



European Union Network for the Implementation
and Enforcement of Environmental Law

COMMON
FORUM



Soil Washing (SW) report

Final Report

Date of report: 6 June 2024
Report number: 2022/10 SW IT

Introduzione a IMPEL

La European Union Network for the Implementation and Enforcement of Environmental Law (IMPEL) è un'associazione internazionale senza scopo di lucro delle autorità ambientali degli Stati membri dell'UE, dei paesi aderenti e candidati dell'Unione europea e dei paesi del EEA. L'associazione è registrata in Belgio e la sua sede legale è a Bruxelles, Belgio.

La IMPEL è stata creata nel 1992 come una rete informale di regolatori e autorità europee che si occupano dell'attuazione e dell'applicazione del diritto ambientale. L'obiettivo della rete è quello di creare l'impulso necessario nella Comunità Europea per progredire nel garantire un'applicazione più efficace della legislazione ambientale. Il nucleo delle attività della IMPEL riguarda la sensibilizzazione, il rafforzamento delle capacità e lo scambio di informazioni ed esperienze sull'attuazione, l'applicazione e la collaborazione internazionale in materia di applicazione, nonché la promozione e il sostegno della praticabilità e dell'applicabilità della legislazione ambientale europea.

Nel corso degli anni precedenti la IMPEL è diventata un'organizzazione considerevole e ampiamente conosciuta, essendo menzionata in una serie di documenti legislativi e politici dell'UE, ad esempio il 7° programma d'azione per l'ambiente e la raccomandazione sui criteri minimi per le ispezioni ambientali.

La competenza e l'esperienza dei partecipanti all'interno di IMPEL rendono la rete unicamente qualificata per lavorare sugli aspetti tecnici e normativi della legislazione ambientale dell'UE.

Informazioni sulla rete IMPEL sono disponibili anche attraverso il suo sito web: www.impel.eu

Suggested citation:

Falconi M. et al. (2024), Soil Washing (SW) report. IMPEL, COMMON FORUM, EIONET, NICOLE report no 2022/10 SW IT, 121 pages. Brussels, ISBN 978-2-931225-34-9

ISBN 978-2-931225-34-9



9 782931 225349

| | | |
|--|--|---------------------------------|
| Titolo del rapporto: Soil Washing (SW) report | Numero del rapporto: 2022/10 SW IT | |
| Rapporto approvato alla IMPEL General Assembly: 29-30 Novembre 2022, Praga (Repubblica Ceca) | Numero di pagine: 121 Rapporto: 34 pages Allegato: 87 pages | |
| Project Managers: | | |
| Marco Falconi (IT) | IMPEL | ISPRA |
| Dietmar Müller-Grabherr (AT) | Common Forum | Unweltbundesamt AT |
| Frank Swartjes (NL) | EIONET WG Contamination | RIVM |
| Wouter Gevaerts (NL) | NICOLE | Arcadis |
| Autori: | | |
| Massimiliano Confalonieri (IT) | IMPEL | ARPA Lombardia |
| Nazare Couto (PT) | | CENSE |
| Matteo Cozzani (IT) | | GAS PLUS |
| Marco Falconi (IT) | IMPEL | ISPRA |
| Daniela Fiacavento (IT) | IMPEL | ARPA Veneto |
| Gokberk Kara (TR) | | RSK |
| Kurt Morgan (SW) | | KIBAG |
| Dietmar Müller-Grabherr (AT) | Common Forum | Unweltbundesamt AT |
| Iustina Popescu (RO) | | Geological Institute of Romania |
| Valentina Sammartino (IT) | IMPEL | ARPAC |
| Andrea Sconocchia (IT) | IMPEL | ARPA Umbria |
| Frank Swartjes (NL) | EIONET | RIVM |
| Reto Tietz (SW) | IMPEL | FOMI |
| Contributori all'Annex 1 SW: | | |
| Alessia Arelli (IT) | ISPRA | |
| Paola Canepa (IT) | ARPA Lombardia | |
| Massimiliano Confalonieri (IT) | ARPA Lombardia | |
| ENVIT (SI) | ENVIT | |
| Beatrice Melillo (IT) | ARPA Lombardia | |
| Alessandro Teani (IT) | AMBIENTHESIS | |
| Sintesi | | |
| <i>Parole chiave</i> | | |
| Multi Phase Extraction, Dual Phase Extraction, Bonifica sostenibile, Suolo, Acque sotterranee, Politica del suolo, Bonifica, Ambiente, No net land take, Inquinamento, Siti inquinati, Contaminazione, Siti contaminati, Monitoraggio, In field test. | | |
| <i>Gruppi interessati</i> | | |
| Autorità competenti per l'approvazione/applicazione/monitoraggio delle tecnologie di bonifica, operatori industriali, agenzie di protezione ambientale, enti di protezione della natura, ispettorati ambientali, monitoraggio ambientale e istituti di ricerca, università tecniche, associazioni ambientali, ONG, compagnie e associazioni di assicurazione, consulenti ambientali. | | |

Nell'ambito del suo programma di lavoro per il 2020, la Rete IMPEL ha avviato il progetto Water and Land Remediation (2020/09), relativo ai criteri di valutazione dell'applicabilità delle tecnologie di bonifica.

Il progetto Water and Land Remediation prende come punto di partenza le linee guida sulle definizioni e le fasi chiave dell'applicazione delle tecnologie di bonifica e si concentra sulle procedure tecniche connesse alle tecnologie di bonifica. L'obiettivo finale del progetto è quello di produrre un documento che dimostri i criteri per la valutazione delle proposte di applicazione delle tecnologie di bonifica, per capire l'applicabilità, cosa fare nei test sul campo e nell'applicazione su scala reale. L'Allegato 1 presenta una serie di casi di studio, che può aiutare il lettore ad anticipare i problemi che potrebbe incontrare e a verificare se la soluzione fornita si applica al proprio sito, sapendo che ogni sito contaminato è diverso dagli altri ed è sempre necessario un approccio specifico per il sito.

Il progetto Water and Land Remediation per il 2020-2021 ha l'obiettivo di concentrarsi su due tecnologie di bonifica, l'estrazione multifase e il lavaggio del suolo.

