

Methodik und Ergebnisse der direkten Messung der Langzeitgefährdung von Trinkwasservorkommen durch Sickerwässer aus Abfalldeponien

Methodology and results of direct measurement of long-term hazard to drinking water resources from landfill leachates

(English translation pp. 65 – 102)

Ergebnisse eines interdisziplinären Forschungsprojektes 1972 – 2009 unter Beteiligung von 17 wissenschaftlichen Institutionen. Gefördert durch: Deutsche Forschungsgemeinschaft, Land Niedersachsen (1976–1991), VW-Stiftung, EU-Kommission und Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie

**Peter Spillmann
Hans Hermann Rump**

**Universität Rostock
Januar 2013**

Förderung der Veröffentlichung durch: Friedrichsdorfer Institut zur Nachhaltigkeit (IzN) e.V.

[Um Leser ohne ausreichende deutsche Sprachkenntnisse mit der Publikation vertraut zu machen, befindet sich eine englische Version am Ende des deutschen Textes (übersetzt von H. H. Rump). Sie erfüllt nicht alle Qualitätsansprüche an eine Übersetzung, sondern soll als Hilfestellung dienen. In Zweifelsfällen gilt die deutsche Fassung.]

Stichworte

Abfalldeponie	Landfill
Deponiemodell	Landfill model
Mischdeponie	Multifill
Trinkwasser	Drinking water
Deponiesickerwasser	Leachate
Schadstoff	Pollutant
Sonderabfall	Hazardous waste
Biologischer Abbau	Biodegradation
Selbstreinigung	Self purification
Abfallstabilisierung	Waste stabilization
	Co-disposal

Prof. Dr.-Ing. P. Spillmann
Am Rohrbruch 2 g
D-38108 Braunschweig
office@hup-bs.com

Prof. Dr. H. H. Rump
Adelheidstr. 17
D-65185 Wiesbaden
hermann.rump@t-online.de

Inhalt

- 1 **Veranlassung und Inhalt der Publikation**
- 2 **Konzeption des Forschungsprogramms nach den Anforderungen der Natur- und Ingenieurwissenschaften**
 - 2.1 Anforderungen an eine beweiskräftige experimentelle Forschung
 - 2.2 Beteiligte wissenschaftliche Institutionen und deren Aufgaben
 - 2.3 Mindestumfang der Modelldarstellung
 - 2.4 Organisation der langfristigen interdisziplinären Forschungstätigkeit
 - 2.5 Zeitlicher Ablauf der Forschungsabschnitte
- 3 **Untersuchung der Vorgänge in Deponiekörpern**
 - 3.1 Entwicklung des physikalischen Modells als Ausschnitt aus dem Inneren eines Deponiekörpers aus Siedlungsabfällen in Verbindung mit der Methode zur Verkürzung des Zeitmaßstabs
 - 3.1.1 Ausschnitte aus Siedlungsabfalldeponien unterschiedlicher biologischer Stabilität als Lysimeter
 - 3.1.2 Modellanlage zur Prüfung der biochemischen Stabilität deponierter Kunststoffe
 - 3.2 Die direkte Messung langfristiger Emissionen aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Deponietechnik und der chemischen Belastung (co-disposal)
 - 3.2.1 Ziel der Messungen
 - 3.2.2 Erfüllung der Anforderungen nach Kap. 2 bei der Versuchsdurchführung
 - 3.2.3 Zeitlicher Ablauf der Untersuchungen
 - 3.2.4 Ergebnisse der Messungen
 - 3.2.4.1 Eignung der Versuchsanlage zur Simulation der wesentlichen Deponiebedingungen
 - 3.2.4.2 Wasser- und Feststoffhaushalt
 - 3.2.4.3 Belastung der Sickerwässer aus dem Abbau natürlicher Stoffe nach den Kriterien der Siedlungswasserwirtschaft
 - 3.2.4.4 Verfrachtung und Elimination pathogener Keime (z.B. aus Krankenhausabfällen)
 - 3.2.4.5 Abbau und Verfrachtung toxischer industrieller Abfälle
 - 3.2.4.6 Abnahme der biologischen Aktivität im ruhenden Material
 - 3.2.4.7 Reaktivierung der Abbau- und Emissionsvorgänge
 - 3.2.4.8 Stabilität der bodenähnlichen Substanz
 - 3.2.4.9 Stabilität von Kunststoffen im Deponiekörper
 - 3.2.4.10 Übertragung des zeitlichen Verlaufs der Stabilisierungsvorgänge auf die Vorgänge in Betriebsdeponien
- 4 **Möglichkeiten und Grenzen der Elimination von Belastungen aus Siedlungsabfalldeponien durch die Selbstreinigung der belasteten Gewässer**
 - 4.1 Grundlagen der Untersuchungen
 - 4.2 Modelle zur Untersuchung langfristiger biologischer und chemischer Selbstreinigungsvorgänge
 - 4.2.1 Fließende Oberflächengewässer
 - 4.2.2 Intensiv bewirtschafteter Oberboden (A-Horizont) bei der Abwasserlandbehandlung

- 4.2.3 Porengrundwasserleiter
- 4.2.3.1 Gegenstand und Ziel der Grundwasseruntersuchung
- 4.2.3.2 Konstruktion der Versuchsanlage
- 4.3 Eliminationsleistungen und deren Grenzen
- 4.3.1 Selbstantreinigung turbulenter Fließgewässer
- 4.3.2 Sickerwasserreinigung im intensiv bewirtschafteten Oberboden (A-Horizont)
- 4.3.3 Elimination von Belastungen in Porengrundwasserleitern
- 4.3.3.1 Messtechnische Erfassung der Vorgänge
- 4.3.3.2 Emissionen aus industriell nicht gezielt belastetem Siedlungsabfall (ohne co-disposal) (die Resultate sind gültig für beide Deckschichten)
- 4.3.3.2.1 Saure Anfangsphase der Deponie
- 4.3.3.2.2 Permanent aerober, waldbodenähnlicher Zustand des Deponieinhalts
- 4.3.3.3 Einfluss industrieller Ablagerungen (co-disposal)
- 4.3.3.3.1 Schwermetalle (Galvanikschlamm), Cyanide (Härtesalze), Phenole (Phenolschlamm)
- 4.3.3.3.2 Ringförmige chlorierte Kohlenwasserstoffe und Stickstoffverbindungen (Lindan, Simazin, Terbutylazin, Atrazin, Lindan+Chlorphenol (altes Holzschutzmittel als Kombinationspräparat))

5 Folgerungen für den Trinkwasserschutz

Literatur

Annex S. 65 - 102: Englische Übersetzung des deutschen Textes

1 Veranlassung und Inhalt der Publikation

2009 erschien unmittelbar nach Fertigstellung der Forschungsarbeiten im Telford-Verlag die abschließende Publikation eines interdisziplinären Langzeitprogramms in Buchform:

Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (eds.), 2009: Long-term hazard to drinking water resources from landfills. London: Thomas Telford Publishing Ltd., 525 S., 209 Abb., 59 Tab., ISBN 978-0-7277-35133.

Eine deutschsprachige Version ist 2006 im E. Schmidt-Verlag, Berlin, erschienen (ISBN-13: 978 3 503 09302 1). Die dort unter Vorbehalt mitgeteilten Ergebnisse zur Selbstentzündung von Kunststoffablagerungen konnten durch die nunmehr abgeschlossenen Messungen bestätigt werden.

Die nachfolgend vorgestellten Ergebnisse wurden von 63 Wissenschaftlern aus 17 wissenschaftlichen Instituten (Tab. 1) innerhalb eines Zeitraums von 35 Jahren erarbeitet. In den abschließenden Publikationen wurden von den Herausgebern aus dem großen Umfang der Ergebnisse nur diejenigen publiziert, die erstens durch Mehrfachmessungen abgesichert waren und die zweitens sowohl mit den Ergebnissen innerhalb der beteiligten Fachgebiete als auch insgesamt mit den zeitlich aufeinander folgenden Ergebnissen der unabhängig voneinander arbeitenden Gruppen übereinstimmten. Prognosen wurden nach dem Rückbau realer Deponien geprüft. Die hier mitgeteilten Ergebnisse sind deshalb gesichert im Sinne der naturwissenschaftlichen Vorgaben zur experimentellen Forschung. Sie widerlegen alle derzeit üblichen administrativen Annahmen zum langzeitigen Schutz der Trinkwasservorkommen vor Belastungen aus Abfalldeponien. Umfang und vor allem Dauer der Belastungen fallen nämlich ein bis zwei Zehnerpotenzen höher aus als in den noch gültigen Nachsorgeprogrammen vorausgesetzt wird, vor allem für persistente chlorierte Kohlenwasserstoffverbindungen. Demzufolge ist auch die langfristige Gefährdung der Trinkwasservorkommen durch ungesicherte Ablagerungen um eine Zehnerpotenz größer ist als bisher angenommen, so dass sowohl die Kapselungen alter Deponien und Abfallablagerungen nach neuem Standard nur als gesicherte Zwischenlager mit zeitlicher Begrenzung zu betrachten sind. Diese Ergebnisse veranlassten die Autoren, mit der vorliegenden Publikation Wissenschaftler und Praktiker des Umweltschutzes und besonders der Wasserwirtschaft auf die oben genannten Bücher aufmerksam zu machen.

Die Publikationen belegen vor allem, dass mit dem vorgestellten Forschungsprogramm die Anforderungen der Natur- und Ingenieurwissenschaften an eine experimentell vollständige und eindeutige Untersuchung bezüglich der langzeitigen Wirkungen von Deponien auf Gewässer erstmals erfüllt werden konnten. Der entscheidende Unterschied zu den bisher zu diesem Thema veröffentlichten Forschungsarbeiten besteht darin, dass hier im geometrischen Modellmaßstab 1:1 zum ersten Mal die Zeitmaßstäbe für hydraulische Vorgänge um eine Zehnerpotenz auf 1:10 und für biologische Abbauvorgänge um zwei Zehnerpotenzen auf 1:100 verkürzt wurden. Die Langzeitwirkungen waren dadurch direkt messbar. Die bisher bekannten Aussagen zur Langzeitwirkung mussten aus Ergebnissen kurzzeitiger Laborversuche extrapoliert oder aus Messungen an und in Betriebsdeponien indirekt abgeleitet werden, weil sich für Laboranlagen keine Modellgesetze erarbeiten ließen. Die Messergebnisse solcher Untersuchungen stimmen mit den Ergebnissen des Forschungsprogramms überein. Widerlegt wurden die Extrapolationen und indirekten Schlussfolgerungen.

Die Ergebnisse des Forschungsprogramms werden nachfolgend in kurzen Übersichten zusammengefasst. Zur Anwendung ist die vollständige Publikation heranzuziehen.

Tab. 1: Am Forschungsprogramm beteiligte Institutionen; Institute und Wissenschaftler werden in der zeitlichen Reihenfolge ihrer Beteiligung aufgeführt (Nennung der Autoren ohne Titel).

Technische Universität (TU) Braunschweig
(1) Leichtweiß-Inst. für Wasserbau, Abt. Landwirtschaftlicher Wasserbau u. Abfallwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. H.-J. Collins P. Spillmann, H.-J. Collins, J. Regner, M. Namuth, K. Münnich, F. Brammer, W. Stenzel, M. Röcklein
(2) Institut für Siedlungswasserwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. R. Kayser H.-J. Ehrig, R. Stegmann, K. Kruse
(3) Institut für Ökologische Chemie und Abfallanalytik, Prof. Dr. Dr. M. Bahadir J. Gunschera, J. Fischer, W. Lorenz, M. Bahadir
(4) Institut für Mikrobiologie; Technische Umweltmikrobiologie Prof. Dr. H.-H. Hanert M. Kucklick, P. Harborth, H.-H. Hanert,
Justus Liebig-Universität Gießen
(5) Institut für Mikrobiologie und Landeskultur, Prof. Dr. E. Küster W. Neumeier, E. Küster, Z. Filip
(6) Institut für Bodenkunde und Bodenerhaltung E. Homrighausen
Philipps-Universität Marburg
(7) Medizinisches Zentrum für Hygiene und Medizinische Mikrobiologie, Prof. Dr. K.-H. Knoll K.-H. Knoll, K.-D. Jung, R. Walter-Matsui
Institut Fresenius Taunusstein-Neuhof
(8) Chemische und Biologische Laboratorien, Prof. Dr. W. Fresenius W. Schneider, H. H. Rump, H. Gorbauch, K. Herklotz, J. Henatsch
Christian Albrecht-Universität Kiel
(9) Geologisch-Paläontologisches Institut und Museum, Prof. Dr. G. Mattheß G. Mattheß, D. Boening, R. Keller, M. Isenbeck, W. Kretschmer, A. Pekdeger, J. Schröter
Friedrich Wilhelms-Universität Bonn
(10) Institut für Agrarchemie, Prof. Dr. Kick; M. Lohse
Biologische Bundesanstalt für Land- und Forstwirtschaft Braunschweig
(11) Institut für Unkrautforschung, Prof. Dr. W. Pestemer H. Nordmeyer, W. Pestemer, K. Herklotz; H.-P. Malkomes; S. Diekmann, H. Dibbern
GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit Neuherberg
(12) Institut für Hydrologie, Prof. Dr. H. Moser P. Maloszewski, H. Moser, W. Stichler, P. Trimborn, H. Behrens
Universität (TH) Karlsruhe
(13) Engler-Bunte Institut, Prof. Dr. F.-H. Frimmel G. Abbt-Braun, F.-H. Frimmel, M. Weis
Bundesgesundheitsamt
(14) Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, Langen, Prof. Dr. Z. Filip Z. Filip, R. Smed-Hildmann
Universität Rostock
(15) Institut für Landschaftsbau und Abfallwirtschaft, Fachgeb. Abfallwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. P. Spillmann G. Ballin, P. Hartmann, P. Spillmann, F. Scholwin, M. Franke, P. Degener, T. Dörrie, H. Eschköller
(16) Institut für Bodenkunde und Pflanzenernährung, Prof. Dr. P. Leinweber R. Beese, K.-U. Eckhardt, G. Jandl
Hessisches Landesamt für Bodenforschung Wiesbaden (Beratung)
(17) Abt. Hydrogeologie, Prof. Dr. G. Mattheß, Prof. Dr. A. Golwer

2 Konzeption des Forschungsprogramms nach den Anforderungen von Natur- und Ingenieurwissenschaften

2.1 Anforderungen an eine beweiskräftige experimentelle Forschung

Die Grundanforderungen an eine beweiskräftige experimentelle Forschung in den Natur- und Ingenieurwissenschaften sind bekannt:

- Allseitig kontrollierbare und eindeutig definierte Versuchsbedingungen
- vollständige Erfassung aller relevanten Einflüsse
- Minimierung der Messtoleranzen und Fehlerfortpflanzungen durch Messung "von außen nach innen" bzw. "vom Großen ins Kleine"
- reproduzierbare Ergebnisse
- Ableitung übertragbarer Erkenntnisse

Wegen materiell oder zeitlich oft sehr aufwändiger Versuche war es notwendig, bereits im ersten Versuchsdurchgang zuverlässige und in die Praxis übertragbare Ergebnisse zu erhalten. Die Qualität der Forschungsarbeiten wurde anonym von unabhängigen Gutachtern vom Konzept über die Durchführung bis zum Endresultat beurteilt. Die Gutachter wurden in der Regel von den Sponsoren bestimmt.

Wegen der besonderen Bedeutung des nachhaltigen Trinkwasserschutzes wurde dieses Forschungsprogramm nicht nur von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) als Schwerpunktprogramm "Schadstoffe im Grundwasser, Teil A" gefördert, sondern auch maßgeblich vom Land Niedersachsen, der Volkswagen-Stiftung, der EU Kommission (DG XI. E3), dem Ministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi) und privaten Firmen finanziert. Im Regelverfahren wurde die Forschungsleistung jedes der 17 Institute jährlich zunächst doppelt anonym geprüft und dann das Gesamtprojekt im Zusammenhang begutachtet, wobei in Schwerpunktprogrammen die Forschung einer besonders strengen Prüfung der Experten der DFG unterliegt. Das hier vorgestellte Programm gehörte nicht nur zu den fachlich umfangreichsten auf dem Gebiet der Deponieforschung (vgl. Tab. 1), sondern auch zu den am gründlichsten extern geprüften Forschungsprogrammen.

Langfristige Untersuchungen zu biologischen Prozessen können nicht kurzfristig gestoppt und wiederholt werden. Sie erfordern deshalb eine schnell reagierende interne Prüfung der Ergebnisse zusätzlich zur externen Begutachtung. Mögliche Probleme waren bereits im Ansatz erkennbar, weil die Projektbeteiligten in eigenverantwortlichen Gruppen an denselben Anlagen arbeiteten, die Forschungsmethoden der fachlich benachbarten Gruppen kannten und deren Ergebnisse zur Interpretation der eigenen benötigten. Da die Ergebnisse aller Gruppen miteinander kompatibel sein mussten, wurden so vor allem Unstimmigkeiten deutlich, die sich auf unterschiedliche Fachgebiete hätten auswirken können.

Die entscheidende Kontrolle blieb stets die Übereinstimmung mit der Wirklichkeit. Sie wurde durch die zeitlich parallele Anwendung der Erkenntnisse in der Praxis sichergestellt (Dörrie et al., 2009).

2.2 Beteiligte wissenschaftliche Institutionen und deren Aufgaben

Aus der Liste der zu beachtenden Zusammenhänge und der noch offenen Fragen (Tab. 2) wird deutlich, dass zahlreiche naturwissenschaftliche Disziplinen und zwei Spezialgebiete des Bauingenieurwesens für eine aussagekräftige Forschungsarbeit erforderlich waren.

Tab. 2: Relevante Modellgesetze und Einflussgrößen zur Untersuchung des Verhaltens von Abfalldeponien und zu erforschende Zusammenhänge.

A) Während der Versuchspräparation bekannte Zusammenhänge und Modellgesetze

a) Wasserbewegungen

- Schwerkrafteinfluss: Froude
- Zähigkeit: Reynolds
- Oberflächenspannung + Kapillarität: Weber
- Laminare Strömung in Haufwerksporen: Darcy

b) Gaskonvektion und Diffusion

- Konvektion
- grobe Poren: Reynolds
- feine Poren: Darcy
- Diffusion: Fick

c) Deformation des Haufwerks

- elastisch: Cauchy-Riemann
- plastisch: Terzaghi (Konsolidierung)

d) Energieaustausch

- Wärmeleitung
- physikalischer Energietransport durch Stoffbewegungen mit und ohne Änderungen des Aggregatzustands
- chemischer Energietransport durch energiehaltige Abbauprodukte

B) Zu erforschende Zusammenhänge

a) Wasserhaushalt:

- Zusammenhang zwischen klimatischer Wasserbilanz und Wassereintritt in den Deponeikörper
- Verhältnis von Speicherung und direktem Abfluss durch grobe Poren
- Änderung der Speicherkapazität infolge Abbauvorgängen und Konsolidierung

b) Biologische und chemische Vorgänge

- Abbauumfang und Abbauprodukte der natürlichen organischen Stoffe in Abhängigkeit von den Ablagerungsbedingungen
- Konservierung und Aktivierung von Abbauvorgängen
- Elimination pathogener Keime
- Möglichkeiten und Umfang des Abbaus synthetischer organischer Verbindungen
- Festlegung und Mobilisierung umweltrelevanter Elemente und Verbindungen
- Änderungen der physikalischen und chemischen Bedingungen infolge von Abbauvorgängen

Nach dem heutigen Kenntnisstand deckten die nachfolgend aufgeführten Forschungsgebiete mit den ihnen zugewiesenen Aufgaben alle in Tab. 2 aufgeführten Einflüsse ab (Kennziffern der beteiligten Institute vgl. Tab. 1):

Bauingenieurwesen

- (1) Wasserbau: technische Versuchsdurchführung des Forschungsvorhabens, bestehend aus Modelltheorie, Bau und Betrieb großer Modellkörper zur Darstellung von Anfalldeponien und Grundwasserleitern im Maßstab 1:1, Durchführung von Reaktivierungsversuchen, Strömungs- und Stoffstrommessungen und deren Berechnungen, Wasserhaushalt und Feststoffbilanzen; Koordination des Forschungsvorhabens, Verantwortung für die fachübergreifenden Publikationen
- (2) Siedlungswasserwirtschaft + Abfallwirtschaft: Auswahl repräsentativer Siedlungsabfälle; Analysen und Charakterisierung der Sickerwässer nach den Kriterien der Siedlungswasserwirtschaft; Prüfung der biologischen Abbaubarkeit der Inhaltsstoffe in biologischen Kläranlagen in Analogie zu Fließgewässern

Geologie + physikalische Geologie

- (9) (17) Hydrogeologie: Materialauswahl und Materialprüfung repräsentativer Grundwasserleiter, deren Deckschichten und des Grundwassers; Messung geochemischer Reaktionen; fachübergreifende statistische Auswertung der Ergebnisse des gesamten Forschungsvorhabens
- (12) Hydrometrie: Messung von Sickergeschwindigkeiten, Verdunstungsvorgängen, Wasserspeicherung und -neubildung durch die Bestimmung der natürlichen Umweltisotope ^2H und ^{18}O ; differenzierte Messung von Stofftransporten durch unterschiedliche Tracer

Chemie

- (8) (3) (11) Auswahl typischer Industrieabfälle und Pestizide als Modellsubstanzen eines co-disposal
- (8) Chemische Analytik der Siedlungsabfälle und deren Grundbelastungen
- (8) (3) Transportverhalten und Abbauvorgänge typischer chemischer Belastungen aus der industriellen Produktion einschließlich der Zwischenstufen von Abbauvorgängen
- (8) (11) (3) Spezialanalysen zum Abbau persistenter organischer Verbindungen
- (11) Charakteristik von Sorption, Transport und Abbauverhalten der Pflanzenschutzmittel

Agrarchemie

- (10) Abbau der Belastungen von Sickerwässern im A-Horizont eines landwirtschaftlich genutzten Bodens

Spezielle Huminstoffanalytik

- (6) (14) Charakterisierung huminstoffähnlicher Feststoffe
- (13) Charakterisierung der gelösten organischen Stoffe
- (16) Kombination der Pyrolyse-GC/MS und der Pyrolyse-FIMS zur stofflich definierten Charakterisierung der flüssigen und festen Organik

Mikrobiologie und Umwelthygiene

- (5) (4) Mikrobiologische Besiedlung der Abfälle in Abhängigkeit von den Abbauvorgängen
- (5) (11) (4) Messung der biologischen Aktivität
- (7) Transport und Überlebensdauer pathogener Keime
- (6) (4) ökotoxikologische Untersuchungen

Physikalische Chemie + Biochemie

- (15) Mikrobiologisch induzierte exotherme Abbauvorgänge in Kunststoffmonodeponien

2.3 Mindestumfang der Modelldarstellung

Die Belastungen der Trinkwasservorkommen durch Sickerwässer aus Abfalldeponien lassen sich nur beurteilen, wenn zumindest folgende Vorgänge untersucht werden:

- a) Emission belastender Stoffe des Deponiekörpers auf dem Wasserpfad
- b) Elimination von Schadstoffen durch Selbstreinigung:
 - in Oberflächengewässern
 - im A- und B-Horizont des belebten Oberbodens
 - im Grundwasserleiter (C-Horizont)

Zu a): Konzeption der Untersuchung von Deponiekörpern:

Bereits die ersten zwei Modellgesetze nach Tab. 2 (Froude und Reynolds) erfordern die Untersuchung der hier zu bestimmenden Zusammenhänge im Versuchsmaßstab 1:1. Diese Bedingung wird durch Untersuchungen an Deponien erfüllt. Die übrigen, in Tab. 2 aufgeführten Vorgaben, vor allem die allseitige Beherrschung der Versuchsbedingungen, erfüllen solche Untersuchungen nicht. Verringert man den Versuchsmaßstab und errichtet eine geometrisch ähnliche verkleinerte Modelldeponie, um so die Vorgänge beherrschen zu können, nimmt die Masse mit der dritten Potenz der Länge ab, die Oberfläche aber nur mit der zweiten Potenz der Länge. Geometrisch ähnliche Modelldeponien messen deshalb Randeffekte, nicht aber die Vorgänge im Inneren des realen Deponiekörpers. Beherrschbare und vergleichbare Bedingungen lassen sich nur dann herstellen, wenn das Modell einen Ausschnitt aus dem Inneren eines Deponiekörpers repräsentiert. Diese Aufgabe war vor Beginn des Hauptversuchs zu lösen.

Zu b): Messung der Eliminationsleistungen in Trinkwasservorkommen:

Hierzu war die kurz- und langfristige Elimination von Belastungen durch aktuell und dauerhaft anfallende Sickerwassereinträge zu prüfen. Die Prüfverfahren wurden vor Beginn des Hauptversuchs ausgearbeitet und umfassten sowohl die Vorgänge an der Emissionsquelle als auch die langfristigen Emissionen selbst.

Oberflächengewässer:

Abbauvorgänge in biologischen Kläranlagen lassen sich im Labormaßstab ebenso simulieren wie den stofflichen Abbau in Oberflächengewässern. Wird dabei als Substrat ein langfristig zu erwartendes Deponiesickerwasser verwendet, lässt sich auch die Langzeitwirkung bestimmen.

Passage durch den A- und B-Horizont eines belebten Oberbodens:

Die Untersuchung der Bodenpassage von Sickerwässern im belebten Oberboden gehört in der Agrarwissenschaft zum Stand der Versuchstechnik. Die Selbstreinigung auf dem Sickerweg bis zur Dränung stimmt dabei in der Versuchsanordnung 1:1 mit der Realität überein. Die Langzeitwirkung wird erfasst, indem man parallel zum Sickerwasser der sauren Anfangsphase einer Deponie auch die Reinigung des Sickerwassers aus der permanent aeroben Deponie-Endphase überprüft.

Grundwasserleiter:

Die hydraulische Darstellung eines Grundwasserleiters ist Stand der Technik im experimentellen Wasserbau, wobei der geometrische Maßstab 1:1 einzuhalten ist. Zur Bestimmung langfristiger Eliminationsvorgänge mussten deshalb wegen der begrenzten Versuchsdauer und einer begrenzten Fließstrecke sowohl der Zeitmaßstab als auch die Fließstrecke verkürzt werden. Auch diese modelltheoretische Aufgabe war vor Beginn des Hauptversuchs zu lösen.

2.4 Organisation der langfristigen interdisziplinären Forschungstätigkeit

Aus anderen umfangreichen interdisziplinären Forschungsprogrammen wie Sonderforschungsbereichen waren typische Schwächen interdisziplinärer Langzeitprogramme bekannt. Durch fortlaufende innere und äußere Qualitätskontrolle und die Prüfung und gegebenenfalls Übernahme neuer Forschungsimpulse wurde in diesem Programm versucht, solchen Tendenzen entgegenzuwirken. Deshalb wurden folgende Bedingungen eingehalten:

- a) Forschungsarbeit aller Fachdisziplinen am gemeinsam entwickelten, identischen Forschungsgegenstand (zentrale Versuchsanlage) in einem fortlaufend abgestimmten koordinierten Gesamtprogramm; dezentrale Anlagen der Forscher dienten der Klärung von Detailfragen.
- b) Unabhängigkeit und Eigenverantwortung jedes Forschers oder jeder Forschergruppe (keine Einschränkungen durch fachliche Weisungsbefugnis eines Forschungsleiters), sowie uneingeschränktes Publikationsrecht;
- c) Ständige Prüfung der Kompatibilität der Forschungsergebnisse der einzelnen Fachgebiete und unverzügliche Klärung von Differenzen unter Leitung des Koordinators;
- d) Volle Integration der Forscher in der Fachdisziplin der jeweils beteiligten Institution und damit Sicherstellung des neuesten Standes der fachspezifischen Forschung;
- e) Offener Zugang einschließlich ergänzender Beteiligung zum laufenden Forschungsprogramm für jeden kompetenten Forscher unabhängig von der institutionellen Zugehörigkeit (z.B. Hochschule, Amt mit Forschungstätigkeit, privatrechtliche Forschungsinstitution).
- f) Verpflichtung jedes Forschungsteilnehmers zur ständigen interdisziplinären Zusammenarbeit und fortlaufenden Abstimmung der Arbeiten und Ergebnisse mit gemeinsamer jährlicher Berichterstattung;
- g) abgestimmte Gliederung des Programms in definierte Forschungsabschnitte mit gemeinsamer Publikation der Ergebnisse in Buchform; neue Gliederung der Forschergruppe für den nachfolgenden Abschnitt;
- h) fortlaufende Prüfung der Versuchsergebnisse durch deren Anwendung in der Praxis.

Zum Umfang der jährlichen externen Prüfungen durch die von den Förderern bestellten Gutachter, vgl. Abschnitt 2.1.

2.5 Zeitlicher Ablauf der Forschungsabschnitte

In der vorliegenden Publikation werden Ausführung und Ergebnisse nach fachlichen Zusammenhängen und nicht nach dem zeitlichen Ablauf gegliedert:

Vorgänge in Deponiekörpern

- Entwicklung der Modelldarstellung von Siedlungsabfalldeponien
- Untersuchung von Ursache und Dauer der flüssigen Emissionen aus unterschiedlich betriebenen und verschieden hoch mit industriellen Reststoffen belasteten Siedlungsabfalldeponien

Eliminationsleistung bei potentiellen Trinkwasserressourcen:

- in Oberflächengewässern,
- bei der Passage durch den belebten Oberboden (A- und B-Horizont),
- im Porengrundwasserleiter.

Der zeitliche Ablauf des Programms lässt sich in folgende Forschungsabschnitte aufteilen, deren Ergebnisse jeweils als gemeinsamer Forschungsbericht in Buchform publiziert wurden (zu den Ziffern (1) (2) etc. siehe Tab. 1):

1972-1985: Vorbereitung und Ergänzung des Forschungsvorhabens

(1) (2) (6) (7) (8) (17) Konzeption des Forschungsprogramms, Entwicklung der Versuchsanlagen, Optimierung der biologischen Stabilisierung im Vergleich zur damals üblichen Deponietechnik; Finanzielle Förderung durch: Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) und das Bundesland Niedersachsen.

Publikationen: Spillmann & Collins, 1978 u. 1979; Spillmann, 1989.

1976-1981: 1. Forschungsabschnitt

(1) (2) (5) (6) (7) (8) (9) (10) (11) (17) Untersuchung kurz- und mittelfristiger Reaktionen in Deponiekörpern nach unterschiedlicher Ablagerung und unterschiedlich hoher industrieller Belastung und der resultierenden Emissionen. Arbeitsschritte: Aufbau und Betrieb von 10 Großlysimetern mit intensiver Beprobung; Bestimmung des biologischen Abbaus von Belastungen des Müllsickerwassers in Kläranlagen und bei der Landbehandlung; Abbau von 3 parallel betriebenen Lysimetern nach 5 Betriebsjahren incl. Wägung und Analyse der zerlegten Teile.

Finanzielle Förderung durch: Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) für die einzelnen Forschergruppen (Normalverfahren).

Buchpublikation: Spillmann, P., (Hrsg.), 1986: Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkungen auf Gewässer. DFG-Forschungsbericht. Weinheim, VCH, ISBN 3-527-27121-X.

1978-1991: 2. Forschungsabschnitt

(1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Untersuchung von Selbstreinigungsvorgängen in Porengrundwasserleitern nach Zutritt der Dotierung mit unterschiedlich hoch belasteten Müllsickerwässern;

Finanzielle Förderung durch: Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) im Forschungsschwerpunktprogramm "Schadstoffe im Grundwasser, Teil A".

Abschlußbericht als Buchpublikation: Spillmann, P., H.-J. Collins, G. Mattheß, W. Schneider (Hrsg.), 1995: Schadstoffe im Grundwasser. Band. 2: Langzeitverhalten von Umweltchemikalien und Mikroorganismen aus Abfalldeponien im Grundwasser. DFG-Bericht, Weinheim, VCH-Verlag, ISBN 3-527-27133-3.

1981-2008: 3. Forschungsabschnitt

Messung der Langzeit-Vorgänge in Deponiekörpern und deren Wirkungen auf die Emissionen

1981-1992: (1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Langzeit-Beobachtung der Deponiekörper des Hauptversuchs.

1986-1993: Ergänzung des Programms: Untersuchung des Recyclings unterschiedlicher Intensität auf die Belastungen der Sickerwässer (5 Großlysimeter).

Finanzielle Förderung durch: Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG), Forschungsschwerpunkt "Schadstoffe im Grundwasser, Teil A".

1992-1994: (1) (3) (4) Untersuchung der Reaktivierbarkeit von Abbau- und Emissionsvorgängen mit dem Material des Hauptversuchs.

Finanzielle Förderung durch: Volkswagen-Stiftung.

Publikation: Brammer et al. (Hrsg.), 1997.

1994-2008: (15) (16) Untersuchung von Instabilität und Selbstentzündung abgelagerter Kunststoffe sowie der Einstufung bodenähnlicher Substanz nach den Kriterien der Huminstoffanalytik; Fachübergreifende Auswertung der Ergebnisse des vollständigen Forschungsprogramms und der Anwendung der Ergebnisse in der Praxis.

Finanzielle Förderung durch: EU-Kommission (DG XI.E3); Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi).

Abschlussbericht als Buchpublikation: Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (eds.), 2009: Long-term hazard to drinking water resources from landfills. London:

Thomas Telford Publishing Ltd., ISBN 978-0-7277-3513-3.

3 Untersuchung der Vorgänge in Deponiekörpern

(zu den beteiligten Forschern vgl. Kennziffern in Tab. 1)

3.1 Entwicklung des physikalischen Modells als Ausschnitt aus dem Inneren eines Deponiekörpers aus Siedlungsabfällen in Verbindung mit der Methode zur Verkürzung des Zeitmaßstabs

3.1.1 Ausschnitte aus Siedlungsabfalldeponien unterschiedlicher biologischer Stabilität als Lysimeter

Ziele der Entwicklung:

- A Konstruktion eines Lysimeters als Ausschnitt aus dem Inneren eines Deponiekörpers im Modellmaßstab 1:1
- B Verkürzung des Zeitmaßstabs für die hydraulischen und biochemischen Vorgänge
- C Auswahl von Deponiebetriebstechniken und Abfällen für den Hauptversuch

Ausführung:

Erste Versuchsserie:

6 stauchbare Großlysimeter, gefüllt mit ländlichem Hausmüll und geringfügig variierender Dichte, aerober Abbau, etwa 2 Jahre Beobachtungsdauer (Spillmann u. Collins, 1978 u. 1979)

Zweite Versuchsserie:

10 stauchbare Großlysimeter, gefüllt mit einwohneräquivalenten Hausmüll- und Klärschlammengen; Vergleich zwischen Gemischen (5 Lys.) und Schichten (5 Lys.) sowie aerober Vorbehandlung (8 von 10 Lys.) und anaerober Frischverdichtung (2 von 10 Lys.), 5 Jahre intensive Beprobung; danach Aufbau eines extrem verdichteten, permanent aeroben Deponiekörpers aus dem Material der 5 aerob stabilisierten Müll-Klärschlammgemische, 8 Jahre Beobachtung (Spillmann 1988 u. 1989)

Dritte Versuchsserie:

Optimierung der Aufbereitung zur aeroben Stabilisierung einwohneräquivalenter Müll-Klärschlammgemische; 36 Mischungsvarianten und 8 Wiederholungen als Mieten (Spillmann, 1988).

Durchführende Wissenschaftler

Versuchsausführung: (1) P. Spillmann, Stenzel

Erfolgskontrolle:

- Sickerwasser: (2) Knoch, Stegmann, Ehrig
- Feststoff: (6) Homrighausen

Ergebnisse:

A Konstruktion des Modellkörpers als Lysimeter

Mit einem Großlysimeter nach Abb. 1 sowie Abb. 2 als Ausschnitt aus dem Inneren eines Deponiekörpers lässt sich für Siedlungsabfall der Maßstab von 1:1 realisieren. Das Lysimeter ist allseitig kontrollierbar. Das Ausgangsmaterial, hier deutscher Siedlungsabfall ohne Gewerbeabfall und Sperrmüll, wurde ohne Zerkleinerung mit identischer Dichte wie in der Großausführung verdichtet. Die Wände waren stauchbar und wärmegedämmt, aber nicht dehnbar (kein Siloeffekt). Der Durchmesser von 5 Metern richtete sich nach den Abmessungen der Grobfraktion der Abfälle. Für den hier verwendeten Siedlungsabfall betrug die Randabwei-

chung von der durchschnittlichen Abfallzusammensetzung weniger als 10 %. Der anaerobe Zustand einer üblichen Verdichtungsdeponie konnte mit den dargestellten Gassperren über eine Zeitspanne von mehr als 10 Jahren auch hier eingehalten werden. Der hydraulische Randeinfluss ließ sich nach sorgfältigem Einbau der Abfälle selbst dann auf Null senken, wenn durch eingebaute Schlammschichten die Wirkung von Stauhorizonten gezielt untersucht wurde.

Die Messungen erfolgten nach dem Prinzip "vom Großen zum Kleinen". Die Summe der Wirkung des Abbaus und der Wasserspeicherung ließ sich durch Wägung der gesamten Massen vor dem Einbau und nach Ende des Versuchs direkt messen. Das abfließende Sickerwasser wurde an Ort und Stelle vollständig erfasst, ebenso die Höhe des Niederschlags nach den Normen des Wetterdienstes, dessen tatsächliche lokale Höhe zusätzlich mit mehreren Regenmessern auf der Lysimeteroberfläche kontrolliert wurde. Die Ergebnisse dieser Messungen bildeten die Rahmenbedingungen für Detailuntersuchungen, für die je nach Bedarf Gas-, Feststoff- und Sickerwasserproben seitlich aus dem Lysimeter entnommen werden konnten. Das Bauprinzip nach Abb. 1 hätte auch den Bau wesentlich höherer und thermisch vollständig beherrschbarer Deponieausschnitte ermöglicht (zum Prinzip vgl. Kap. 3.1.2). Die am Projekt Beteiligten machten von dieser Möglichkeit jedoch keinen Gebrauch (Spillmann und Collins, 2009).

