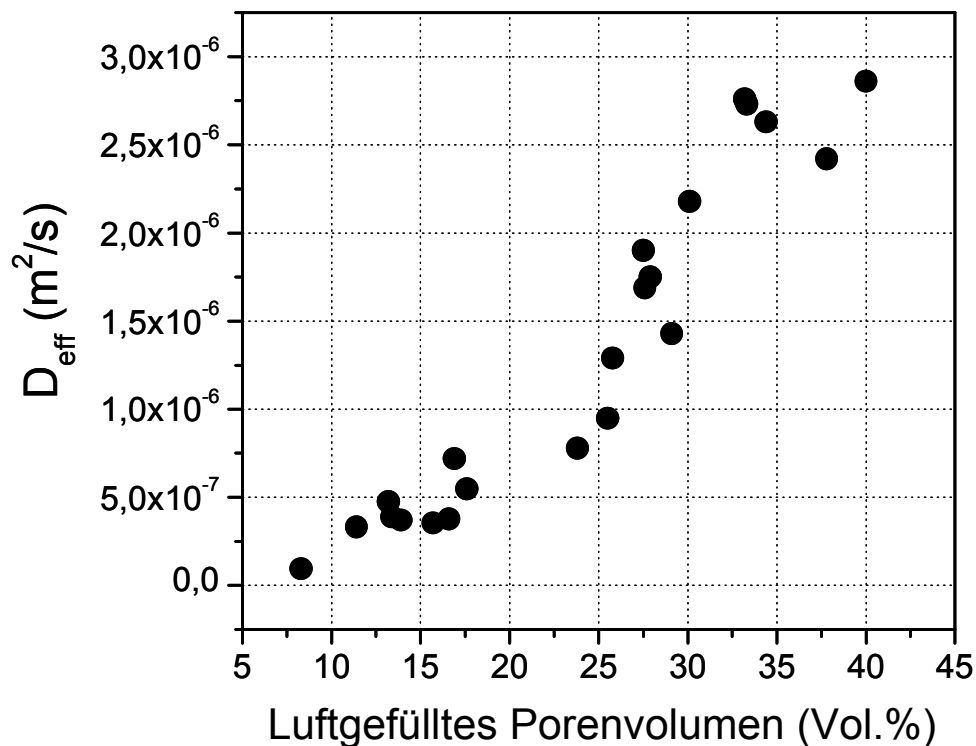
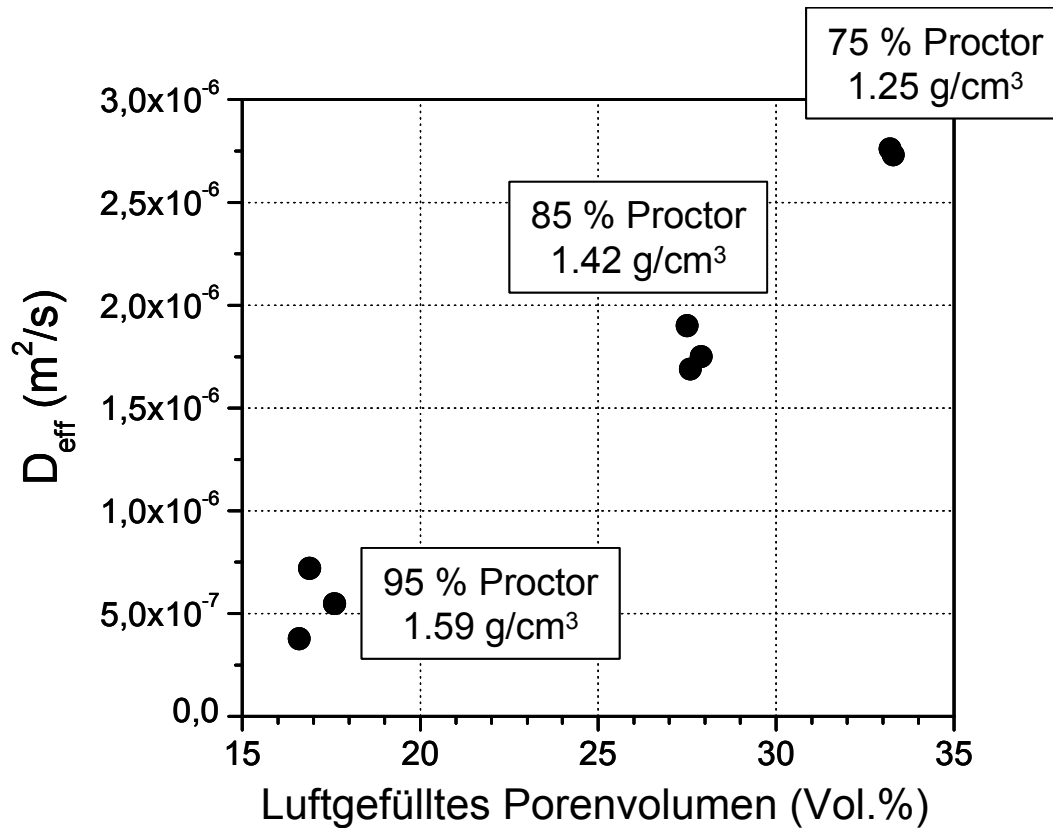