Infine, il progetto Water and Land Remediation intende contribuire a promuovere l'applicazione di tecnologie di bonifica in situ e sul posto per il suolo e le acque sotterranee, e a ridurre l'applicazione di Dig & Dump e Pump & Treat, tecniche ampiamente utilizzate in Europa, ma non sostenibili nel medio-lungo termine. Il suolo e l'acqua sono risorse naturali e, quando è tecnicamente possibile, dovrebbero essere risanati.

Ringraziamenti

Questo rapporto è stato esaminato da un più ampio team del progetto IMPEL, dal team di esperti di IMPEL Water and Land, dalla rete COMMON FORUM, dalla rete NICOLE, da EIONET WG Contamination e da un gruppo di revisori esterni.

Disclaimer

Questa pubblicazione è stata preparata nell'ambito del progetto IMPEL Water & Land Remediation con il supporto delle reti partner interessate alla gestione dei terreni contaminati. Scritto e rivisto da un team di autori, il documento intende servire come fonte di informazione primaria per collegare e ampliare la conoscenza tra i paesi e le regioni europee, con l'obiettivo di sostenere una comprensione del potenziale della specifica tecnologia di bonifica che è presentata.

Il contenuto qui riportato è basato sulla bibliografia pertinente, sull'esperienza degli autori e sui casi di studio raccolti. Il documento potrebbe non essere esteso a tutte le situazioni in cui questa tecnologia è stata o sarà applicata. I casi di studio (vedi allegato) sono contributi volontari riconosciuti. Il team di autori non ha alcuna responsabilità nella valutazione delle relazioni dei casi studio.

Inoltre, alcuni paesi, regioni o autorità locali possono aver emanato particolari legislazioni, regole o linee guida per inquadrare l'applicabilità della tecnologia trattata.

Questo documento NON è inteso come una linea guida o un documento di riferimento sulle BAT per questa tecnologia. I contesti pedologici, geologici e idrogeologici dei siti contaminati in tutta Europa mostrano un'ampia variabilità, pertanto la progettazione e l'implementazione sito specifica è la chiave per il successo nella bonifica dei siti contaminati. Quindi ogni raccomandazione riportata potrebbe essere applicata, parzialmente applicata o non applicata. In ogni caso, gli autori, i collaboratori, le reti coinvolte, non possono essere ritenuti responsabili.

Le opinioni espresse in questo documento non sono necessariamente quelle dei singoli membri delle reti che lo hanno predisposto. IMPEL e le sue reti partner raccomandano vivamente che gli individui/organizzazioni interessati ad applicare la tecnologia nella pratica si avvalgano dei servizi di professionisti ambientali esperti.

Marco Falconi – IMPEL

Dietmar Müller Grabherr – COMMON FORUM on Contaminated Land in Europe

Frank Swartjes – EEA EIONET WG Contamination

Wouter Gevaerts – NICOLE

Glossario

| TERM | DEFINITION | SOURCE | PARAGR. |
|---|--|--------------|------------|
| 'compliance point' | location (for example, soil or groundwater) where the assessment criteria shall be measured and shall not be exceeded | ISO EN 11074 | 3.4.5 |
| 'compliance or performance control' | investigation or program of on-going inspection, testing or monitoring to confirm that a remediation strategy has been properly implemented (for example, all contaminated have been removed) and/or when a containment approach has been adopted, that this continues to perform to the specified level | ISO EN 11074 | 6.1.5 |
| 'contaminant' ¹ | substance(s) or agent(s) present in the soil as a result of human activity | ISO EN 11074 | 3.4.6 |
| 'contaminated site' ² | site where contamination is present | ISO EN 11074 | 2.3.5 |
| 'contamination' | substance(s) or agent(s) present in the soil as a result of human activity | ISO EN 11074 | 2.3.6 |
| 'effectiveness' ³ | <remediation method> measure of the ability of a remediation method to achieve a required performance | ISO EN 11074 | 6.1.6 |
| 'emission' | the direct or indirect release of substances, vibrations, heat or noise from individual or diffuse sources in the installation into air, water or land; | IED | Art. 3 (4) |
| 'environmental quality standard' | the set of requirements which must be fulfilled at a given time by a given environment or particular part thereof, as set out in Union law; | IED | Art. 3 (6) |
| 'Henry's coefficient' | partition coefficient between soil air and soil water | ISO EN 11074 | 3.3.12 |
| 'in-situ treatment method' ⁴ | treatment method applied directly to the environmental medium treated (e.g. soil, groundwater) without extraction of the contaminated matrix from the ground | ISO EN 11074 | 6.2.3 |
| 'leaching' | dissolution and movement if dissolved substances by water | ISO EN 11074 | 3.3.15 |

¹ There is no assumption in this definition that harms results from the presence of contamination

² There is no assumption in this definition that harms results from the presence of contamination.]

³ In the case of a process-based method, effectiveness can be expressed in terms of the achieved residual contaminant concentrations.

⁴ Note: ISO CD 241212 suggests as synonym: 'in-situ (remediation) technique' [Note 1 to entry: Such remediation installation is set on site and the action of treating the contaminant is aimed at being directly applied on the subsurface.] ISO CD 24212 3.1

| | | | |
|-------------------------------------|---|--------------|-------------|
| 'pollutant' | substance(s) or agent(s) present in the soil (or groundwater) which, due to its properties, amount or concentration, causes adverse impacts on soil functions | ISO EN 11074 | 3.4.18 |
| 'pollution' | the direct or indirect introduction, as a result of human activity, of substances, vibrations, heat or noise into air, water or land which may be harmful to human health or the quality of the environment, result in damage to material property, or impair or interfere with amenities and other legitimate uses of the environment; | IED | Art. 3 (2) |
| 'remediation objective' | generic term for any objective, including those related to technical (e.g. residual contamination concentrations, engineering performance), administrative, and legal requirements | ISO EN 11074 | 6.1.19 |
| 'remediation strategy' ⁵ | combination of remediation methods and associated works that will meet specified contamination-related objectives (e.g. residual contaminant concentrations) and other objectives (e.g. engineering-related) and overcome site-specific constraints | ISO EN 11074 | 6.1.20 |
| 'remediation target value' | indication of the performance to be achieved by remediaton, usually defined as contamination-related objective in term of a residual concentration | ISO EN 11074 | 6.1.21 |
| 'saturated zone' | zone of the ground in which the pore space is filled completely with liquid at the time of consideration | ISO EN 11074 | 3.2.6 |
| 'soil' | the top layer of the Earth's crust situated between the bedrock and the surface. Soil is composed of mineral particles, organic matter, water, air and living organisms; | IED | Art. 3 (21) |
| 'soil gas' | gas and vapour in the pore spaces of soils | ISO EN 11074 | 2.1.13 |
| 'unsaturated zone' | zone of the ground in which the pore space is not filled completely with liquid at the time of consideration | ISO EN 11074 | 3.2.8 |