B Verkürzung der Zeit im geometrischen Maßstab 1:1

B.1 Wasserhaushalt:

Der kapillare Wasseraufstieg ist selbst in extrem hoch verdichteten Müll-Klärschlammgemischen vernachlässigbar gering (Mulchwirkung), und die Verdunstung von der Abfallobерfläche bleibt auf ca. 20 mm beschränkt (Abb. 3). Mit Bewuchs sind für die durchwurzelte Zone die agrar- und forsthydrologischen Berechnungen anzusetzen. Der Niederschlagseintrag ist allein abhängig von klimatischer Wasserbilanz (z. B. berechnet nach HAUDE) und Oberflächengestaltung, unabhängig von der Deponiehöhe und dem Deponiealter.

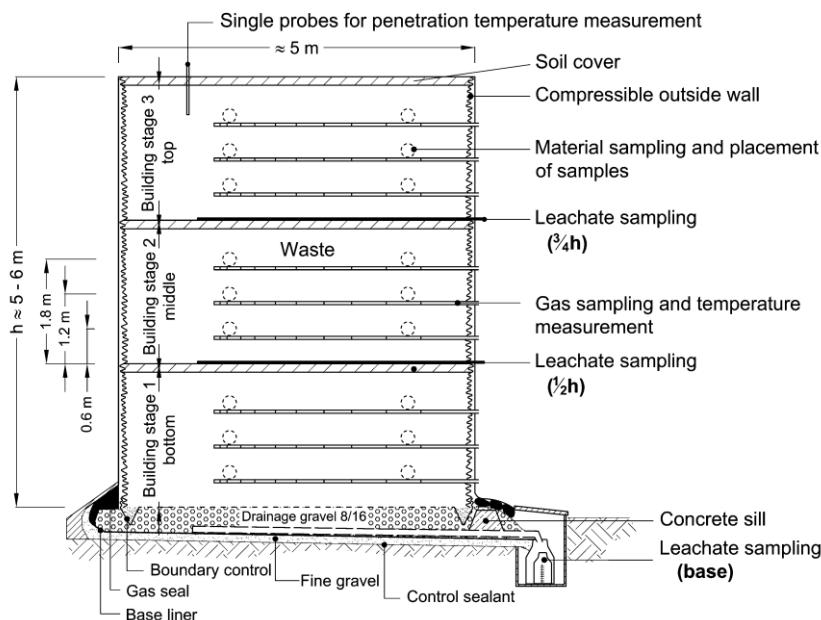


Abb. 1: Aufbau eines Großlysimeters (Lys. 1). *Construction of a large-scale lysimeter (lys. 1).* (Spillmann, 2012)

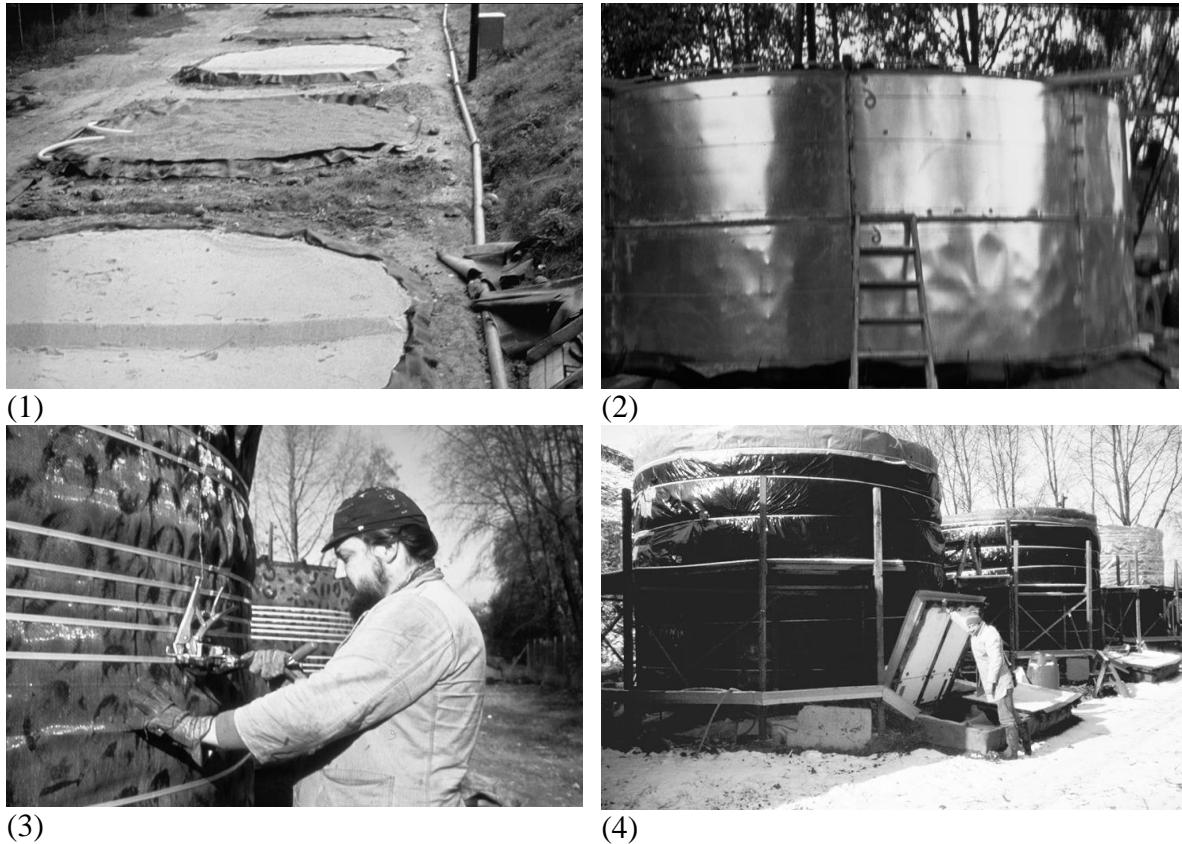


Abb. 2: Aufbauphase: (1) Unterbau, (2) Schalung, (3) Spannvorgang nach Abfalleinbau, (4) Endzustand mit Dämmung u. Regenschutz. *Construction phase: (1) base, (2) mould, (3) tensioning, (4) final state with insulation and rain shield.* (Fotos: Spillmann, 2012)

Abflusssummen [mm]

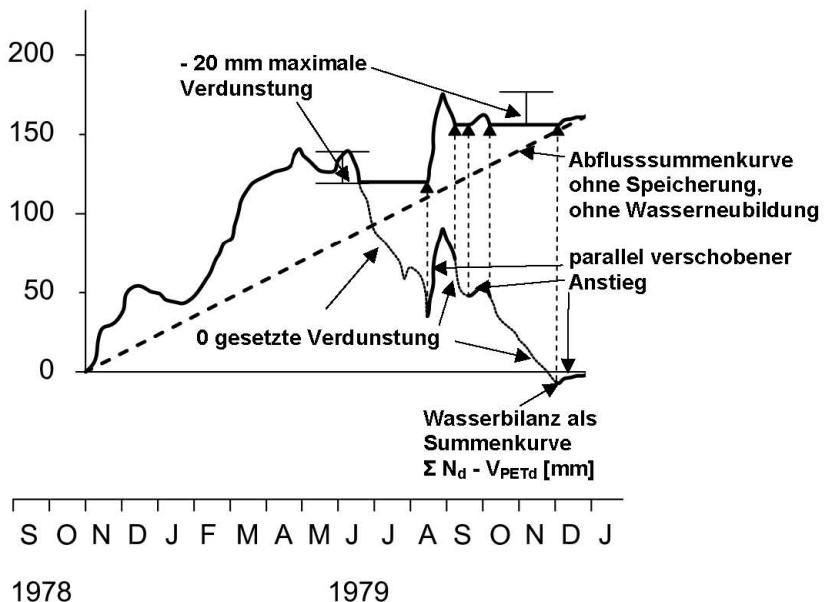


Abb. 3: Klimatische Wasserbilanz n. HAUDE: Zusammenhang zwischen Niederschlagseintrag und Sickerwasser-Neubildung bei angenommener maximaler Verdunstung von 20 mm. *Climatic water balance after HAUDE: Relation between precipitation input and leachate recharge at an assumed evaporation maximum of 20 mm.* (Spillmann, 2012)

Folgerungen aus der modelltechnischen Zeitverkürzung:

Der abschließende Wert der Wasserspeicherung wurde am konsolidierten, bodenähnlichen Endzustand gemessen. Durch den Parallelbetrieb mehrerer Deponieausschnitte im Großlysimeter nach Abb. 1 bei gleichem Abfall, jedoch unterschiedlichen Deponietechniken und daraus resultierenden unterschiedlichen Abbaugeschwindigkeiten, ließen sich die betriebstypischen Speichervorgänge an Deponieausschnitten von nur 4 - 6 m Höhe innerhalb von ca. 5 Jahren durch Wägung bestimmen und auf die ca. 10fach höheren Betriebsdeponien umrechnen (Spillmann, 2009a, Maloszewsky et al., 2009). Dies verkürzte den Zeitmaßstab im Vergleich zur Messung an der Großausführung um den Faktor 10 auf ein Verhältnis von 1:10.

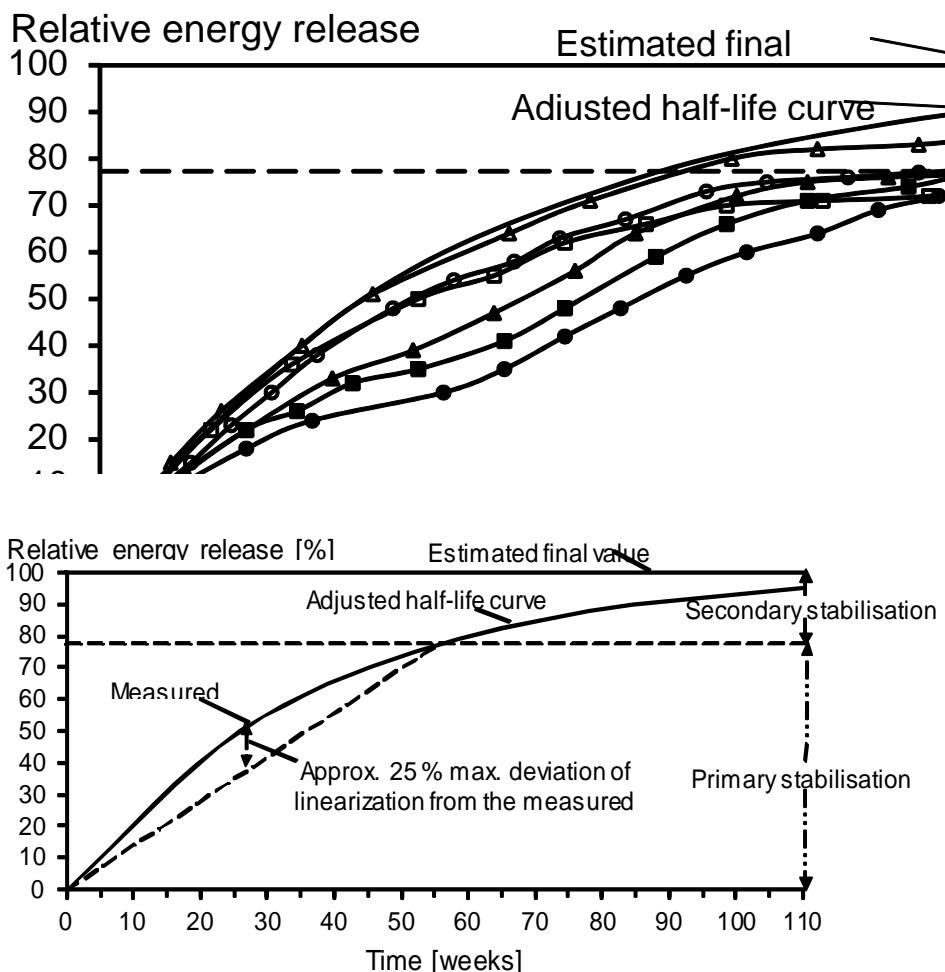


Abb. 4: Ableitung der biologischen Primärstabilisierung aus der Energieabgabe des aeroben Abbauvorgangs; (oben) Energieabgabe und biologische Stabilisierung versch. sohlbelüfteter Tafelmieten, (unten) Linearisierung der Halbwertszeitkurve bis zur Primärstabilisierung. *Derivation of primary biological stabilisation from energy release of the aerobic degradation; (top) energy release of biological stabilisation of bottom ventilated flat windrows, (bottom) linearization of the half-life curve up to primary stabilisation..* (Spillmann, 2012)

B.2 Biochemische Stabilisierung:

Die Umwandlung organischer Abfälle in ein humusähnliches Material verläuft proportional zur Energieabgabe. Die erforderliche Reaktionszeit hängt entscheidend von den Lagerungsbedingungen ab, während der Endzustand stets gleich bleibt (Abb.4 oben). Bei optimaler Aufbereitung, günstiger Wasserversorgung und aeroben Lagerungsbedingungen erreicht ein einwohneräquivalentes Müll-Klärschlammgemisch bereits nach einem Jahr die Reaktions-

trägeit eines Waldbodens. Der Vorgang kann zeitlich mit einer Kurve der Halbwertszeit charakterisiert werden. Nach Kompaktierung auf durchlüfteter und entwässerter Basis halten die Konzentrationen der Sickerwasser-Inhaltsstoffe die zur Zeit in Deutschland geltenden Mindestanforderungen für die Einleitung in den Vorfluter ein, wenn das Gewässer nicht unmittelbar zur Trinkwasserversorgung genutzt wird (Spillmann, 1988).

Folgerungen zur Ableitung der modelltechnischen Zeitverkürzung:

Der permanent aerobe Endzustand lässt sich im Modell innerhalb von zwei Jahren erreichen. Ein Beleg dafür war, dass in einer Probe von etwa 10 kg Material nach luftdichtem Abschluss bei einem Wassergehalt von 30 - 35% und einer Temperatur von 20 – 25 °C selbst nach einer Lagerzeit von 4 Wochen das Redoxpotential nicht mehr für die Bildung von Eisensulfid ausreichte. Die Sauerstoffzehrung entsprach der eines Waldbodens, wobei zudotierte, leicht abbaubare Substanz (z. B. Pepton) ohne Abbauhemmung vollständig veratmet wurde. Die danach vorhandene biologische Aktivität verringerte die organische Masse nur noch unwesentlich und bewirkte einen aeroben Umbau der huminstoffähnlichen niedermolekularen Substanzen zu stabilen hochmolekularen Stoffen. Wird der Abfall in diesem Zustand kompaktiert, kann daraus ein permanent aerober Deponiekörper aufgebaut werden. Im Falle eines späteren Eingriffs in die Deponie ist dann keine Reaktivierung der Abbauvorgänge zu erwarten (Nachweis s. Kap. 3.2.4.7). Der Zustand kann deshalb als biologische Primärstabilisierung analog zur Primärkonsolidierung nach Terzaghi (Abb. 5) definiert werden: Dieser wird erreicht, wenn der Überdruck des Porenwassers gegen Null strebt, eine biologische Primärstabilisierung dann, wenn der Sauerstoffbedarf für den aeroben Abbau organischer Substanz gegen Null tendiert. Da der Sauerstoff durch Diffusion in den kompaktierten Deponiekörper eintritt, sobald der innere Gasdruck gegen Null strebt, lässt sich dieser Gasaustausch nach dem Fickschen Gesetz mit derselben linearen Abhängigkeit beschreiben wie der Wasserabfluss aus bindigem Boden nach Darcy. Außerdem kann die Kurve der Halbwertzeit des ungestörten aeroben Primärabbaus (bei hohem Redoxpotential) hinreichend genau linearisiert werden (Abb.4 unten). Mathematisch entspricht das der linearen Federkonstante im Terzaghi-Modell (Abb. 5), so dass wegen dieser Identität beider Ansätze, nämlich der Berechnung der biologischen Primärstabilisierung und der Berechnung der Primärkonsolidierung, Terzaghis Modellgesetz auch hier gilt

$$(H/h)^2 = T/t$$

H Deponiehöhe,
 h Höhe der stabilisierten Schicht
 T Stabilisierungszeit der Deponie
 t Stabilisierungszeit im Modell

(zur vollständigen Ableitung des Modellgesetzes s. Spillmann, 2009a)

Anwendung des Modells:

Das primär biologisch stabilisierte Material wurde mit denselben Abfällen in denselben Lysimetern (= Deponieausschnitten) hergestellt, in denen auch die Abbauvorgänge dieser Abfälle unter den derzeit üblichen Deponiebedingungen untersucht wurden. Dadurch war die Primärstabilisierung als Referenzzustand der Abfälle bekannt. In den derzeit üblichen Deponieausführungen konnte dann parallel am gleichen Standort gemessen werden, mit welcher Geschwindigkeit diese Primärstabilisierung von der Oberfläche in den Körper einer Verdichtungsdeponie eindringt. Bei hinreichend genauer Messung des Fortschritts ließ sich nach der Terzaghi-Analogie der Zeitbedarf errechnen, der zur Primärstabilisierung des ganzen Depo-

niekörpers mindestens erforderlich ist (zu weiteren Details der Ableitung s. Spillmann, 2009a).

Wichtiger Hinweis: Die Primärstabilisierung kennzeichnet nicht das Ende der Nachsorge! Auch während der nachfolgenden Sekundärstabilisierung fließen Sickerwässer ab, die Trinkwasservorkommen erheblich belasten können. Die derzeit geltenden deutschen Grenzwerte für die Einleitung in den Vorfluter waren nur mit besonders sorgfältig aufbereiteten, aerob biologisch stabilisierten Abfallgemischen einzuhalten. Diese Grenzwerte sind für Gewässer zur unmittelbaren Trinkwassergewinnung aber noch zu hoch.

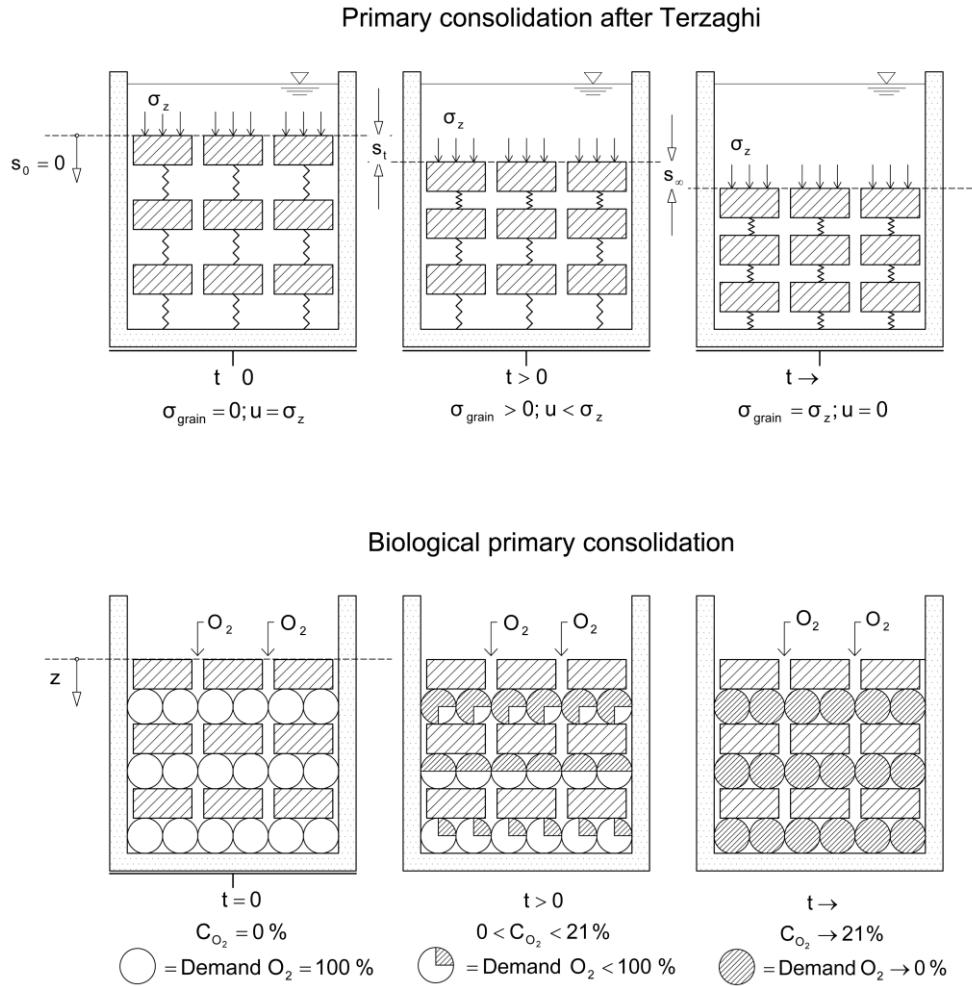


Abb. 5: Ableitung des Modellgesetzes der biologischen Stabilisierung aus der Analogie zum Konsolidierungsmodell nach TERZAGHI; (oben) Primärkonsolidierung nach Terzaghi mit t Zeit, s Fließstrecke, σ Spannung, u Wasserdruck, (unten) biologische Primärstabilisierung mit O_2 Sauerstoff, C Konzentration, t Zeit, z Diffusionsstrecke. *Derivation of the model law for the biological stabilisation from the analogy to TERZAGHI's consolidation model; (above) t time, s flow path, σ stress, σ_{grain} grain stress, u water pressure, (bottom) primary biological stabilisation, O_2 oxygen, C concentration, t time, z diffusion path..* (Spillmann, 2012)

C Auswahl von Deponietechnik und Abfallen für den Hauptversuch

Die Entwicklung des Lysimeters als Deponieausschnitt wurde genutzt, verschiedene Deponietechniken zur Herstellung primär biologisch stabiler Abfälle zu prüfen und mit den üblichen Verdichtungstechniken zu vergleichen. Es stellte sich heraus, dass ein optimiertes, einwohneräquivalentes Haushmüll-Klärschlammgemisch bei störungsfreiem Gasaustausch und kon-

trolliertem Wasserhaushalt bereits nach einem Jahr die primäre Stabilität erreichte (keine Sulfidbildung nach Luftabschluss). Die Konzentrationen der organischen Stoffe im Eluat hielten die Anforderungen an Deponiekategorie II und die Schadstoffkonzentrationen die Anforderungen an Deponiekategorie I ein. Dasselbe optimierte Gemisch, allerdings frisch kompaktiert, erreichte unter den besonders günstigen Bedingungen einer durchlüfteten Basis die gleiche Stabilität erst nach etwa 10 Jahren. Wurde schlammfreier Siedlungsabfall (Kohlenstoffüberschuss) optimal aerob abgebaut, konnte die primäre Stabilität innerhalb des gleichen Zeitraums erzielt werden. Die organische Belastung des Sickerwassers verzehnfachte sich jedoch im Vergleich zum Abfall mit Nährstoffausgleich, analog zu einer "Vertorfung".

Parallel zu den Gemischen wurde der Einbau von Klärschlamm in separaten Schichten geprüft. Dabei ergaben sich wegen der Sperrwirkung Störungen beim Gasaustausch und beim Wasserhaushalt, so dass eine primäre Stabilität nicht erreicht wurde. Auch in normalen verdichteten Deponien traten erhebliche Störungen des Wasserhaushalts sowie eine saure Konservierung der Abfälle auf, die nach 7 Jahren noch unverändert war (Spillmann, 1988). Da der Wasserstau zudem die Standsicherheit von Deponien gefährdet (Gay et al., 1981), sind Schlammablagerungen in Schichten für die Praxis ungeeignet und in Deutschland nicht mehr genehmigungsfähig.

Für den Hauptversuch ergeben sich nach Vorprüfungen folgende Deponietechniken und Materialvarianten zur vergleichenden Prüfung:

- 1 übliche Verdichtungsdeponie ohne Klärschlamm
- 1a Siedlungsabfall, jährlich eine 2 m-Lage mit sandiger Zwischenabdeckung (alte Betriebsgenehmigungen)
- 1b Siedlungsabfall im Dünnschichteinbau (50 cm) innerhalb von etwa drei Monate ohne Zwischenabdeckungen (neue Entwicklung)
- 2 Übliche Verdichtungsdeponie mit einwohneräquivalenten Klärschlammablagerungen in "Linsen" (kompakte, eindeutig umströmbarer Körper)
- 2a Einbautechnik wie 1a
- 2b Einbautechnik wie 1b
- 3 Anaerob verdichtete einwohneräquivalente Müll-Klärschlammgemische (störungsfreie Durchsickerung)
- 3a Einbautechnik wie 1a
- 3b Einbautechnik wie 1b
- 4 Primär stabiles Müll-Klärschlammgemisch als Referenzmaterial
- 4a+4b Parallelen (Nachweis zur Wiederholbarkeit der Ergebnisse)

3.1.2 Modellanlage zur Prüfung der biochemischen Stabilität deponierter Kunststoffe

Ziel der Entwicklung:

Die Instabilität von Kunststoff-Monodeponien bis zum Brand ist aus der Praxis bekannt. Ziel der Forschung war es, Ursachen und Begleitumstände des instabilen Verhaltens zu klären. Ein Modell ist zur Untersuchung geeignet, wenn darin die aus der Praxis bekannten Reaktionen reproduzierbar bis zum Brandbeginn wie in einer Deponie ablaufen.

Ausführung:

Das entscheidende Problem der Modellierung ist im vorliegenden Fall die genaue thermische Übereinstimmung mit der Deponie, insbesondere die Wirkung des Wärmestaues. In dem großvolumigen Laborlysimeter nach Abb. 6 wurde der Wärmeabfluss durch Nachführen der Mantelheizung mit einer Genauigkeit von 0,01 °C, bezogen auf die Innentemperatur, verhin-

dert. Da der Versuch bei Raumtemperatur begann, musste der langsame, in der Praxis bis zu 20 Jahre dauernde Temperaturanstieg bis zur intensiven Reaktionsphase überbrückt werden, indem die Temperatur des Inhalts durch die Mantelheizung zunächst langsam erhöht (z. B. mit 1 °C/Tag) und dann der Temperatur der spontanen Selbsterhitzung nachgeführt wurde. Nach Überschreiten des Siedepunkts im Mantel ließ sich die Reaktionswärme durch Verdampfen des Wassers abführen. Oberhalb 95 °C verhinderte das automatische Abschalten der Mantelheizung einen möglichen Laborbrand.

Durch Bohrungen wurde bereits instabiles Material aus Deponien entnommen und damit Versuche durchgeführt, um die Übereinstimmung mit Vorgängen in der Deponie nachzuweisen. Außerdem wurden Untersuchungen mit fabrikneuen Abfällen angestellt, bei denen Suspensions von bereits adaptierten Mikroorganismen aus realen, sich selbst erhitzen Kunststoffablagerungen als Inokulum zum Einsatz kamen. Dadurch wurde die Adoptionszeit überbrückt.

Ergebnis:

Mit erbohrtem Material aus den heißen Zonen einer Kunststoffdeponie konnte deren Selbsterhitzung reproduzierbar gemessen und die dabei entstehenden Gase gefasst werden. Dieselben Vorgänge ließen auch an fabrikneuen Abfällen wiederholen, wenn sie mit einer Bakteriensuspension aus dem erbohrten Material geimpft wurden. Diese Methode ist deshalb zur Prüfung der Selbstentzündung von Kunststoffablagerungen geeignet (Hartmann et al., 2009; Ballin et al., 2009; Ballin & Hartmann, 2009).

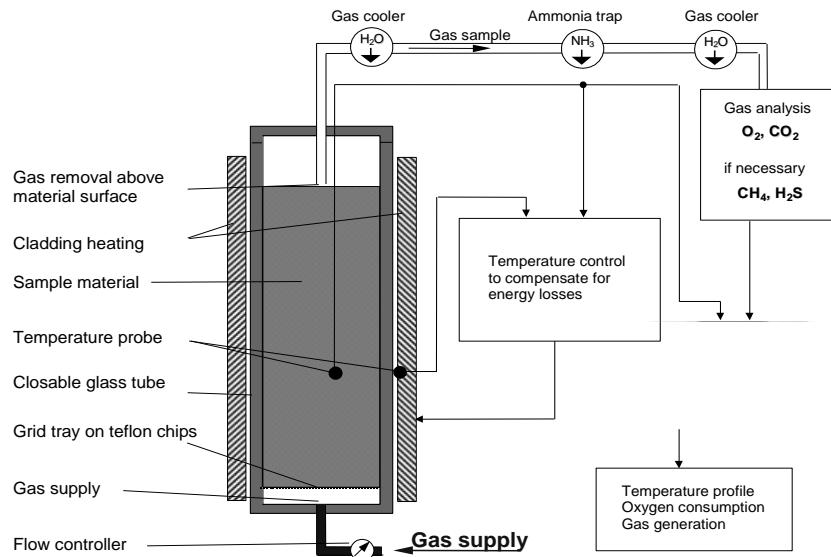


Abb. 6: Schema von Kontrolle und Messanordnungen des Laborlysimeters. *Schematic set-up of the control and measurement principle of the simulation reactor.* (Spillmann, 2012)

3.2 Die direkte Messung langfristiger Emissionen aus Deponiekörpern in Abhängigkeit von der Deponietechnik und der chemischen Belastung (co-disposal)

3.2.1 Ziel der Messungen

Zur Ermittlung langfristiger Emissionen sind folgende Vorgänge zu erfassen:

- Wasser- und Feststoffhaushalt in Abhängigkeit von der klimatischen Wasserbilanz, der Deponietechnik und der industriellen Belastung (co-disposal) (Abb. 7).
- Entwicklungsphasen der Abbau- und Stabilisierungsvorgänge: Aufbau- und Speicherphase, Speichersättigung, schwallartige Mobilisierung des Speicherwassers durch zeitlich begrenzte Störung des kapillaren Gleichgewichts (Starkregen, Schneeschmelze), Freisetzung gespeicherter Wässer durch Abbau der Speicherkapazität und Konsolidierung des Deponiekörpers, Aktivierung der Emissionen in Abhängigkeit vom Wasserhaushalt und der Abbau- und Konsolidierungsvorgänge.
- Prüfung der tatsächlichen Stabilität von stabil erscheinenden Abfallablagerungen: synthetische organische Verbindungen und huminstoffähnliche Substanzen.

3.2.2 Erfüllung der Anforderungen nach Kap. 2 bei der Versuchsdurchführung

s. (1) Spillmann & Collins, 2009

- Allseitige Kontrolle, eindeutige Versuchsbedingungen: Bau der Großlysimeter nach Abschnitt 3.1.1, Abb. 1.
- Vollständige Erfassung aller relevanten Einflüsse:
 - beteiligte Wissenschaftsgebiete: s. Abschnitt 2.2;
 - Deponiebetriebstechniken und Auswahl der Abfälle für den Hauptversuch: s. Abschnitt 3.1.1, Punkt C

Belastungsstufe der Zugabe <i>Contamination stage of addition</i>	Zudotierte Chemikalien, [kg] <i>spiked chemicals</i>					
	<i>Galvanic sludge</i>	Phenol sludge	Barium cyanide	Simazin	Lindane	Dicrotophos
1 niedrig, <i>low</i>	110	130	100	1.5	0.8	0.5
2 mittel, <i>medium</i>)	600	340	100	3.0	1.6	1.0
3 hoch, <i>high</i>	1000	500	200	6.5	10.0	1.5

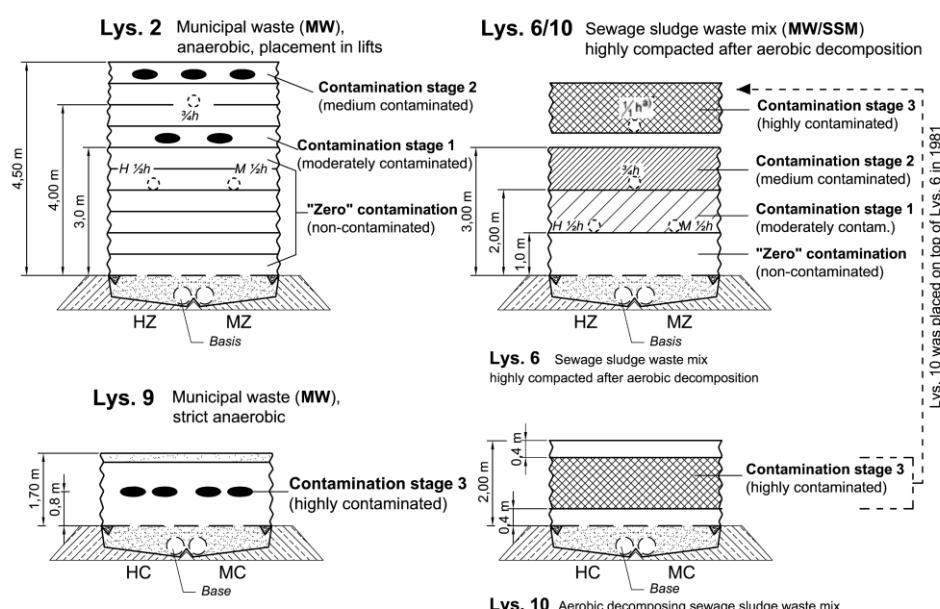


Abb. 7: Lage und Höhe der zudotierten Chemikalien für Lysimeter 2, 6, 9 und 10. *Place and height of the spiked chemicals for lysimeters 2, 6, 9 and 10.* (Spillmann, 2012)

- b3) Differenzierte Darstellung typischer biochemischer Abbauphasen in Deponien: langfristig stabile saure Phase; zügiger Abbau in der Methanphase; rascher, überwiegend aerober Abbau bis zum bodenähnlichen Material.
- b4) Einflüsse des Recyclings auf Siedlungsabfall: Klärschlamm verwertet (nach konsequenter Kontrolle der Einleiter, z. B. in Braunschweig); Klärschlamm verwertet und Wertstoffe getrennt erfasst; Restabfall abgelagert nach getrennter Erfassung aller verwertbaren Abfälle.
- b5) Einlagerung von Industrierückständen (co-disposal): Städtischer Siedlungsabfall aus reinem Wohngebiet mit sehr geringer diffuser Hintergrundbelastung als Versuchsbasis; dreistufige Belastung mit typischen Industrieabfällen mit fortschreitendem Aufbau parallel zu einem unbelasteten Deponieausschnitt mit gleicher Deponietechnik; Dosierung im Rahmen des in Deutschland 1976 noch zugelassenen co-disposals (Abb. 7, 3. Belastungsstufe = zulässiger Maximalwert 1976 in Deutschland); typische Industriebelastungen: Galvanikschlamm (mineralisch, nicht abbaubar), Cyanid (anorganisch, chemisch und biologisch abbaubar), Phenole (organisch, biologisch abbaubar), Lindan (mehrfach chlorierte ringförmige Kohlenwasserstoffverbindung, persistent, schwer wasserlöslich), Simazin (einfach chlorierter Triazinring, schwer abbaubar), Dicrotophos (Phosphor über Sauerstoffbrücken an unterschiedliche Molekülgruppen gebunden, abbaubar) (vgl. Abb. 8).

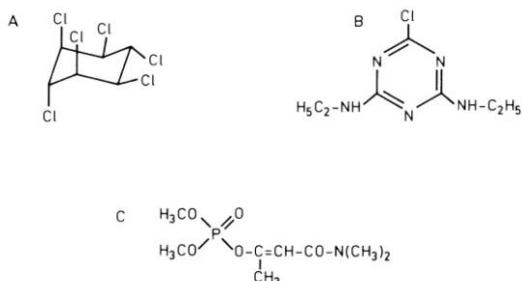


Abb. 8: Strukturformeln der zudotierten Pestizide. A Lindan, B Simazin, C Dicrotophos. *Chemical structure of added pesticides.*

- b6) Stabilitätsprüfung der stabil erscheinenden Substanzen:

Hoher Energieinhalt, chemisch und biologisch schwer angreifbar ("Kunststoffe"): s. Abschnitt 3.1.2 (Hartmann et al., 2009)

Geringer Energieinhalt, schwer abbaubar: Vergleich huminstoffähnlicher Substanzen mit natürlichem Bodenmaterial durch Kombination der analytischen Verfahren Pyrolyse-GC/MS und der Pyrolyse-FI/MS (Franke, 2009)

c) Minimierung von Messtoleranzen und Fehlerfortpflanzungen. Ausführung der Anlage nach Abschnitt 3.1.1 Punkt A, nach dem Messprinzip "von außen nach innen":

"Außen" = integrierende Messungen:

Wägung aller Massen vor dem Einbau und nach dem Abbau der Lysimeter, vollständige Erfassung der Sickerwasserabflüsse nach Masse und Belastung zur Bestimmung der Frachten, Mindestgröße der Materialproben je Deponiestufe ca. 1 m³, 4 Regenmesser je Lysimeteroberfläche, Erfassung der Gase und der mittleren Temperatur auf dem ganzen Lysimeterquerschnitt im Höhenabstand von ca. 25 cm, Kontrolle der Mittelwertmessungen der Temperaturen durch enge Sondenbeprobung;

"Innen" = differenzierende Beprobungen:

Analyse der Sickerwässer auf dem Wege durch den Deponiekörper durch seitliche Ableitung von Proben, Beprobung der Feststoffe durch seitliche Materialentnahmen, Ein- und Ausbau von Testmaterial seitlich in den bzw. aus dem Deponiekörper, lokale Temperaturmessungen an den Einlagerstellen definierter Keime, gezielte Entnahme von Materialproben während des Rückbaues zur Erfassung der Verlagerung gezielt zugegebener

Testsubstanzen (co-disposal) und der Bandbreite biologischer Aktivitäten innerhalb des Abfallkörpers.

d) Übertragbarkeit der Erkenntnisse: Auf den Betriebsdeponien der Landkreise Schwäbisch Hall (Jourdan et al., 1982), Nienburg und Bad Kreuznach wurde die Beschleunigung von Abbauvorgängen großtechnisch erprobt. Die Reaktivierung der Emissionen in stabil erscheinenden alten Deponien wurde u. a. während der Rückbaumaßnahmen der Deponien "Donaupark" (Wien), "Helene Berger" (Wiener Neustadt) und "Fischerdeponie" (Wien) von der ARGE BIOPUSTER, Wien, dokumentiert (Spillmann et al., 1992/93).