Abbildung 3 Beziehung zwischen luftgefülltem Porenvolumen und Diffusivität.

#### 3.2 Einfluss der Verdichtung auf die Diffusivität

Abb. 5 zeigt den Einfluss der Verdichtung auf den bei Feldkapazität noch luftgefüllten Porenanteil in einem stark lehmigen Sand: bei einer Einbaudichte von 75 % der Proctordichte weist das Material mit 33 Vol.% eine sehr hohe Luftkapazität auf, die mit zunehmender Verdichtung stark abfällt. Bei einem Verdichtungsgrad von 95 % der Proc-

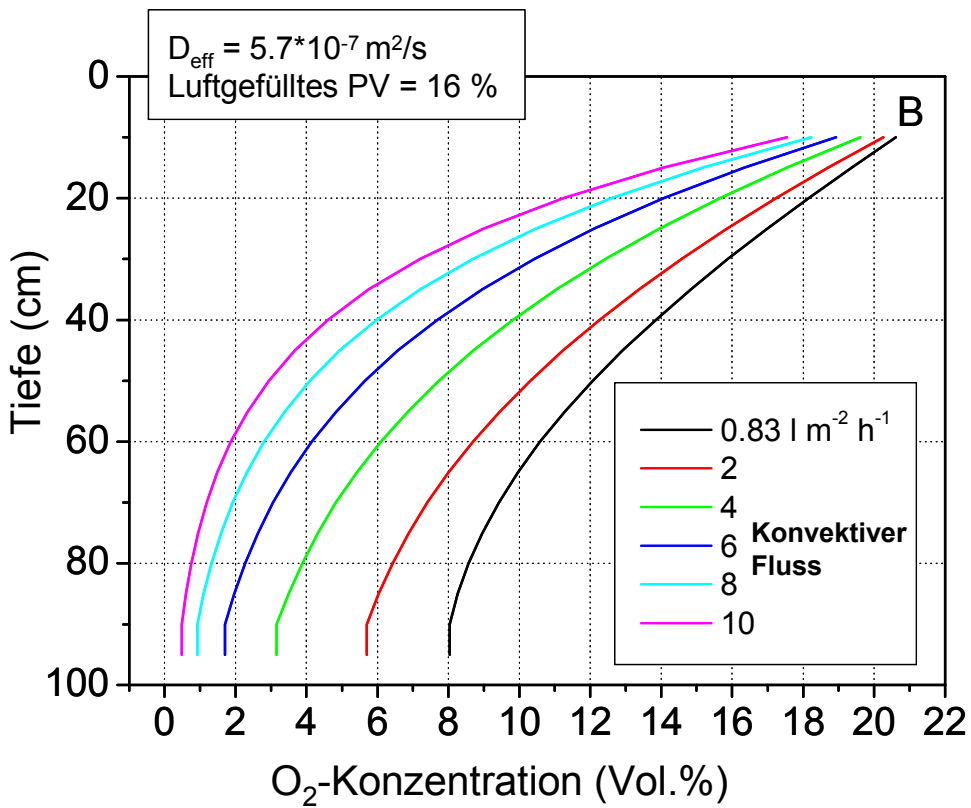
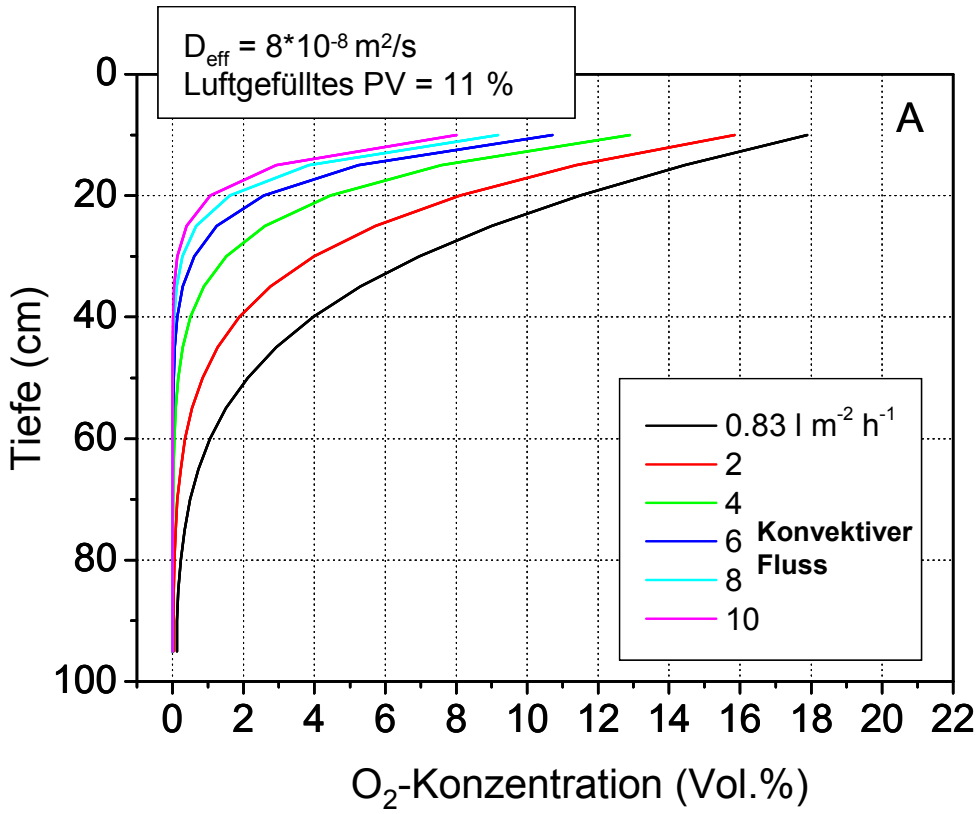
tordichte stehen in dem gewählten Material nur noch etwa 16 Vol.% für den Gasaustausch zur Verfügung. Die Diffusivität variiert für den untersuchten Bereich entsprechend um den Faktor 7. Dies unterstreicht die Bedeutung der Einbaupraxis für die Leistungsfähigkeit eines Materials, das zum Zweck der mikrobiellen Methanoxidation aufgebracht wird.