⁵ The choice of methods might be constrained by a variety of site-specific factors such as topography, geology, hydrogeology, propensity to flood, and climate

INDICE

| | |
|---|-----------|
| PREMESSA DI ISPRA | 9 |
| PREMESSA DI ARPA LOMBARDIA | 10 |
| 1 INTRODUZIONE | 11 |
| 1.1 Descrizione del Soil Washing | 11 |
| 1.2 Applicabilità del Soil Washing | 12 |
| 1.3 Implementazione del Soil Washing | 13 |
| 2 DESCRIZIONE DELLA TECNOLOGIA | 14 |
| 2.1 Scopo | 14 |
| 2.2 Impianto di Soil Washing | 15 |
| 2.3 Trattamento delle acque reflue e ricircolo | 17 |
| 3 STUDIO DI FATTIBILITÀ | 19 |
| 3.1 Vantaggi e limiti del Soil Washing | 19 |
| 3.1.1 Vantaggi del Soil Washing | 19 |
| 3.1.2 Limiti del Soil Washing | 20 |
| 3.2 Le fasi di fattibilità del Soil Washing | 20 |
| 3.2.1 Dati richiesti | 20 |
| 3.2.2 I contaminanti trattabili | 22 |
| 3.2.3 Le matrici trattabili | 22 |
| 3.2.4 I requisiti normativi | 22 |
| 4 TEST DI CAMPO | 22 |
| 4.1 Studi di trattamento | 23 |
| 4.1.1 La valutazione preliminare | 23 |
| 4.1.2 Test di laboratorio | 24 |
| 4.1.3 Test Pilota | 25 |
| 4.1.4 Processo di verifica della trattabilità nella valutazione di una tecnologia | 25 |
| 5 MONITORAGGIO DELLE PRESTAZIONI | 28 |
| 5.1 Introduzione | 28 |
| 5.2 Report sulla performance | 28 |
| 5.3 Tipi di monitoraggio | 28 |
| 5.3.1 Fase operativa-tecnologica | 29 |
| 5.3.2 Conferma della bonifica e del post risanamento | 29 |
| 5.4 Valutazione e controllo della qualità | 30 |
| 6 CONCLUSIONI | 32 |
| RIFERIMENTI | 34 |

PREMESSA DI ISPRA

È con grande soddisfazione e consapevolezza dell'importanza che rivestono le tecnologie di bonifica per la salvaguardia ambientale e la tutela della salute pubblica che presento i due documenti tecnici preparati dal network IMPEL sulle tecnologie di bonifica "Multi Phase Extraction" per le acque sotterranee contaminate e "Soil Washing" per i suoli contaminati. Tali documenti rappresentano un fondamentale contributo alla conoscenza e all'implementazione di soluzioni innovative per la gestione dei siti contaminati.

In un contesto in cui la Commissione Europea ha avanzato la proposta di "Soil Monitoring Law" il 5 luglio 2023, evidenziando l'importanza di garantire un alto livello di protezione dell'ambiente e della salute umana attraverso il monitoraggio e la gestione dei suoli, queste tecnologie di bonifica si collocano strategicamente nell'Allegato V di tale proposta legislativa. Ciò sottolinea il ruolo cruciale che svolgono nel contesto normativo europeo per la salvaguardia dei suoli e delle risorse idriche.

ISPRA, insieme alla rete di agenzie regionali per la protezione dell'ambiente (SNPA), svolge un ruolo chiave nel promuovere il progresso tecnologico e scientifico nel campo delle bonifiche ambientali. Attraverso la ricerca, la sperimentazione e la diffusione delle migliori pratiche, lavoriamo per garantire un approccio integrato e sostenibile alla gestione dei siti contaminati, in linea con gli obiettivi di sostenibilità ambientale e sociale dell'Unione Europea.

Le tecnologie di bonifica come la Multi Phase Extraction e il Soil Washing rappresentano una risposta innovativa e efficace alla sfida della bonifica dei suoli contaminati. Queste soluzioni consentono di rimuovere inquinanti dalle acque sotterranee e dai suoli, ripristinando l'integrità ambientale e mitigando gli impatti sulla salute umana. Tuttavia, è fondamentale che tali tecnologie siano adottate e implementate in modo sostenibile, considerando l'impatto ambientale complessivo e la loro compatibilità con gli obiettivi di conservazione delle risorse naturali a lungo termine. Il progetto IMPEL Water and Land Remediation si propone di accelerare il progresso nella gestione dei siti contaminati, focalizzandosi sull'applicazione delle tecnologie di bonifica più efficaci e sostenibili. Attraverso la diffusione di conoscenze, la promozione di studi pilota e lo sviluppo di schemi di monitoraggio, questo progetto mira a favorire l'adozione di approcci innovativi e a ridurre l'uso di tecniche di bonifica più impattanti, in linea con gli obiettivi di sostenibilità ambientale e sociale dell'Unione Europea.

I documenti tecnici preparati da IMPEL forniscono un'analisi dettagliata delle tecnologie di Multi Phase Extraction e Soil Washing, esaminandone l'applicabilità, gli studi pilota e illustrando casi concreti di successo. Questi documenti costituiscono un prezioso riferimento tecnico per tutti gli attori coinvolti nella gestione dei siti contaminati, fornendo indicazioni pratiche per l'implementazione di soluzioni efficaci e sostenibili.