3.2.3 Zeitlicher Ablauf der Untersuchungen

1976 - 1981 Anfangsphase der Deponierung

Alle untersuchten Deponietypen wurden zeitlich parallel zu langsam erhöhten Betriebsdeponien mit etwa 2 m pro Jahr in drei Stufen aufgebaut (ausgenommen die getrennt aufgebaute dritte Stufe mit industriellen Abfällen).

1981 Abschlussuntersuchung der Anfangsphase

Nach 5 Jahren wurden 3 parallel betriebene anaerobe Modelldeponien nach schrittweisem Rückbau untersucht (vgl. Abb. 9).

1981-1986 Einfluss der Niederschlagshöhe auf die Emissionen

Während weiterer 5 Jahre wurde der Niederschlag auf den chemisch belasteten Deponieausschnitten gleichzeitig mit dem natürlichen Niederschlag berechnet, um den regenarmen Versuchsstandort einem mitteleuropäischen Standort anzugleichen. Dadurch wurde die Niederschlagsmenge verdoppelt.

1986-1992 Umfassende Kontrolle nach Ende der intensiven Anfangsreaktionen

Während der folgenden 5 Jahre wurden die Messungen am stehenden Material ohne zusätzliche Berechnung bis zum Reaktivierungsversuch weitergeführt.

1992-1994 Reaktivierungsversuch

Innerhalb von 2 Jahren wurde ein Deponierückbau mit aerober Zwischenbehandlung zur beschleunigten Stabilisierung des Abfalls vor der erneuten Verdichtung untersucht. Eingehend gemessen und analysiert wurden die Zustände vor der Aufnahme des Materials, während der Aktivierung und nach der erneuten Kompaktierung. Der Schwerpunkt der Untersuchungen lag beim Verhalten und dem möglichen Abbau der eingelagerten Industrieabfälle (co-disposal).

1986-1993 Einfluss des Recyclings

Mit der Untersuchung von Recyclingeinflüssen wurde begonnen, nachdem die intensive Untersuchung des Gesamtabfalls mit dem Rückbau dreier Lysimeter abgeschlossen war. Auf der Grundlage der am Gesamtabfall gewonnenen Erfahrungen wurden 5 neue Deponieausschnitte mit Recyclingeinfluss (d. h. Gesamtabfall ohne Klärschlamm, anaerob; Recycling der Wertstoffe, anaerob und aerob; Recycling der organischen Stoffe und der Wertstoffe, anaerob und aerob) 6 Jahre lang mit den gleichen Methoden wie der Gesamtabfall untersucht. Der Aufbau ließ sich aufgrund der eindeutigen Ergebnisse auf zwei Stufen mit je 2 m Höhe begrenzen. Nach Ende der Beobachtungszeit wurden die Abfälle unter intensiver Beprobung schichtweise ausgebaut und dabei vor allem Abbau und Verlagerung der industriellen Abfälle ermittelt.

1994-2008 Prüfung der tatsächlichen Stabilität der stabil erschienenen Abfallbestandteile.

Nach Abschluss der großmaßstäblichen Feldversuche wurden innerhalb einer Zeitspanne von 14 Jahren die Reaktionen verschiedener thermoplastischer Kunststoffe ohne und mit Beimengungen von Ebonit (= Produkt aus Naturkautschuk und Schwefel) in thermisch regelbaren Laborreaktoren untersucht. Gleichzeitig wurden huminstoffähnliche organische Stoffe mit der Kombination der Analysenverfahren Pyrolyse-GC/MS und Pyrolyse-FI/MS charakterisiert. 2009 Abschlusspublikation im Thomas Telford-Verlag, London.



Abb. 9: Ausbau ausgewählter Lysimeter 1, 4, 8. (1) Kontrolle der Außenwand L. 4, (2) Wellung der Außenhaut wegen Sackung L. 8, (3) Schnitt durch Ablagerung L. 8, (4) schlammfreier Hausmüll nach 5 Jahren, anaerob L. 1, (5) Müll-Klärschlammgemisch nach 5 Jahren, anaerob, L. 4, (6) Nachweis der Funktionstüchtigkeit der Sickerwasserentnahme, L. 4.

Dismantling of selected lysimeters 1, 4, 8. (1) checking the outside wall L. 4, (2) Waving of the outside skin due to sagging, 8, (3) cut through deposit L. 8, (4) sludge-free waste after 5 years, anaerobic L. 1, (5) mix of sewage sludge/waste after 5 years, anaerobic, L. 4, (6) proof of efficacy of leachate sampling arrangement. (Fotos: Spillmann, 2012)

3.2.4 Ergebnisse der Messungen

Wichtige Vorbemerkung: Die hier aufgeführten Ergebnisse geben Hinweise auf den vollständigen Abschlussbericht. Für die fachliche Anwendung ist die Kenntnis des vollständigen Berichtes erforderlich.

3.2.4.1 Eignung der Versuchsanlage zur Simulation der wesentlichen Deponiebedingungen

s. (15) Spillmann, 2009c

Trotz der geringen Abmessungen ließen sich alle maßgebenden, in Kap. 3.1 aufgeführten Anforderungen erfüllen. Die anaeroben und aeroben Lagerungszustände wurden exakt hergestellt und blieben 15 Jahre stabil. Randabflüsse traten bis auf Kondenswasser während der Startphase in der Variante "Heißrotte" nicht auf. Alle Probenentnahmen (Gas, Wasser, Feststoffe) konnten in der geplanten Form durchgeführt werden. Entscheiden für die Beurteilung der quantitativen Abbauvorgänge erwies sich die Wägung des Materials vor dem Einbau und nach dem Ausbau. Für die Beurteilung von Abbau und Transport von Chemikalien erwiesen sich die Beprobungen während des Ausbaus und des Umbaus (Reaktivierungsversuche) als geeignet.

3.2.4.2 Wasser- und Feststoffhaushalt

s. (1) (15) Spillmann, 2009b, (12) Maloszewski et al., 2009

Wassereintrag:

Der Niederschlagseintrag wird von der klimatischen Wasserbilanz in Verbindung mit dem Mulcheffekt bestimmt (keine kapillare Nachlieferung aus tiefen Deponieschichten während der Wetterperioden mit hoher Verdunstung). Die maximale Verdunstung nach einem Niederschlagsereignis beträgt von der unbewachsenen Betriebsfläche ohne Abdeckung oder mit Sandabdeckung nicht mehr als 20 mm, im Falle einer bindigen Abdeckung ca. 25 mm. Ein Bewuchs ist nach den Berechnungen der Agrarmeteorologie zu berücksichtigen; die Speicherkapazität der Deckschicht begrenzt in jedem Fall die Verdunstung (Abb. 10 u. 11). Die Ergebnisse der Vorversuche wurden somit bestätigt.

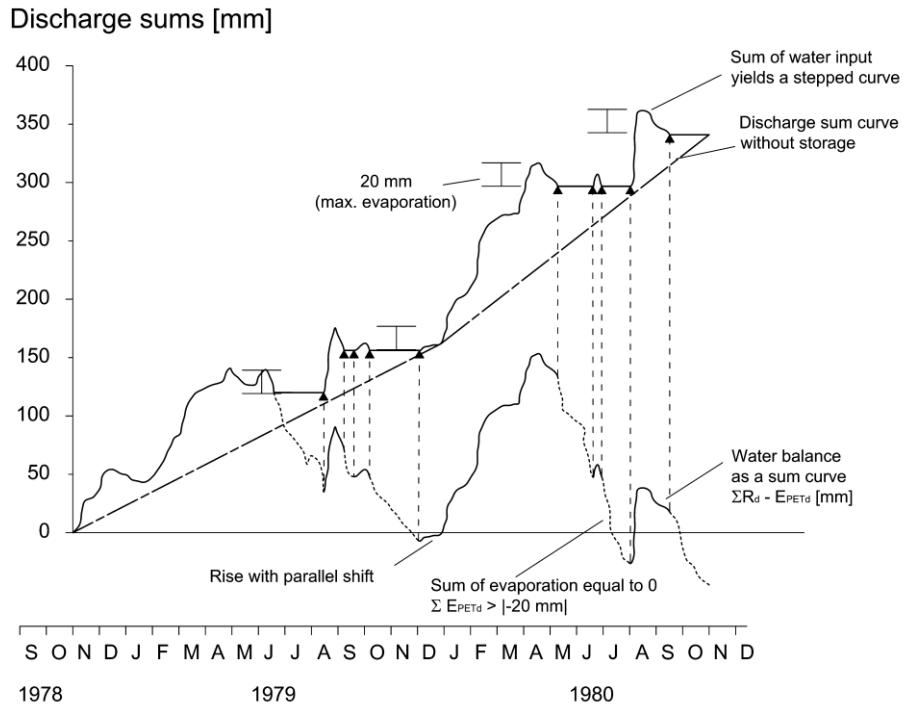


Abb. 10: Herleitung des Niederschlagseintrages in eine Deponieoberfläche aus der klimatischen Wasserbilanz nach HAUDE (1955) zur Ableitung der Deponiesickerwasser-Neubildung; maximal angesetztes Verdunstungsglied = $|-20 \text{ mm}|$. *Establishing the precipitation input into a landfill surface from the climatic water balance after HAUDE (1955) to establish the landfill leachate recharge; maximum evaporation term applied = $|-20 \text{ mm}|$. PETd = Potential daily evapotranspiration.* (Spillmann, 2012)

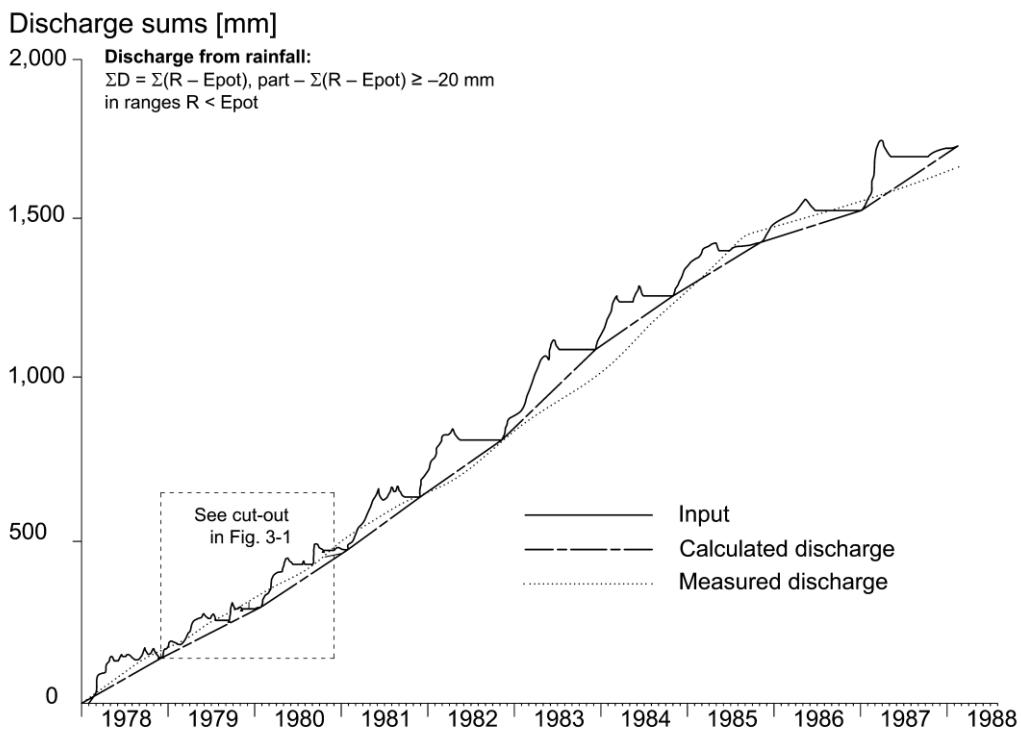


Abb. 11: Vergleich des errechneten Niederschlagseintrages mit dem gemessenen Sickerwasserabfluss nach Speichersättigung über 10 Jahre. *Comparison of calculated rainfall input with the measured leachate discharge after storage saturation over 10 years.* (Spillmann, 2012)

Speicherkapazität:

Die organische Substanz speicherte kapillar etwa so viel Wasser wie ihre eigene Trockensubstanz wiegt. Die Speicherkapazitäten der übrigen Abfallbestandteile sind bekannt, so dass sich die mittlere Kapazität aus der Abfallzusammensetzung errechnen lässt.

Vorgang der Speicherung und der Durchsickerung:

Sickerfronten traten nicht auf. Die zur Zeit der Wasseranlieferung freie Speicherkapazität wurde parallel zum direkten Abfluss in groben Kanälen gesättigt. Der Direktabfluss betrug mindestens 10%, nach intensiven Niederschlägen bis zu 30 % des Niederschlags. Das Gleichgewicht in gesättigten Kapillaren wurde durch intensive Wasserzufuhr, z. B. bei Schneeschmelze, gestört und setzte kurzzeitig in einer „Kettenreaktion“ mehrere Jahre gespeichertes, belastetes Wasser an der Basis frei. Dieser Vorgang täuschte eine Sickerfront vor.

Mobilisierung des Speicherwassers durch Feststoffabbau:

Während der sauren Phase war ein Massenverlust nicht nachweisbar. Der Abbau zu Methan und Kohlendioxid kann die organische Trockensubstanz dagegen um maximal 50 Gew.-% verringern, ein aerober Abbau um 60 Gew.-%. Dabei werden die in der organischen Substanz festgelegten Stoffe freigesetzt (Abb. 11). Durch aeroben Abbau der Feststoffe während der Rotten oder des Methans in den oberen Schichten der Deponie werden ca. 0,5 t Wasser je 1 t TS-Abbau neu gebildet, wodurch sich die Emission freigesetzter Stoffe erhöht.

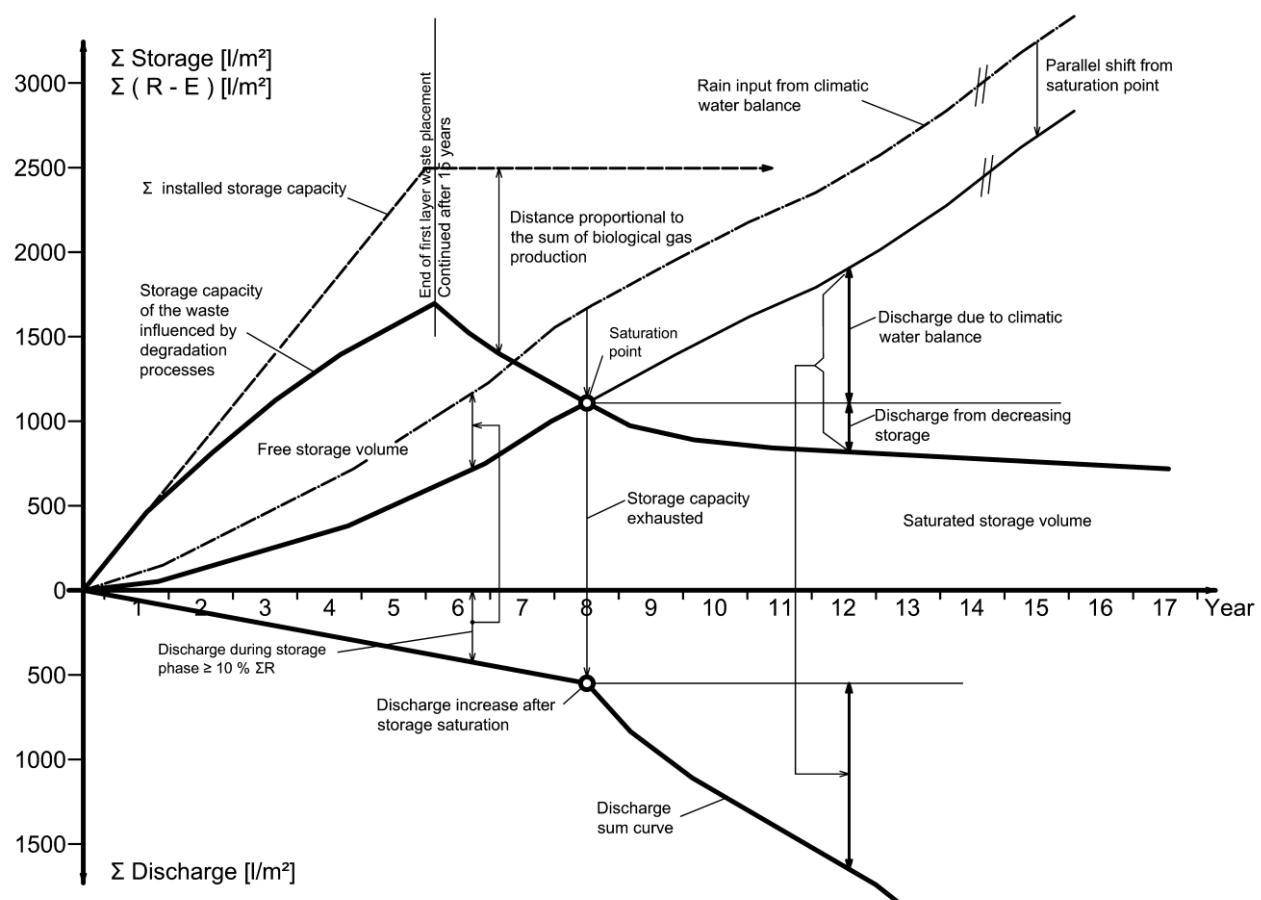


Abb. 12: Berechnung der Wasserbilanz einer Haushaltsmülldeponie mit Summenkurven (vereinfachtes Rechenbeispiel), R Regen E Verdunstung. *Diagram illustrating the water balance calculation of a municipal landfill using sum curves (simplified calculation example), R rain, E evaporation.* (Spillmann, 2012)

3.2.4.3 Belastung der Sickerwässer aus dem Abbau natürlicher Stoffe nach den Kriterien der Siedlungswasserwirtschaft

s. (2) Ehrig, 1986 und (1) (2) (15) Kruse & Spillmann, 2009

Ablagerungen ohne co-disposal:

Die Ablagerungsbedingungen bestimmten die für den Gewässerschutz wesentlichen Sickerwasserbelastungen, während die Abfallzusammensetzung zweitrangig war:

- a) saure Phase: CSB 10.000 bis 60.000 mg/l, vor allem verursacht durch organische, biologisch leicht abbaubare Säuren; Cl^- 1.000 bis 4.000 mg/l, $\text{HCO}_3^- > 2.000$ mg/l; der pH-Sprung an den säureabbauenden Mikroorganismen verursacht einen korallenähnlichen Aufwuchs irreversibler Steinbildung in der Basisentwässerung (Nachweis durch Ramke & Brune, 1990); dies begründete die Vorschrift, dass zumindest die erste Abfallschicht einer Abfalldeponie biologisch stabilisiert werden muss.
- b) stabile Methanphase: NH_4^+ ca. 1.000 mg/l, fischgiftig; $\text{Cl}^- < 1.000$ mg/l, $\text{HCO}_3^- < 500$ mg/l;
- c) aerob stabile Phase: CSB 150 - 2.000 mg /l, biologisch extrem schwer abbaubar; Cl^- und HCO_3^- niedrig, SO_4^{2-} ca. 1.000 mg/l;
- d) Phasenwechsel auf dem Sickerweg: biologisch stabilisierte untere Schichten können die hohe organische Belastung aus der sauren Phase einer neuen Abfallschicht durch biologischen Abbau um ein bis zwei Zehnerpotenzen senken.

Ablagerung mit co-disposal:

Toxische industrielle Ablagerungen verzögerten und beeinträchtigten schon in geringer Dosierung die biologische Stabilisierung und konnten in den bis 1980 zulässigen oder geduldeten Mengen beim co-disposal zur Unterbrechung der Abbaukette führen. Dadurch kam es zu lang anhaltenden hohen Belastungen ähnlich derjenigen der "sauren Phase", allerdings wegen Störung der Abbauketten zu biologisch schwer abbaubaren Stoffen und einem hohen Risiko der Steinbildung an der Basisentwässerung.

Einfluss von Recyclingmaßnahmen:

Maßgebend für die Belastungen der Sickerwässer waren die Ablagerungsbedingungen, die von der Betriebstechnik abhängen. Die beim Gesamtabfall festgestellten Belastungen gelten je 1 t Abfall auch für Restabfall. Bei gleicher Betriebstechnik sinkt die Umweltbelastung pro Einwohner proportional zum Erfolg des Recyclings, bei den hier beschriebenen Untersuchungen um maximal 70 %.

3.2.4.4 Verfrachtung und Elimination pathogener Keime (z. B. aus Krankenhausabfällen)

s. (7) Jung & Knoll, 1986

Anaerobe Verdichtungsdeponie:

In anaerob verdichteten Deponien wurden pathogene Keime nicht abgetötet, sondern mit dem direkten Abfluss über grobe Kanäle ausgetragen.

Aerobe Stabilisierung vor der Verdichtung:

Bei einer sorgfältigen aeroben Stabilisierung vor der Verdichtung wurden mehr als 3 Monate lang Temperaturen von $>60^\circ\text{C}$ erreicht. Dadurch wurden alle Indikatorkeime sowohl auf Keimträgern im Kontakt mit dem Abfall als auch in Ampullen ohne Ausnahme abgetötet.

3.2.4.5 Abbau und Verfrachtung toxischer industrieller Abfälle

s. (8) Rump et al., 2009, (11) Nordmeyer et al., 2009

Lösliche Stoffe (s. Abb. 13):

- anaerobe Ablagerung ungesättigter Abfälle:

Während der Speicherphase wurden alle 4 mineralischen und organischen Modellchemikalien fast unabhängig von ihrer Löslichkeit weitgehend zurückgehalten. Solche Phasen erstrecken sich in Betriebsdeponien ohne biologische Vorbehandlung über mehrere Jahrzehnte. Dabei werden durch den Abbau wassergesättigter organischer Substanz Kapillarwässer freigesetzt und bei zunehmendem Abfluss so lösliche industrielle Schadstoffe emittiert.

- intensive aerobe Stabilisierung mit nachfolgender Verdichtung:

Lösliche Substanzen wurden während des Stabilisierungsvorgangs ausgetragen, verdampfbare Stoffe wie Benzol bei 70 - 80 °C ausgetrieben und abbaubare Substanzen wie Phenol weitgehend abgebaut. Schwermetalle blieben nach der Kompaktierung im stabil basischen Bereich überwiegend immobil.

Die Modellsubstanzen Simazin und Lindan wurden zunächst unabhängig vom Stabilisierungsgrad der Abfälle zu 100 % adsorbiert. Durch nachfolgende Niederschläge kam es jedoch schrittweise zu einer vollständigen Desorption mit einer reversiblen Adsorption in tieferen Schichten. Der Wechsel von Adsorption und Desorption durch diesen "Chromatographieeffekt" verursachte eine stetige und vollständige Verlagerung der Substanzen Richtung Basisabfluss. Die Adsorption am aerob stabilisierten bodenähnlichen Abfall war trotz seines hohen organischen Anteils ähnlich gering und reversibel wie am frischen Abfall und blieb weit hinter der eines anmoorigen Standortes zurück, d. h. die organische Substanz des Abfalls entsprach nicht der eines organischen Bodens.

Schwer lösliche, gut adsorbierbare Stoffe:

Aerober Abbau vor der Verdichtung:

Während der intensiven Abbauvorgänge wurden Lindan und Simazin teilweise metabolisiert und ein Teil der Metabolite vollständig mineralisiert. Nach dieser Phase waren nur noch Transportvorgänge messbar, jedoch kein weiterer Abbau (Abb. 14).

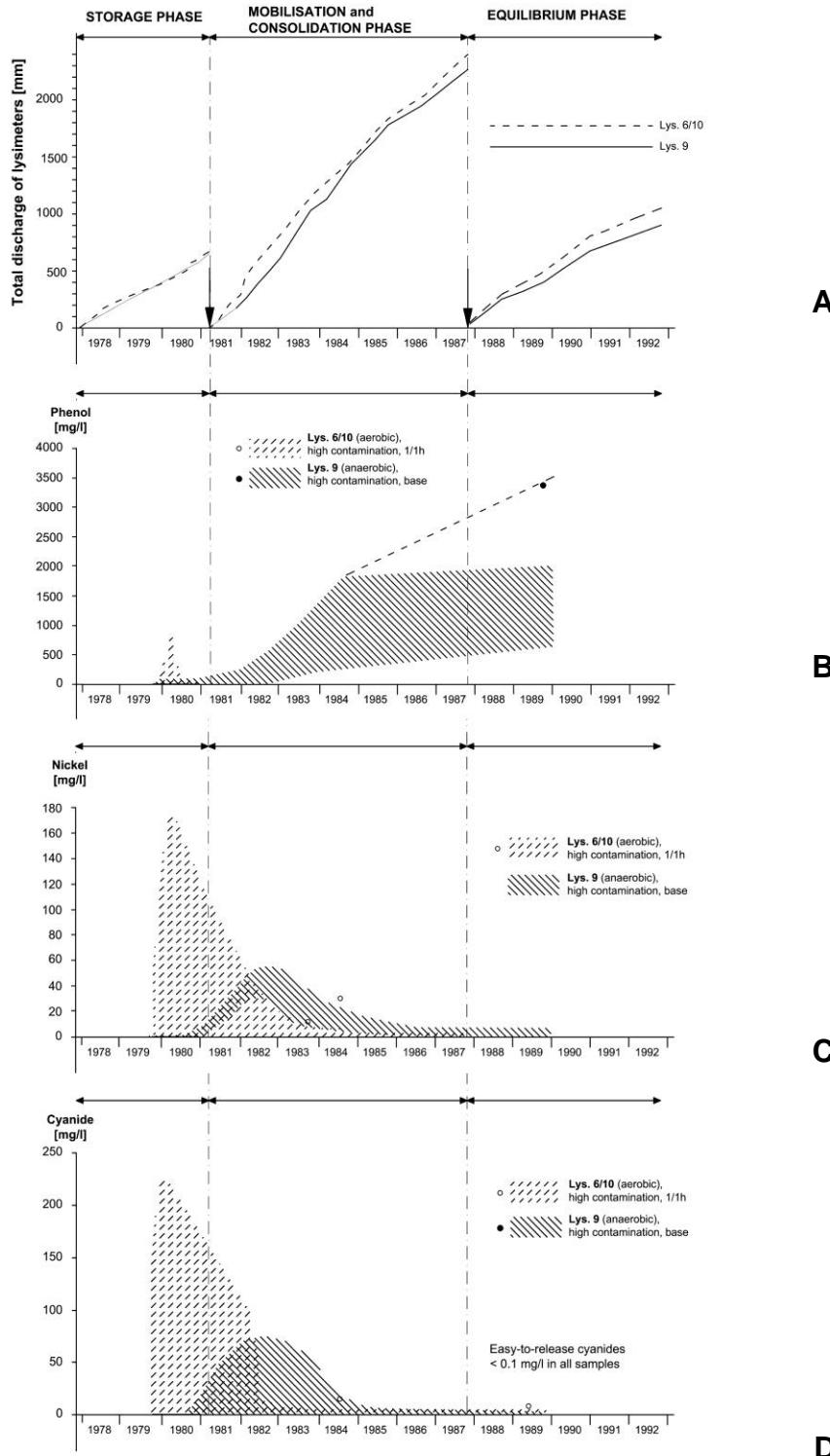


Abb. 13: Verhältnis zwischen Wasserregime 1978 – 1992 (A), Abbauprozessen und der Sickerwas-serbelastung mit Industrieabfällen hoher Konzentrationen von Phenol (B), Nickel (C) und Cyanid (D). Vergleich zwischen dem anaeroben und aeroben Betrieb (Lys. 9 bzw. Lys. 6/10).

Relationship between water regime 1978 – 1992 (A), degradation processes and leachate contamination from industrial deposits with high contaminations of phenols (B), nickel (C), and cyanide (D).

Comparison between anaerobic and permanently aerobic operation (Lys. 9 respective Lys. 6/10).
(Spillmann, 2012)

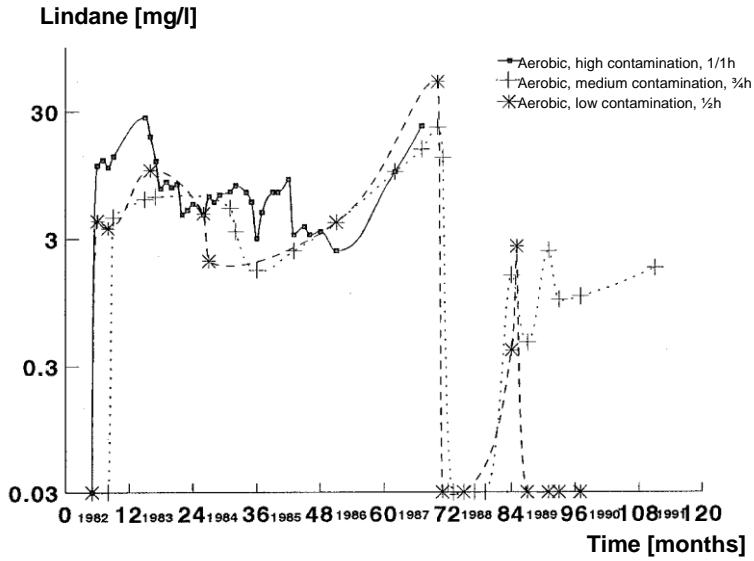


Abb. 14: Konzentrationsverlauf von Lindan im chemisch gering bis hoch belasteten, permanent aeroben Hausmüll-Klärschlammgemisch (Lys. 6/10, $\frac{1}{2}$ h, $\frac{3}{4}$ h, 1/1 h). *Concentration of lindane in chemically low to highly contaminated, permanent aerobic mix of sewage sludge and municipal waste x (Lys. 6/10, $\frac{1}{2}$ h, $\frac{3}{4}$ h, 1/Ih).* (Spillmann, 2012)

3.2.4.6 Abnahme der biologischen Aktivität im ruhenden Material

s. (5) Neumeier & Küster, 2009

Aufbauphase:

Während des langsamen Aufbaus der Deponieausschnitte (2 m/Jahr) wurde etwa nach 10 Monaten eine deutliche Abnahme der biologischen Aktivität gemessen. In Verbindung mit eindiffundierendem Sauerstoff am Ende des intensiven anaeroben Abbaus ließ sich die Bildung von Huminstoffen nachweisen. Durch Zufuhr der leicht abbaubaren organischen Stoffe des Sickerwassers aus der frischen darüber lagernden Schicht wurden die Mikroorganismen wieder aktiviert.

Standzeit nach Ende des Aufbauvorgangs:

Im Verlauf einer 12jährigen Standzeit wurde bei allen Ablagerungen ein weitgehender Stillstand der Abbauaktivität beobachtet, auch wenn bis dahin in dem jeweiligen Deponietyp, z. B. bei lang anhaltender saurer Phase, nur geringe Mengen organischer Substanz abgebaut waren. Dies entspricht nach Umrechnung der Modellhöhe von etwa 6 m einer Nachsorgezeit von ungefähr 30 Jahren bei üblichen Deponien mit Höhen von 50 bis 70 m.

3.2.4.7 Reaktivierung von Abbau- und Emissionsvorgängen

s. (1) (3) (4) Brammer et al., 2009

Siedlungsabfälle ohne co-disposal:

a) Stabil erscheinende anaerobe Ablagerungen:

Anaerob abgelagerte Siedlungsabfälle, in denen bereits 5 Jahre nach Beginn der Ablagerung etwa 40 Gew.-% der organischen Trockensubstanz abgebaut und die stabile Methanphase abgeschlossen war, reagierten nach einer einfachen Durchmischung mit anschließender aerober Lagerung (Naturzug) wie ein frischer Abfall, beispielsweise mit einem Temperaturanstieg auf 70°C.

b) Permanent aerobe Ablagerungen:

In einem permanent aeroben hochverdichteten Müll-Klärschlammgemisch waren nach Mischung und aerober Lagerung (Naturzug) nach den Kriterien der Abfallwirtschaft keine Reaktionen messbar. Nach chemischen und vor allem biologischen Tests entsprach dies dem Verhalten eines Waldbodens (Abb. 15). Die Stabilitätskriterien der Abfallwirtschaft erwiesen sich als notwendig, aber nicht hinreichend zur Charakterisierung der Stabilität.

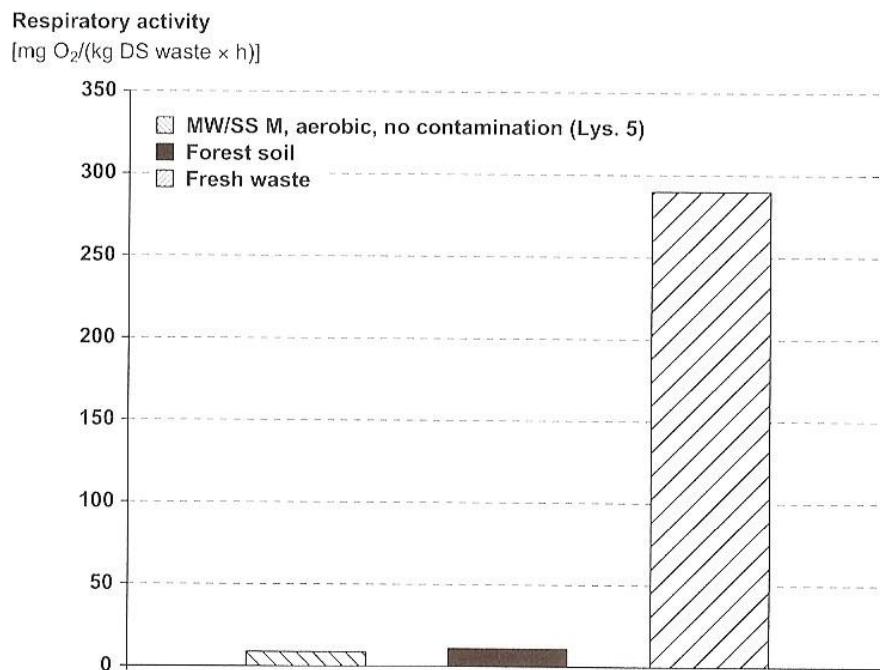


Abb. 15: Vergleich der O₂-Zehrung des permanent aeroben Müll-Klärschlammgemisches (Lys. 5) mit dem A-Horizont eines Waldbodens und der Zehrung eines Frischmülls. *Comparison of O₂ respiration of a mix of permanent aerobic waste and sewage sludge (Lys. 5), the A-horizon of a forest soil, and fresh waste.* (Spillmann, 2012)

Industriell belasteter Siedlungsabfall (co-disposal):

a) Anaerob gering bis mäßig hoch belasteter Siedlungsabfall:

Diese Ablagerungen, die im Ruhezustand stabil erschienen, reagierten gleich intensiv wie unbelasteter Abfall bei der gleichen Deponietechnik. Eingehende chemische und biologische Untersuchungen wiesen jedoch Störungen des Abbauvorgangs nach. Die zudotierten industriellen Belastungen verlagerten sich zwar während der Standzeit, ihre Menge blieb aber gleich wie zu Beginn. Während der aeroben aktiven Phase verdampften flüchtige organische Belastungen infolge der hohen Rottetemperaturen und wurden so emittiert. Der abbaubare Teil der organischen Schadstoffe, vor allem Phenol, wurde ähnlich mineralisiert wie in Müll-Klärschlammgemischen während der aeroben biologischen Konditionierung vor ihrer Verdichtung. Die Emissionen der übrigen toxischen Stoffe nahmen zu. Auch in diesem Fall erwiesen sich die abfallwirtschaftlichen Stabilitätskriterien als notwendig, aber nicht hinreichend.

b) Anaerobe Ablagerung mit hoher Belastung:

Die toxische Wirkung der Belastung führte zu einer Konservierung der Abfälle mit gleichzeitig hoher Sickerwasserbelastung (Unterbrechung der Abbauketten). Nach Mischung und aerober Lagerung der Abfälle blieb der Abbau gehemmt. Die Emissionen toxischer Stoffe nahmen als Folge der Aktivierung erheblich zu (Abb. 16).

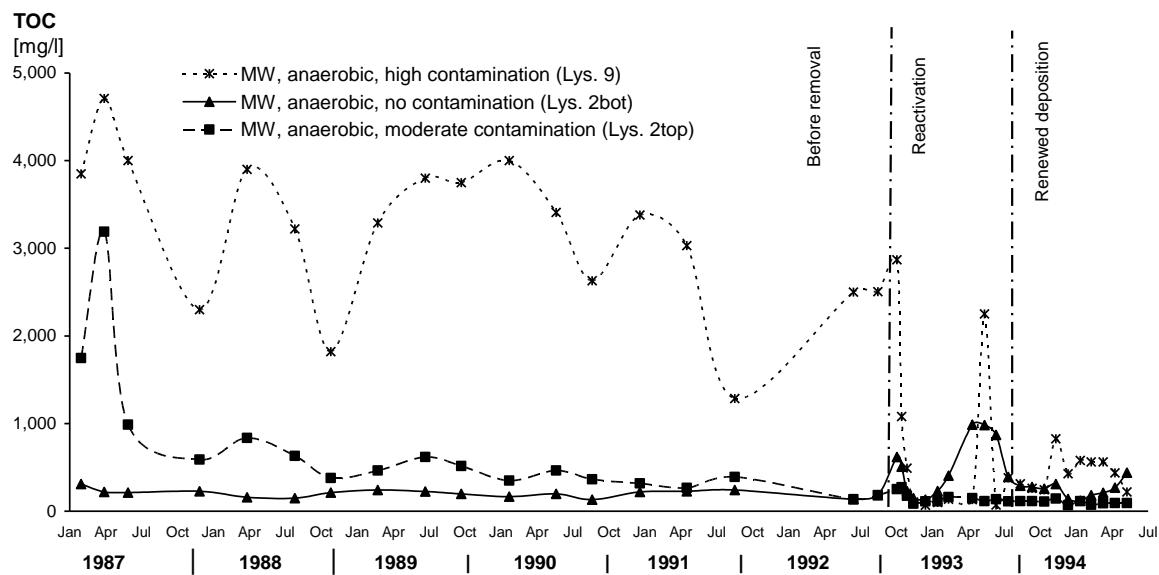


Abb. 16: Vergleich der TOC-Gehalte von Sickerwasserproben aus chemisch unterschiedlich hoch belastetem, ursprünglich anaerobem Hausmüll. *Comparison of TOC-contents in leachate samples from initially anaerobic municipal waste with different chemical contamination..* (Spillmann, 2012)

c) Permanent aerobe Ablagerung mit geringer oder mäßiger Belastung:

Soweit die industriellen Schadstoffe nicht während der aeroben Vorbehandlung vor der Verdichtung gasförmig ausgetrieben oder abgebaut wurden, waren sie vor der Aktivierung noch immer vorhanden, allerdings in Strömungsrichtung verlagert. Trotz gewisser Hemmwirkungen wiesen chemische und biologische Messungen auf Abbauvorgänge hin, die zur Verminderung der ursprünglich zudotierten Pestizide führten, Mischung und aerobe Lagerung verursachten keine Aktivierung der Abbauvorgänge. Im Vergleich zum unbelasteten gleichartigen Material blieb die Stabilisierung hinter dessen Ergebnissen zurück.

d) Permanent aerobe Ablagerung mit hoher Belastung:

Das kompaktierte Material war deutlich weniger stabil als das unbelastete bzw. gering belastete Gemisch. Die Aktivierung für weitergehenden Abbau war gut möglich und verlief günstiger als im anaeroben Material. Trotzdem blieb eine gewisse Hemmwirkung erhalten, begleitet von Emissionen der persistenten und toxischen Abfallbestandteile.