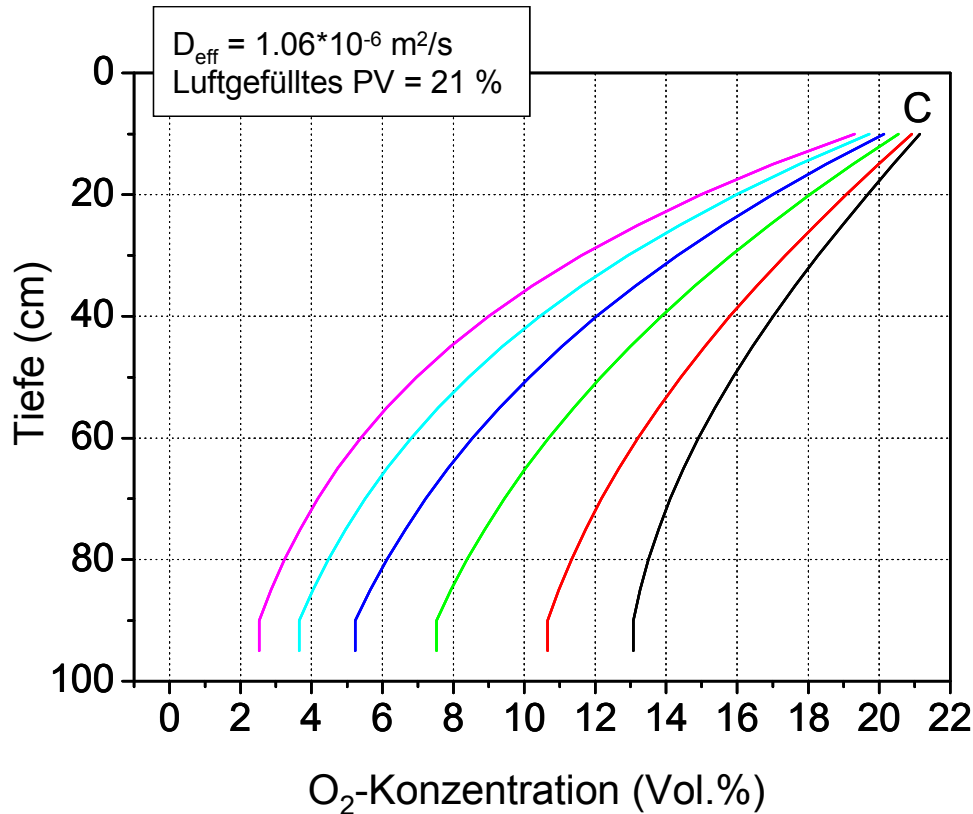


**Abbildung 4** Beziehung zwischen Verdichtungsgrad, luftgefülltem Porenvolumen und Diffusivität.

### 3.3 Einfluss des konvektiven Deponiegasstroms auf die Diffusion von Sauerstoff in Deponie-Abdeckschichten

Die sich aus Abb. 4 ergebende Beziehung zwischen luftgefülltem Porenvolumen und Diffusionskoeffizient wurde als Basis der Simulation von Sauerstoff-Konzentrationsprofilen in einer fiktiven Deponie-Abdeckschicht für verschiedene Szenarien konvektiven Deponiegasstroms genutzt (Abb. 6).





**Abbildung 5** Simulation von  $O_2$ -Konzentrationsprofilen für Szenarien geringer (A), mittlerer (B) und hoher (C) Diffusivität und verschiedener konvektiver Deponiegasströme.

Die Simulationen zeigen die deutliche Abhängigkeit der Ausprägung von Sauerstoffkonzentrations-Profilen in der Bodenluft von der Diffusivität des Substrates einerseits und dem Ausmaß des konvektiven Deponiegasstromes andererseits: die Sauerstoffkonzentration nimmt mit abnehmender Diffusivität und zunehmendem konvektiven Deponiegasstrom ab. Bei geringer Diffusivität (hier: luftgefülltes Porenvolumen = 11 %, A) wird selbst bei sehr geringen Deponiegasflüssen von  $0.83 \text{ l m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  (entspricht  $0.5 \text{ l CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ), wie sie derzeit im Referentenentwurf der Integrierten Deponieverordnung als tolerierbare Restgasflüsse vorgesehen sind, eine Konzentration von  $> 10 \%$   $O_2$  nur in den oberen 20 cm erreicht. Eine Luftkapazität von 11 % wird nach AG BODEN (2005) als ‚mittel‘ eingestuft und entspricht z.B. den Eigenschaften lehmiger und schluffiger Sande mittlerer und höherer Lagerungsdichte, stark sandiger Lehme geringer und mittlerer Dichte oder auch Schluffen geringer Lagerungsdichte (siehe auch Bodenkundliche Kartieranleitung, Tabelle 70).

Aus den gewonnenen Daten lässt sich gemäß des 1. Fick'schen Gesetzes die zur vollständigen Oxidation eines gesetzten Methangasstromes notwendige Diffusivität eines Materials errechnen. Wird die Mächtigkeit des effektiven Methanoxidationshorizontes zum Beispiel mit 40 cm angenommen, und sollen  $0.5 \text{ l CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  oxidiert werden, wird



gemäß der Reaktionsgleichung für die mikrobielle Methanoxidation ein Sauerstoff-Einstrom von  $1 \text{ l m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  benötigt. Bei dem gegebenen konvektiven Gegenstrom von  $0.83 \text{ l Deponiegas m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  wird hierfür ein Diffusionskoeffizient von  $8 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  benötigt, dies entspricht einer Luftkapazität von etwa 18 Vol.% (siehe auch Abb. 4). Dieses Kriterium würde bei geringer Verdichtung (bis  $1.4 \text{ g/cm}^3$ ) von mittel bis stark schluffigen, lehmigen und tonigen Sanden erfüllt, bei mittlerer Verdichtung ( $1.4\text{-}1.6 \text{ g/cm}^3$ ) nur noch von schwach schluffigen, lehmigen und tonigen Sanden.