Il progresso nella gestione dei siti contaminati richiede un impegno congiunto e coordinato da parte delle istituzioni, delle organizzazioni scientifiche e del settore privato. Attraverso la collaborazione e lo scambio di conoscenze, possiamo affrontare con successo le sfide legate alla bonifica dei suoli contaminati e garantire un ambiente sano e sicuro per le generazioni future.

Maria Siclari

Direttore Generale ISPRA

PREMESSA DI ARPA LOMBARDIA

Il ricorso a tecnologie di bonifica, alternative e più efficienti rispetto ai tradizionali interventi di scavo e smaltimento in discarica, è un fattore di sostenibilità imprescindibile per il risanamento e il recupero ambientale dei siti contaminati.

Nello specifico il territorio lombardo, caratterizzato dalla presenza di oltre 1.100 siti contaminati, necessita di soluzioni innovative ed efficaci per la riduzione volumetrica dei materiali contaminati, insieme al riutilizzo e al recupero dei rifiuti secondo i principi dell'economia circolare.

Questo il contesto in cui opera l'Agenzia Regionale per la Protezione dell'Ambiente della Lombardia. Arpa sostiene da tempo con il proprio know-how, in sinergia con tutti i soggetti pubblici e privati coinvolti nei processi di risanamento dei siti contaminati, la progettazione di interventi orientati alla scelta di tecnologie di bonifica in situ e/o on site, quali ad esempio Soil Vapour Extraction (SVE), In Situ Chemical Oxidation (ISCO) e Multi-Phase Extraction (MPE).

Questo report dedicato al Soil Washing, tecnologia applicata per la bonifica di importanti siti industriali nelle aree di Milano e Brescia, testimonia lo scambio delle esperienze maturate in campo tra i professionisti dell'Agenzia e i colleghi del Water and Land expert team della rete IMPEL, fondamentale per promuovere un approccio nuovo e più sostenibile nella gestione dei terreni contaminati, attraverso un'attenta valutazione degli ambiti di applicazione e dei metodi di monitoraggio e controllo.

La bonifica in situ, mediante l'utilizzo di un impianto di Soil Washing, consente una significativa diminuzione volumetrica dei terreni contaminati, il che comporta una riduzione del materiale da conferire in discarica e il recupero di una quota importante di inerti utilizzati per il ripristino ambientale delle aree scavate. Tutto ciò si traduce in un abbattimento dei costi di smaltimento che incidono in misura determinante sul quadro economico di una bonifica tradizionale, ovvero sull'effettiva possibilità di completare integralmente il risanamento, traguardando così l'obiettivo combinato di sostenibilità economica e sociale a tutela dell'ambiente.

Fabio Cambielli

Direttore Generale ARPA Lombardia

1 INTRODUZIONE

IMPEL ha sviluppato, nell'ambito del progetto Water and Land Remediation (WRL), una serie di documenti tecnici improntati sulle più comuni e più usate tecnologie di bonifica dei suoli e delle acque sotterranee. Questi documenti riassumono le informazioni più recenti e più aggiornate sulle tecnologie di bonifica che potrebbero essere di supporto a diversi stakeholders come i proprietari dei siti, i cittadini interessati, i responsabili dei progetti, le imprese, i legislatori e tutti gli altri operatori per comprendere tutte le informazioni provenienti da ciascun progetto di bonifica. Il documento utilizza le informazioni fornite dagli autori e dai collaboratori coinvolti, ottenute da fonti scientifiche, da riviste, da esperti e da relazioni ufficiali.

Questa linea guida raccoglie le più recenti conoscenze su una delle tecnologie di bonifica più utilizzate: il Soil Washing (SW).

1.1 Descrizione del Soil Washing

Il Soil Washing (SW) è un processo a base acquosa per trattare fisicamente (e chimicamente) i suoli per rimuovere i contaminanti e può essere considerata una tecnologia di bonifica largamente usata in siti contaminati di grandi dimensioni. Quando la rimozione dei composti inorganici dal materiale trattato non è efficace, è possibile addizionare all'acqua dei modificatori di pH (acidi e basi forti, in genere HCl e NaOH).

Nel nord Italia, questa tecnologia è stata applicata in aree importanti come il sito di Santa Giulia a Milano e nei Siti di Interesse Nazionale (SIN) a Sesto Giovanni (Acciaierie Falck) e a Brescia (impianto Caffaro).

Il termine SW è più propriamente usato per riferirsi alle operazioni di trattamento con acqua che avvengono su un terreno scavato e che possono essere eseguite **ex-situ**. Al contrario, il termine Soil Flushing (SF) (o lisciviazione del suolo) indica l'estrazione di contaminanti dal suolo con acqua o altre soluzioni acquose idonee **in-situ**.

Il processo di **Soil Flushing** prevede il passaggio di acqua pulita o di una soluzione acquosa attraverso i terreni in situ (mediante infiltrazione o iniezione) e l'estrazione del fluido dalla falda acquifera sottostante per un suo potenziale recupero.

Al contrario, il processo di Soil Washing rimuove i contaminanti dai suoli in uno o entrambi i seguenti due modi:

- portandoli in soluzione o sospendendoli nel fluido di lavaggio (che può essere mantenuta per un certo periodo di tempo attraverso modifiche del pH) - SW "chimico";
- concentrandoli in un volume minore di terreno attraverso:separazione granulometrica, separazione per gravità e lavaggio per attrito - SW "fisico".

Durante il SW, i contaminanti tendono a legarsi, chimicamente o fisicamente, al limo e all'argilla e alla materia organica del suolo. Il limo e l'argilla, a loro volta, si legano alle particelle di sabbia e ghiaia. Il processo di lavaggio del suolo separa il terreno fine contaminato (limo e argilla) da quello grossolano (sabbia e ghiaia). Al termine, il volume inferiore di terreno, che contiene la maggior parte delle particelle fini di limo e argilla, può essere ulteriormente trattato o smaltito secondo le normative nazionali. La frazione pulita di terreno ottenuta dal trattamento SW può essere riutilizzata in situ, ad esempio per i riempimenti di scavi, se soddisfa gli standard richiesti dalla normativa vigente. Infatti, gli obiettivi principali del trattamento con SW sono la riduzione del volume di terreno contaminato destinato a essere gestito come rifiuto (ad esempio, con incenerimento ad alta temperatura o smaltimento in discarica) e il recupero di materie prime secondarie. Durante il trattamento con SW, l'omogeneizzazione del suolo consente di ottimizzare il contatto tra gli agenti

estrattivi e gli inquinanti del suolo. In questo modo, l'efficienza del trattamento è più facilmente monitorabile e il tempo di contatto è ridotto durante il Soil Washing rispetto al Soil Flushing.