3.2.4.8 Stabilität der bodenähnlichen Substanz, s. (15)(16) Franke, 2009 und Husz, 2009

Gemessen an den Ergebnissen herkömmlicher Huminstoffanalytik ist die organische Fraktion eines bodenähnlich reagierenden Müll-Klärschlammgemisches eine Vorstufe zur Bildung stabiler Huminstoffe. Mineralische Komponenten und einige organische Inhaltsstoffe unterscheiden sich jedoch von denen natürlicher Böden so erheblich, dass die aerob stabilisierten Abfälle nur als Komponenten zur Produktion naturidentischer Böden herangezogen werden können (zertifiziertes Verfahren nach Husz, Langes Feld Wien).

Untersuchungen mit der Kombination von Pyrolyse-GC/MS und Pyrolyse-FI/MS erweiterten und präzisierten die übliche Huminstoffanalytik. Sie zeigten, dass die organischen Kompo-

nennten der behandelten Abfälle ganz erheblich von denen eines natürlichen humosen Boden abweichen und deshalb nicht mit diesem gleichgesetzt werden können.

3.2.4.9 Stabilität von Kunststoffen im Deponiekörper

s. (15) Ballin & Hartmann, 2009 und Ballin et al., 2009

Die Untersuchung der Kunststoffe, z. B der mäßig stabilen Modifikationen des PVC und der stabilen Materialien des Akkumulatorenbaus, erbrachte den Nachweis der Anpassungsfähigkeit von Mikroorganismen des natürlichen Bodens an unterschiedliche Kunststoffe als Nährstoffquelle unter Deponiebedingungen. Die exothermen Vorgänge heizen wegen des Wärmetausch den Abfall auf, die ab 60 °C zur Abspaltung brennbarer Gase führen und das Material bei den ablaufenden mikrobiologischen und chemischen Reaktionen auf mehr als 100 °C erhitzten können. Gasbrände infolge dieser Umsetzungen wurden in Deponien bereits nachgewiesen. Sporen der dabei beteiligten Mikroorganismen können extrem hohen Temperaturen standhalten, so dass die Reaktionen durch technische Maßnahmen, z. B. den Eintrag von flüssigem Stickstoff in die Brandzone der Deponie, zwar zeitweilig unterbrochen, aber nicht langfristig ausgeschlossen werden können.

3.2.4.10 Übertragung des zeitlichen Verlaufs der Stabilisierungsvorgänge auf die Vorgänge in Betriebsdeponien

s. Spillmann, 2009c

Der waldbodenähnliche Zustand wurde nach intensiver Aufbereitung des Siedlungsabfalls nach etwa 16 Monaten aerobem Abbau einschließlich Nährstoffausgleich (hier- einwohneräquivalente Müll- Klärschlammmisschung), stetigem Gasaustausch und stabilem Wasserhaushalt erreicht. Allein mit solchem Material ließen sich permanent aerobe, sehr hoch verdichtete Deponiekörper mit hoher Standfestigkeit herstellen, die den Bedingungen einer "primären biologischen Stabilisierung" entsprachen (s. Abschnitt 3.1.1, Punkt B.2). Bei derartigen Deponiekörpern kann auch in Zukunft gefahrlos nach den Regeln der Geotechnik eingegriffen und die Nachsorge auf eine extensive Kontrolle beschränkt werden.

Bei Abfalldeponien ohne weitgehende Vorbehandlung nahm im günstigsten Fall (d. h. gute Gasdurchlässigkeit, kein innerer Gasdruck, keine toxischen Hemmungen, ausreichende Wasserversorgung ohne Wassereinstau) die primäre Stabilisierung wegen des von außen eindringenden Sauerstoffs mit einer Geschwindigkeit von 1,5 m innerhalb von 10 Jahren zu. Dieser Stabilitätszustand erreicht die Basis einer 50 m hohen Abfalldeponie, aufgebaut aus gleichem Abfall unter gleich günstigen Lagerungsbedingungen frühestens in 11 000 Jahren, nach

$$T_{\text{stabil}} = 10 \times (50 / 1,5)^2$$

(Modellgesetz s. Abschnitt 3.1.1, Punkt B.2).

Die Ablagerung mit den ungünstigsten Abbaubedingungen durch lang anhaltende saure Konservierung (kein messbarer Abbau) wurde in diesem Forschungsvorhaben mit dem gleichen einwohneräquivalenten Müll-Klärschlammgemisch hergestellt, das unter ungestörten aeroben Abbaubedingungen nach nur 16 Monaten die Stabilität eines Waldboden erreicht hatte. Das Material war nach 10 Jahren Lagerzeit noch immer sauer-reversibel konserviert. Der Einfluss eines co-disposal unterbrach die biologische Abbaukette in der sauren Phase so erheblich, dass die hohen, normalerweise leicht abbaubaren organischen Belastungen des Sickerwassers

biologisch sehr schwer abbaubar wurden. Die Dauer der Nachsorge ist für Deponien mit einer solch lang anhaltenden sauren Phase nicht absehbar.

Aus dem Vergleich des zeitlichen Verlaufs der Stabilisierungsvorgänge ergibt sich, dass Belastungen aus den bereits vorhandenen Ablagerungen ohne biologische Vorbehandlung länger als die garantierte Sicherheitsphase der technischen Barrieren dauern. Die längsten Emissionszeiten werden Deponien mit lang anhaltender saurer Phase und co-disposal aufweisen, also die Ablagerungen mit dem höchsten Belastungspotenzial. Diese Schlussfolgerungen aus den Versuchsergebnissen des Forschungsprojekts wurden bestätigt durch die beim Rückbau der Deponien Donaupark (Wien), Helene Berger (Wiener Neustadt) und Fischerdeponie (Wien) auftretenden Reaktionen (zu Einzelheiten s. Dörrie et al., 2009).

4 Möglichkeiten und Grenzen der Elimination von Belastungen aus Siedlungsabfalldeponien durch die Selbstreinigung von Gewässern

4.1 Grundlagen der Untersuchungen

Wasser wird nicht verbraucht, sondern gebraucht. Es bleibt als Trinkwasser so lange nutzbar, wie es nicht irreversibel belastet wird. In Fällen eines besonders hohen Trinkwasserbedarfs wird das als Trinkwasser aufbereitbare Wasser eines Flusses entgegen der Fließrichtung durch Pumpwerke zurückgefördert. Beispiele aus Deutschland sind die Trinkwasser-Pumpwerke im Ruhrgebiet entlang des Flusses Ruhr. Die Nutzungskette bricht ab, wenn die Selbstreinigungskraft der Gewässer nicht ausreicht, die eingeleiteten Stoffe entweder abzubauen oder stabil festzulegen. Bei natürlichen Nutzungsketten sind das z.B. lösliche Salze, die letztlich auch die Nutzung zur Bewässerung ausschließen. Erst die Rückkehr des Wassers in den natürlichen Kreislauf nach Verdunstung und Niederschlag liefert wieder Trinkwasser. Die mögliche Belastung von Trinkwasservorkommen als Folge der in Kap. 3 beschriebenen Emissionen von Deponiesickerwässern lässt sich deshalb nur beurteilen, wenn die sich anschließenden Selbstreinigungsvorgänge untersucht werden.

Vor der Untersuchung sind die Voraussetzungen einer natürlichen Selbstreinigung zu beachten: Abbau- und Festlegungsvorgänge belastender Stoffe sind meist auf die Lebensaktivitäten von Mikroorganismen zurückzuführen. Notwendig für ihre Existenz sind vor allem ausreichende Mengen abbaubarer Wasserinhaltsstoffe. Unbelastete Gewässer weisen deshalb nur geringe Selbstreinigungskräfte auf. Bei einer Gewässerbelastung mit aktivierter Selbstreinigung nimmt während des Abbaus der belastenden Stoffe die Nahrungsgrundlage für die Mikroorganismen und damit die Leistung der Selbstreinigung wieder ab. Die Kurve der Stoffmenge verläuft dabei asymptotisch gegen Null oder sie bricht unterhalb der Mindestkonzentration eines Einzelstoffes ab, der für die Entwicklung der Organismen notwendig ist. Für die anstehenden Untersuchungen ergaben sich daraus folgende Konsequenzen:

- Unmittelbar als Trinkwasser nutzbare Wasservorkommen wie Quellen, Gebirgsflüsse, Gebirgsseen und Trinkwassertalsperren (Gütekasse 1 nach deutscher Klassifizierung) haben eine sehr geringe Selbstreinigungskraft. Deren Eignung als Trinkwasser wird deshalb durch jede Einleitung von Sickerwässern aus Deponien gefährdet. Die Untersuchung einer möglichen Selbstreinigung ist deshalb für diese Trinkwasservorkommen überflüssig.
- Oberflächengewässer, deren Selbstreinigung auf ihrer Fließstrecke durch die natürliche Besiedlung aktiviert wurde (Gütekasse 2 nach deutscher Klassifizierung), sind nach Aufbereitung oder einer Bodenpassage (z. B. Uferfiltration) als Trinkwasser nutzbar. Für die Gewässer ist zu prüfen, ob Inhaltsstoffe von Deponie-Sickerwässern die Nutzung zur Trinkwassergewinnung einschränken.
- Oberflächenwasser, das durch menschliche Nutzung (Haushalt, Landwirtschaft, Industrie und Gewerbe) nicht mehr für Trinkwasserzwecke verwendbar ist, kann durch gezielte Aktivierung der biologischen Selbstreinigung in biologischen Kläranlagen oder im belebten Oberboden (Abwasserlandbehandlung) entlastet werden. Dadurch ist die Einleitung in Gewässer mit aktivierter Selbstreinigung (Gütekasse 2) ohne Nachteil für die weitere Nutzung möglich. Es ist deshalb zu überprüfen, in welchem Umfang diese Techniken auch für Sickerwässer aus Deponien genutzt werden können.

- Grundwasser ist die Vorstufe des Quellwassers. Aus Brunnen gefördertes Trinkwasser ist deshalb hinsichtlich der Wassernutzungskette einer Quellfassung gleichzusetzen. Anders als direkt trinkbares Oberflächenwasser einer Quelle verfügen Porengrundwasserleiter über eine hohe Selbstreinigungskraft, weil die große Oberfläche des Lockergesteins von Mikroorganismen besiedelt werden kann. Diese Besiedlung vermag schädliche Wasserinhaltsstoffe aus dem Grundwasser zu entfernen. Die Reinigung eines Oberflächenwassers aus einem Fluss der Gütekasse 2 oder 3 mit aktiverter Selbstreinigung nutzt diese Vorgänge bei der Uferfiltration (mindestens 50 Tage Fließzeit). Trinkwasser aus Grundwasservorkommen, bei denen die Wasserentnahme mit Brunnen oder Quellfassungen erfolgt, kann unter ungünstigen Umständen direkt und nicht erkennbar von Deponiesickerwässern verunreinigt werden. In diesem Fall ist die Selbstreinigung besonders sorgfältig zu untersuchen.

4.2 Modelle zur Untersuchung langfristiger biologischer und chemischer Selbstreinigungsvorgänge

4.2.1 Fließende Oberflächengewässer

Die Selbstreinigungsvorgänge in Fließgewässern werden in biologischen Kläranlagen mit größtmöglicher Effektivität genutzt. Ist die Reinigungsleistung durch biologischen Abbau oder Fällung der belastenden Stoffe bekannt, gibt dies sowohl Hinweise auf den möglichen Schutz des Fließgewässers durch eine Kläranlage als auch auf die optimale Selbstreinigung des Fließgewässers. Dabei entspricht der zeitliche Verlauf der Abbauvorgänge im Labor in seiner Größenordnung den gleichen Vorgängen im Fließgewässer. Die Modellgesetze entsprechen dem Stand der Versuchstechnik der Siedlungswasserwirtschaft (Ehrig, 1986) und erfüllen alle Bedingungen einer korrekten naturwissenschaftlichen Untersuchung (Tab. 2).

Zeitverkürzung:

Die nacheinander verlaufenden Abbauvorgänge in Deponien (d. h. saure Anfangsphase, basische Methanphase, permanent aerobe Phase im Endzustand) können sich über Jahrhunderte hinziehen. Die Zeit wurde bei den vorliegenden Untersuchungen um eine Zehnerpotenz (Methanphase) bzw. zwei Zehnerpotenzen (permanent aerobe Phase) verkürzt. Dies gelang durch den Parallelbetrieb von Deponieausschnitten in Großlysimetern, wodurch alle drei Phasen zur gleichen Zeit abliefen und die biologische Reinigung der jeweiligen Sickerwässer daher gleichzeitig untersucht werden konnte.

4.2.2 Intensiv bewirtschafteter Oberboden (A-Horizont) bei der Abwasserlandbehandlung

Die Belastung eines normalen Abwassers wird in einem intensiv bewirtschafteten Oberboden abgebaut und durch Entzug der Minerale (Düngewirkung) durch die Pflanzen in den natürlichen Kreislauf zurückgeführt. Eine mögliche Belastung des Oberbodens durch industrielle Schadstoffe lässt sich dabei durch sorgfältige Analyse des Zuflusses ebenso vermeiden wie eine Grundwasserbelastung durch Bodendränung und Überwachung des Dränabflusses. Es wurde deshalb geprüft, ob sich das Verfahren auch für die Reinigung des Sickerwassers aus Siedlungsabfalldeponien eignet.

Die Methodik derartiger Untersuchungen mit Hilfe von Lysimetern und genormten Pflanzgefäß ist in den Agrarwissenschaften Stand der Technik (Lohse, 1986). Sie erfüllt alle in Tab. 2 aufgeführten Bedingungen.

Zeitverkürzung:

Es wurden dieselben Methoden verwendet wie bei der Untersuchung der Fließgewässer (s. Abschnitt 4.2.1): Die Sickerwässer der oben genannten drei aufeinander folgenden Phasen wurden auch hier parallel untersucht.

4.2.3 Porengrundwasserleiter

s. (1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Spillmann et al. (Hrsg.), 1995

Vorbemerkung:

Die im Bericht der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) von 1995 "Schadstoffe im Grundwasser, Bd. 2" aufgeführten Untersuchungsergebnisse und Erkenntnisse sind auch heute (2012) noch gültig und auf die Praxis übertragbar, z. B.: Messung von Schadstofffrachten im Porengrundwasserleiter, mineralische Fixierung, Umwandlung der natürlichen organischen Substanz in stabile Huminstoffe und Metabolisierung chlorierter organischer Verbindungen. Der vergriffene Forschungsbericht ist in zahlreichen wissenschaftlichen Bibliotheken verfügbar. Die nachfolgend vorgestellten Ergebnisse geben nur kurze Informationen zur ersten Einschätzung der Wirkung von Langzeit-Emissionen aus Abfalldeponien (s. Abschnitt 3) auf Trinkwasservorkommen. Für weitergehende Anwendungszwecke sollten die zitierten Originalberichte herangezogen werden.

4.2.3.1 Gegenstand und Ziel der Grundwasseruntersuchung

Sickerwässer von Abfalldeponien ohne oder nur mit unzureichender Basisabdichtung und Entwässerung belasten zunächst das Grundwasser und anschließend das daraus gespeiste Oberflächenwasser. Schadstoffe, die nicht durch Selbstreinigung entfernt werden, können deshalb langfristig in das Trinkwasser gelangen, unabhängig der Art der Gewinnung, z. B. aus Grundwasserbrunnen, Quellen oder Oberflächenwasser. Selbstreinigungsvorgänge in Porengrundwasserleitern – sie sind repräsentativ für etwa 80 % der norddeutschen Trinkwasservorkommen – standen deshalb im Mittelpunkt der Untersuchungen.

Zum Zeitpunkt der Versuchsplanung lagen Ergebnisse ausführlicher in-situ Untersuchungen belasteter Grundwässer bereits vor (Golwer et al., 1970; Golwer et al., 1976; Giger et al. 1983; Golwer 1983), in denen bereits die weitgehende Selbstreinigung von Sickerwasserbelastungen nachgewiesen wurden. Offen blieben dabei vor allem folgende Fragen:

- a) Wie exakt können mit der üblichen Beprobung eines Grundwasserleiters die tatsächlich vorhandenen Frachten lokalisiert und bestimmt werden?
- b) Gibt die 50-Tagelinie (Fließstrecke des Grundwassers innerhalb von 50 Tagen) die wirkliche Überlebensdauer pathogener Keime oder nur ihre bisher maximal gemessene Transportstrecke an?
- c) In welchem Umfang werden schwer abbaubare organische Stoffe im Grundwasser abgebaut oder festgelegt?
- d) Wie dauerhaft werden nicht abbaubare Stoffe wie Schwermetalle festgelegt?
- e) Wurden die nach üblicher Beprobung des Grundwassers nicht mehr messbaren Schadstoffe vollständig abgebaut oder nur verdünnt, und könnten sie sich in der Nahrungskette erneut bis zu schädlichen Konzentrationen anreichern?

Ziel dieses Versuches war deshalb, die in-situ gemessenen Ergebnisse unter kontrollierbaren Bedingungen abzusichern und die noch offenen Fragen zu beantworten.

4.2.3.2 Konstruktion der Versuchsanlage (Abb. 17)

s. (1) (9) (12) (17) Spillmann et al., 1995, Teil I

Bedingungen nach Abschnitt 2:

Vollständige materielle Übereinstimmung mit der Realität:

- Porengrundwasserleiter: Der untersuchte Grundwasserleiter bestand aus schlufffreiem und wurde einem realen Grundwasserleiter entnommen. Dieser repräsentiert etwa 80 % der nutzbaren norddeutschen Grundwasserleiter.
- Deckschichten: Sowohl die gut durchlässigen Deckschichten aus schluffhaltigem Sand als auch die schwer durchlässigen aus Schluff (Lehm) wurden originalen Deckschichten des Porengrundwasserleiters entnommen.
- Grundwasser: Das Grundwasser wurde am Versuchsstandort aus dem oberflächennah anstehenden Porengrundwasserleiter gleicher Charakteristik gefördert (Tab. 3).

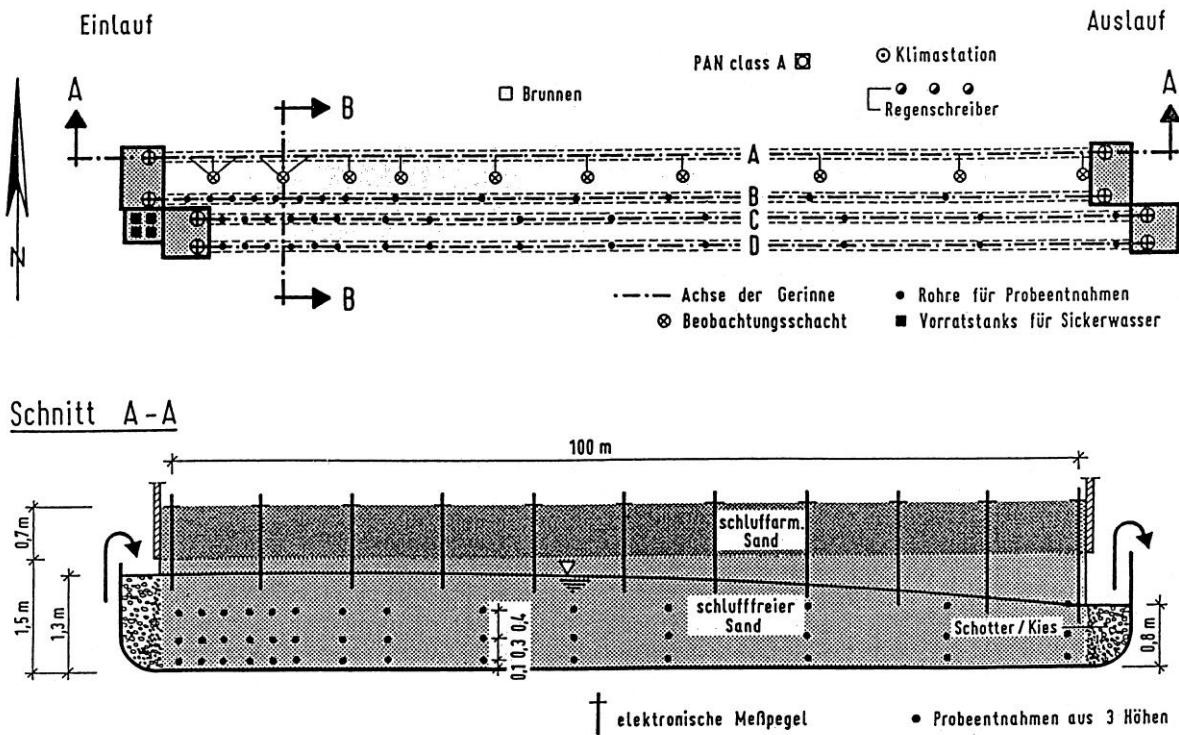


Abb. I.2.1: Lageplan und Längsschnitt der Versuchsanlage.

Layout and longitudinal section of the research area.

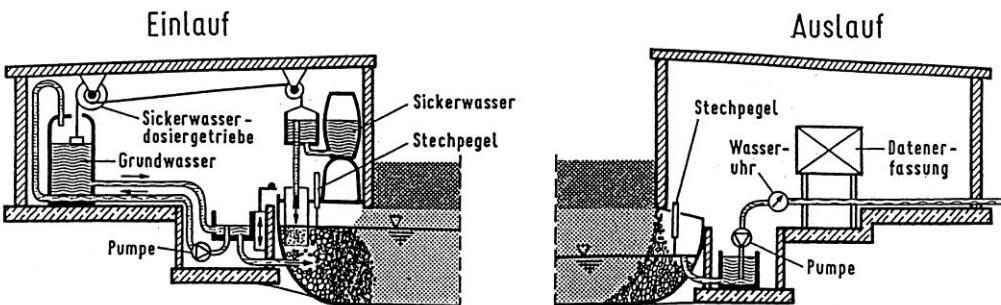
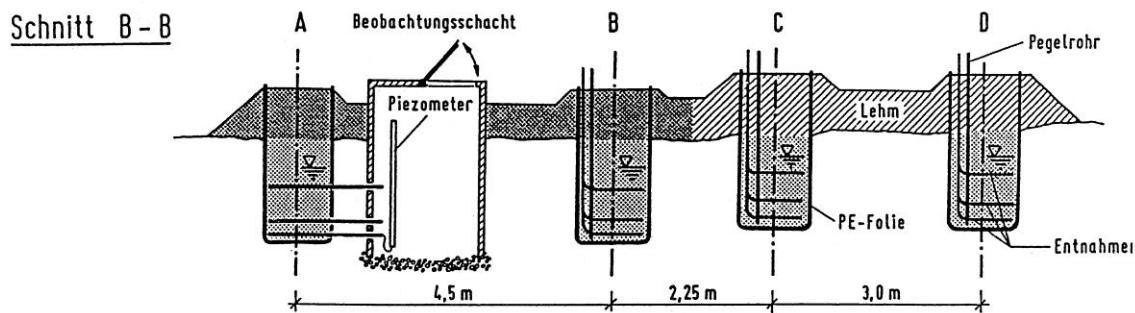


Abb. I.2.2: Querschnitt der Versuchsanlage und Längsschnitte des Ein- und Auslaufs.

Cross section of the research area and longitudinal section of the inlet and outlet.

Abb. 17: Versuchsanlage: Anordnung und Längsschnitt (2 Bilder oben), Querschnitt (Mitte), Einlauf- und Auslaufbauwerk (unten). *Experimental plant: layout and longitudinal section (upper two images), cross section (middle), inlet and outlet devices (bottom).* (Spillmann, 2012)

Tab. 3: Vergleich des eingespeisten mineralstoffreichen Grundwassers mit mineralstoffarmem Oberflächenwasser.

Parameter		Grundwasser	Wasser aus dem Harz, Stadt Braunschweig	Dimension
Natrium	Na	60,7	9,5	mg/l
Kalium	K	3,9	1,2	mg/l
Calcium	Ca	190,0	13,8	mg/l
Magnesium	Mg	23,5	2,8	mg/l
Eisen	Fe	5,7	< 0,1	mg/l
Mangan	Mn	1,8	< 0,1	mg/l
Sulfat	SO ₄ ²⁻	282,0	25,7	mg/l
Chlorid	Cl ⁻	92,9	10,6	mg/l
Hydrogencarbonat	HC0 ₃	340,0	29,0	mg/l
Gesamthärte		32,0	2,6	°d
elektr. Leitfähigkeit		1250,0	136,0	µS/cm
pH-Wert		bis 7,4	8,2	[-]

Maßstab 1:1:

Der Querschnitt übertrifft die hydraulisch notwendigen Mindestabmessungen eines mit Sand gefüllten Gerinnes um den Faktor 3700. Die Fließstrecken von 4x100 m können zu 2x200 m oder maximal 1x400 m gekoppelt werden. Nach Messungen im Abstrom von Deponien sind dies die Strecken, in denen die intensivsten Abbau- und Festlegungsvorgänge ablaufen.

Steuerung:

Der Grundwasserdurchfluss wurde über die Pegeldifferenz zwischen Ein- und Auslauf gesteuert. Die Belastung durch Sickerwasser aus einer Deponie erfolgte über eine ungesättigte kurze Bodenpassage einer Bodensäule (B-Horizont), durch die das Sickerwasser dem horizontal strömenden Grundwasser vertikal zufloss. Dessen Dosierung wurde an den Grundwasserzufluss gekoppelt. Dadurch blieb die Belastung des Grundwassers, gemessen in "m³ Sickerwasser/1 m³ Grundwasser", in jedem Gerinne auch dann konstant, wenn infolge intensiver Niederschläge der Grundwasserzufluss zeitweilig gestaut war. Niederschlagseinträge wirkten sich - wie in der Realität - im Strömungsprofil als Überschichtung des belasteten Grundwassers aus.

Beherrschung der Versuchsanlage:

Eine doppelwandige Konstruktion der Gerinne war nicht finanziert. Die kurzen Pegelabstände von nur 10 m in Verbindung mit einer automatischen Erfassung aller instationären Spiegelschwankungen (Zeitabstand 15 Min.) und einem wöchentlichen unabhängigen Kontrollniveau ermöglichten bereits in der Phase der hydraulischen Einarbeitung der Gerinne, kleinste Fehlstellen zu lokalisieren und den Erfolg der Abdichtung zu prüfen. Die Oberflächen der Deckschichten wurden frei von Bewuchs gehalten, um den Eintrag von organischen Substanzen aus biologischer Aktivität auszuschließen. Hinsichtlich des Eintrags von Niederschlagswasser arbeiteten die Gerinne als genaue Dauermessgeräte und erfüllten die Bedingung:

Niederschlagseintrag = Abflusssumme - (Grundwasserzufluss + Sickerwasserdotierung)

Minimierung der Messtoleranzen durch Messung "vom Großen ins Kleine" (bzw. "von außen nach innen"):

Maßgebende Gesamtfrachten:

Wesentlich für die Bestimmung der tatsächlichen Eliminationsleistung ist die Differenz zwischen zufließenden und abfließenden Frachten jedes Gerinnes, summiert über eine Versuchsdauer von mindestens 5 Jahren Dauerbelastungen (Sickerwässer). Im Falle gezielter Dotierungen ergab sich so die Frachtdifferenz bis zum Ende messbarer Belastungen. Diese Frachten waren genau bekannt, weil Zu- und Abflüsse chargenweise gesammelt und nach sorgfältiger Durchmischung beprobt wurden.

Differenzierte Messungen:

Grundwasser:

Durch linienförmig angeordnete Grundwasserentnahmestellen ließen sich Abbauvorgänge im Grundwasser räumlich und zeitlich verfolgen. Möglich war dies durch langsame und gleichmäßige Beprobung des Grundwasserstroms mit einer Schlauchpumpe gleichzeitig aus der Mitte von drei übereinander angeordneten Messstellen, so dass der Strömungsvorgang während der Entnahme ungestört blieb. In den vorderen Gerinneabschnitten, wo aufgrund der Messergebnisse besonders intensive Umsetzungen zu erwarten waren, wurden die Entnahmestellen enger gesetzt. Unterschiedliche Salzgehalte ließen zudem eine höhere Konzentration im Sohlbereich erwarten, weshalb dort ein geringerer Vertikalabstand der Entnahmestellen gewählt wurde. Die Linienentnahmen wurden mit einer mobil einbaubaren Rasterbeprobung überprüft. Mit den als internen Standards verwendeten Tracern ließen sich so die unterschiedlichen Wanderungsgeschwindigkeiten von Stoffen bestimmen und die am Auslauf gemessene Stofffracht überprüfen.

Feststoffe:

Die mikrobiologische Besiedlung des Korns und die Festlegungen am Korn wurde durch gezielte Materialentnahmen beprobt. Dies erfolgte mit einer speziell entwickelten Sonde, mit der an der vorgesehenen Beprobungsstelle eine Entnahme des Materials gemeinsam mit dem Porrenwasser ohne Turbulenz möglich war. Die Stellen für die Probenahme wurden nach vorheriger Wasseranalyse festgelegt. Der Einfluss der Bodenpassage von der Deponie bis zum Grundwasserleiter (B-Horizont) ließ sich durch Untersuchung der im Zulauf installierten Bodenzylinder erfassen.

Reproduzierbarkeit der Ergebnisse:

Zwei der vier künstlichen Grundwasserleiter (je 1 Sandabdeckung, 1 Lehmabdeckung) wurden mit hoch belastetem Sickerwasser der sauren Anfangsphase aus einer realen Siedlungsabfalldeponie beschickt. Die im künstlichen Grundwasserleiter gemessenen Vorgänge stimmten untereinander sowie mit bereits von Betriebsdeponien bekannten Messergebnissen überein. Die Ergebnisse der Modellversuche waren somit auf die Realität übertragbar.

Verkürzung des Zeitmaßstabs in Übereinstimmung mit der Realität:

Das Verhalten von Sickerwässern der sauren Anfangsphase war aus in-situ-Messungen im Prinzip bekannt. Es fehlten allerdings Ergebnisse von den bei Deponien nicht hinreichend genau ausführbaren Messungen, vor allem der Frachten. Eine Zeitverkürzung war bei den vorliegenden Untersuchungen nicht erforderlich.

Die weitgehende aerobe Stabilisierung von Abfällen vor deren Verdichtung ist beim praktischen Deponiebetrieb bereits erfolgreich erprobt worden (Jourdan et al., 1982). Für die Untersuchung langfristiger Grundwasserbelastungen wurde deshalb eine Deponie aus biologisch

stabilisierten Müll- Klärschlammgemischen angelegt, die auch nach ihrer Verdichtung permanent aerob blieben und der Reaktionsfähigkeit von Waldböden entsprachen. Die Schadstoffkonzentrationen ihrer Sickerwässer hielten bereits zur Zeit der Versuchsdurchführung die aktuell geltenden deutschen Grenzwerte für Direkteinleiter ein. Eine mit noch heute üblicher Verdichtungstechnik verfüllte hohe Deponie erreicht ihren stabilen Zustand - falls überhaupt - nach mehr als tausend Jahren (vgl. Kap. 3). Der Zeitmaßstab für die langzeitig zu erwartende Belastung des Grundwassers wurde im Versuch deshalb um zwei Zehnerpotenzen verkürzt.

4.3 Eliminationsleistungen und deren Grenzen

4.3.1 Selbstreinigung turbulenter Fließgewässer

s. (2) Ehrig, 1986

Die von Ehrig 1986 veröffentlichten Grundlagenuntersuchungen zur biologischen Reinigung der Sickerwässer aus Abfalldeponien sind auch zur Beurteilung der Selbstreinigung von Fließgewässern unverändert gültig. Sie trugen außerdem dazu bei, die heutigen Klärtechniken zu entwickeln.

Die Belastungen lassen sich in drei unterschiedliche Phasen unterteilen, die unterschiedliche Anforderungen an eine Kläranlage bzw. den Vorfluter stellen:

- Saure Phase: hohe organische Belastung vorwiegend mit leicht abbaubaren organischen Säuren (hoher BSB₅) und sehr hohe Salzbelastung
- Basische Methanphase: schwer abbaubare organische Belastungen, hohe Ammoniumkonzentration (fischgiftig) und hohe Salzbelastung
- Permanent aerobe Phase: extrem schwer abbaubare huminstoffähnliche Belastung bis zu einem CSB von ca. 2000 mg/l, langsam abnehmende Chloridbelastung und Zunahme der Sulfatbelastung.

Für die Klärtechnik sind vor allem folgende Anforderungen von Bedeutung:

- Die hohen Anfangsbelastungen der sauren Phase sind zunächst biologisch gut abbaubar. Wegen der hohen Ausgangskonzentration bleibt die nicht abbaubare organische Restbelastung nach Abbau jedoch erheblich über der von gereinigtem häuslichem Abwasser. Für den Klärbetrieb ist zu beachten, dass vorhandene Säuren Calciumcarbonat auflösen, das durch Ausfällung an den Belüftungsanlagen und durch Schaumbildung den Betrieb einer Kläranlage erheblich erschweren kann. Die hohen Salzgehalte, überwiegend Chlorid, bleiben erhalten.
- Während der basischen Phase muss zur Nitrifizierung des hohen Ammoniumgehaltes der pH-Wert angehoben werden, zur anschließenden Denitrifizierung müssen ausreichende Mengen leicht abbaubarer organischer Substanz vorhanden sein, die in diesem Sickerwasser fehlen. Die in der Anlage nicht abbaubaren organischen Belastungen nehmen prozentual zu, die Salzbelastungen sinken zwar, bleiben im Vergleich zum häuslichen Abwasser aber hoch.
- In der permanent aeroben Endphase sind organische Inhaltsstoffe allein mit der biologischen Klärtechnik nicht reduzierbar. An die Stelle hoher Chloridgehalte der ersten beiden Phasen treten in der langfristigen Endphase meist hohe Sulfatgehalte auf.

Die Elimination der Belastungen industrieller Ablagerungen (co-disposal) sind aus der Behandlung industrieller Abwässer bekannt und wurden deshalb nicht näher untersucht.

Folgerungen für den Trinkwasserschutz:

In allen drei Phasen reicht eine nur biologisch arbeitende Kläranlage nicht aus, ein für die Trinkwassergewinnung geeignetes Oberflächengewässer vor den Inhaltsstoffen einer Siedlungsabfalldeponie zu schützen, selbst wenn diese natürlichen Ursprungs sind. Belastungen aus einem co-disposal erhöhen die Gefährdung des Trinkwasservorkommens.

Die biologische Stufe einer Kläranlage entspricht einer technisch optimierten Form der Selbstreinigung eines Vorfluters. Werden in einer solchen Anlage die Inhaltsstoffe von Sickerwässern nur unvollständig entfernt, kann man auch bei der Beurteilung der Selbstreinigung eines zur Trinkwassergewinnung geeigneten Vorfluters nicht von einer hinreichenden Elimination ausgehen.

Stand der Klärtechnik, 2012:

Durch Ergänzung der biologischen Klärstufe durch eine chemische und ggf. auch physikalische Stufe (z.B. Umkehrosmose) kann eine Kläranlage die Belastungen der Sickerwässer so weit entfernen, dass selbst kleine Vorfluter nicht nachteilig beeinflusst werden. Als Probleme bleiben die Dauer der Nachsorge und die Entsorgung löslicher Rückstände aus der Kläranlage.

4.3.2 Sickerwasserreinigung im intensiv bewirtschafteten Oberboden (A-Horizont)

s. (10) Lohse, 1986

Die von Lohse 1986 veröffentlichten Ergebnisse zur Reinigung von Deponiesickerwässern im belebten Oberboden sind bis heute gültig. Im intensiv landwirtschaftlich genutzten Boden können die organischen und mineralischen Inhaltsstoffe von Sickerwässern einer Siedlungsabfalldeponie so weitgehend eliminiert werden, dass im Dränabfluss eine Belastung nicht messbar ist. Voraussetzung dafür ist eine genaue Dosierung in Abstimmung mit der zur regulären Bewirtschaftung notwendigen Düngung, die ständig überwacht und an die wechselnden Frachten angepasst werden muss. Dabei ist vorrangig die Zufuhr von Ammonium und von Spurenelementen zu beachten. Zur Bewässerung sind Sickerwässer aufgrund ihrer hohen organischen und mineralischen Frachten nicht geeignet.

Der Einfluss eines co-disposal ist nur vertretbar, wenn es sich um abbaubare, naturverträgliche organische Stoffe (z. B. nicht chlorierte Phenole) oder nutzbare Spurenelemente wie Cu und Zn handelt und letztere als Düngemittel-Zusatzstoffe genutzt werden.

Stand der Technik, 2012:

Soweit den Verfassern bekannt, wurde die Landbehandlung wegen des Schadstoffrisikos bisher nicht großtechnisch angewandt. Sie wurde aber im Pilotversuch von Agrarwissenschaftlern der TU Berlin auf der bewachsenen und gedränten Abdeckung einer Deponie erfolgreich erprobt.