Die Beispiele zeigen, dass Lehme, Schluffe und Tone aufgrund ihrer deutlich geringeren Luftkapazitäten und der damit einhergehenden verminderten Sauerstoffnachlieferung an die methanotrophen Organismen als Substrat einer Methanoxidationsschicht wenig geeignet sind.

## 4 Schlussfolgerungen und Ausblick

Bodentextur, Porengrößenverteilung und Verdichtungsgrad beeinflussen direkt das im Boden für den Gasaustausch zur Verfügung stehende (wasserfreie) Porenvolumen. Böden von geringer Diffusivität (feiner texturierte und/oder verdichtete Böden) sind als Methanoxidationsschicht ungeeignet, da die diffusive Sauerstoffversorgung der Methanoxidierenden Bakterien den Prozess limitieren kann. Daten zur Diffusivität in Abhängigkeit von Textur und Verdichtungsgrad können als Kriterium zur Auswahl von aus bodenphysikalischer Sicht geeigneten Materialien zur Verwendung als Methanoxidationsschicht auf Deponien dienen. Weiterhin kann aus Kartierdaten bestehender Deponie-Abdeckschichten unter Berücksichtigung der Parameter Bodenart, Lagerungsdichte, Humusgehalt und Skelettanteil die bis in eine beliebige Tiefe vorhandene Luftkapazität berechnet und damit der auf der Fläche maximal oxidierbare Methanstrom abgeschätzt werden. Im Weiteren soll die Diffusivität für verschieden texturierte Materialien entlang ihrer Wasserretentionsfunktion bestimmt werden, um so die Bedeutung der verschiedenen Porengrößenklassen für die Diffusivität zu untersuchen

## 5 Literatur

- |   |      |  |
|---|------|--|
| Ad-hoc-Arbeitsgruppe Boden  | 2005 | Bodenkundliche Kartieranleitung, 5. Auflage, Hrsg.: Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe.   |
| Barlaz, M. R.; Green R.; Chanton, J. P.; Goldsmith, C. D.; Hater, G. R.       | 2004 | Biologically active cover for mitigation of landfill gas emissions. Environ. Sci. Technol. 2004, 38, 4891-4899.                                  |
| Bogner, J.; Abdelrafie Ahmed, M.; Diaz, C.; Faaij, A.; Gao, Q; Hashimoto, S.; | 2007 | Waste Management, In Climate Change 2007: Mitigation. Contribution of Working Group III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental |

- Mareckova, K.; Pipatti, K.; Zhang, T. Panel on Climate Change [B. Metz, O.R. Davidson, P.R. Bosch, R. Dave, L.A. Meyer (eds)], 2007, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Gröngröft, A. 2003 Gasdiffu.prg. Programm zu Berechnung der Sauerstoffdiffusion in Blähton. Entwickelt unter Visual dBase 5.7, unveröffentlicht.
- Huber-Humer, M.; Gebert, J.; Hilger, H. 2008 Biotic systems to mitigate landfill methane emissions. Waste Manage. Res. 2008, 26, 33-46.
- Richards, L. A.; Fireman, M. 1943 Pressure plate apparatus for measuring moisture sorption and transmission by soil. Soil Science 56: 395-404.
- Scheutz, C.; Mosbæk, H.; Kjeldsen, P. 2004 Attenuation of Methane and Volatile Organic Compounds in Landfill Soil Covers. J. Environ. Qual., 2004, 33, 61-71.

**Anschrift der Verfasser:**

Dr. Julia Gebert  
Universität Hamburg, Institut für Bodenkunde  
Allende-Platz 2  
20146 Hamburg  
Telefon +49 40 42838 6595  
Email [j.gebert@ifb.uni-hamburg.de](mailto:j.gebert@ifb.uni-hamburg.de)

Website: [www.geowiss.uni-hamburg.de/i-boden/mitarb/jgebert.htm](http://www.geowiss.uni-hamburg.de/i-boden/mitarb/jgebert.htm),  
[www.mimethox.de](http://www.mimethox.de)

Dr. Alexander Gröngröft  
Universität Hamburg, Institut für Bodenkunde  
Allende-Platz 2  
20146 Hamburg  
Telefon +49 40 42838 4395  
Email [a.groengroeft@ifb.uni-hamburg.de](mailto:a.groengroeft@ifb.uni-hamburg.de)

Website: [www.geowiss.uni-hamburg.de/i-boden/mitarb/agroengroeft.htm](http://www.geowiss.uni-hamburg.de/i-boden/mitarb/agroengroeft.htm)