Un impianto tipico di SW è rappresentato in figura 1.1. L'impianto è composto di pochi elementi modulari, trasportabili e posizionabili su un terreno piano e impermeabilizzato (figura 1.2).

In questa iterazione, le unità dell'impianto consistono in una tramoggia di carico elevata, nastri trasportatori (figura 1.3) seguiti da una serie di vagli a umido in grado di selezionare diversi tagli di sabbia e ghiaia, un lavaggio a tamburo, una serie di idrocicloni e il circuito di trattamento delle acque con due filtropresse per l'estrazione dei fanghi. Si noti, tuttavia, che esistono tecnologie alternative per ciascuna di queste fasi e che le tecnologie e la configurazione di un impianto di SW potranno essere determinate in base alle caratteristiche fisiche e chimiche dei terreni e agli specifici inquinanti rinvenuti nel sito contaminato.

1.2 Applicabilità del Soil Washing

Il metodo è particolarmente efficiente nel trattamento di terreni contenenti prevalentemente frazioni grossolane, come ghiaie, sabbie e ciottoli, mentre è relativamente meno efficiente quando prevalgono frazioni più fini, come limo, argilla e/o materia organica. Questa tecnica ha una bassa efficienza se i contaminanti si adsorbono fortemente sulle particelle del suolo, perché questo processo non è sempre in grado di rimuovere completamente i contaminanti.

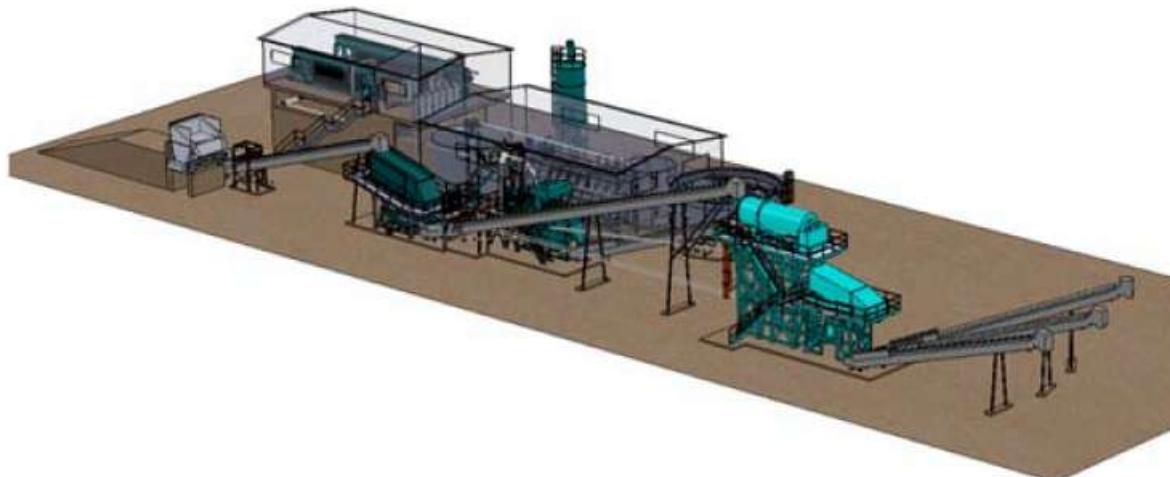


Figura 1.1-Impianto di Soil Washing.



Figura 1.2 - Area di carico del terreno contaminato



Figura 1.3 - Nastro trasportatore della fase di lavaggio del suolo

Per quanto riguarda la tipologia di contaminazione, la tecnologia SW può essere utilizzata per trattare terreni contenenti un'ampia varietà di contaminanti organici e inorganici, tra cui idrocarburi di origine petrolifera, metalli pesanti, PCB, idrocarburi policiclici aromatici, alcuni VOC, pesticidi e cianuri.

Nonostante ciò, ci sono diversi fattori che possono limitare l'applicabilità e l'efficienza del processo di SW, come:

- presenza di sistemi di contaminazione complessi (ad esempio, metalli con sostanze organiche), che rendono difficile la selezione di un fluido di lavaggio appropriato;
- elevato contenuto umico del suolo, che può richiedere un pretrattamento;
- difficoltà di rimozione di composti organici da particelle di argilla.

Il Soil Washing può essere una tecnologia particolarmente valida nel trattamento di suoli contaminati associati a progetti di costruzione in larga scala, nei quali i costi di escavazione del suolo sono già contemplati nel progetto edilizio e nei quali la frazione di suolo pulito può essere riutilizzata in situ per fornire gli aggregati da costruzione previsti dal progetto edilizio stesso.

1.3 Implementazione del Soil Washing

Il SW è generalmente considerato un metodo per trasferire, tramite il trattamento del terreno di breve o di media durata, la contaminazione da una matrice ad un'altra, solitamente dal suolo alle acque. Le acque contaminate generate dal SW sono trattate con tecnologie adeguate al tipo di contaminanti. L'implementazione del trattamento di SW implica i seguenti passaggi:

- escavazione e deposito temporaneo del suolo contaminato;
- pretrattamento tramite vagliatura del terreno per rimuovere gli elementi grossolani e i materiali antropici;
- lavaggio del terreno con un fluido che può essere costituito da acqua o da una soluzione acquosa per separare la frazione con i contaminanti;
- trattamento del fluido di lavaggio;
- recupero della frazione grossolana in situ per la bonifica, il ripristino e il rimodellamento ambientale.

Questi passaggi sono schematicamente rappresentati in Figura 1.4.