4.3.3 Elimination von Belastungen in Porengrundwasserleitern

4.3.3.1 Messtechnische Erfassung der Vorgänge

s. Spillmann et al., 1995

Instationäre Strömungsvorgänge:

Die Wasserstände wurden in Rammpegeln mit einfachen automatischen Ultraschallmessgeräten in kurzen Zeitintervallen - hier 15 Minuten - exakt verfolgt. Dadurch ließen sich instatio-

näre Strömungs- und Transportvorgänge mit stationären Strömungsansätzen berechnen, eine auf die Praxis übertragbare Methode.

Beprobung des Grundwassers:

Die normale Prozedur bei der Beprobung von natürlichem Grundwasser - d. h. Niederbringen eines Beprobungsbrunnens, Abpumpen bis zur Konstanz der Leitparameter, Entnahme der Wasserprobe - ist zur Erfassung von Emissionen aus Deponien oder Altlasten ungeeignet, weil Sickerwässer durch ihren

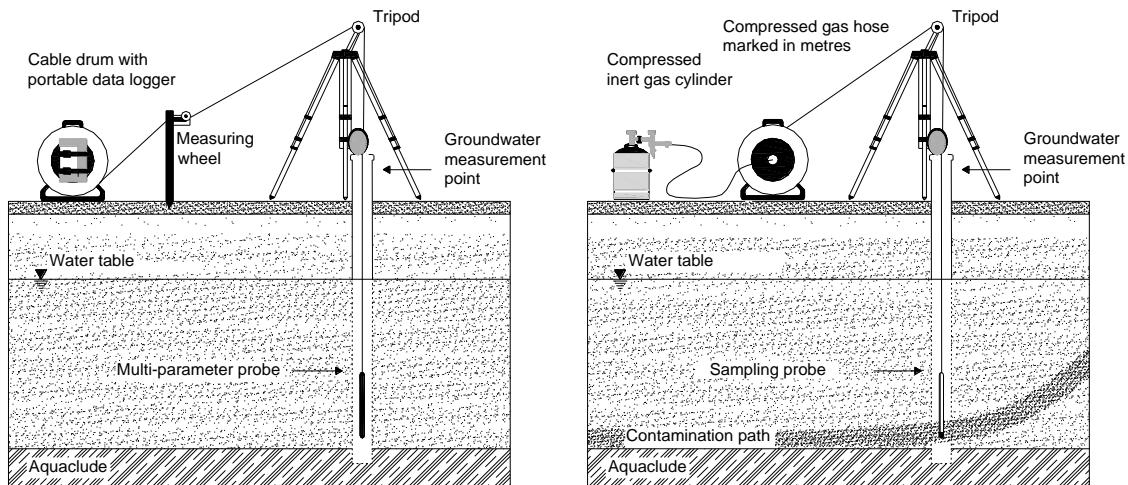


Abb. 18: Grundwassermesssystem nach Lhotzky (1997): packerlose Profilmessung (links), Messung von Kontaminationshorizonten und ungestörte Probennahme (rechts). *Groundwater measuring system acc. to Lhotzky (1997): packerless profile measurement (left), measurement of contamination horizons with indisturbed sampling (right).* (Spillmann, 2012)

höheren Salzgehalt absinken und mit geringer transversaler Dispersion der Talfinie des Sickerwasserstauers folgen. Deshalb wurden Profilvermessung und Schichtenbeprobung in die Probennahmepraxis eingeführt (Abb. 18; Lhotzky & Spillmann, 2002 in Dörrie et al., 2009).

In belasteten Grundwässern beeinflussen vor allem Art und Menge der Belastung das Strömungs- und Transportverhalten von Inhaltsstoffen. Ihre Wanderungsgeschwindigkeit in Relation zum Wassermolekül lässt sich mit Hilfe geeigneter Tracer festlegen. Das Transportverhalten eines Schadstoffs lässt sich aber nur dann exakt aus dem einer einzelnen Tracersubstanz ableiten, wenn diese das gleiche Transportverhalten aufweist wie der Schadstoff. Das trifft nur in wenigen Fällen zu, da die sich die Wechselwirkung beider Stoffgruppen mit den festen Oberflächen des Grundwasserleiters in der Regel unterscheidet, z. B. bei Adsorption und Desorption. Durch den gleichzeitigen Einsatz mehrerer Tracer wie Eosin, Uranin und der stabilen Isotopen ^{2}H ^{16}O oder ^{1}H ^{18}O ist das Problem lösbar, weil deren Abweichungen von der Wanderungsgeschwindigkeit des Wassermoleküls die Abschätzung der Geschwindigkeit des Schadstoffs erleichtern.

Maßgebende Größen zur Berechnung der Strömungs- und Transportvorgänge:

Hydraulische Leitfähigkeit (Darcy), Retardation, Dispersion sind die maßgebenden Vorgänge zur Berechnung der Stofftransporte bei einem typischen norddeutschen Porengrundwasserleiter. Allerdings sind sie selbst in einem weitgehend homogenen Porengrundwasserleiter weder örtlich noch zeitlich konstant: örtliche Schwankungen wurden erwartet, nicht jedoch die erheblichen zeitlichen Veränderungen infolge der Schadstoffbelastung und der biochemischen

Reaktionen. Deshalb erfordert die Berechnung von Transportvorgängen zunächst sorgfältige Mehrfach-Messungen mit unterschiedlichen Tracern und daran anschließend die Festlegung von hydraulischer Leitfähigkeit, Retardation und Dispersion. Die Messungen müssen auch die zeitlichen Änderungen erfassen.

4.3.3.2 Emissionen aus industriell nicht gezielt belastetem Siedlungsabfall (ohne co-disposal)

(Die Resultate sind gültig für beide Deckschichten)
s. Kruse et al., 1995

4.3.3.2.1 Saure Anfangsphase der Deponie

Verhalten der gelösten anorganischen Stoffe:

Während der Anfangsphase treten von den löslichen Salzen vor allem Chloride in größerer Menge auf. Sie werden durch den Abbau der organischen Substanzen im Deponiekörper freigesetzt und bleiben sowohl bei der ungesättigten Bodenpassage als auch im Grundwasser unverändert. Nachteilig sind die unerwünschte Anhebung des Salzgehaltes einer Trinkwasserreserve und das Absinken des vertikal in das horizontal strömende Grundwasser eintretenden Sickerwassers infolge seiner höheren Dichte. Dieses folgt der Tallinie des Sickerwasserstauers mit geringer transversaler Dispersion. Die Überschichtung mit leichterem Niederschlagswasser verstärkt diese Wirkung (in situ nachgewiesen z.B. im Abstrom der Deponie Hannover).

Abbau der organischen Substanzen:

Zonierung der Abbauvorgänge:

Die charakteristischen mikrobiologischen Reaktionen in dieser Zone verliefen so, wie sie aus Messungen bei Deponien bekannt waren (Abb. 19):

Reduktionszone:

Unmittelbar nach der Einleitung des Sickerwassers wurden durch den hohen biochemischen Sauerstoffbedarf der Mikroorganismen der gelöste Sauerstoff verbraucht und Schwefelverbindungen bis zur Sulfidstufe reduziert.

Übergangszone:

Durch den Zutritt von Luftsauerstoff durch die Deckschicht verlief der Abbau im weiteren Abstrom fakultativ aerob. So wurde der Schwefel von Eisensulfid allmählich in lösliches Sulfat überführt, während Eisen teilweise als Eisen II in Lösung blieb. (= oxidative Mobilisierung). Organisch gebundener Stickstoff wurde sowohl in der Reduktionszone als auch in der Übergangszone ammonifiziert.

Oxidationszone:

Die weitere Zufuhr von Sauerstoff durch die Deckschicht führte mit zunehmender Fließstrecke zur oxidativen Festlegung von Eisen III (= oxidative Fällungszone) und zur Nitrifizierung des Ammoniumstickstoffs. Teilweise noch vorhandene anaerobe Bedingungen in der Fällungszone reichten aus, etwa die Hälfte des Nitratstickstoffs zu denitrifizieren.

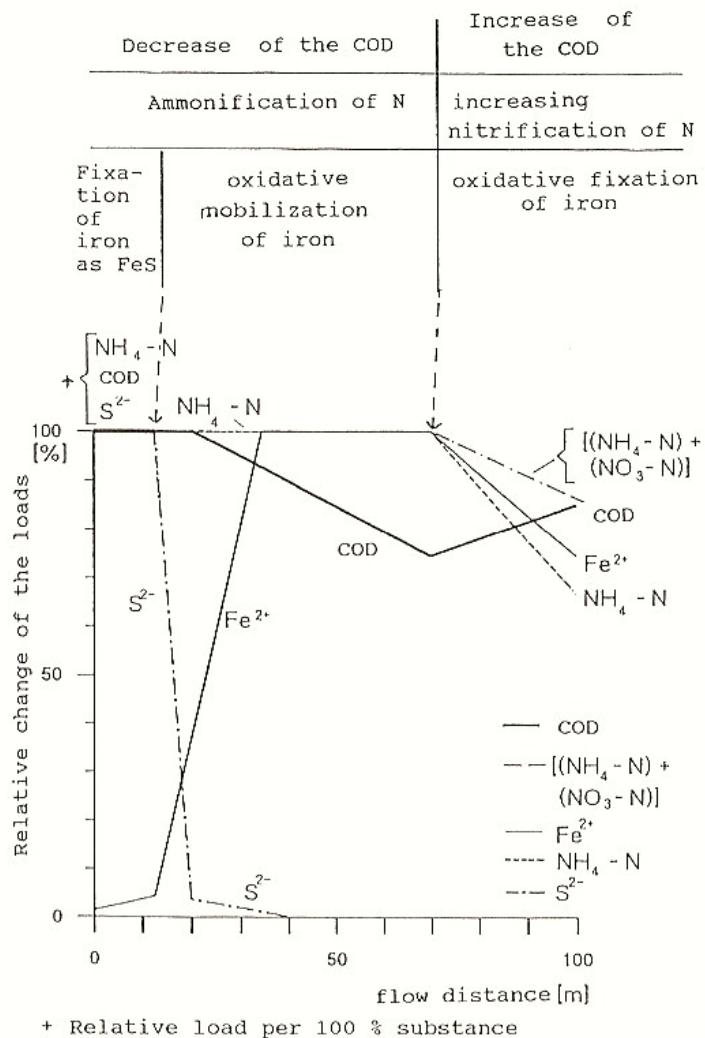


Abb. 19: Änderung typischer Belastungsparameter anaerober Deponiesickerwässer nach Eintrag in einen oberflächennahen Grundwasserleiter mit Sandabdeckung. *Relative change of typical seepage water loads from anaerobic landfill sites in a near-surface aquifer with sand cover.* (Spillmann, 2012)

Abbau und Fällung:

Schwermetalle:

Während der sauren Phase wurden größere Mengen Hydrogencarbonat aus dem Deponiekörper freigesetzt. Durch Abbau organischer Säuren erfolgt an der Oberfläche der Mikroorganismen ein pH-Sprung, der zu lokalen Carbonatfällungen führt (Ramke & Brune, 1990). Aus diesem Grund können in der Reduktionszone Schwermetalle sowohl sulfidisch als auch carbonatisch gebunden vorliegen. Durch die Gerinneversuche ließ sich der Nachweis führen, dass Ausfällungen der Nichteisen-Schwermetalle in der Reduktionszone des Grundwassers aus Carbonaten und nicht aus Sulfiden bestanden (vgl. Abb. 20). Deshalb trat in der Folge bei Sauerstoffzutritt auch keine Schwermetallmobilisierung durch Sulfatbildung auf. Die als Carbonate gebundenen NE-Schwermetalle bleiben dauerhaft festgelegt, wenn das natürliche Grundwasser langfristig neutral oder basisch reagiert.

Organische Substanzen:

Der aus Messungen an Deponien bekannte Abbau organischer Stoffe von mehr als 90 %, ermittelt als biochemischer Sauerstoffbedarf (BSB_5) zu Kohlendioxid und Wasser mit der Bildung stabiler huminstoffähnlicher Substanzen wurde bestätigt. Vorher nicht bekannt war

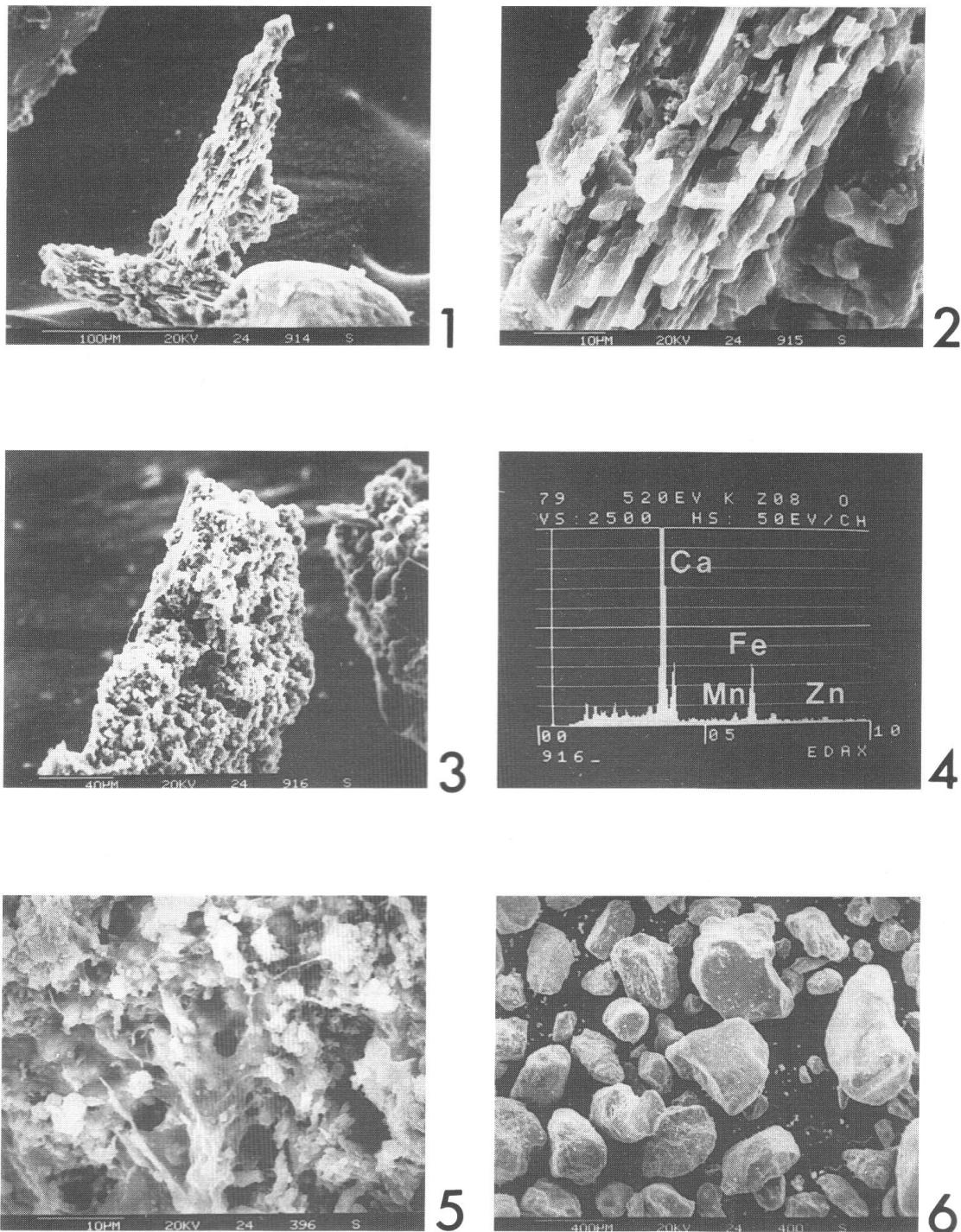


Abb. 20: 1 Nadeliger Calcit, stark verwittert (Vorfilter). *Needle shaped calcite, heavily weathered (prefilter).* 2 Detailaufnahme von (1). *Close-up of (1).* 3 (Ca, Fe)CO₃-Mischkristall, schlecht kristallisiert (Vorfilter). *(Ca, Fe)CO₃-compound, poorly crystallised (prefilter).* 4 EDAX-Spektrum des Korns von (3). *EDAX spectrum of the grain from (3).* 5 Organo-mineralische Verklebungen (Vorfilter). *Organomineral cementation (prefilter).* 6 Übersicht 2,8 m hinter dem Einlaufbauwerk. *Overview from 2.8 m behind the intake.* (Spillmann, 2012)

jedoch die Zunahme der durch den chemischen Sauerstoffbedarf (CSB) charakterisierten Stoffe in der Oxidationszone, ohne dass aus der Deckschicht organische Verbindungen zusickern (Deckschicht aus dem C-Horizont des originalen Grundwasserleiters, kein Bewuchs auf der Gerinne-Deckschicht). Eine langzeitige Kontamination von Trinkwasser durch unerwünschte

organische Stoffen lässt sich daher auch unter günstigen Bedingungen nicht allein durch Selbstreinigung verhindern. Wegen der grundsätzlichen Bedeutung dieser Ergebnisse wurde der Vorgang noch einmal mit Sickerwässern aus weitgehend stabilisiertem Abfall (s. Abschnitt 4.3.3.2.2) überprüft und dabei bestätigt.

Pathogene Keime:

Pathogene Keime aus Klärgrubeninhalten, Klärschlamm oder Krankenhausabfällen können aus anaerob betriebenen Deponien mit dem Sickerwasser wieder ausgetragen werden (vgl. Kap. 3.2.4.4). Als Grenze des Transports der Keime gilt in der Praxis meist die "50-Tagelinie" (Fließstrecke des Grundwassers innerhalb 50 Tagen). Sie wurde in den hier untersuchten Grundwasserleitern beim Einsatz des Test-Bakteriums *E. coli* bestätigt. Die Überlebenszeit einiger Testkeime ging jedoch weit über 50 Tage hinaus. Das gilt beim Deponiebetrieb vor allem für die Zeit nach mehrfachen Belastungen, z.B. nach dem regelmäßigen Aufbringen von Fäkalschlamm durch Tankfahrzeuge. Unter ungünstigen Bedingungen wie dem Vorhandensein von Grobporen oder bei sehr kleinen Keimen sind Transportentfernungen möglich, die innerhalb von 200 Tagen zurücklegen. Die Reichweite pathogener Sporenbildner und die von Viren wurden aus Sicherheitsgründen nicht in den künstlichen Gerinnen untersucht. Die Überlebensdauer der Testkeime legt jedoch nahe, dass die "50-Tageslinie" nur eine Mindestentfernung in feinporigen Grundwasserleitern zum Schutz eines Trinkwasservorkommens vor Darmbakterien darstellt. Die Transportweite anderer, ebenfalls in anaeroben Deponien nicht zurückgehaltener Erreger ist derzeit nicht bekannt.

4.3.3.2.2 Permanent aerober, waldbodenähnlicher Zustand des Deponieinhalts

(das Sickerwasser hält die deutschen Grenzwerte von 2009 für Direkteinleiter ein)

Verhalten löslicher Salze:

Die Chloridfrachten lagen in dieser Phase zwar um mindestens eine Zehnerpotenz niedriger als in der sauren Anfangsphase der Deponie, und es dominierte nun Sulfat, selbst bei Abwesenheit von Bauschutt im Siedlungsabfall. Für ein Trinkwasser war die Gesamtbelastung noch immer zu hoch, und wie bei stärker belasteten Sickerwässern kam es wegen erhöhter Dichte zu Absinkvorgängen bis zum Grundwasserstauer. Deshalb stellen die Salze von weitgehend stabilisierten Ablagerungen eine dauerhafte Gefährdung von Trinkwasservorkommen dar.

Zonierung als Folge der biologischen Aktivität:

Der biochemische Sauerstoffbedarf der Sickerwässer aus weitgehend stabilisierten Abfällen überschritt nur geringfügig die analytische Nachweigrenze, während ihr chemischer Sauerstoffbedarf unter 200 mg/l lag und Stickstoff fast vollständig nitrifiziert wurde. Ein biochemischer Abbau der Inhaltsstoffe war nicht mehr messbar. Der Grundwasserleiter befand sich von der Einleitungsstelle bis zum Ablauf im Zustand einer stabilen Oxidationszone.

Eliminationsleistungen:

- Schwermetalle wurden bereits im Deponiekörper weitgehend festgelegt und belasten das Grundwasser nicht.
- Stickstoff wurde im Abfall fast vollständig nitrifiziert und das gebildete Nitrat durch Denitrifizierungsreaktionen in lokalen anaeroben Restzonen des Deponiekörpers auf 100 bis 400 mg/l verringert. Im Grundwasser wurden dagegen eine signifikante Denitrifikation nicht gemessen. Die Nitratkonzentrationen blieben hier trotz weitgehender Stabilisierung des Abfalls für Trinkwasser zu hoch.
- Die in der Kläranlage nicht weiter abbaubare organische Substanz induzierte im Grundwasserleiter ab 50 m Fließstrecke die gleiche biologische Aktivität wie die leicht abbau-

bare organische Substanz der sauren Anfangsphase nach gleicher Fließstrecke. Anstelle der erwarteten Abnahme der durch den CSB charakterisierten organischen Belastung ergab die Bilanz der Frachten sowohl für den Grundwasserleiter mit sandiger Deckschicht als auch den mit bindiger Deckschicht den genau gleichen relativen Anstieg der organischen Fracht um 20 % linear von der Einleitungsstelle bis zum Auslauf nach 100 m (Abb. 21). Die Zufuhr organischer Abbauprodukte aus der Deckschicht ließ sich ausschließen, (s. o.), so dass die organische Fracht nicht zugenommen haben konnte. Dieser scheinbare Widerspruch wurde durch die Huminstoffanalytik in Verbindung mit der Messung der biologischen Aktivität geklärt (s. folgender Abschnitt). Letztere führte zeitweilig zu einer messbaren Abnahme der hydraulischen Leitfähigkeit.

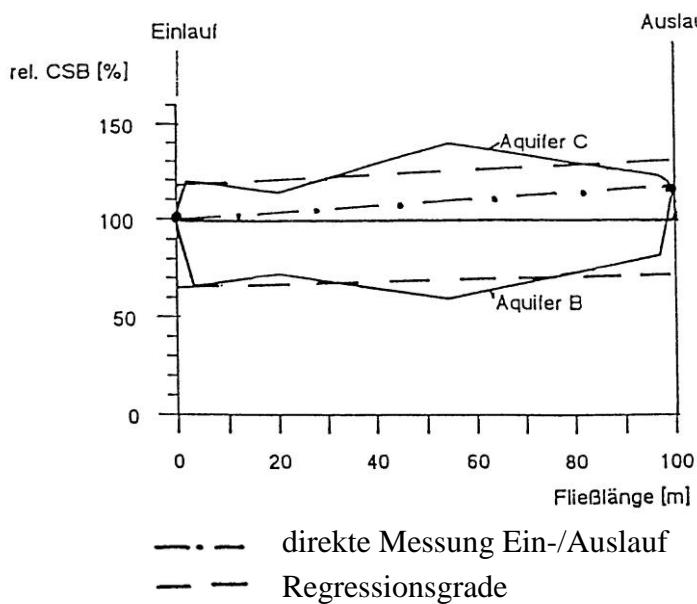


Abb. 21: Relativer Anstieg der als CSB gemessenen Frachten organischer Substanzen längs des Fließweges in zwei aeroben Grundwasserleitern B (Sandabdeckung) und C (Lehmabdeckung). Vergleich der direkten Messung zwischen Ein- und Ausläufen mit den indirekten Messungen in den Grundwasserleitern (Einlauf = 100 % CSB). *Relative increase of the load of organic substances along the flowpath of the aquifers B (sand cover) and C (loam cover) with aerobic seepage water. Comparison of the direct measurements between inlets and outlets with the indirect measurements in the aquifers (inlet = 100% COD.* (Spillmann, 2012)

Die Strukturuntersuchung der organischen Substanz mit den Methoden der Huminstoffanalytik ergab für die gelösten Stoffe, dass deren Naturähnlichkeit, verglichen mit den Stoffen eines Moorwassers, im hoch belasteten Sickerwasser der sauren Anfangsphase auf dem Fließweg bis zum Auslauf zunahm. Die organische Substanz des Sickerwassers eines stabilisierten, waldbodenähnlichen Abfalls glich vor ihrer Einleitung in das Grundwasser den natürlichen Huminstoffen mehr als die Organik im Auslauf des hoch belasteten Grundwasserleiters. Dabei nahm jedoch die Naturähnlichkeit im Verlauf des Fließweges ab und erreichte im Auslauf die gleiche Charakteristik wie im Auslauf des hoch belasteten Grundwassers. Dies lässt sich mit der Neubildung fester organischer Stoffe durch biochemische Umsetzungen im Gerinne und ihrer Anlagerung an die Kornoberflächen des Gerinnesandes erklären.

Die Ablagerungen im hoch belasteten Grundwasser waren meist verschieden von natürlichen Ablagerungen. Aus dem Sickerwasser des biologisch weitgehend stabilen Grundwasserleiters

setzten sich dagegen organische Verbindungen ab, deren unlöslicher Anteil dasselbe Infrarotspektrum aufwies wie natürliche organische Ablagerung desselben Grundwasserleiters. Im oberflächennahen Porengrundwasserleiter führten biochemische Vorgänge in solchen Fällen zur Bildung naturidentischer stabiler Huminstoffe, wenn die Ausgangsstoffe des Sickerwassers z. B. aus einem bodenähnlichen Material stammten. Während des mikrobiellen Organismus entstanden zunächst neue organische Substanzen, die sich danach in stabile Formen umwandelten. Das Ende dieser Umsetzungen wurde jedoch selbst unter den günstigen Versuchsbedingungen nicht erreicht. Aus diesem Grund ist Reichweite organischer Belastungen derzeit nicht kalkulierbar.

Pathogene Keime:

Die im Abfall (Gemisch aus Hausmüll und Klärschlamm) eingesetzten Testkeime wurden durch die Hochtemperaturrotte der biologischen Stabilisierung (mindestens drei Wochen bei 70 bis 80 °C) sowohl bei Direktaufgabe in den Abfall als auch in geschlossenen Ampullen vollständig abgetötet. Für pathogene Keime, die nach der Heißrotte oder erst auf dem Sickerweg ins Grundwasser eingetragen wurden, gelten die gleichen Einschränkungen für die „50-Tageslinie“ wie für hoch belastetes Sickerwasser.

4.3.3.3 Einfluss industrieller Ablagerungen (co-disposal)

4.3.3.3.1 Schwermetalle (Galvanikschlamm), Cyanide (Härtesalze), Phenole (Phenolschlamm)

Saure Anfangsphase:

Die Deponien, deren Sickerwasser zum Versuch eingesetzt wurde (Bielefeld/Senne und Braunschweig) wurden mit Abfällen aus Haushaltungen und Gewerbe der verarbeiteten Industrie nach den bis 1985 gültigen deutschen Bestimmungen und lokalen Genehmigungen beschickt. Das entspricht einem co-disposal der ersten Belastungsstufe (s. Abschnitt 3.2.4.5). Die Ergebnisse gelten deshalb auch für ein schwaches, diffuses co-disposal mit dem Gewerbeabfall einer Industriestadt.

Die höheren Belastungsstufen verursachten bereits leichte Störungen der biologischen Stabilisierung des Deponiekörpers. Daraus ließ sich ohne weitere experimentelle Prüfung auf eine Zunahme der Grundwasserbelastung infolge eines co-disposals schließen. Solche negativen Folgen für die Trinkwasserversorgung sind für die genannten Stoffe auch von industriellen Altlasten bekannt. Eine gezielte Belastung des Grundwassers mit diesen Stoffen wurde deshalb nicht näher untersucht.

Weitgehende biologische Stabilisierung:

Die industrietypischen Abfälle Galvanikschlamm, Härtesalze und Phenolschlamm sind bei nur geringer Belastung von Abfällen durch eine biologische Hochtemperaturbehandlung abbaubar oder sie können dauerhaft festgelegt werden. Sie erscheinen in der Regel nicht im Sickerwasser und wurden deshalb während der Gerinneversuche nicht gezielt zudotiert. Die negativen Folgen einer Grundwasserbelastung durch ein intensives co-disposal sind bekannt (vgl. Kap. 3).

4.3.3.3.2 Ringförmige chlorierte Kohlenwasserstoffe und Stickstoffverbindungen (Lindan, Simazin, Terbutylazin, Atrazin, Lindan+Chlorphenole (altes Holzschutzmittel als Kombinationspräparat)

Anaerobe Bedingungen:

Von diesen gezielt dem Abfall zudotierten Stoffen wurden Lindan und Simazin nach Zugabe vom Abfall zunächst fast vollständig sorbiert, dann aber allmählich und vollständig wieder desorbiert. Aufgrund ihrer geringen Abbaurate in der Deponie ist davon auszugehen, dass sie langfristig den Grundwasserleiter erreichen. Ein Abbau von Atrazin konnte dabei auf einer Fließstrecke von 100 m nicht nachgewiesen werden (Abb. 22). Aus toxikologischer Sicht gehören zu den oben genannten Stoffen auch solche, die sich im biologischen Kreislauf anreichern und für die es, z. B. wegen kanzerogener Wirkungen, keine untere Wirkungsschwelle gibt. Deshalb wurden einige der Stoffe gezielt den Grundwasserleitern zudotiert.

Für die anderen Verbindungen wie Chlorphenole ließen sich Abbauvorgänge einschließlich der entstehenden Metabolite nachweisen, wobei beobachtete Abbauvorgänge nicht extrapoliert werden dürfen. Der Abbau brach nämlich unter allen Belastungsbedingungen ab, bevor der jeweilige Grundwasserleiter als Trinkwasservorkommen hätte genutzt werden können (Abb. 23).

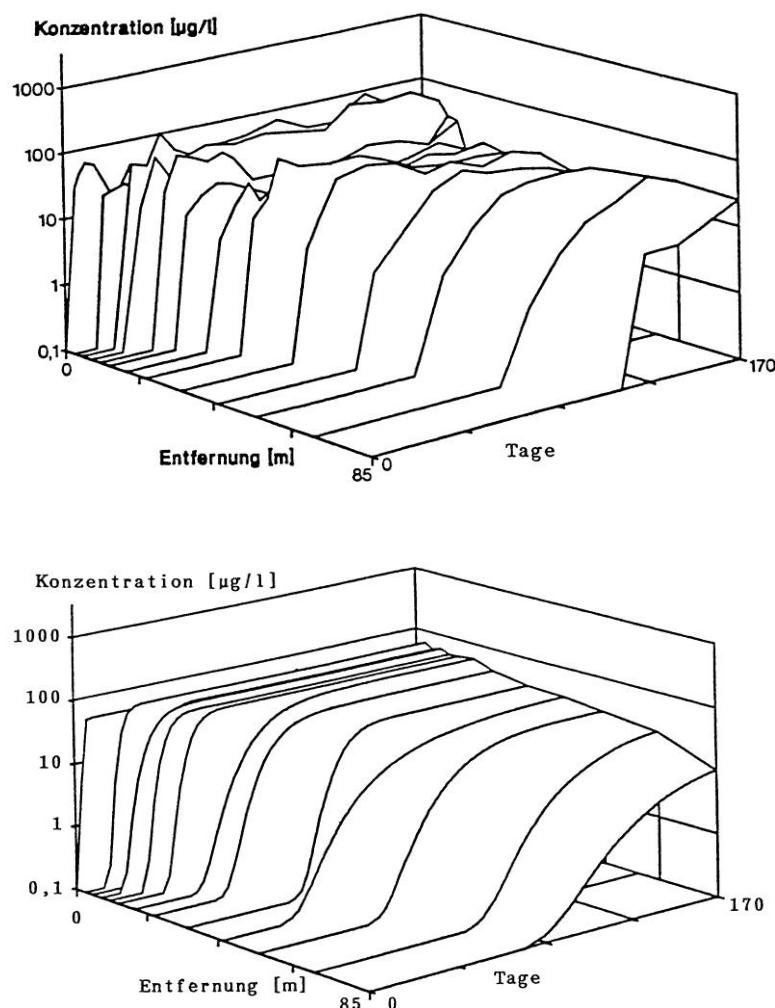


Abb. 22: Gemessene Atrazin-Durchgangskurven (gewichtetes Mittel aus drei Höhen) (oben). Berechnete Durchgangskurven (unten). *Measured breakthrough curves of atrazine (average of three heights) (top), and calculated breakthrough curves (bottom).* (Spillmann, 2012)

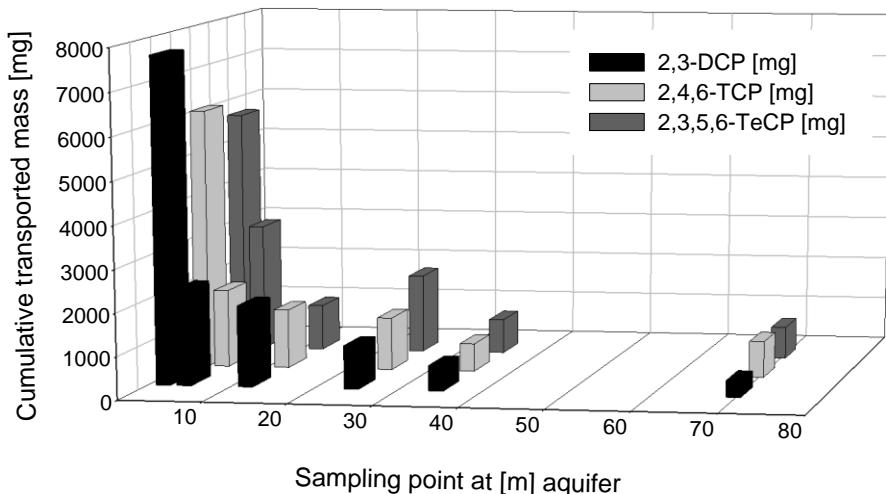


Abb. 23: Abbau von Chlorphenolen an 6 Entnahmestellen eines GW-Gerinnes, kumulativ dargestellt für Dichlorphenol (DCP), Trichlorphenol (TCP), und Tetrachlorphenol (TeCP). *Degradation behaviour of chlorophenols, cumulative for dichlorphenol (DCP), trichlorophenol (TCP), and tetrachlorphenol (TeCP) at six sampling points of an aquifer.* (Herklotz und Rump, 1995).

Weitgehende biologische Stabilisierung:

Die chlor- bzw. stickstoffhaltigen Stoffe Lindan oder Simazin werden im Falle einer geringen Hintergrundbelastung in einer Heißrotte abgebaut und weitgehend eliminiert. Im Falle eines co-disposal erfolgt ein schrittweiser Austrag (Chromatographieeffekt). Da der wesentliche Teil des Abbaus im Grundwasserabstrom einer aktiven Deponie unter anaeroben Bedingungen der sauren Anfangsphase stattfand und der Abbau in der aeroben Zone abbrach, ist im Abstrom einer Deponie mit bodenähnlichen Abfällen kein wesentlicher Abbau zu erwarten.

Stand von Wissenschaft und Technik 2012:

- Auf der Grundlage der Ergebnisse der durchgeführten Versuche wurde die Anwendung von Atrazin in Deutschland verboten. Weitere Stoffe mit ähnlicher Persistenz wie Lindan wurden schrittweise aus der Anwendung genommen.
- Persistente organische Stoffe fallen weiterhin als Abfälle an. Die Basis von Abfalldeponien muss deshalb in Deutschland mit einer Kombinationsdichtung aus mineralischem Material, z. B. Ton, und einer chemisch beständigen organischen Sperrbahn ausgerüstet werden, die das Grundwasser zuverlässig gegen diese Stoffe schützt.
- Der Abbruch des biologischen Abbaus organischer Belastungen im Abstrom von Altlasten wurde durch exakte *in situ*-Messungen bestätigt. In der Folge kam es zur Entwicklung von Verfahren, bei denen diese Stoffe an Aktivkohle angereichert oder der Abbau durch Nährstoffzufuhr unterstützt wird.
- Zur Erfassung der tatsächlichen Grundwasserbelastung wurde die Profilvermessung in Kombination mit der Schichtenbeprobung entwickelt (Stand der Probenahmetechnik 2010).

5 Folgerungen für den Trinkwasserschutz

s. Dörrie et al., 2009

Die Untersuchung der Deponiekörper (s. Kap. 3) zeigt, dass von deponierten Siedlungsabfällen auch dann Emissionen ausgehen, wenn allein Abfälle natürlichen Ursprungs abgelagert wurden. Ein co-disposal kann das Problem qualitativ und quantitativ erheblich verschärfen. Toxische Industrieabfälle stören die natürliche Stabilisierung, wobei diese Stoffe nur vorübergehend zurückgehalten und mit zeitlich nicht vorhersehbarem Verzug ausgetragen werden. Die Prüfung der Selbstreinigung von Trinkwasservorkommen (Kap. 4) wies unter den gewählten günstigen Bedingungen den teilweisen Abbau von Belastungen nach. Trotzdem ließ sich die ursprüngliche Trinkwasserqualität sowohl in turbulenten Oberflächengewässern als auch in oberflächennahen Porengrundwasserleitern nicht mehr erreichen.

Die Vorgänge bei der biologischen Selbstreinigung von Fließgewässern sind für die biologische Stufe einer Kläranlage nutzbar. Wird diese durch chemische und/oder physikalische Stufen je nach dem Stand der Technik ergänzt, können Belastungen für Trinkwasserressourcen vermieden werden. Dieses Ziel ist auch beim Deponiebetrieb erreichbar, wenn Abfälle auf einer gedichteten Basis abgelagert werden. Dies erfolgt durch Kombination einer Sperrung gegen polare Stoffe (vor allem Wasser) und unpolare Stoffe wie chlorierte Kohlenwasserstoffe, die alle emittierten Stoffe abfängt und durch ein Sammelsystem der Kläranlage zuführt (Abb. 24). Problematisch bleiben die Dauer der zu behandelnden Emissionen und der sichere Verbleib der eliminierten Stoffe.