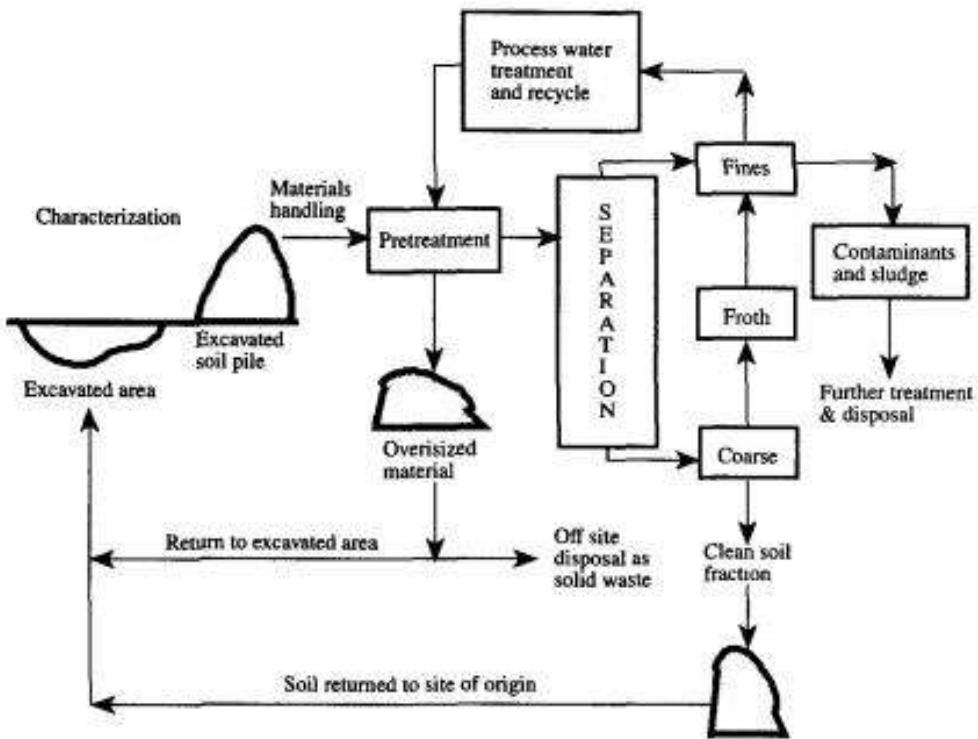


Figura 1.4. Schema del processo SW (US EPA 1996)

2 DESCRIZIONE DELLA TECNOLOGIA

2.1 Scopo

Il Soil Washing è un metodo relativamente semplice che consiste essenzialmente nel separare la frazione fine da quella grossolana del terreno contaminato usando acqua o soluzioni acquose. Tuttavia, per ottimizzare l'efficienza dei sistemi di SW, i processi possono essere progettati e adattati tenendo conto delle caratteristiche dei contaminanti e del tipo di suolo.

In sostanza, il SW si concentra sulla riduzione volumetrica della massa di terreno contaminato scavato, attraverso la separazione della frazione fine (in cui si concentrano gli inquinanti) dalla frazione più grossolana che può essere recuperata, se risponde agli standard richiesti dalle normative vigenti, mediante:

- il riempimento degli scavi di bonifica;
- riempimenti, rilevati o sottofondi in altri siti;
- il ripristino morfologico delle aree di cava.