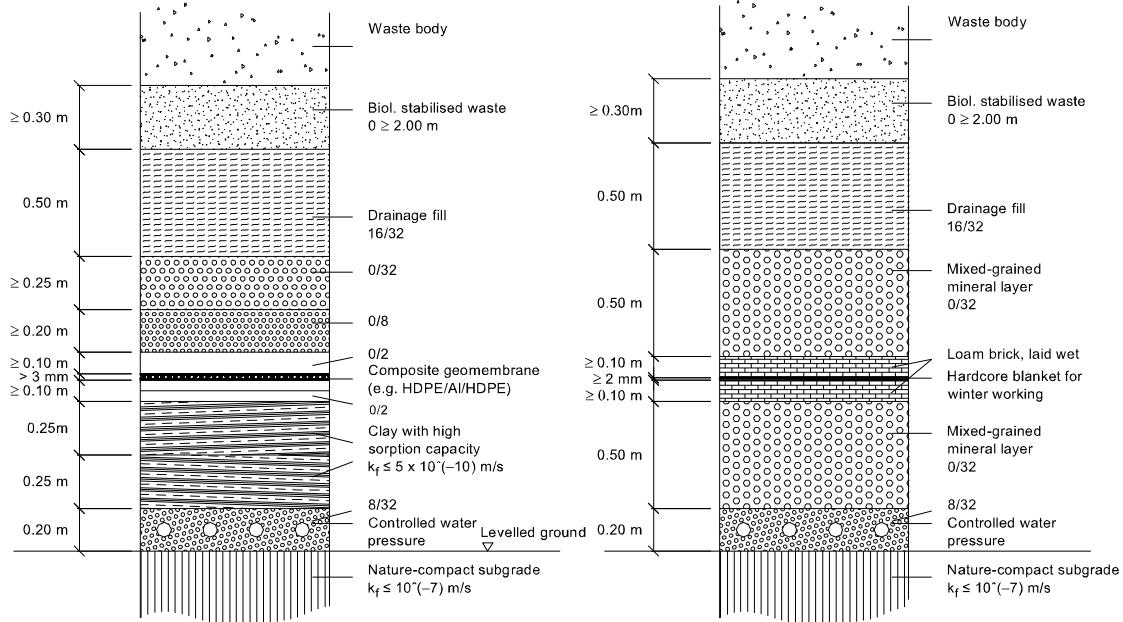


Abb. 24: Deponie-Basisabdichtungssysteme, (links): für hoch belastete Siedlungsabfalldeponien n. August (BAM), (rechts): Modifikation für Siedlungsabfälle in kapitalschwachen Ländern. (Left): *landfill basal liner systems for municipal landfills with high industrial contamination acc. to August (BAM)*, (right): *modified landfill basis for municipal waste in developing countries*. (Spillmann, 2012)

Die Selbstreinigung im aktiven A-Horizont eines landwirtschaftlich genutzten Bodens entfernt belastende natürliche Stoffe durch deren natürlichen Abbau und den Mineralentzug bei der Pflanzenproduktion. Eine Abwasserlandbehandlung setzt voraus, dass sich im Abfall und

anschließend im Sickerwasser keine toxischen Rückstände befinden. Ist dies der Fall, müssen Abfälle nicht unbedingt deponiert werden, sondern lassen sich nach Kompostierung landwirtschaftlich verwerten. Aus wasserwirtschaftlicher Sicht ist die Landbehandlung von Sickerwässern eine Lösung für Sonderfälle, bei denen eine landwirtschaftliche Verwertung schadstofffreier Abfälle nicht möglich ist. Außerdem kann die Landbehandlung auf gedränten Deckschichten von Deponien als erste Stufe einer Sickerwasserreinigung genutzt werden.

Die natürliche Eliminationsleistung des Grundwassers, vor allem in oberflächennahen Porengrundwasserleitern, ist sehr effektiv und vermindert auch die Schadstoffe von toxischen Industrieabfällen. Sie reicht aber nicht aus, den ursprünglichen Zustand eines Trinkwasservorkommens wieder herzustellen. Zur Sicherung der Trinkwasservorräte sollte deshalb jede übermäßige Belastung unbedingt vermieden werden. Ist diese bereits eingetreten, kann durch technische Maßnahmen, z. B. reaktive Wände, die Selbsteinigungskraft mobilisiert und kontrolliert nutzbar gemacht werden.

Die biologische Umwandlung des Abfalls in ein waldbodenähnliches Material ist auch unter den Bedingungen eines Entwicklungslandes möglich (Abb. 25). Das Verfahren ist als erster Schritt zur langfristigen Lösung von Abfallproblemen geeignet, wenn die Abfälle hoch verdichtet auf einer zuverlässig entwässerten Kombinationsabdichtung abgelagert werden (Abb. 24) und schließlich ein permanent aerober Deponiekörper entsteht. Dadurch wird eine dauerhafte und kaum beherrschbare Konservierung des Abfalls mit nachfolgender Aktivierung von Emissionen vermieden. Auch toxische Industrierückstände werden so noch innerhalb der Gewährleistungsfrist der Abdichtung (ca. 80 Jahre nach dem Stand der Technik) und des Betriebs der Kläranlage zuverlässig entfernt (Dörrie et al., 2009).

Eine langzeitige Lösung des Problems erreicht man dadurch, dass naturverträgliche Rückstände wieder in den natürlichen Kreislauf integriert werden. Durch die Trennung der Mischabfälle in definierte Teilströme und deren stoffgerechte Verwertung oder Umwandlung in ökologisch verträgliche Stoffe lässt sich dieses Ziel ohne größere Kosten erreichen. Die organische Fraktion von biologisch stabilisierten Abfällen ist nahezu wasserunlöslich und das feuchte, stofflich undefinierte Gemenge kann durch Nasssiebung abwasserfrei in definierte Stoffgruppen getrennt werden (Abb. 26). Die Teilströme sind danach entweder inert (Steine, Keramik, Glas), verwertbar (Metalle, Kunststoffe, Holz, unbelasteter Boden, unbelastete kompostähnliche Substanz) oder lassen sich thermisch in unbedenkliche Stoffe umwandeln. (zu Einzelheiten s. Dörrie et al., 2009). Die in vielen Industrieländern gängige thermische Behandlung undefinierter Siedlungsabfälle lässt jedoch die Naturverträglichkeit der entstehenden Stoffe oft vermissen (Baccini & Gamper, 1994). In der Schweiz werden diese Rückstände deshalb auf Deponien mit sicherem Grundwasserschutz abgelagert. Im Gegensatz zur stoffgerechten Behandlung wird hier aber mit hohen Kosten das Problem verschoben und nicht gelöst.

Künftige Verbesserungen bei Abfallbehandlung und Abfallnutzung mindern nicht die Gefährdung der Trinkwasservorkommen durch bereits vorhandene Ablagerungen. Falls diese oberhalb des Grundwassers abgelagert wurden, kann mit einer sperrenden Deckschicht die Zufuhr von Niederschlägen für die Dauer einer technisch zuverlässigen Sperrwirkung (etwa 80 Jahre) und damit der Sickerwasserabfluss unterbunden werden. Das Problem wird so aber nur in die Zukunft verschoben. Eine dauerhafte Lösung ist möglich, wenn unter in situ-Gasaustausch die organischen Abfallbestandteile biologisch in wasserunlösliche humusähnliche Substanz

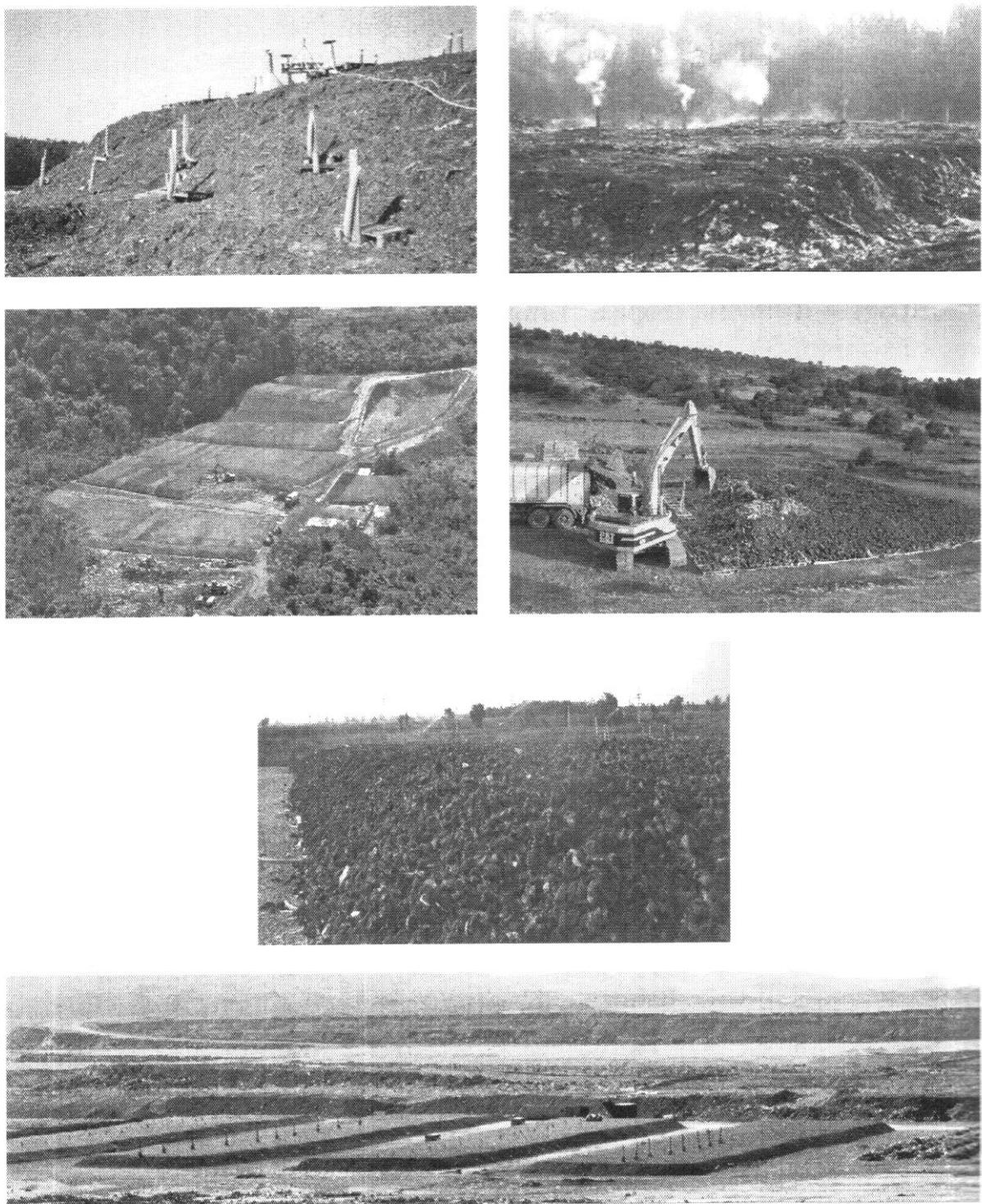


Abb. 25.: Ausführungsbeispiele der Naturzugbelüftung für unterschiedliche Klimazonen. Deutsche Varianten „Kaminzug Verfahren“ (o. l., Spillmann, 1978); modifiziertes „Schwäbisch Haller Modell“ (o. r., Haschemi, 1998/Breuer 2000); Version „AMBRA“ der W. Faber GmbH Alzey für Sao Sebastiao, Brasilien, (2. Reihe l.) sowie für Atlacomulco, Mexico (2. Reihe r.) und Phitsanulok, Thailand (3. Reihe, Münnich, 2001, GTZ, 2003, Maak, 2003); Kaminzugsystem „Teheraner Modell“ (u., Körtel, 2003/Körtel u. Spillmann, 2005).

Natural draught aeration for various climatic zones (in Germany, Brasil, Mexico, Thailand, Iran).

umgewandelt werden. Danach kann der Rückbau der Deponie erfolgen, wobei Materialien getrennt und stoffgerecht verwertet oder behandelt werden (Abb. 27 u. 28). Dieses Verfahren ist seit 1992 Stand der Technik. Seine Wirtschaftlichkeit ist bereits durch die Einsparung einer stabilen Deckkonstruktion und dem Wert des zurück gewonnenen Grundstücks gegeben.

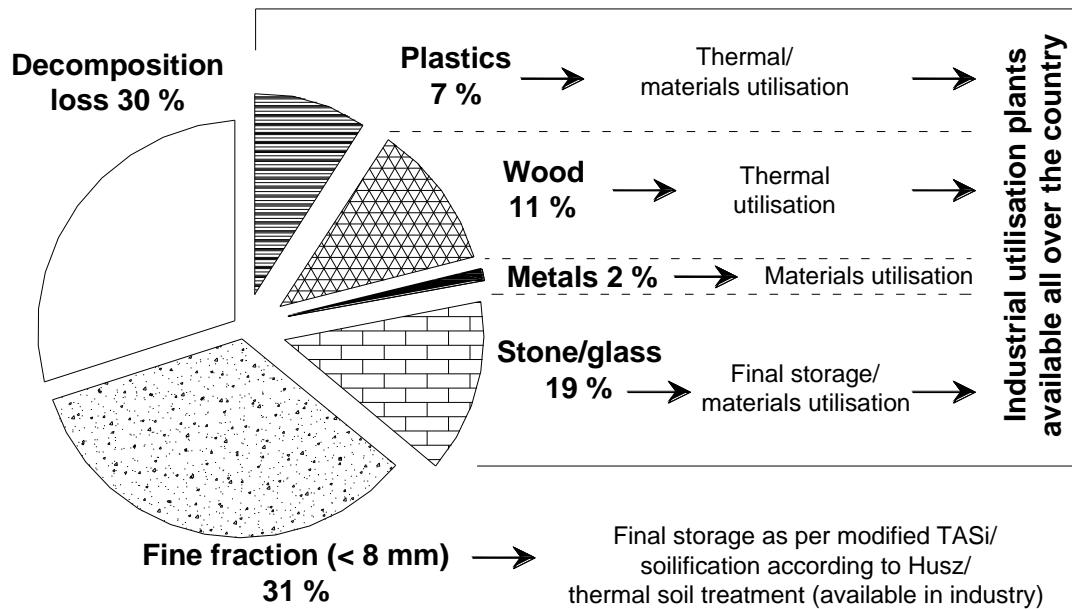


Abb. 26: Getrennte Stoffgruppen und deren Verwertungsmöglichkeiten. *Separated material groups with recovery potential.* (Eschkötter, 2004)

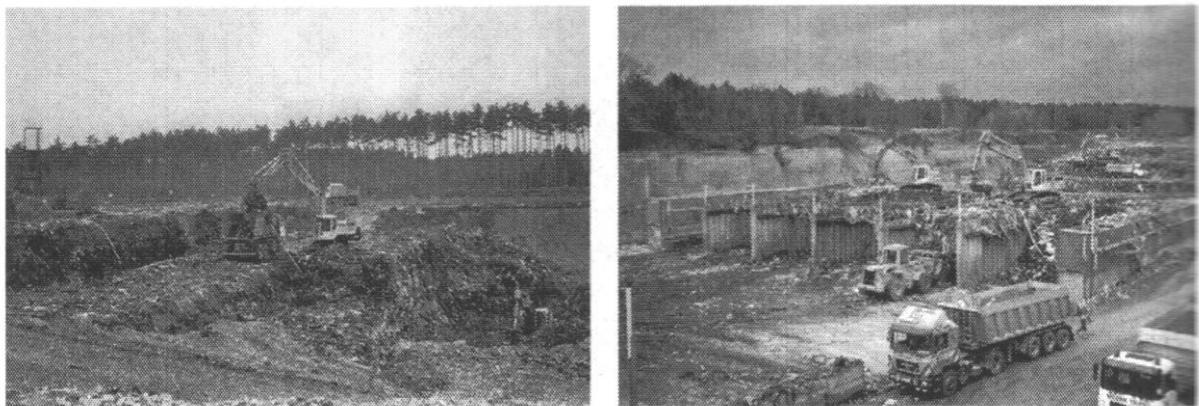


Abb. 27: (Links) Terrassenabbau, Aussiebung der Kunststoffe durch Bagger mit Spezialgitterlöffeln, (rechts) computer- und videoüberwachte Zwischenlagerung der Chargen in Boxen (BilfingerBerger Ges. mbH, Wien). (Left) Terraced excavation, sieving the plastics by a backhoe with a special fork-shovel, (right) computer- and video controlled temporary storage of single batches in boxes (Bilfinger Berger Bauges. mbH, Vienna. (Spillmann, 2012)

Ablagerungen von Kunststoffen oder solche mit sehr großem Kunststoffanteil können schon nach wenigen Jahrzehnten durch Selbstentzündung Probleme bereiten. Auftretende Schwelbrände verlaufen unvollständig, so dass selbst aus ursprünglich unproblematischen Stoffen wie Polyethylen in Verbindung mit überall vorhandenem Natriumchlorid zahlreiche chlorierte und nicht chlorierte Produkte entstehen können, welche die Luft und das Grundwasser belast-

en. Kunststoffe sind daher auf Dauer nicht deponierfähig. Sie können allenfalls unter ständiger Kontrolle in Zwischenlagern aufbewahrt werden, in die man jederzeit im Falle eines Temperaturanstiegs eingreifen kann. Bereits fertig angelegte Deponien sollten rückgebaut und ihr Inhalt verwertet werden. Hierzu gibt es keine sinnvolle Alternative.

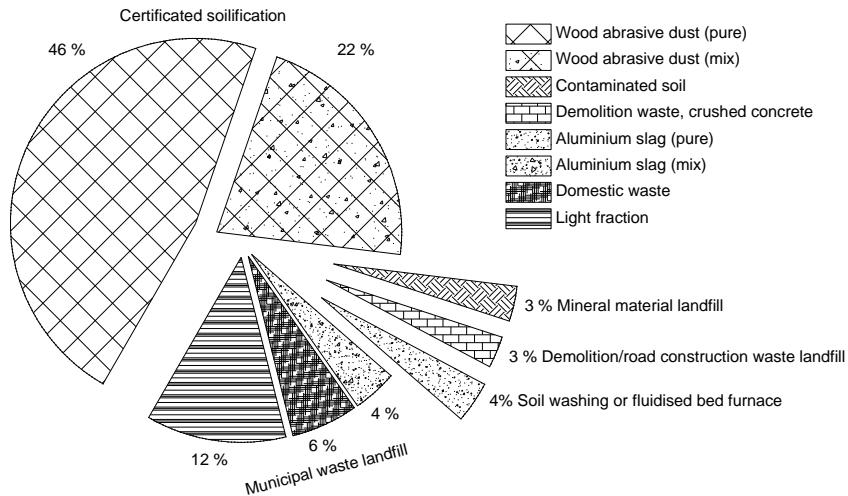


Abb. 28: Stoffstromdiagramm nach der Zerlegung von 900.000 t Deponiegut der Berger Deponie, Wiener Neustadt. Nicht dargestellt sind der Stoffstrom f. Metall und Straßenaufbruch sowie die Bergung von 5.500 Fässern. *Material flow diagram after separating 900,000 tonnes of landfill material in the Berger landfill, Wiener Neustadt. The material fluxes of metal and road planings and the recovery of 5,500 drums are not indicated.* (Spillmann, 2012)

Literatur

- Baccini, P., B. Gamper (eds.), 1994: Deponierung fester Rückstände aus der Abfallwirtschaft (Landfilling of residues from waste management) ETH Zürich: vdf Hochschulverlag (ISBN 3 7281 2 108 8).
- Ballin, G., P. Hartmann, F. Scholwin, 2009: Landfill behaviour of PVC as a representative of temporarily stable plastics. In: Spillmann, P. et al. (eds.) 2009, Chapter 9.4.
- Ballin, G, u. P. Hartmann 2009: Long-term instability of chemically highly stable plastics in undefined material mixtures with high plastic content or in plastic mono landfills. In: Spillmann, P. et al. (eds.) 2009; Chapter 9.5.
- Behrens H., P. Maloszewski, H. Moser, W. Stichler, P. Trimborn, K. Herklotz, H. H. Rump, H. Nordmeyer, W. Pestemer, H. Dibbern, S. Diekmann, W. Neumeier, H.-P. Malkomes, E. Küster, K.-D. Jung, K.-H. Knoll, P. Spillmann, 1995: Transport und Elimination abfalltypischer Umweltchemikalien im organisch belasteten Porengrundwasserleiter. In: Spillmann, P. et al. (Hrsg.) 1995, Teil III.
- Brammer, F., H.-J. Collins, J. Gunschera, J. Fischer, W. Lorenz, M. Bahadir, M. Kucklick, P. Harborth, H.-H. Hanert, P. Spillmann, 2009: Checking biochemical stability using reactivation measures on selected deposits. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 8.
- Brammer, F., M. Bahadir, H.-J. Collins, H. Hanert, E. Koch (Hrsg.), 1997: Rückbau von Siedlungsabfalldeponien. Stuttgart, Leipzig: Teubner, (ISBN 3-8154-3531-5).
- Dörrie, T., H. Eschkötter, M. Struve, P. Spillmann, 2009: Application of the results to waste management practice and drinking water protection. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 11.
- Ehrig, H.-J., 1986: Untersuchungen über die biologische Abbaubarkeit von Sickerwässern aus den Lysimetern. In: Spillmann, P. (Hrsg.), 1986, Chapter 9.
- Franke, M., 2009: Mass-spectrometric investigation of biological stabilisation of natural organic substances. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 9.3.
- Gay, G. C., K. F. Henke, G. Rettenberger, O. Tabaseran, 1981: Standsicherheit von Deponien für Hausmüll und Klärschlamm. Stuttgarter Berichte zur Abfallwirtschaft 14. Bielefeld: E. Schmidt, (ISBN 3-503-01399-7).
- Giger, W., R. P. Schwarzenbach, E. Hoehn, K. Schellenberg, J. K. Schneider, H. R. Wasmer, J. Westall, J. Zobrist, 1983: Das Verhalten organischer Wasserinhaltsstoffe bei der Grundwasserbildung und im Grundwasser. Gas Wasser Abwasser 63, 517-531.
- Golwer, A., 1983: Underground purification capacity. In: Groundwater in water resources planning. Proc. Int. Symp. by UNESCO + National Committee of the Federal Republic of Germany for the International Hydrological Program, Koblenz, 1063-1072.

Golwer, A., K.-H. Knoll, G. Matthess, W. Schneider, K. H. Wallhäuser, 1976: Belastung und Verunreinigung des Grundwassers durch feste Abfallstoffe. Abh. Hess. Landesamt f. Bodenforschung 73, Wiesbaden: Hess. Landesamt f. Bodenforschung, 1-131.

Golwer, A., G. Matthess, W. Schneider, 1970: Selbstreinigungsvorgänge im aeroben und an-aeroben Grundwasserbereich. Jahrbuch Vom Wasser 36, Weinheim: Verlag Chemie, 64-92.

Hartmann, P., G. Ballin, P. Spillmann, 2009: Testing the material stability of soil-like substances and plastics concerning reactivation. Model-compatible upscale of landfill conditions from the laboratory scale. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 9.2.

Husz, G., 2009: Material tests according to soil science criteria. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 8.4.5.

Jourdan, B., P. Spillmann, H. Münz, E. Britzius, J. Stritzke, H. Koch, G. Holch, A. Rothmund, 1982: Hausmülldeponie Schwäbisch Hall - Homogenisierung und Verrottung des Mülls vor der Ablagerung. Bundesmin. f. Forsch. u. Technologie (Schwäbisch Hall Municipal waste landfill - Homogenization and decomposition of waste before deposition. Federal Ministry of Research and Technology). Research Report. T 82-180, (Fachinformationszentrum Karlsruhe).

Jung, K.-D, K.-H. Knoll, 1986: Hygienische Untersuchungen. In: Spillmann, P. (Hrsg.), 1986, Kap. 8.

Kruse, K., P. Spillmann, 2009: Characterisation of flow path emission using waste-water parameters. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 5.

Kruse, K., H. H. Rump, H. Gorbauch, K. Herklotz, W. Schneider, G. Matthess, J. Henatsch, W. Kretschmer, D. Boening, J. Schröter, H. Nordmeyer, W. Pestemer, H. Dibbern, S. Diekmann, W. Neumeier, H.-P. Malkomes, E. Küster, K.-D. Jung, K.-H. Knoll, R. Walter-Matsui, Z. Filip, M. Weis, F. H. Frimmel, G. Abbt-Braun, R. Smed-Hildmann, K. Münnich, R. Keller, P. Spillmann, 1995: Transport-, Abbau- und Umbauvorgänge nach Belastung durch unterschiedliche Müllsickerwässer. - In: Spillmann, P. et al. (Hrsg.), 1995, Teil II.

Lohse, M., 1986: Die Beseitigung von Sickerwässern aus Abfalldeponien durch Landbehandlung. In: Spillmann, P. (Hrsg.), 1986, Kap. 10.

Maloszewski, P., H. Moser, W. Stichler, P. Trimborn, 2009: Detection of water movements, evaporation processes and water regeneration using environmental isotopes ^2H and ^{18}O . In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 4.

Neumeier, W., E. Küster, 2009: Microbiological investigations to characterise stabilisation processes in landfills. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 7.

Ramke, H.-G, M. Brune, 1990: Untersuchungen zur Funktionsfähigkeit von Entwässerungsschichten in Deponieabdichtungssystemen. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben FKZ BMFT 145 0457 3 des BMFT, Umweltbundesamt Berlin.

Rump, H. H., W. Schneider, H. Gorbauch, K. Herklotz, P. Spillmann, H. Nordmeyer, W. Pestemer, 2009: Transportation of industrial contamination in the flow path. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 6.

Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (eds.), 2009: Long-term hazard to drinking water resources from landfills. London: Thomas Telford (ISBN 987-0-7277-3513-3).

Spillmann, P., H.-J. Collins, 2009: Central test facility and test procedure. In: Spillmann, P., et al. (eds.), 2009, Chapter 2.

Spillmann, P. (1986-2012): Text- und Bildarchiv zum DFG-Forschungsprojekt „Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkungen auf Gewässer“ sowie der vom Land Niedersachsen, VW-Stiftung, EU-Kommission und BMWi geförderten Teil- und Folgeprojekte.

Spillmann, P., 2009a: Model laws for conversion of the results to different large-scale designs. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 2.8.

Spillmann, P., 2009b: Characterisation of long-term effects using physical measurements on water and solids balance. In: Spillmann, P. et al. (eds.), 2009, Chapter 3.

Spillmann, P., 2009c: Establishing the long-term effects using the relationship of the test results. In: Spillmann, P. et al. (eds.) 2009, Chapter 10.

Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (Hrsg.), 2006: Langzeitgefährdung der Trinkwasservorkommen durch Abfalldeponien (mit Beispielen der neuesten Erkundungs-, Schutz- und Rückbautechniken). Abfallwirtschaft in Forschung und Praxis Bd. 139, Berlin: E. Schmidt (ISBN-13: 978-3-503-09301, ISBN-10: 3-503-09302-8; ISSN 0171-175X).

Spillmann, P., H.-J. Collins, G. Matthess, W. Schneider (Hrsg.), 1995: Deutsche Forschungsgemeinschaft: Schadstoffe im Grundwasser, Bd. 2: Langzeitverhalten von Umweltchemikalien und Mikroorganismen aus Abfalldeponien im Grundwasser. Weinheim: VCH (ISBN 3-527-27133-3).

Spillmann, P., H.-J. Collins, M. Namuth, K. Münnich, J. Regner, J. Schröter, W. Kretschmer, H. H. Rump, H. Gorbauch, H. Nordmeyer, W. Pestemer, E. Küster, Z. Filip, K.-H. Knoll, K.-D. Jung, D. Boening, G. Matthess, 1995: Modelldarstellung oberflächennaher Porengrundwasserleiter als zentrale Versuchsanlage. In: Spillmann, P. et al. (Hrsg.) 1995, Teil I.

Spillmann, P., 1995: Interpretation der Ergebnisse für die Praxis der Grundwasseruntersuchung, -bewertung und -sanierung. In: Spillmann, P. et al. (Hrsg.), 1995, Teil IV.

Spillmann, P., D. Ranner, M. Reisner, 1992/93: Low-emission waste transposition by converting from anaerobic to aerobic decomposition. In: Technical University Budapest and Florida State University: Int. Symp. Environmental Contamination in Central and Eastern Europe; Budapest, 12-16 Oct. 1992.

Spillmann, P., 1989a: Decomposition and elimination of typical pollutants out of sanitary landfills in porous aquifers. Int. Sympos. Groundwater Management: Quantity and Quality, Benidorm, Spanien, Okt. 1998; IAHS-Proceedings.

Spillmann, P. 1989b: Die Verlängerung der Nutzungsdauer von Müll- und Müll-Klärschlamm-Deponien. Abfallwirtschaft in Forschung und Praxis, Bd. 27, Berlin: E. Schmidt (ISBN 3-503-028080)

Spillmann, P., 1988: Einflüsse verschiedener Deponietechniken einwohnergleicher Müll- und Klärschlammassen auf die Nutzungsdauer von Abfalldeponien. Diss. TU Braunschweig, Mitt. des Leichtweiß-Instituts der TU Braunschweig, H. 96 (ISSN 0343-1223).

Spillmann, P. (Hrsg.), 1986: Deutsche Forschungsgemeinschaft: Wasser- und Stoffhaushalt von Abfalldeponien und deren Wirkungen auf Gewässer; Forschungsbericht. Weinheim: VCH (ISBN 3-572-27121-X).

Spillmann, P, H.-J. Collins, 1979: Verminderung der Sickerwasserfrachten und Verlängerung der Nutzungsdauer einer Haスマルdeponie durch Nutzung aerober Abbauvorgänge. Müll und Abfall 11 (3), 61-70.

Spillmann, P, H.-J. Collins, 1978: Einfluss eines Sickerwasserkreislaufs auf den Wasserhaushalt einesrottenden ländlichen Haスマルles. Müll und Abfall 10 (11), 331-339.

Methodology and results of direct measurement of long-term hazard to drinking water resources from landfill leachates

Results of an interdisciplinary research project 1972 - 2009 with 17 scientific institutions involved. Funded by: Deutsche Forschungsgemeinschaft DFG (1976–1991), Federal State of Lower Saxony, VW-Foundation, EU-Commission, and Federal Ministry of Economics and Technology BMWi

Peter Spillmann

Hans Hermann Rump

University Rostock
January 2013

[The text below was translated by H. H. Rump from: Spillmann, P., H. H. Rump, 2013, „Die direkte Messung der Langzeitgefährdung von Trinkwasservorkommen durch Sickerwässer aus Abfalldeponien“. It certainly does not meet all quality requirements for a proper translation, but may support interested professionals with a limited knowledge of German. The illustrations in the German text are predominantly bilingual. In cases of doubt the German version prevails.]

Contents

- 1 **Inducement and content of the publication**
- 2 **Concept of the research program following the requirements of the Natural and Engineering Sciences**
 - 2.1 Requirements for a conclusive experimental research
 - 2.2 Participating scientific institutions and their tasks
 - 2.3 Minimum size of the model installations
 - 2.4 Organisation of long-term interdisciplinary research
 - 2.5 Temporal sequence of the research sections
- 3 **Investigation of the processes in landfill bodies**
 - 3.1 Development of the physical model as a section from inside of a municipal waste landfill in conjunction with the method to shorten the time scale
 - 3.1.1 Section from municipal waste landfills of different biological stability as a lysimeter model
 - 3.1.2 Model system for testing the biochemical stability of deposited polymers
 - 3.2 Direct measurement of long-term emissions from landfill bodies depending on the landfill technology and the chemical load (co-disposal)
 - 3.2.1 Objectives of measurements
 - 3.2.2 Completion of chapter 2 requirements during the test procedure
 - 3.2.3 Timing of investigations
 - 3.2.4 Results of measurements
 - 3.2.4.1 Suitability of the test facility to reproduce major landfill conditions
 - 3.2.4.2 Balance of water and solids
 - 3.2.4.3 Leachate loads after biodegradation of natural substances, according to the criteria of urban water management
 - 3.2.4.4 Transport and elimination of pathogenic germs
 - 3.2.4.5 Degradation and transport of toxic industrial waste
 - 3.2.4.6 Decrease of biological activity in undisturbed material
 - 3.2.4.7 Reactivation of degradation and emission processes
 - 3.2.4.8 Stability of the soil-like substance
 - 3.2.4.9 Stability of plastics in the landfill
 - 3.2.4.10 Transferring results of stabilisation processes to real landfills
 - 4 **Possibilities and limits of the elimination of loads from municipal waste landfills by self-purification of water bodies**
 - 4.1 Basic principles of research
 - 4.2 Models for studying long-term biological and chemical self-purification
 - 4.2.1 Flowing surface waters
 - 4.2.2 Intensively cultivated topsoil (A-horizon) in overland flow wastewater treatment
 - 4.2.3 Pore aquifers
 - 4.2.3.1 Scope and objective of groundwater studies
 - 4.2.3.2 Construction of the pilot plant
 - 4.3 Elimination efficiency and its limits
 - 4.3.1 Self-purification in turbulent rivers
 - 4.3.2 Leachate treatment in intensively cultivated topsoil (A-horizon)
 - 4.3.3 Elimination of pollutants in porous aquifers
 - 4.3.3.1 Measurement of processes

- 4.3.3.2 Emissions from municipal waste, not systematically affected by industrial pollutants (without co-disposal)
- 4.3.3.2.1 Initial acid phase of the landfill
- 4.3.3.2.2 Permanent aerobic landfill contents, similar to forest soils
- 4.3.3.3 Influence of industrial deposits (co-disposal)
- 4.3.3.3.1 Heavy metals (electroplating sludge), cyanides (hardening salts), phenols (phenolic sludge)
- 4.3.3.3.2 Cyclic chlorinated hydrocarbons and nitrogen-containing compounds (lindane, simazine, terbutylazine, atrazine, lindane+chlorophenols combined)

5 Consequences for the protection of drinking water

Literature (see German version)

1 Inducement and content of the publication

Immediately after completing the long-running interdisciplinary research program, a final book publication was released:

Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (eds.), 2009: Long-term hazard to drinking water resources from landfills. London: Thomas Telford Publ. (525 p., 209 figs., 59 tabs., ISBN 978-0-7277-35133).

A German version was issued in 2006 by E. Schmidt Publishers, Berlin, ISBN-13: 978 3 503 09302 1. First results on the spontaneous combustion of plastic deposits, communicated in the latter only with reservation, could be confirmed by the completed measurements.

The results presented have been prepared by 63 scientists from 17 scientific institutions within 35 years (see Tab. 1). From the large scope of the results only those have been published which were covered firstly by multiple measurements, and were secondly consistent both with the results within the disciplines and with the successive overall results of the independently operating groups. Predictions were tested after dismantling of real landfills. Therefore, they seem to be secured in the sense of scientific standards of experimental research. They refute all current administrative assumptions about the long-term protection of drinking water resources from impacts, caused by waste disposal sites. The amount and particularly the duration of loads will be one to two orders of magnitude larger than in the after-care programs currently to be assigned, which is notably true for persistent chlorinated hydrocarbons. Accordingly, the long-term threat to drinking water resources by unsecured deposits is one order of magnitude larger than previously thought. As a consequence both the enclosures of old landfills and waste deposits, following the new standard, have to be classified as “secure interim storages” with a time-limited function. These results led the authors to draw the attention of researchers and practitioners of environmental protection and notably water management on these books.

The publications mentioned above particularly prove that a research program for the first time has met all the requirements of exact natural and engineering sciences for a complete and unambiguous experimental investigation about long-term effects of landfills on water bodies. The crucial difference from previously published research on this subject is a shortening of the time-scale for hydraulic operations by one order of magnitude to 1:10 and for biological degradation processes by two orders of magnitude to 1:100 while using a geometrical model scale of 1:1. Thus the long-term effects got directly measurable. Previously known statements about long-term effects have either been extrapolated from short-term lab experiments or indirectly derived from measurements of operating landfills, as model laws or principles could not be elaborated for laboratory systems. The results of these studies are consistent with the results of the research program mentioned above, but extrapolations and indirect conclusions have to be refuted.

The results of the research program are summarised in brief overviews. For further use see the complete publication.

Tab. 1: Institutions involved in the research program, institutes and scientists in chronological order of the participation of their institutes (names of authors without title)

Technische Universität (TU) Braunschweig
(1) Leichtweiß-Institut für Wasserbau, Abt. Landwirtschaftlicher Wasserbau u. Abfallwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. H.-J. Collins P. Spillmann, H.-J. Collins, J. Regner, M. Namuth, K. Münnich, K. Lhotzky, F. Brammer, W. Stenzel, M. Röcklein
(2) Institut für Siedlungswasserwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. R. Kayser H.-J. Ehrig, R. Stegmann, K. Kruse
(3) Institut für Ökologische Chemie und Abfallanalytik, Prof. Dr. Dr. M. Bahadir J. Gunschera, J. Fischer, W. Lorenz, M. Bahadir
(4) Institut für Mikrobiologie; Technische Umweltmikrobiologie Prof. Dr. H.-H. Hanert M. Kucklick, P. Harborth, H.-H. Hanert,
Justus Liebig-Universität Gießen
(5) Institut für Mikrobiologie und Landeskultur, Prof. Dr. E. Küster W. Neumeier, E. Küster, Z. Filip
(6) Institut für Bodenkunde und Bodenerhaltung E. Homrighausen
Philipps-Universität Marburg
(7) Medizinisches Zentrum für Hygiene und Medizinische Mikrobiologie, Prof. Dr. K.-H. Knoll K.-H. Knoll, K.-D. Jung, R. Walter-Matsui
Institut Fresenius Taunusstein-Neuhof
(8) Chemische und Biologische Laboratorien, Prof. Dr. W. Fresenius W. Schneider, H. H. Rump, H. Gorbauch, K. Herklotz, J. Henatsch
Christian Albrecht-Universität Kiel
(9) Geologisch-Paläontologisches Institut und Museum, Prof. Dr. G. Mattheß G. Mattheß, D. Boening, R. Keller, M. Isenbeck, W. Kretschmer, A. Pekdeger, J. Schröter
Friedrich Wilhelm-Universität Bonn
(10) Institut für Agrarchemie, Prof. Dr. Kick; M. Lohse
Biologische Bundesanstalt für Land- und Forstwirtschaft Braunschweig
(11) Institut für Unkrautforschung, Prof. Dr. W. Pestemer H. Nordmeyer, W. Pestemer, K. Herklotz; H.-P. Malkomes; S. Diekmann, H. Dibbern
GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit Neuherberg
(12) Institut für Hydrologie, Prof. Dr. H. Moser P. Maloszewski, H. Moser, W. Stichler, P. Trimborn, H. Behrens
Universität Karlsruhe (TH)
(13) Engler-Bunte Institut, Prof. Dr. F.-H. Frimmel G. Abbt-Braun, F.-H. Frimmel, M. Weis
Bundesgesundheitsamt
(14) Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, Langen, Prof. Dr. Z. Filip Z. Filip, R. Smed-Hildmann
Universität Rostock
(15) Institut für Landschaftsbau und Abfallwirtschaft Fachgeb. Abfallwirtschaft, Prof. Dr.-Ing. P. Spillmann G. Ballin, P. Hartmann, P. Spillmann, F. Scholwin, M. Franke, P. Degener, T. Dörrie, H. Eschkötter
(16) Institut für Bodenkunde und Pflanzenernährung, Prof. Dr. P. Leinweber R. Beese, K.-U. Eckhardt, G. Jandl
Hessisches Landesamt für Bodenforschung Wiesbaden (consultants)
(17) Abt. Hydrogeologie, Prof. Dr. G. Mattheß, Prof. Dr. A. Golwer

2 Concept of the research program following the requirements of the Natural and Engineering Sciences

2.1 Requirements for a conclusive experimental research

The basic requirements for a conclusive experimental research in natural sciences and engineering are known:

- universally verifiable and clearly defined experimental conditions,
- comprehensive coverage of all relevant factors,
- minimising the tolerances of measurement and error propagation through measurement "from the outside inwards" or "from the large to the small",
- reproducible results,
- production of transferable knowledge.

If a test was extremely material- or time-consuming, reliable and applicable results had to be achieved already in the first experimental trial. The quality of the research was anonymously evaluated by peer review considering approach, implementation and final results. The reviewers were generally appointed by the sponsors.

Given the special importance of sustainable drinking water protection, this research was supported not only by the German Research Foundation (DFG) within the priority program "Pollutants in groundwater, Part A," but was also largely funded by the state of Lower Saxony, the Volkswagen-Foundation, the EU Commission (DG XI. E3), the Ministry of Economics and Technology (BMWi) and private firms. In the general procedure, every year the research performance of each of the 17 institutes has first been double-checked anonymously and then the entire project was reviewed in context. Research within the priority program was subject to particularly close scrutiny of the reviewing experts of the DFG. The program presented here was not only one of the technically most comprehensive ones in the field of landfill research, but also ranked among the most thoroughly and externally verified programs (see Table 1).

Long-term studies on biological mechanisms can not be stopped and repeated in short time. They require, therefore, a fast-reacting internal check of the results in addition to external evaluation. Inconsistencies were evident already in the bud, as the participants worked on their own group responsibility with the same large scale models, coped with the methods of neighbouring groups, and finally needed their results for own interpretations. Since the results of all groups had to be compatible with each other, inconsistencies with possible impacts on different fields could easily be ascertained by using such a method.

The crucial control was always compliance with reality, assured by time-parallel application of the findings in practice (Dörrie et al., 2009).

2.2 Participating scientific institutions and their tasks

Regarding the link list to be considered and the still outstanding issues (Tab. 2), numerous scientific disciplines and two specific areas of civil engineering were needed for a conclusive research.

Tab. 2: Relevant model laws and parameters to analyse the behaviour of landfills

- | |
|--|
| <p>A) Known correlations and model laws during experimental design</p> <p>a) Water movement</p> <ul style="list-style-type: none"> - effect of gravity: Froude - viscosity: Reynolds - surface tension + capillarity: Weber - laminar flow in pile pores: Darcy <p>b) Gas convection and diffusion</p> <ul style="list-style-type: none"> - convection coarse pores: Reynolds fine pores: Darcy - diffusion: Fick <p>c) Deformation of the pile</p> <ul style="list-style-type: none"> - elastic: Cauchy-Riemann - plastic: Terzaghi (consolidation) <p>d) Energy exchanges</p> <ul style="list-style-type: none"> - thermal conduction - physical energy transport by mass movement with and without change of the state of aggregation - chemical energy transport by decomposition products <p>B) Relationships to be examined</p> <p>a) Water balance:</p> <ul style="list-style-type: none"> - relationship between climatic water balance and water entering the landfill body - ratio of storage and direct effluent through large pores - change of storage capacity due to degradation processes and consolidation <p>b) Biological and chemical processes</p> <ul style="list-style-type: none"> - amount and products of the degradation of natural organic substances depending on disposal conditions - conservation and activation of degradation processes - elimination of pathogenic germs - potential and range of the degradation of synthetic organic compounds - mobilisation and immobilisation of elements/compounds relevant to the environment - change of physical and chemical conditions after degradation processes |
|--|

According to current knowledge, the following research areas and their assigned tasks covered all influencing factors, listed in Table 2 (ID-No. of participating institutions cp. Tab. 1):

Civil Engineering

- (1) Hydraulic engineering: technical pilot experiments of the research program, consisting of model theory, construction and operation of large-scale models representing landfills and aquifers in a 1:1 scale; implementation of reactivation experiments; flow and material flow measurements and their calculations; balance of water and solid material; coordination of the research program; responsibility for interdisciplinary publications.
- (2) Sanitary and waste engineering: selection of representative municipal waste; analysis and characterisation of drainage according to the criteria of wastewater management; biodegradation tests of leachate compounds in biological wastewater treatment plants analogous to degradation in watercourses.

Geology + Physical Geology

- (9) (17) Hydrogeology: material selection and material testing of representative aquifers, covering layers and the groundwater; measurement of geochemical reactions; cross-disciplinary statistical analysis of the results of the whole research project
- (12) Hydrometry: measurement of seepage velocity, evaporation processes, water storage and recharge through the determination of the natural environmental isotopes ^2H and ^{18}O ; differentiated measurement of chemical transport by different tracer

Chemistry

- (8) (3) (11) selection of typical industrial wastes and pesticides as model substances of co-disposal
- (8) chemical analysis of municipal waste and its background level
- (8) (3) transport and degradation processes of typical chemical loads from industrial production including intermediate stages of metabolism
- (8) (11) (3) degradation tests with persistent organic compounds
- (11) characterisation of sorption, transport and degradation of pesticides

Agrochemistry

- (10) Attenuation of seepage loads in the A-horizon of agricultural soil
- of humic substances
- (6) (14) characterization of solids
- (13) characterisation of the dissolved compounds
- (16) pyrolysis-GC/MS and pyrolysis-FIMS for the identification of dissolved and solid compounds

Microbiology and environmental hygiene

- (5) (4) growth of microorganisms on waste, depending on decomposition processes
- (5) (11) (4) measuring biological activity
- (7) transport and survival of pathogenic germs
- (6) (4) ecotoxicological tests

Physical chemistry and biochemistry

- (15) microbiologically induced exothermal decomposition processes in mono-landfills for plastics

2.3 Minimum size of the model installations

The detriment of drinking water sources by landfill seepage can only be evaluated when the following processes will at least be investigated:

- a) emissions of harmful substances from the landfill body on the water path
- b) elimination of pollutants by self-purification:
 - in surface waters
 - in the A- and B horizon of the biologically active topsoil
 - in the aquifer (C-horizon)

Note to a): Design of the investigation of landfill bodies:

Already the first two model laws of Tab. 2 (Froude, Reynolds) require an experimental scale of 1:1 to investigate the relationships. This can be achieved by direct testing of landfills. The remaining preconditions of Tab. 2, especially the comprehensive control of the experimental

conditions, can not be met by such tests. In a reduced landfill scale for process control, using a geometrically similar model of a smaller size, the mass decreases with the cube of the length, while the surface decreases only with the square of the length. Therefore, geometrically similar model landfills define boundary effects, not the processes within the real landfill. Manageable and similar conditions can only be established by models representing a section of the interior of the landfill body. This task had to be solved before the main experiment started.

Note to b): Measuring the elimination performance in drinking water resources:

For this purpose, the short-and long-term elimination of loads using fresh or rather long-term-leachates was examined. Test methods were developed before the main research started, considering both the processes at the emission source and the long-term emission itself.

Surface waters:

Degradation in biological wastewater treatment plants as well as degradation of pollutants in surface waters can be simulated on a laboratory scale. The long-term effect can be measured using leachate from old landfills as a substrate.

Passage through the A- and B-horizons of a lively topsoil:

Studying the passage of leachate in topsoils is state of the art in agricultural experimental research. Self-purification during the trickling path down to drainage was consistent with the reality at the experimental 1:1 scale. The long-term effect was detected by parallel measurements of acidic leachate from a landfill at the initial phase and leachate from an aerobic landfill during its final stage.

Aquifers:

The hydraulic description of an aquifer is state of the art in experimental hydraulic engineering, while the geometrical scale 1:1 is to be observed. To measure long-term elimination processes, both time scale and flow length, therefore, had to be shortened due to limited experimental time and restricted length of the used artificial aquifer. Also this model-theoretic assignment had to be solved before the main research started.

2.4 Organisation of long-term interdisciplinary research

From other major interdisciplinary research programs like “Sonderforschungsbereiche“ typical weaknesses are known. Through ongoing internal and external quality control, testing and, if applicable, acquisition of new research impulses, an attempt was made in this program to counter such tendencies. Therefore, the following conditions were met:

- a) conducting research of all disciplines at the jointly developed, identical object of research (central test facility) in a continuously adjusted general program; decentralised test facilities were used to clarify details.
- b) independence and autonomy of each investigator or any research group (no restrictions by the authority of a research director), and unrestricted right to publish;
- c) permanent examination of the compatibility of the research results of different disciplines and immediate clarification of differences, directed by the coordinator;
- d) complete integration of all participants in the scientific field of each institution, to guarantee the recent status of subject-specific research;
- e) contribution of every participant to the ongoing program with open access to the results of other participating institutions, regardless of whether this was a university, scientific agency or private research unit;

- f) obligation of each participant for continuous interdisciplinary cooperation and ongoing reconciliation of working progress and results including joint annual reporting;
- g) agreed structuring of the research program into defined research segments with joint publication of the results in book-form; re-structuring of the research group for the following segment;
- h) continuous assessment of the experimental results by application in practice.

For the size of annual external audits by reviewers, appointed by the sponsors, see section 2.1.

2.5 Temporal sequence of the research sections

In this publication execution and results are structured according to the professional context and not in chronological order:

Processes in landfill bodies

- Development of models representing municipal waste landfills
- Analysis of cause and duration of liquid emissions of differently operated municipal landfills, contaminated with different amounts of industrial residues

Attenuation at potential drinking water resources

- In surface waters
- During percolation through biologically active top soils (A-and B-horizon)
- In porous aquifers

The sequence of the program was divided into the following research steps, whose respective results were published as joint research reports (for cyphers (1) (2) etc. see Tab. 1):

1972-1985: Preparation and amendments of the research scheme

(1) (2) (6) (7) (8) (17) Conceptional design of the research program, development of the testing facilities, optimisation of the biological stability compared to then common landfill technology;

Funding by: German Research Foundation (DFG) and federal state of Lower Saxony

Publications: Spillmann & Collins, 1978 and 1979, Spillmann, 1989

1976-1981: 1st Research Section

(1) (2) (5) (6) (7) (8) (9) (10) (11) (17) Examination of short- and medium-term reactions in landfill bodies after different types of deposition and various levels of industrial load together with subsequent emissions: construction and operation of 10 large-scale lysimeters including intensive sampling; biodegradation measurements of the leachates in sewage treatment plants and on agricultural land; dismantling of 3 parallel lysimeters after 5 years, weighing and analytical tests of the fragments;

Funding by: German Research Foundation (DFG) for each individual research group (normal procedure)

Published book: Spillmann, P., (ed.), 1986: Water and nutrient balances of landfills and their effects on water bodies. DFG-Research Report. Weinheim, VCH, ISBN 3-527-27121-X

1978-1991: 2nd Research Section

(1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Examination of self-purification processes in porous aquifers after infiltration of leachates with different loads;

Funding by: German Research Foundation (DFG) within a programme of emphasis ("Schwerpunktprogramm") entitled "Contaminants in groundwater, part A"

Final report as published book: Spillmann, P., H.-J. Collins, G. Matthes, W. Schneider (eds.), 1995: Contaminants in groundwater. Vol. 2: Long-term behaviour of environmental chemi-

cals and microorganisms from landfills in groundwater. DFG Res. Report, Weinheim, VCH, ISBN 3-527-27133-3.

1981-2008: 3rd Research Section

Measurement of long-term processes in landfill bodies and their effects on emissions

1981-1992: (1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Long-term monitoring of the landfill bodies in the main research experiment

1986-1993: Program amendment: effects of different waste recycling techniques on leachate loads (5 large-scale lysimeters)

Funding by: German Research Foundation (DFG) within the research programme of emphasis "Contaminants in groundwater, part A"

1992-1994: (1) (3) (4) reactivation tests for degradation and emission, using material of the main experiment.

Funding by: Volkswagen-Foundation

Publication: Brammer et al. (eds.), 1997

1994-2008: (15) (16) Investigation of instability and auto-ignition of deposited plastics, assessment of soil-like material according to the criteria of humic substance analysis; multidisciplinary evaluation of the results of the entire research program, and application in practice

Funding by: European Commission (DG XI.E3), Federal Ministry of Economics and Technology (BMWi)

Final report as published book: Spillmann, P., T. Dörrie, M. Struve (eds.), 2009: Long-term hazard to drinking water resources from landfills. London, Thomas Telford Publishing Ltd., ISBN 978-0-7277-3513 – 3.

3 Investigation of the processes in landfill bodies (for the researchers involved see cyphers in Tab. 1)

3.1 Development of the physical model as a section from inside of a municipal waste landfill in conjunction with the method to shorten the time scale

3.1.1 Section from municipal waste landfills of different biological stability as a lysimeter model

Objectives:

A Construction of a lysimeter as segment from inside a landfill in a 1:1 model scale

B Contraction of the time scale for hydraulic and biochemical process modelling

C. Selection of landfill technology and waste types for the main experiment

Execution:

First experimental series:

6 compressible large-scale lysimeters, filled with rural domestic waste of slightly varying density; aerobic degradation; some 2 years of observation period (Spillmann and Collins, 1978 and 1979)

Second experimental series:

10 compressible large-scale lysimeters, filled with inhabitant equivalent amounts of domestic waste and sewage sludge; comparison between mixtures (5 lys.) and layers (5 lys.) with aerobic pre-treatment (8 of 10 lys.) and immediate anaerobic compaction (2 of 10 lys.); 5 years of intensive sampling, followed by an extremely compacted permanent aerobic landfill, built by material of the 5 aerobically stabilised waste/sludge-mixtures; 8 years of observation period (Spillmann, 1988 and 1989)

Third experimental series:

Optimisation of waste processing for the aerobic stabilisation of inhabitant equivalent waste/sewage sludge-mixtures, 36 types of mixtures and 8 replications as piles (Spillmann, 1988).

Conducting scientists:

Pilot operation: (1) P. Spillmann, Stenzel

Efficiency control:

- Leachate: (2) Knoch, Stegmann, Ehrig
- Solids: (6) Homrighausen

Results:

A Construction of the physical model as a lysimeter:

The scale of 1:1 can be realised for municipal waste by a large-scale lysimeter according to fig. 1 and fig. 2 as a section from the interior of a landfill. Such a device is all-side manageable. The original material - here German municipal waste without commercial and bulky waste - was compacted without crushing to the same density like in full scale treatment. The walls were compressible but not extendible (no silo effect) and thermally insulated. The diameter of 5 m was determined by the dimensions of the coarse waste fraction. For the municipal waste used here the boundary deviation from the average waste composition was less than

10%. The anaerobic condition of a commonly compressed landfill could be maintained over a period of more than 10 years by means of gas barriers shown here. The hydraulic boundary effect was reduced to zero after proper waste emplacement, even while testing the effects of perched water horizons above sludge layers.

see Fig. 1

The measurements were carried out according to the principle "from large to small". The effect of degradation and water storage was determined by weighing the total mass before installation and after the end of the experiment. Leachate discharge was completely measured on-site as well as the amount of precipitation - additionally controlled by several rain gauges on the surface of the lysimeter - following meteorological service standards. Results of these measurements were prerequisite for further analysis of samples of gases, solids and leachates, taken at the side of the lysimeter. The design principle presented in fig. 1 technically allowed the construction of much higher and thermally fully controllable landfill segments (principle see section 3.1.2), but the participants did not use this option (Spillmann and Collins, 2009).

B Time-shortening in a 1:1 geometric scale:

B.1 Water balance:

The capillary rise of water even in extremely compacted waste-sludge mixtures can be neglected (mulch effect), and the evaporation from the waste surface is limited to about 20 mm (fig. 3). In cases of a vegetational cover the calculations of agricultural and forestal hydrology are to be used. Rainfall input depends only on the climatic water balance and surface form, regardless the landfill height and age.

see Fig. 3

Conclusions from time-shortening by the model:

The final water storage value was measured for the consolidated final state. Parallel operation of several large-scale lysimeters according to fig. 1 using the same waste, but different disposal techniques and hence different waste degradation rates, allowed both an investigation of typical storage processes in landfill segments of only 4 to 6 m height within 5 years by weighing and to transfer the results to 10-fold higher operating landfills (Spillmann, 2009a, Maloszewsky et al., 2009). This shortens the time scale by a factor of 10 compared to measurements at operating landfills.

B.2 Biochemical stabilisation:

A conversion of organic waste to humic-like substances proceeds proportionately to the release of energy. The required reaction time crucially depends on the disposal conditions, while the final values are always identical (fig. 4). The inhabitant equivalent mixture of waste and sewage sludge may achieve the inert status of a forest soil after one year, provided an optimised processing, adequate water supply, and aerobic conditions. This process can be characterised by a curve of the half-life. After compaction on an aerated and drained base the quality of the leachate meets the minimum requirements for discharge into receiving waters, if these waters are not directly used for drinking water purposes (Spillmann, 1988).

see Fig. 4

Conclusions from time-shortening by the model:

A final and permanent aerobic condition could be reliably achieved in the physical model within two years, which could be proven as follows: a large sample of 10 kg with a water con-

tent of 30 - 35% is left for at least 4 weeks at 20 – 25 °C under airtight seal. The redox potential thereafter was too high to produce dark iron(II)sulphide. As the respiration rate corresponded to that of a forest soil, added easily degradable substance like peptone was completely respired, i.e. no inhibition of degradation occurred. Subsequent biological activity only insignificantly depleted the organic matter and induced an aerobic transformation of low-molecular humic-like compounds into more stable high-molecular ones. If the waste is compacted during this state, a permanent aerobic landfill body may be established. In case of a subsequent intervention into the landfill, no reactivation of degradation processes is to be expected (proof: cp. chapter 3.2.4.7). Therefore, the status can be defined as biological primary stabilisation, analogous to the primary consolidation after Terzaghi (fig. 5): The latter will be achieved when pore water pressure tends to zero, the former if the oxygen demand for aerobic degradation of the organic matter tends to zero. As oxygen enters into the compacted landfill body by diffusion once the interior gas pressure disappears, the gas exchange - described by Fick's law - reveals the same linear dependency as water drainage from cohesive soils by Darcy's law. Moreover, the half-life curve of undisturbed aerobic primary degradation (at high redox potential) can be adequately linearised (fig. 4, below). Mathematically this corresponds to the linear spring constant in Terzaghi's model (fig. 5). The approach to calculate the biological primary stabilisation is identical to Terzaghi's approach for calculating the primary consolidation. Terzaghi's model law, therefore, applies here as well:

$$(H/h)^2 = T/t$$

H landfill height,
h height of stabilised layer
T stabilisation time of the landfill
t stabilisation time for the model

(For the complete derivative of the model law, cp. Spillmann 2009a)

see Fig. 5

Application of the model:

The primary stabilised material was produced by using the same waste and the same lysimeters (= landfill segments), where biodegradation of this waste was analysed under prevailing landfill conditions. Thus, the reference state of the primarily stabilised waste was set. The speed of primary stabilisation progress from the surface into a compacted landfill body within current standard landfills could then be measured in parallel at the same site. The minimum time for primary stabilisation of the entire landfill according to the Terzaghi analogy may be calculated using progress rates of adequate accuracy (for the entire derivation see Spillmann, 2009a).

Important Note: The primary stabilisation does not designate the end of the follow-up care! Leachates will occur also during the subsequent secondary stabilisation phase, which may significantly pollute drinking water sources. Applicable German standards for a discharge into receiving waters can only be met by leachates from fully aerobic stabilised wastes. A discharge into receiving waters, to be used for drinking water purposes, is not allowed without further treatment.

C Selection of landfill techniques and wastes for the main experiment:

The lysimeters were used as landfill segments to test various disposal techniques for producing primarily stabilised wastes and to compare them with conventional compaction. Primary stability after one year was achieved for an optimised, inhabitants equivalent mixture of do-

mestic waste and sewage sludge if gas exchange and water balance did not interfere (no formation of sulphide to the exclusion of air). Here, the concentrations of organic substances in eluates met German landfill class II-requirements, while pollutants met landfill class I-requirements. The same optimised but freshly compacted waste/sludge mixture achieved the same stability only after 10 years under the very favourable conditions of a ventilated base. A sludge-free municipal waste (excess of carbon), aerobically degraded under optimum conditions, also achieved primary stability after 10 years, but here the organic leachate load increased tenfold, compared to the waste with nutrient compensation, resembling a natural peat forming process.

Besides waste/sludge-mixtures the deposition of sewage sludge in separate layers was analysed. An exchange of gas and water was considerably disturbed by the barrier effect, and so a primary stabilisation could not be achieved. Also in standard compaction landfills the water balance was sometimes disrupted, associated with acid waste conservation, remaining for a period of even 7 years (Spillmann, 1988). For practical purposes sludge deposition as layers is inappropriate due to requirements on the stability of landfills (Gay et al. 1981). Such plants will no longer be approved in Germany.

After preliminary tests, the following landfill techniques and material options were compared and analysed in the main experiment:

- 1 Typical compaction landfill without sludge
- 1a Municipal waste, 2-m layer per year with sandy intermediate cover (old operating permits)
- 1b Municipal waste, thin-layer placement (50 cm) within about three months, no intermediate cover (recent development)
- 2 Current compaction landfill with inhabitants-equivalent sewage sludge "lenses" (compact entities, water flow around)
- 2a Emplacement such as 1a
- 2b Emplacement such as 1b
- 3 Anaerobically compacted mixture of inhabitants equivalent waste/sewage sludge (undisturbed percolation)
- 3a Emplacement such as 1a
- 3b Emplacement such as 1b
- 4 Primary stabilised waste/sewage sludge-mixture as reference material
- 4a+4b Parallels (for verification of reproducibility)

3.1.2 Model system for testing the biochemical stability of deposited polymers

Objectives:

The instability of mono-landfills for plastics resulting in open fires is known from practice, and research had to find its causes and concomitants. A model is suitable for investigation, if it reproduces the reactions known from practice until the outbreak of fire as in real landfills.

Execution:

The crucial problem of the model is the exact thermal congruence with the landfill, in particular the effect of heat accumulation. In a large volume lysimeter (fig. 6) the heat flow was prevented by adjusting the jacket insulation heating system to the temperature inside with an accuracy of 0.01 °C. The experiment started at room temperature and the up to 20 years lasting increase of temperature, ending in an intensive reaction phase, was artificially bridged by a slow heat transfer from a jacket heating (e.g. 1 °C/d). Finally, the spontaneous self-heating

was tracked. The reaction energy could be dissipated by water evaporation after the temperature in the jacket went beyond the boiling point. To avoid laboratory fires, the jacket heating was turned off automatically above 95 °C.

see Fig. 6

Experiments with already unstable waste were started after taking drill samples to verify compliance with processes in the landfill. Additional tests followed with brand-new material, inoculated by suspensions of adapted micro-organisms from real intensely self-heated plastic deposits. This allowed to bridge the adaptation period.

Results:

Self-heating could repeatably be measured at material from boreholes in hot zones of a plastic monofill, while accrued gases were taken. These processes could be replicated with brand-new material, if inoculated with a bacterial suspension from drilled plastic waste in monofills. Therefore, this method is appropriate to verify a potential self-ignition of deposited plastic residues (Hartmann et al., 2009; Ballin et al., 2009; Ballin & Hartmann, 2009).

3.2 Direct measurement of long-term emissions from landfill bodies depending on the landfill technology and the chemical load (co-disposal)

3.2.1 Objectives of measurements

For the analysis of long-term emissions the following has to be realised:

- Measurement of water and solids as a function of the climatic water balance, landfill engineering and industrial loads (co-disposal), (fig. 7).

see Fig. 7

- Measurement of the phases of degradation and stabilisation: operational and storage phase, saturation during storage, flush-like mobilisation of storage water after limited disturbances of the capillary equilibrium (heavy rain, snow melt), release of water due to reduced storage capacity and consolidation of the landfill body, activation of emissions depending on water balance, degradation and consolidation processes.
- Examination of the real stability of waste deposits appearing to be stable: synthetic organic compounds and humic-like substances.

3.2.2 Completion of chapter 2 requirements during the test procedure

cp. (1) Spillmann & Collins, 2009

- a) General control, distinct experimental conditions: Construction of the large-scale lysimeters corresponding to section 3.1.1, fig. 1
- b) Full coverage of all relevant factors:
 - b1) involved scientific fields: see section 2.2;
 - b2) landfill operating techniques and selection of waste for the physical model (large-scale lysimeters): see section 3.1.1, item C;
 - b3) detailed description of typical biochemical degradation phases in landfills: stable long-term acidic phase; rapid degradation during the methane phase; rapid and extensive aerobic degradation to a soil-like material.

b4) influence of recycling on municipal solid waste: sewage sludge utilised (after consistent control of dischargers, e.g. in Braunschweig), sewage sludge utilised and recyclable materials separated; residual waste deposited after separation of all recyclable material.

b5) deposit of industrial residues (co-disposal): urban municipal waste only from residential areas with very low diffuse background loads as base for the physical model (large-scale lysimeter); three-step load by typical industrial wastes with advancing deposition parallel to an unpolluted dump section using the same technology; dosage according to German co-disposal regulations (state 1976) (fig. 7, 3rd step of pollution = allowed maximum value 1976 in Germany); typical industrial pollutants: electroplating sludge (mineral, non-biodegradable), cyanide (inorganic, degradable), phenols (organic, biodegradable), lindane (chlorinated cyclic hydrocarbon, persistent, low water solubility), simazine (chlorinated triazine ring, hardly biodegradable), dicrotophos (phosphorus bound by oxygen bridges to different molecular groups) (fig. 8).

see Fig. 8

b6) Stability test of substances appearing to be stable:

High energy content, chemically and biologically hard to attack ("plastics"): see section 3.1.2 (Hartmann et al., 2009)

Low energy content, heavily biodegradable: Comparison of humic-like substances with natural soil by combining the analytical methods of pyrolysis-GC/MS with pyrolysis-FI/MS (Franke, 2009)

c) Minimising measurement tolerances and error propagation. Construction of the plant according to section 3.1.1, item A, following the measuring principle "from outside inwards":

"Outside" = integrating measurements:

Weighing all masses prior to emplacement and after dismantling the Lysimeters, logging leachate discharges (mass and contents) to get the loads; minimum size of samples per landfill stage about 1 m³; 4 rain gauges on each lysimeter surface; measuring gases and mean temperature of the lysimeter's cross-section in vertical distances of about 25 cm; control of mean temperatures by close probes;

"Inside" = incremental sampling:

Analysis of leachate trickling through the landfill body, taken by lateral drainage of samples, sampling of solids by lateral removal, lateral in- and output of test material, measurement of local temperatures at insert points of defined microorganisms, extraction of solid material during dismantling to detect displacement of the targeted test substances (co-disposal) and the range of biological activities within the waste body.

d) Transferability of the findings: acceleration of degradation processes have technically been tested on operating county landfills at Schwäbisch Hall (Jourdan et al., 1982), Nienburg and Bad Kreuznach. Reactivation of emissions in old landfills appearing to be stable was recorded during decommissioning activities inter alia at the landfills of "Donau Park" (Vienna), "Helene Berger" (Wiener Neustadt) and "Fischer landfill" (Vienna) by the BI-OPUSTER working group, Vienna (Spillmann et al., 1992/93).

3.2.3 Timing of investigations

1976-1981 initial phase of deposition

All tested landfill types were constructed in three stages in parallel to a slowly operating landfill with about 2 m per year (except the separately constructed third level with industrial pollutants).

1981 Final examination of the initial phase

Three anaerobic parallels were studied after 5 years by gradual dismantling (fig. 9).

see Fig. 9

1981-1986 Influence of the precipitation height on emissions

For another 5 years the doubled amount of the natural rainwater height was given on each chemically contaminated landfill segment, in order to adjust the dry site to a normal central European location.

1986-1992 Comprehensive control after the end of intense initial reactions

Measurements at the installed and not additionally irrigated material continued for another 5 years until the reactivation test started.

1992-1994 Reactivation test

A landfill deconstruction was investigated for two years, using intermediate aerobic treatment for accelerated waste stabilisation prior to re-compaction. Material conditions were carefully measured and analysed before further treatment, during re-activation and after subsequent compaction. The investigation focussed on behaviour and potential degradation of incorporated industrial wastes (co-disposal).

1986-1993 Influence of recycling measures

The investigation of the recycling influences begun after the intensive investigation of the total waste was completed by dismantling of three lysimeters. Based on experiences with total waste, 5 new landfill sections with recycling influences (i.e. total waste without sludge, anaerobic; recycling of recyclable materials, anaerobic and aerobic; recycling of organics and recyclable materials, anaerobic and aerobic) were investigated for 6 years using the same methods as the total waste. Because of the distinct results, the construction could be limited to 2 levels of about 2 m height each. After the end of the observation period, the waste layers were removed and intensively sampled. The analytical measurements concentrated mainly on biodegradation and dislocation of industrial waste components.

1994-2008 Examination of the real stability of waste components appearing to be stable

After completion of the large-scale field research, reactions of various thermoplastic synthetics with and without additional ebonite (= product of natural rubber and sulphur) were investigated for a period of 14 years in thermally controllable laboratory reactors. Organic humic-like compounds concurrently were characterised by pyrolysis-GC/MS and pyrolysis-FI/MS analysis.

2009 Final publication by Telford Publishing, London.

3.2.4 Results of measurements

Note: The following findings only give references to the complete final report, which should be used for professional application.

3.2.4.1 Suitability of the test facility to reproduce major landfill conditions

(cp. (15) Spillmann, 2009c)

All relevant requirements, listed in section 3.1, were met despite the small dimensions. An-aerobic and aerobic storage conditions were accurately simulated and remained stable for 15 years. Boundary drains apart from condensation during the initial phase could reliably be excluded in the "hot composting" option. All sampling (gas, water, solids) could be carried out as scheduled. Material weight prior to installation and after removal was crucial for a quantitative assessment of degradation processes. A comprehensive sampling procedure during dismantling and retrofitting (reactivation tests) proved necessary for the assessment of biodegradation and transport of chemicals.

3.2.4.1.1 Balance of water and solids

(cp. (1) (15) Spillmann, 2009b, (12) Maloszewski et al., 2009)

Water input:

Precipitation input is controlled by the climatic water balance together with the "mulch effect" (i.e. no capillary water supply from deeper layers during weather periods of high evaporation). The maximum evaporation from an operating area without vegetational cover or with sand cover after rainfall events will amount to less than 20 mm, from a cohesive cover to about 25 mm. Vegetation is to be considered according to calculations of agricultural meteorology, while the storage capacity of the covering layer is always a limiting factor for evaporation (Fig. 10 and 11). The results of the preliminary tests were confirmed.

see Fig. 10

see Fig. 11

Storage capacity:

The organic substance retained nearly as much water as is its dry weight. The storage capacity of the remaining waste components was known and, therefore, the average capacity could be calculated from the waste composition.

Process of storage and seepage:

No seepage front was observed; the free storage capacity was saturated at the time of delivery, parallel to the direct runoff in coarse channels. The runoff was at least 10%, after intense rainfall up to 30% of the precipitation. The equilibrium in saturated capillaries was disturbed by intensive water supply (e. g. during snow melt) and, in a "chain reaction", temporarily released stored contaminated water at the base. This process pretended a seepage front.

Mobilisation of stored water after biodegradation of solids:

Mass losses could not be detected during the acid phase. Anaerobic degradation to methane and carbon dioxide as final products may reduce the organic dry matter by up to 50 % (w), while aerobic degradation may reduce it up to 60 % (w). Substances bound to the organic matter are released during these biochemical processes (fig. 11). Approximately 0.5 tonnes of water per ton of degraded solids were re-generated either by aerobic decomposition of organic material during an aerobic pre-stabilisation, or by aerobic decomposition of methane in the upper layers, increasing overall emissions.

see Fig. 12

3.2.4.1.2 Leachate loads after biodegradation of natural substances, according to the criteria of urban water management

cp. (2) Ehrig, 1986, and (1) (2) (15) Kruse & Spillmann, 2009

Deposits without co-disposal:

Deposition conditions controlled trickling water pollution, waste composition was secondary:

- a) Acidic phase: COD 10,000 - 60,000 mg/l, mainly caused by organic, readily biodegradable acids; Cl^- 1000 - 4000 mg/l, $\text{HCO}_3^- > 2000$ mg/l; the pH jump at acid-degrading microorganisms produces a coral-like growth of irreversible stony matter in the base drainage (detection by Ramke & Brune, 1990), requesting biological stabilisation of at least the first layer of a landfill.
- b) Stable methane phase: NH_4^+ 1,000 mg/l (fish-toxic), $\text{Cl}^- < 1,000$ mg/l, $\text{HCO}_3^- < 500$ mg/l, both insignificant;
- c) Stable aerobic phase: COD 150 - 2000 mg/l, heavily biodegradable, Cl^- and HCO_3^- low, SO_4^{2-} 1,000 mg/l;
- d) Change of phases in the seepage path: biologically stabilised lower layers may reduce high organic loads from the acidic phase by one or two orders of magnitude after biodegradation.

Deposition with co-disposal:

Toxic industrial deposits already in small doses slowed down biological stabilisation, and could interrupt the degradation chain under co-disposal conditions, even when German limiting values (until 1980) were not exceeded. This led to high, long-lasting loads similar to those of the "acid phase", as the degradation chain leading to persistent matter was cut. Again, formation of stony matter could be observed in the base drainage.

Influence of recycling measures:

Leachate loads were mainly influenced by the deposition conditions, depending on the operating techniques. The loads for one ton of total waste also applied for residual waste. Considering the same operating technique, environmental benefits per capita proportionally increase after successful recycling measures, here by a maximum of 70%.

3.2.4.4 Transport and elimination of pathogenic germs (e.g. from hospital waste)

cp. (7) Jung & Knoll, 1986

Anaerobic compacted landfill:

In compacted anaerobic landfills pathogenic germs were not eliminated, but directly discharged with the outflow via coarse channels.

Aerobic stabilisation before compaction:

During a careful aerobic stabilisation before compaction, temperatures of > 60 °C were achieved for more than 3 months, and so all indicator germs both on carriers being in direct contact with waste and in vials were reliably killed.

3.2.4.5 Degradation and transport of toxic industrial waste

cp. (8) Rump et al., 2009, (11) Nordmeyer et al., 2009

Soluble substances (fig. 13)

- Anaerobic deposition of unsaturated wastes:

During the storage phase, all four inorganic and organic model chemicals were largely withheld, independent of their solubility. In landfills without biological pre-treatment such phases extend for at least several decades. Capillary water is released by degradation of water-saturated organic matter, and with an increasing discharge soluble industrial chemicals are emitted.

- Intensive aerobic stabilisation with subsequent compaction:

Soluble substances discharged during the stabilisation process, while volatile substances like benzene evaporated at 70 - 80 °C, and organic substances like phenol were largely degraded. Heavy metals remained predominantly immobile at stable alkaline conditions after compaction.

see Fig. 13

Hardly soluble, readily adsorbable substances:

The model substances simazine and lindane were initially adsorbed at 100%, not depending on the degree of waste stabilisation. Subsequent rainfall gradually led to a complete desorption and reversible adsorption in deeper layers, and the substances steadily and completely shifted towards the base effluent by the alteration between desorption and adsorption in a continuous "chromatographic effect". Adsorption at aerobically stabilised waste was as low and reversible as on fresh waste despite the high organic content of the latter. This behaviour was different from a boggy soil, i. e. the organic matter from waste did not correspond to that one from organic soil.

Aerobic degradation before compaction:

Simazine and lindane were partially metabolised during intensive degradation processes, while parts of the metabolites were fully mineralised. Only transport processes but no further degradation were observed after an intensive degradation phase (fig. 14).

see Fig. 14

3.2.4.6 Decrease of biological activity in undisturbed material

cp. (5) Neumeier & Küster, 2009

Construction phase:

A significant decrease of biological activity was observed during the slow built-up of landfill sections (2 m/year) after 10 months, and eventually led to the formation of humic substances when oxygen entered the bulk waste by diffusion at the end of the intensive anaerobic degradation phase. Easily degradable organic matter from leachate of the fresh upper layer here reactivated the growth of microorganisms.

Lifetime after the end of the construction process:

During a lifetime of 12 years, degradation activity almost terminated in all waste deposits, even when only small amounts of organic matter were degraded as after a long-lasting acidic phase. This result for a model height of about 6 m corresponds to a follow-up period of about 30 years for a conventional 50 to 70 m high landfill.