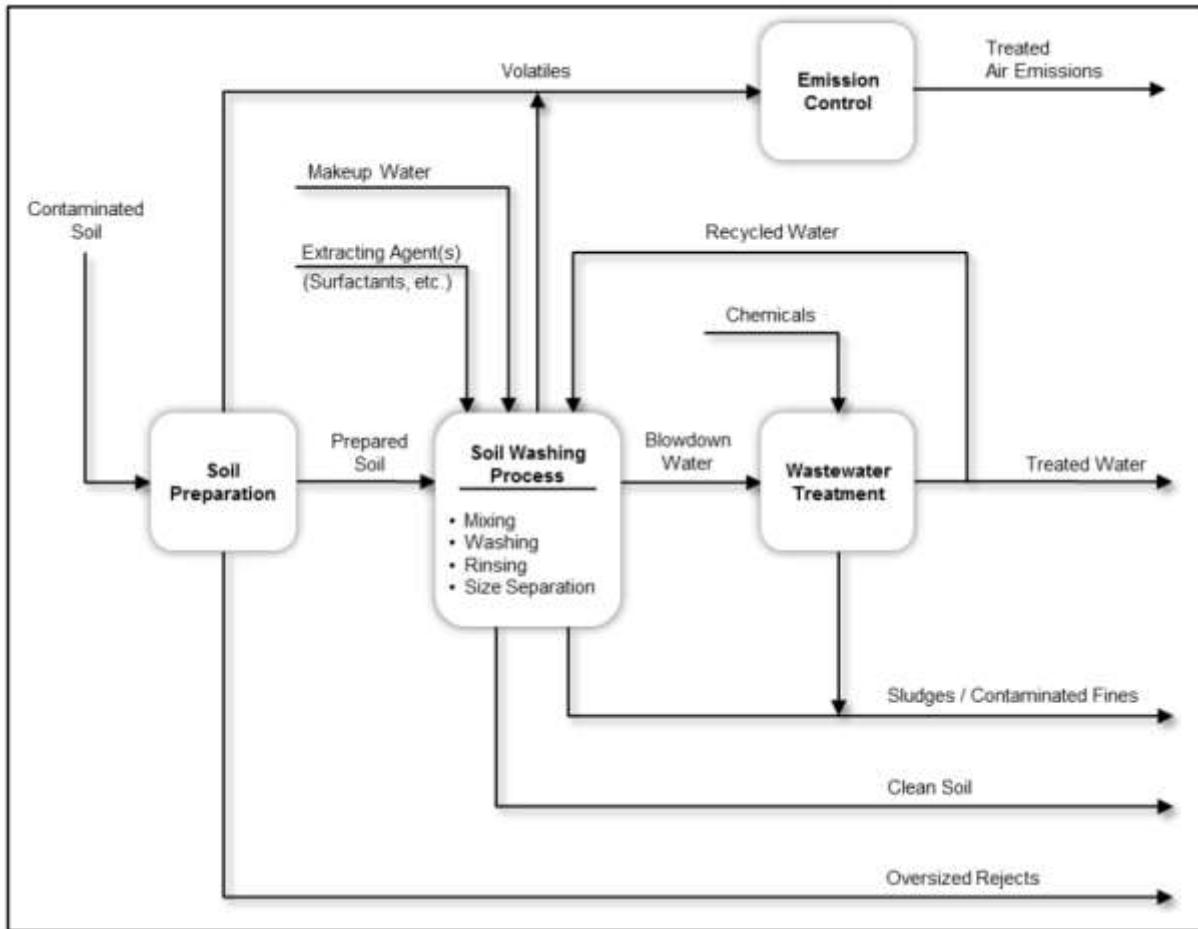


Figura 2.1- Diagramma del processo di SW (CRC CARE National Remediation Framework, 2018 – [2])

Il trattamento di SW viene solitamente effettuato ex-situ, utilizzando attrezzature di trattamento dei minerali largamente diffuse nell'industria mineraria.

2.2 Impianto di Soil Washing

L'impianto di Soil Washing (SW) è costituito solitamente dalle seguenti fasi: preparazione del terreno e pre-selezione, separazione fisica (vagliatura meccanica, classificazione idrodinamica, concentrazione gravitazionale, flottazione a schiuma, separazione magnetica, separazione elettrostatica, lavaggio per attrito, ecc.), separazione chimica, lavaggio del terreno (per rimuovere gli agenti estrattivi) e trattamento delle acque reflue.

Di seguito si riporta una descrizione più dettagliata delle fasi sopra indicate:

- Preparazione del terreno e pre-selezione:** questo processo comprende una vagliatura meccanica per rimuovere materiali di grandi dimensioni ($\varnothing > 50 \text{ mm}$), come detriti di costruzione, pezzi di roccia e ciottoli, mediante un vaglio vibrante dotato di un dispositivo per la rimozione del ferro. Questi materiali non sono generalmente contaminati; i materiali inerti vengono quindi generalmente inviati alla sezione di frantumazione per il recupero in sito; i materiali ferrosi possono essere accumulati a parte per l'invio ad uno specifico impianto di recupero;

- **Lavaggio degli aggregati:** l'impianto di SW può in genere trattare fino a circa 200 t/h di materiale teroso. Il materiale viene caricato all'estremità inferiore di una vasca inclinata e trasportato all'estremità superiore da due alberi rotanti, dotati di lame per facilitarne la disaggregazione. Il limo e l'argilla vengono rimossi dall'acqua aggiunta nella parte superiore della vasca. Le impurità e le sostanze leggere fuoriescono con l'acqua all'estremità inferiore della vasca. Il pH dell'acqua può essere modificato per facilitare la solubilizzazione di composti inorganici, soprattutto metalli;
- **Vagliatura:** il materiale grossolano ($2 \text{ mm} < \varnothing < 50 \text{ mm}$) passa dalla parte superiore dello scrubber a un vaglio vibrante che separa il materiale fine residuo. Il materiale grossolano viene poi ulteriormente lavato per rimuovere le ultime frazioni fini ($\varnothing < 2 \text{ mm}$, sabbia, limo, argilla) e si accumula alla base del vaglio vibrante;
- **Recupero della sabbia:** l'acqua contenente il materiale fine viene raccolta in una vasca a valle del vibrovaglio e poi viene pompata in un idrociclone. Nell'idrociclone, la forza centrifuga separa l'acqua con limo e argilla dalla sabbia; l'acqua con limo e argilla scorre verso l'alto dell'idrociclone, mentre la sabbia esce dal fondo. La sabbia bagnata passa attraverso un dosatore che corregge la densità della miscela (60% - 80% di solidi) ed entra nelle celle di attrito. Queste celle, grazie alle lame di miscelazione, rimuovono le particelle di argilla e qualsiasi contaminante presente sulle particelle di sabbia. Le sabbie provenienti dalle celle di attrito vengono essicate con un vibroessiccatore. La sabbia asciutta e il materiale grossolano trattato vengono trasportati alle piattaforme di stoccaggio;
- **Trattamento delle acque reflue:** Il lavaggio viene solitamente effettuato solo con acqua; tuttavia, se la rimozione dei composti inorganici dal suolo trattato non è efficace, è possibile aggiungere condizionatori di pH (acidi e basi forti, tipicamente HCl e NaOH). A completamento dell'impianto, è solitamente presente una sezione per la disidratazione meccanica dei fanghi prodotti (frazione fine) e una sezione per il trattamento e il ricircolo dei fluidi di lavaggio. La gestione della qualità dell'acqua durante il processo è molto importante, poiché l'acqua viene riciclata. Una gestione efficiente dell'acqua non solo riduce la quantità complessiva di acqua utilizzata durante la lavorazione, ma garantisce anche che eventuali contaminanti trasferiti nell'acqua durante la lavorazione non ricontaminino i suoli puliti [1]. Nel paragrafo 2.3 è riportato un approfondimento di tale sezione.





Figura 2.2- Processo di Soil washing (foto di Massimiliano Confalonieri)

Gli impianti di Soil Washing su larga scala possono essere impianti mobili o impianti fissi. Un impianto mobile può trattare il terreno sul sito contaminato, risparmiando i costi di trasporto del terreno all'impianto fisso più vicino. Tuttavia, i costi e i tempi di preparazione associati all'ottenimento delle necessarie autorizzazioni secondo le normative vigenti e alla mobilitazione e smobilitazione di un impianto mobile possono essere elevati, rendendo tale tipo di impianto meno preferibile a meno che non sia necessario trattare grandi volumi di terreno.