3.2.4.7 Reactivation of degradation and emission processes

cp. (1) (3) (4) Brammer et al., 2009

Municipal waste without co-disposal:

a) Anaerobic deposits apparently stable:

Anaerobically deposited municipal waste after a stable methane phase for 5 years with about 40% (w) decrease of dry organic matter reacted like fresh waste. Here temperatures achieved 70 °C after simple mixing, followed by aerobic storage (natural ventilation).

b) Permanent aerobic waste:

No reactions were measured after re-mixture and aerobic storage (natural ventilation) of an initially compacted, permanent aerobic blend of waste and sludge. Chemical and in particular biological tests suggested analogy to forest soils (fig. 15). Criteria of waste management proved to be necessary but were not sufficient to characterise the stability.

see Fig. 15

Industrially contaminated municipal waste (co-disposal):

a) Anaerobic municipal waste, low to moderately high contaminated:

Such deposits, appearing stable under static conditions, reacted as intensive as uncontaminated waste treated by the same landfill technology. Comprehensive chemical and biological analysis, however, verified dysfunctions of the degradation processes. Added industrial contaminants dislocated during the storage time, but could be recovered quantitatively. Volatile organic substances vaporised due to high rotting temperatures and were subsequently emitted. The biodegradable part of organic pollutants, particularly phenol, was mineralised to the same extent as in waste-sludge mixtures during their aerobic biological conditioning prior to compaction. The emissions of other toxic substances increased. Also in this case, the waste management stability criteria proved necessary, but not sufficient.

b) Anaerobic deposits with high contamination:

Toxic effect of the contaminants led to a preservation of the waste and concurrently to high leachate loads (interruption of metabolic chains). After mixing and aerobic deposition of the waste, biodegradation remained inhibited, and the emissions of toxic substances increased significantly as a consequence of activation (fig. 16).

see Fig. 16

c) Permanent aerobic deposit with low or moderate load:

Industrial pollutants, being not evaporated or degraded during the aerobic treatment prior to compaction, were found by the same quantity before activation, but shifted in the direction of flow. Chemical and biological tests indicated some degradation in spite of inhibition effects, leading to a slow abatement of originally added pesticides, while mixing and aerobic deposit did not induce any biodegradation. Compared to unpolluted material of the same type, stabilisation remained less distinct.

d) Permanent aerobic deposit with high load:

Compacted material was by far less stable than unloaded or lightly loaded mixtures. Compared to anaerobic material, an activation of further degradation could easier be achieved, but nevertheless a certain inhibition remained, together with emissions of persistent and toxic substances.

3.2.4.8 Stability of the soil-like substance

cp. (15) + (16) Franke, 2009, and Husz, 2009

The organic fraction of the soil-like mixture of waste and sewage sludge appears as a precursor to stable humic substances, based on conventional analytical methods for this matter. Its mineral components, by contrast, deviate clearly from those of natural soils, and so aerobically stabilised waste may only be considered as component for the formation of nature-identical soils (certified procedure according to Husz, landfill "Langes Feld", Vienna).

Studies using pyrolysis-GC/MS and pyrolysis-FIMS provided more information about soil constituents than conventional analytical methods: The chemical structure of organic components of treated waste significantly differs from that one of a natural humic soil.

3.2.4.9 Stability of plastics in the landfill

cp. (15) Ballin & Hartmann, 2009, and Ballin et al., 2009

Detailed investigation of plastic material, e. g. less stable PVC- modifications and stable plastics from accumulators, demonstrated the ability of microorganisms from natural soils to adapt to different synthetic materials as nutrient source under landfill conditions. Exothermic reactions increased the waste temperature at hot spots, combustible gases appear from about 60 °C, and more than 100 °C may occur during simultaneous chemical and microbiological reactions. Gas ignition has already been detected in landfills during such processes. Spores of relevant microorganisms often withstand extremely high temperatures and, therefore, exothermic reactions can only temporarily be stopped by technical measures (e. g. by injecting liquid nitrogen into the hot spot), but not excluded in the long term.

3.2.4.10 Transferring results of stabilisation processes to real landfills

cp. Spillmann, 2009c

The municipal waste after 16 months of an intensive aerobic degradation with a stable balance of nutrients and water (due to inhabitant-equivalent waste-sludge mixtures), together with a steady gas exchange, was modified to a substrate similar to forest soils. Only this material allowed to build up permanent aerobic waste deposits of extremely high density and high mechanical stability, meeting all preconditions of a "primary biological stabilisation" (see section 3.1.1, item B.2). Such landfill bodies allow safe interventions also in the future according to geotechnical standards and simply require occasional maintenance.

Increasing primary stabilisation in deposited wastes without extensive pre-treatment was observed at best (i.e. good gas permeability, no internal gas pressure, no toxic inhibitions, adequate water supply without water accumulation) at a rate of 1.5 m within 10 years, due to oxygen permeation from outside. Stability will achieve the base of a 50 m high landfill, filled with a similar waste and at the same favourable conditions in \approx 11,000 years at the earliest, according to

$$T_{\text{stabil}} = 10 \times (50 / 1.5)^2$$

(for the model law see section 3.1.1, item B.2).

Deposits under most adverse biodegradation conditions due to continuing acid conservation (no measurable degradation) were prepared using the same inhabitant equivalent waste-sludge-mixtures, while such a material under undisturbed aerobic degradation could achieve the stability of forest soils after only 16 months. The mixture was still preserved at acidic-reversible conditions after a 10 years storage time. The chain of biodegradation during the acid phase was disrupted considerably by co-disposal, and the high load of typically ready degradable organic matter of the leachate turned to be heavily degradable. Duration of follow-up and monitoring measures can not be predicted for this type of landfills.

If one considers the time course of stabilisation processes, loads from existing deposits without biological pre-treatment will last longer than the guaranteed safety phase of the engineered barriers. Landfills with a long-lasting acid phase and co-disposal – i.e. deposits of the

highest potential pollution – will show the longest emission phases. These conclusions from results of the research project were confirmed by waste reactions to be incurred during the dismantling phase of the landfills Donaupark (Vienna), Helene Berger (Wiener Neustadt) and Fischer landfill (Vienna) (for details cp. Dörrie et al., 2009).

4 Possibilities and limits of the elimination of loads from municipal waste landfills by self-purification of water bodies

4.1 Basic principles of research

Water is not consumed but used. It remains available for drinking water purposes as long as it is not irreversibly contaminated. In cases of an outstanding drinking water demand, river water may be carried back against the direction of flow by pump stations. Examples from Germany are pumping stations along the river Ruhr for supplying the Ruhr area with drinking water. The chain of water usage stops when the self-purifying capacity is insufficient either to degrade the discharged substances or to fix them in precipitates. This will happen with high concentrations of soluble salts, excluding the use of water for irrigation. Only after return into the natural cycle after evaporation and precipitation drinking water is available again. Potential loads of drinking water resources by landfill leachates (see chapter 3) can, therefore, only be assessed if subsequent self-purification processes are analysed.

The conditions of natural attenuation have to be considered prior to investigations: degradation and fixation processes of harmful substances are mainly attributed to the activity of microorganisms, developing fast if sufficient biodegradable matter is available. Consequently, unpolluted waters have only a low tendency to self-purification. Once biodegradation processes are activated in polluted waters, a steady elimination rate of organic matter can be observed as long as nutrition sources for microorganisms and thus self-purification exists. The asymptotic curve of the amount of substance gradually tends to zero or may break after the growth-limiting concentration of a nutrient for the organisms is being achieved. The following consequences can be drawn from these base principles:

- Water resources, directly usable for drinking water purposes, e.g. springs, mountain rivers/lakes, water reservoirs (class 1 according to the German classification) show a very low self-purification capacity. Any impairment as the discharge of landfill leachates may threaten the potential drinking water quality. For such sources investigations of self-purification are not necessary.
- Surface waters with activated self-purification after natural growth of microorganisms (class 2 of the German classification) can be used as drinking water source after technical treatment or bank filtration. These waters have to be analysed carefully whether landfill leachate components may restrict their use for drinking water.
- Surface waters, polluted after domestic, agricultural, or industrial utilisation, cannot directly be used as a drinking water source. Purification is possible in biological treatment plants or by passing through the topsoil. This will allow subsequent discharge into watercourses with an activated self-purification potential (quality class 2) without adverse consequences. The scope of such techniques should, therefore, be analysed for landfill leachates as well.

- Groundwater is the pre-stage of spring water, and so drinking water from groundwater wells is equal in quality with regards to the chain of water usage. Pore aquifers have a high level of self-purification capacity, unlike directly potable surface water of a spring, because large grain surfaces may be colonised by microorganisms, acting as carriers for the gradual decomposition of harmful organic substances in groundwater. This metabolism resembles the processes during bank filtration of a class 2 or class 3 river water (at a flow time of at least 50 days). Drinking water from groundwater resources, taken by wells or spring tapping, may directly and invisibly be contaminated by landfill leachates. Here self-purification has to be examined with special care.

4.2 Models for studying long-term biological and chemical self-purification

4.2.1 Flowing surface waters

Self-purification processes of rivers are also used in biological wastewater treatment plants with the greatest possible effectiveness. Once the cleaning capacity of biological degradation or precipitation of harmful substances is known, both the protection of a watercourse by a treatment plant and the subsequent self-purification of the river can be appraised. Degradation progress in laboratory measurements corresponds to degradation in running waters by the same order of magnitude. The model laws are state of the art of sanitary environmental engineering (Ehrig, 1986), and comply with a proper scientific investigation according to table 2.

Time shortening:

Enduring biodegradation processes in landfills (i.e. initial acidic phase, basic methane phase, permanent aerobic final phase) may last for centuries. The time was shortened by one order of magnitude (methane phase) respectively two orders (permanent aerobic phase) by simultaneously modelling the three phases of a landfill in large-scale lysimeters. The selected design also allowed to investigate biological purification processes of the leachates.

4.2.2 Intensively cultivated topsoil (A-horizon) in overland flow wastewater treatment

The organic load of sewage is reduced in intensively cultivated topsoils, where minerals are transferred into the natural cycle by plant uptake (fertilising effect). Permanent contamination of the topsoil can be excluded by controlling the input, and groundwater pollution by soil drainage and monitoring of the drainage water. It was therefore examined whether the method is also suitable for the purification of leachates from municipal landfills.

The methodology of such studies with lysimeters and standardised planters is state of the art in agricultural sciences (Lohse, 1986). It meets all the requirements according to tab. 2.

Time shortening:

The same methods were used as for the investigation of flowing waters (see section 4.2.1): Leachates of the three successive phases (i.e. acidic, methane, permanent aerobic) were also studied here in parallel.

4.2.3 Pore aquifers

cp. (1) (2) (5) (7) (8) (9) (11) (12) (13) (14) (17) Spillmann et al. (ed.), 1996

Preliminary remark:

The research report from 1995 "Schadstoffe im Grundwasser, vol.2" of the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) comprehensively described results and findings on the topics

mentioned above, and are still valid in 2012. They are applicable in practice, for instance: measurement of pollutant loads in porous aquifers, fixation of mineral compounds, transformation of organic matter into stable humic substances, and metabolism of chlorinated organic substances. The report is out of print but available in most scientific libraries. The following summarised results may simply help to assess the effects of long-term emissions from landfills (see section 3) on drinking water resources. For a sound application the original reports should be used.

4.2.3.1.1 Scope and objective of groundwater studies

Leachates from landfills without or an insufficient base sealing and drainage will initially pollute the aquifer and the subsequent surface waters. Pollutants, not being eliminated by natural attenuation, can thus affect a drinking water resource, e. g. via wells, spring tapping or surface water. Self-purification in porous aquifers - representing approximately 80% of the North German drinking water resources – consequently was the center point of the investigations.

Extensive in-situ studies about contaminated groundwater were already available before the experimental design started (Golwer et al. 1970; Golwer et al., 1976; Giger et al., 1983; Golwer, 1983), describing natural attenuation of leachate contaminants. Nevertheless, the following questions remained open:

- a) How accurately could the actual loads of the aquifer be localised and measured by normal sampling procedures?
- b) Does the 50-day line (flow path of the groundwater within 50 days) indicate the effective survival time for pathogenic germs or is it the maximum transport distance, which is measured up to 50 days?
- c) How widely persistent organic substances were degraded or fixed in groundwater?
- d) How non-degradable pollutants like heavy metals were immobilised?
- e) Will groundwater pollutants at concentrations below their analytical detection limits be completely degraded or merely diluted, and could they accumulate again to harmful concentrations of the food chain?

Objective of the groundwater experiments was to ensure the in-situ results under controlled conditions and to respond to the still open questions.

4.2.3.1.2 Construction of the pilot plant

cp. (1) (9) (12) (17) Spillmann et al. 1995, part I

see Fig. 17

Conditions according to section 2:

Full compliance with the physical reality:

- Pore aquifer: The examined artificial porous aquifer consisted of sand without a silt fraction, which was taken from a real aquifer. The substrate represents about 80% of usable aquifers in Northern Germany.
- Covering layers: Both the top layers of highly permeable sand and hardly permeable silty material (loam) were taken from the top layers of real aquifers.
- Groundwater: Water of constant quality was extracted from the upper aquifer at the location of the pilot plant (Tab. 3).

Tab. 3: Comparison of introduced mineral-rich groundwater with typical mineral-poor surface water.

Parameter		Genuine groundwater	Water from the Harz, City of Braunschweig	Dimension
sodium	Na	60.7	9.5	mg/l
potassium	K	3.9	1.2	mg/l
calcium	Ca	190.0	13.8	mg/l
magnesium	Mg	23.5	2.8	mg/l
iron	Fe	5.7	< 0.1	mg/l
manganese	Mn	1.8	< 0.1	mg/l
sulphate	SO ₄ ²⁻	282.0	25.7	mg/l
chloride	Cl ⁻	92.9	10.6	mg/l
hydrogencarbonate	HCO ₃ ⁻	340.0	29.0	mg/l
total hardness		32.0	2.6	°d ¹
el. conductivity		1250.0	136.0	µS/cm
pH-value		up to 7.4	8.2	[-]

1 this parameter °d has been replaced by mmol Ca/l; 1 °d ≈ 10 mg Ca/l

Scale 1:1:

The cross-section by a factor of 3,700 exceeds the required hydraulic minimum dimensions of a sand-filled flume. Four separated flow paths with lengths 100 m each can be extended to 2 x 200 m or even to 1 x 400 m. Downstream measurements at landfills proved the most intensive degradation and fixation occurring within such range of distance.

Control:

The groundwater flow was controlled by the difference between inlet and outlet gauges. Leachate dosage was coupled with the amount of groundwater inflow and added through a short column of unsaturated soil (B horizon), vertically entering the horizontal groundwater flow. Thus the pollution load in the groundwater - measured in "m³ leachate/m³ fresh groundwater" - remained constant in each flume even if the water input swelled temporarily after intensive precipitation. Rainfall affected the flow profile as in reality, leading to an overlay of rainwater above contaminated groundwater.

Mastering the pilot plant:

A double-walled construction of the flume was financially not viable. Short distances between measuring gauges (10 m) in conjunction with an automatic recording of all non-stationary level fluctuations (time interval 15 min), and an independent weekly control levelling allowed to locate smallest defects and thus to evaluate the success of the seal already during the hydraulic start-up phase of the flumes. The surface of the cover was kept free from vegetation, and thus an additional and undesired entry of organic substances was excluded. All flumes appeared to be accurate, long-term measuring devices as to the entry of precipitation:

Rainfall input = total effluent - (groundwater inflow + leachate dosage).

Minimisation of tolerances by measuring "from large to small" (respectively: "outside-in"):

Relevant total loads:

The difference between influent and effluent loads of every flume is decisive for the determination of the actual efficiency of elimination, added over a test period of at least 5 years of

continuous application (leachate). In case of systematic dosages, the difference between freights could be measured until the detection limit was achieved. The freights were exactly known, because in- and outflows were collected batchwise and sampled after thorough mixing.

Differential measurements:

Groundwater:

Degradation processes in groundwater could be observed in space and time after observation pipes have been installed along the flow path. Slow and constant sampling with a peristaltic pump from the middle of three stacked sampling pipes avoided interferences of the groundwater flow. In the first section of the flumes the sampling points were arranged closer to each other, as intensive reactions of organic matter could be expected here. Furthermore, different amounts of salts in leachate and fresh water led to higher loads at the bottom of the flumes and as a consequence, the vertical distance of sampling points was reduced. Standard line sampling was checked by a mobile grid sampling device to improve the sampling pattern. Different tracers as internal standards allowed a survey of the velocity of the contaminant's migration and their remaining freight at the outlet.

Solids:

Microbiological growth on the surface of grains was analysed after the removal of solid material. A specially designed probe was used at selected points to take the solids together with interstitial water without causing any groundwater turbulences. Sampling locations were identified on the basis of previous water analysis. The influence of the passage through soils between landfill and aquifer (the B-horizon) could be analysed by means of the soil columns at the inflow.

Reproducibility of results:

Two of four artificial aquifers (sand and loam cover) were fed with highly contaminated leachate of the initial acidic phase of a real municipal landfill. The processes measured in the aquifers were consistent with each other and with the results from real landfills and, therefore, the findings from the model aquifers (flumes) could be transferred to reality.

Shortening the time scale in accordance with reality:

The behaviour of leachate from the initial acidic phase was known in principle from in-situ landfill measurements, but information remained incomplete due to technical difficulties in accurate measuring, especially the freights. Time shortening was not necessary for the model investigations. An extensive aerobic stabilisation of waste prior to compaction has been successfully tested in practical landfill operation (Jourdan et al., 1982). For the investigation of long-term groundwater contamination a model landfill has therefore been constructed by using biologically stabilised mixtures of waste and sewage sludge. This material remained permanently aerobic even after compression, corresponding to the reactivity of a forest soil. Its leachate met the present German regulations for direct waste water discharge. Compacted landfills - still common today - will achieve stable conditions only after more than a thousand years (see chapter 3). For the experiment the time scale of the expected long-term impact on ground water was thus reduced by two orders of magnitude.

4.3 Elimination efficiency and its limits

4.3.1 Self-purification in turbulent rivers

cp. (2) Ehrig, 1986

Basic studies on biological treatment of leachates from landfills, 1986 published by Ehrig, also remain valid to assess the self-purification of watercourses. They also helped to develop current sewage treatment techniques.

Overall impacts are to be divided into three distinct phases with different demands on a sewage treatment plant or on receiving waters:

- Acid phase: high organic load with prevailing readily degradable organic acids (high BOD_5) and very high salinity
- Basic methane phase: persistent organic pollution, high ammonium load (toxic to fish) and high salinity
- Permanent aerobic phase: heavy degradable humic substances with COD-loads up to 2000 mg/l, slowly decreasing chloride concentration, increase of sulphate load

For wastewater treatment the following requirements are particularly important:

- The initial loads of the acid phase are readily biodegradable at the beginning. Due to its high initial concentration, non-biodegradable residual organic load, however, remains much higher than in treated domestic wastewater. The dissolving of lime ($CaCO_3$) by organic acids is relevant for operational practice, which after precipitation at aerators and by foaming may complicate the operation of the plant. The high salt content - mainly chloride - will not be reduced.
- During the basic phase pH-values must be raised for a nitrification of high ammonia contents. Subsequent denitrification needs sufficient quantities of easily degradable organic substance, lacking in this type of leachate. Not biodegradable organic matter will increase during the treatment, while salt loads indeed decrease but remain high compared to domestic wastewater.
- Organic compounds of the permanent aerobic phase cannot only be reduced by biological wastewater treatment. High chloride loads of the first two phases are mostly replaced by sulphate in the long-term final phase.

Elimination of pollutants from industrial deposits (co-disposal) is well known from industrial wastewater treatment and was, therefore, not investigated in detail.

Consequences for the protection of drinking water:

A biologically operating sewage treatment plant alone does not fully protect drinking water resources like surface water against soluble compounds of a municipal landfill, even being of natural origin. Loads from a landfill's co-disposal increase the risk for these resources.

The biological stage of a sewage treatment plant corresponds to an optimised self-purification of a receiving water. An insufficient self-purification of the recipient can be assumed if leachate compounds are incompletely removed in the plant.

State of wastewater treatment in 2012:

A plant can eliminate the leachate load to such an extent that even small receiving waters are not adversely affected. This could be achieved by adding a chemical and/or a physical treatment (e.g. reverse osmosis) to the biological treatment stage. Remaining problems will be the duration of follow-up measures and the disposal of soluble residues from the plant.

4.3.2 Leachate treatment in intensively cultivated topsoil (A-horizon)

cp. (10) Lohse, 1986

Results published by Lohse in 1986 about the purification of landfill leachates in biologically active topsoils are still valid. Organic and mineral effluents of a municipal landfill can be eliminated in intensively farmed soils to such an extent, that significant loads can no longer be measured in the drainage. This requires a precise dosage and, according to regular agricultural management, a constantly monitored manuring to be adjusted to the changing load, where the supply of ammonium and trace elements should be observed in particular. Landfill leachate is inappropriate for irrigation purposes due to its high organic and mineral load.

An influence from landfill co-disposal may only be justified, if biodegradable or ecologically sound organic substances like non-chlorinated phenols or useful trace elements like copper and zinc are delivered. The latter may be regarded as fertiliser additives.

State of the art in 2012:

According to the author's knowledge, land treatment was previously not used on a larger scale due to the pollution risk. It was effectually tested, however, by agricultural scientists at the Technical University of Berlin on a vegetated and drained landfill cover.

4.3.3 Elimination of pollutants in porous aquifers

4.3.3.1 Measurement of processes

cp. Spillmann et al., 1995

Unsteady flow phenomena:

The water levels were identified every 15 min in piezometers using simple automatic ultrasonic meters. Measurements were sufficiently accurate to calculate unsteady flow and transport processes by steady flow approaches. This method can be transferred to practice.

Groundwater sampling:

The standard sampling procedure for natural groundwater – well drilling, pumping until the consistency of key parameters, sampling – is not suitable to detect emissions from landfills or contaminated sites: Leachate water sinks down due to its high salinity and, with a low transverse dispersion, follows the slope line of the aquitard (=impermeable bottom layer). Therefore, profile measurement and stratified sampling were introduced into practice (fig. 18; Lhotzky & Spillmann, 2002, in Dörrie et al., 2009).

see Fig. 18

Type and amount of loads in contaminated groundwater have a decisive effect on the flow and transport behaviour of different compounds. Their velocity of migration can be better understood by using suitable tracers like chemical compounds or isotopes. However, the transport behaviour of a pollutant can only be derived from that one of a single tracer if the two substances behave similarly. This is true only in a few cases, as tracer and pollutant usually differ in their interaction with solid surfaces of the aquifer (adsorption and desorption). By simulta-

neously using several tracers like eosin, uranin and stable isotopes $^{2}\text{H}_2^{16}\text{O}$ or $^{1}\text{H}_2^{18}\text{O}$ the velocity range of a pollutant's transport can thus be estimated much easier.

Important parameters for the calculation of flow and transport processes:

Hydraulic conductivity (Darcy), retardation, and dispersion are the relevant factors to calculate the mass transport in typical North German porous aquifers. But even in quite homogeneous pore aquifers they are not constant, either spatially or temporally: spatial fluctuations have been expected before accurate measurements were available, but not significant temporal deviations resulting from pollution load and biochemical reactions. Therefore, transport processes can only be calculated after multiple measurements using different tracers with the subsequent determination of hydraulic conductivity, retardation and dispersion. These measurements also have to include temporal deviations.

4.3.3.2 Emissions from municipal waste, not systematically affected by industrial pollutants (without co-disposal) (Results are valid for both types of cover) cp. Kruse et al., 1995

4.3.3.2.1 Initial acid phase of the landfill

Behaviour of dissolved inorganic compounds:

During the initial phase chlorides dominate the group of slightly soluble salts. Chloride freight is released by the decomposition of organic substances in the landfill body and remains unchanged both in the unsaturated soil passage and in the groundwater. An increase of salinity of drinking water reserves is just as detrimental as the sinking of leachate entering the groundwater due to its high density. This will follow the deepest line of a water impermeable horizon without major transversal dispersion. Overlaying light rain water enhances the effect (detected in situ as in the Hannover landfill effluent).

Degradation of organic substances:

Zones of degradation processes:

Typical microbiological reactions in this zone proceeded as is known from measurements at real landfills (fig. 19):

see Fig. 19

Reduction zone:

Free oxygen was consumed immediately after the discharge of leachate due to high biochemical oxygen demand of microorganisms for degradation of organic matter, while sulphur compounds were reduced to the stage of sulphides.

Transition zone:

Degradation changed to be facultative aerobic further downstream, triggered by the influx of atmospheric oxygen through the covering layer. Insoluble iron sulphide was gradually oxidised to soluble iron-II- and sulphate ions (= oxidative mobilisation), while organic nitrogen compounds were transformed to ammonia in the reduction zone as well as in the transition zone.

Oxidation zone:

A steady supply of oxygen through the covering layer induced chemical fixation in the oxidative environment along the progressing flow path, as the formation of iron-III-ions (= oxida-

tive precipitation zone) and nitrification of ammonium. Some residual anaerobic conditions in the precipitation zone caused denitrification of about half of the nitrate.

Degradation and precipitation:

Heavy metals:

A high amount of hydrogen carbonate was released from the landfill body during the acidic phase. Microbiological degradation of organic acids induced a local pH-jump on the organism's surface, leading to local precipitates of carbonates (Ramke & Brune, 1990) and therefore, heavy metals in the reduction zone may consist of sulphides or carbonates. The experiments with artificial aquifers verified only carbonatic – not sulphidic – chemical bonds of the non-ferrous heavy metal precipitates in the reduction zone (cp. fig. 20), excluding mobilisation of soluble sulphates during progressive oxidation. Carbonates of heavy metals thus remain permanently fixed, as long as the pH in groundwater stays neutral or basic.

see Fig. 20

Organic substances:

An extensive degradation of more than 90% of the organic substance to carbon dioxide and water was confirmed, generally characterised by the biochemical oxygen demand (BOD_5), as well as the formation of stable humic-like organic matter. Yet the phenomenon of an increasing amount of organic substances in the aerobic zone, characterised by COD-measurements, was new and important. This matter unexpectedly emerged without any addition of organics trickling down from the covering layer (here: C-horizon of an original aquifer without cover of vegetation). A long-term contamination of drinking water by undesirable organic substances can therefore – even under favourable conditions – not be avoided by natural attenuation. The procedure was carefully re-examined and confirmed with leachate from largely stabilised waste due to the outstanding significance of this observation (cp. section 4.3.3.2.2).

Pathogenic microorganisms:

Pathogenic germs from septic tanks, sewage sludge or hospital waste are obviously discharged with leachate from anaerobic landfills (cp. chapter 3.2.4.4). In current practice, the "50-day line" is considered as to a "transport limit" of these germs (i.e. the flow path of the groundwater within 50 days). This limit was confirmed in the artificial aquifers by use of the standard test organism *E. coli*. The survival of some germs, however, went far beyond 50 days. This is especially true for the time after multiple loads (e.g. after the regular discharge of faecal sludge on landfills). Under unfavourable conditions like coarser pores or smaller germs the transport distance of a "200-day line" may even occur. For safety reasons, distances for pathogenic spore-forming germs and viruses were not examined in our study. The survival of test organisms indicates the "50-day line" only as a minimum distance for drinking water protection in porous aquifers after a deposit of intestinal bacteria. The transport distance for other dangerous pathogens, also not being detained in anaerobic landfills, is unpredictable at the time being.

4.3.3.2.2 Permanent aerobic landfill contents, similar to forest soils

(Leachate meets German limit values (2009) for direct waste water discharge)

Behaviour of soluble salts:

Chloride freights during this stage were at least one order of magnitude lower than in the initial acidic phase of the landfill, and sulphate dominated here even if the deposit does not include construction debris. The total load was still too high for drinking water purposes, and the leachate sunk down to the aquiclude due to its high density. Therefore, salts have a long-

lasting impact on drinking water resources, even after advanced biological stabilisation of a waste deposit.

Zoning as a result of biological activity:

The biochemical oxygen demand of leachates from largely stabilised waste only slightly exceeded the analytical detection limit, while the chemical oxygen demand remained below 200 mg/l and nitrogen was almost completely nitrified. A biochemical degradation of organic compounds could no longer be measured. The conditions in the aquifer from the input to the point of discharge corresponded to a stable oxidation zone.

Elimination:

- Heavy metals have already been fixed in the landfill body and do not pollute the groundwater.
- Nitrogen was almost completely nitrified in the waste, and reduced in subsequent reactions to an amount of 100 to 400 mg/l by denitrification in residual anaerobic zones of the landfill. Significant denitrification was, however, could not be measured in groundwater, but for drinking water the supply of nitrate remained too high anyway, despite the extensive waste stabilisation.
- Organic matter, not further biodegradable in a sewage treatment plant, induced the same biological activity after 50 m aquifer flow path like easily degradable matter from the initial acidic phase in the same flow length. The freight balance for the organic load - characterised as COD - for the two aquifers (sand cover and cohesive cover), showed by 20% exactly the same relative increase of the organic freight instead of an expected decrease, starting from the input down to the outlet (100 m) (fig. 21). The supply of organic matter from the surface layer was excluded (see above), and so the organic freight could not have increased. This apparent contradiction has been resolved by the analysis if humic substances together with measurements of the biological activity (cp. next chapter). The latter temporarily led to a significant decrease of the hydraulic conductivity.

see Fig. 21

The structure of organic matter was analysed by methods, which are normally used for humic substances. For dissolved compounds of a highly contaminated seepage during the initial acid phase, an increase of their natural character was observed on the flow path to the outlet. Soluble organics of the leachate from stabilised soil-like waste deposits were more alike natural humic substances before trickling into the groundwater than organic matter from the outlet of the highly polluted artificial aquifer. Similarity with nature decreased, however, along the flow path and showed the same characteristics at the outlet as the discharge of the highly polluted groundwater. This may be explained by a biochemical formation of solid organic matter in the aquifer, settling on grain surfaces.

Deposits in the highly contaminated groundwater were largely dissimilar to natural ones, whereas leachate of a biologically stable aquifer led to a deposit of organic compounds whose insoluble fraction had the same infrared spectra than natural deposits in this aquifer. Biological processes in near-surface aquifers in such cases produced stable, nature identical humic substances, if the leachate's feedstock is a soil-like matter. Fresh organic substance was built up at by microorganisms at the first stage, and converted subsequently into stable forms, but reactions did not end even under favourable experimental conditions. Therefore, the effective scope of organic pollution can currently not be predicted.

Pathogenic germs:

Test bacteria being directly embedded in the waste (mixture of residential waste and sewage sludge) or added in ampoules, were completely killed during a high-temperature rotting process (70 to 80 °C for at least three weeks) of biological stabilisation. For pathogenic germs, discharged into the groundwater after this hot rotting or via the trickling path, identical restrictions apply to the “50-days-line” as to the highly polluted leachate.

4.3.3.1.1 Influence of industrial deposits (co-disposal)

4.3.3.3.1 Heavy metals (electroplating sludge), cyanides (hardening salts), phenols (phenolic sludge)

Initial acidic phase:

Leachate from Bielefeld/Senne and Braunschweig was used for the experiment. The landfills have been fed with waste from households and the processing industry according to German waste regulations and local approvals, valid until 1985. This corresponds to a co-disposal of the first load step (= allowed maximum value, cp. 3.2.4.5). Therefore, results apply for a slight, diffuse co-disposal of commercial waste of an industrialised city.

The biological stabilisation of a landfill can slightly be disturbed by an increasing load of pollutants, and thus an increase of groundwater contamination as a result of co-disposals may be concluded without further experiments. Because negative effects of the above mentioned pollutants on drinking water supplies are already known from experiences with contaminated industrial sites, dosage experiments in groundwater were omitted.

Extensive biological stabilisation:

In case of only slight loads, typical industrial wastes like galvanic sludge, hardening salts and phenolic sludge are either biodegradable by high-temperature biological treatment or are fixed as stable compounds. They were not charged to the groundwater as they usually do not appear in leachate. Negative consequences of groundwater contamination after heavy co-disposal are well known (see chapter 3).

4.3.3.3.2 Cyclic chlorinated hydrocarbons and nitrogen-containing compounds (lindane, simazine, terbutylazine, atrazine, lindane + chlorophenols combined)

Anaerobic conditions:

All mentioned compounds have been added to the waste. Lindane and simazine after dosage were almost entirely adsorbed, but then gradually and completely desorbed. The substances will reach the aquifer in the long term due to its minor biodegradability. Decomposition of the herbicide atrazine could here not be observed even during a flow path of 100 m (fig. 22). Compounds that accumulate in the biological cycle without having a lower toxicological threshold value like carcinogens, toxicologically also belong to the above mentioned group. Considering these aspects, selected substances were dosed into the artificial aquifers.

see Fig. 22

For other compounds, e.g. chlorophenols, degradation was detected by the emergence of corresponding metabolites. The observed degradation processes may not be extrapolated, as degradation was interrupted under all measured conditions before the respective aquifer could have been used as a drinking water resource (fig. 23).

see Fig. 23

Extensive biological stabilisation:

The chlorine- and nitrogen containing compounds lindane and simazine are - in the case of low background levels - altered and largely eliminated during a hot rotting process. During a co-disposal they are gradually discharged (chromatographic effect). Major degradation of these substances was detected in the downstream of an active landfill under anaerobic conditions of the initial acidic phase. Degradation stopped in the aerobic zone and, therefore, further elimination of persistent organics cannot be expected downstream a deposit of stabilised soil-like waste.

Status of science and technology, 2012:

- The use of atrazine has been banned in Germany based on these results. Other substances of a similar persistence like lindane were gradually abated from application.
- Persistent organic substances will continue to be wastes. The base of waste landfills in Germany has, therefore, to be equipped with a combination of a mineral sealing (e.g. clay) and a chemically resistant membrane barrier, thus protecting the groundwater against materials of this type.
- Termination of biological degradation of organic substances in the effluent of contaminated sites was confirmed by accurate in-situ measurements. Subsequently, methods have been developed to accumulate the substances on activated carbon or to provide additional nutrients for degradation processes.
- For measuring real groundwater contaminations, a profile survey combined with a stratified sampling have been developed (state of the art, 2010).

5 Consequences for the protection of drinking water

cp. Dörrie et al., 2009

Investigations of the artificial landfill bodies (cp. chapter 3) distinctly demonstrated the risk of emissions from municipal waste, even if only material of natural origin was deposited. A co-disposal considerably may intensify the problem in qualitative and quantitative terms. Toxic industrial wastes will disturb natural stabilisation and will be retained only temporarily and discharged with an unpredictable delay. Checking the self-purification of drinking water resources (chapter 4) proved the partial degradation of loads under favourable conditions. Original drinking water quality, however, can neither be achieved in turbulent surface waters nor in near-surface porous aquifers.

Processes of biological self-purification in flowing waters may be transferred into the biological stage of a sewage plant. If chemical and / or physical treatment is added according to the state of the art, adverse effects on drinking water resources can reliably be excluded. This objective can be achieved also in waste disposal, if landfills are built on a base collecting all emitted substances by combined barriers for polar substances (mainly water) and for non-polar substances like chlorinated hydrocarbons. After collection the liquids will then be discharged into a sewage plant (fig. 24). Problems like the duration of emissions and the safe long-term disposal of eliminated compounds will remain anyway.

see Fig. 24

The self-purification in activated A-horizons of agricultural soils eliminates harmful natural substances by biological degradation and removes minerals through plant growth. Wastewater treatment by overland flow, however, requires an original waste free of toxic residues. Following this assumption, wastes have not necessarily to be dumped but may be recycled after composting. Treatment of leachate by overland flow from the perspective of water management, is a solution for specific cases only, if an agricultural use of contaminant-free wastes is not possible. Again, land treatment on drained covering layers of a landfill may be used as a first stage of leachate purification.

Natural attenuation efficiency of groundwater - particularly in shallow porous aquifers – is very effective and yet reduces contaminations from toxic industrial waste. But it will not restore the original state of a drinking water source and, therefore, harmful loads must absolutely be avoided. In cases of pollution the natural attenuation efficiency can be mobilised through specific technical measures under controlled conditions, e.g. an installation of reactive barriers.

Biological conversion of waste into a forest soil-like material may also be achieved in the scope of a developing country (fig. 25). As a first stage to solve long-term problems strongly compacted material can be deposited on a drained combination seal (fig. 24), whereby a permanent aerobic landfill is eventually evolved. Uncontrolled and durable preservation of waste with a subsequent activation of emissions can be excluded by such measures. Toxic industrial residues also will be eliminated during the warranty period of the seal (about 80 years as state of the art) and the operational time of a wastewater treatment plant (Dörrie et al., 2009).

see Fig. 25 and Fig. 26

A reliable long-term solution to the problem is obtained after ecologically compatible residues are reintegrated into the natural circle. By separating mixed waste into defined material streams, followed by recovery or conversion into ecologically sound matter, this goal can largely be achieved without major costs. The organic fraction of biologically stabilised wastes is nearly insoluble in water and thus the wet undefined mixture can be separated into defined material groups after wet screening without any residual water (fig. 26). Defined waste streams are either inert (stone, ceramic, glass), re-usable (metals, plastics, wood, uncontaminated soil, uncontaminated compost-like substance) or may thermally be converted into harmless matter (for details cp. Dörrie et al., 2009). Thermal treatment of undefined municipal waste, however - introduced in many industrialised countries - often does not produce ecologically sound matter (Baccini and Gamper, 1994). In Switzerland, such residues will, therefore, be disposed of in landfills with a secure groundwater protection. In contrast to material specific treatment, here the problem is shifted at high cost but not solved.

Future improvements in waste treatment and recovery do not reduce the risk to drinking water resources by existing deposits. As far as wastes have been deposited above the groundwater, the entry of precipitation water and subsequent leachate input can be prevented by a barrier coat for a technically reliable range of time (about 80 years). But this measure only will postpone the environmental problem to the future. A permanent solution can be achieved by biological transformation of organic matter to water-insoluble humic-like substance and a simultaneously activated gas exchange. After all, the landfill can be dismantled, the residues separated, recycled or treated (fig. 27 and 28). That method is state of the art since 1992. Its economic feasibility is already proven by savings for a stable long-term covering layer and for the value of a recovered piece of land.

see Fig. 27 and Fig. 28

Landfills with plastic deposits or with a very large portion of plastics can create problems by spontaneous combustion after a few decades, and occurrent smouldering fires will proceed mostly incomplete. Even unproblematic materials such as polyethylene in conjunction with sodium chloride may produce a broad range of chlorinated and non-chlorinated organic pollutants. Such compounds will cause long-term harmful effects both for ambient air and groundwater. For these reasons plastic matter is not suitable for landfilling. It may only be deposited in intermediate storage facilities under permanent control, where immediate intervention in case of a temperature rise is assured. There is no reasonable alternative for dismantling and material reuse at existing landfills.

Literature: see German version above