2.3 Trattamento delle acque reflue e ricircolo

Le sezioni di trattamento e ricircolo delle acque reflue svolgono un ruolo importante nel trattamento di SW e possono includere le seguenti componenti:

- **sedimentatore (o chiarificatore):** in cui avviene la separazione tra i fanghi e l'acqua limpida surnatante. A monte del sedimentatore verranno effettuati gli opportuni trattamenti con dosaggio di sostanze chimiche per la depurazione dell'acqua;
- **vasca di disoleazione:** per la separazione dei contaminanti organici in sospensione dalle acque, come surnatanti in uscita dal sedimentatore;

- **impianto di trattamento chimico-fisico:** per la depurazione dell'acqua in uscita dall'unità di disoleazione;
- **sezione di filtrazione al quarzo, a carboni attivi o a scambio ionico:** per le acque in uscita dall'impianto chimico-fisico;
- **serbatoio di stoccaggio:** in cui l'acqua dopo il trattamento sarà conservata per essere riutilizzata all'interno dell'impianto di soil washing;
- **serbatoio di omogeneizzazione (o addensatore):** in cui il fango in uscita dal sedimentatore sarà omogeneizzato;
- **filtropressa a piastre (o pressa):** in cui avverrà un'ulteriore separazione dei solidi dai liquidi, concentrando gli inquinanti nel pannello e riducendo l'umidità relativa al minimo valore raggiungibile.



Figura 2.3- Veduta aerea di un impianto di SW (davanti), impianto di trattamento del fango (lato sinistro) e area di ricevimento (dietro). Copyright: ARGE AUDI IN-Campus GbR (Dr. Benjamin Faigle – Züblin Umwelttechnik GmbH)

3 STUDIO DI FATTIBILITÀ

Il Soil Washing è una tecnologia chimico-fisica che separa i componenti del suolo contaminati da quelli non contaminati sfruttando differenze fisiche come: dimensioni, forma, densità e/o le proprietà superficiali delle particelle. Con il Soil Washing, la componente contaminata si concentra in una frazione del volume totale del suolo o dei sedimenti impattati (generalmente nella frazione fine) che può essere successivamente smaltita più facilmente o trattata ulteriormente (ad esempio, mediante solidificazione o stabilizzazione); mentre la frazione "pulita" del terreno trattato, che comprende particelle più grandi come sabbia e ghiaia, può essere riutilizzata separatamente, ad esempio in situ (a condizione che le concentrazioni soddisfino i criteri di riutilizzo in situ).

Il Soil Washing è considerato efficace per il trattamento di un'ampia gamma di contaminanti inorganici e organici, tra cui: metalli pesanti, radionuclidi, esplosivi, cianuri, composti policiclici aromatici, pesticidi, PCB e PFAS.

Tra le considerazioni principali che si devono avanzare nello studio di fattibilità dell'applicazione dei sistemi di *Soil Washing* come potenziale opzione di bonifica si dovrebbero includere anche le seguenti:

- se il materiale contaminato presenta una percentuale significativa di materiale grossolano che può essere separato come frazione pulita adatta al riutilizzo o allo smaltimento a basso costo;
- se il materiale fine contaminato e separato (slurry) può essere successivamente disidratato e smaltito;
- se i volumi e i costi per lo smaltimento della frazione grossolana/pulita e della frazione fine/contaminata rendono il processo dal punto di vista economico competitivo;
- le Autorità di controllo competenti accetteranno il Soil Washing come mezzo di bonifica praticabile?
- il materiale trattato può essere riutilizzato? Le concentrazioni di sostanze inorganiche e organiche residue consentiranno di riutilizzare il materiale trattato come riempimento del sito o come riempimento altrove, oppure sarà necessario un trattamento successivo (ad esempio, la stabilizzazione) o lo smaltimento in discarica?
- è probabile che altri soggetti interessati (come le amministrazioni locali o i cittadini) accettino l'uso della tecnologia, in particolare quei soggetti che possono avere un peso significativo sull'applicazione della tecnologia nel sítio? Ci sono aree sensibili nelle vicinanze che non sono compatibili con l'operazione proposta?
- esiste un vincolo temporale, e l'applicazione del Soil Washing è in grado di soddisfarlo?
- il costo previsto per il trattamento è accettabile?

La seguente sezione 3.1 presenta una breve sintesi di alcuni vantaggi e limiti della tecnologia di Soil Washing; non si tratta di un elenco completo di tutti i fattori tecnologici pertinenti, ma piuttosto una panoramica di alcuni dei fattori chiave da considerare.

La sezione 3.2 riporta, in termini di studio di fattibilità, dei dati necessari per valutare l'applicabilità di per valutare l'applicabilità di tale tecnologia in funzione delle caratteristiche fisiche e della composizione chimica del suolo, nonché delle caratteristiche dei contaminanti.

3.1 Vantaggi e limiti del Soil Washing

3.1.1 Vantaggi del Soil Washing

- il SW può trattare sia sostanze organiche che inorganiche nello stesso sistema di trattamento;
- il sistema non comporta scarichi nell'aria o nelle acque reflue, rendendo le procedure di autorizzazione più semplici rispetto ad altri sistemi di trattamento, caratteristica che dovrebbe rendere questa tecnologia di particolare interesse per le comunità locali;

- il SW è una delle poche alternative di trattamento permanente per i terreni contaminati da metalli e radionuclidi. Il SW, che utilizza processi fisico-chimici, è una delle poche alternative di trattamento permanente per separare i metalli dal suolo [3];
- la maggior parte delle tecnologie di SW può trattare un'ampia gamma di contaminanti in ingresso;
- secondo le caratteristiche della matrice del suolo, il SW può consentire il recupero di frazioni grossolane pulite a basso costo [4].

3.1.2 Limiti del Soil Washing

- dopo il trattamento, rimane un volume (relativamente piccolo) di materiale solido contaminato e di fluidi di lavaggio che devono essere ulteriormente trattati o smaltiti;
- il SW può non essere economicamente conveniente per i terreni con un contenuto di limo/argilla superiore al 30-50%;
- un elevato contenuto umico nel terreno, le miscele complesse di contaminanti e le concentrazioni di contaminanti in ingresso molto variabili possono complicare il processo di trattamento;
- come per ogni altra tecnologia ex-situ, il sistema di trattamento richiede spazio. [4].

3.2 Le fasi di fattibilità del Soil Washing

3.2.1 Dati richiesti

Il successo dell'implementazione e della progettazione di un programma di bonifica mediante il Soil Washing dipende dalle seguenti caratteristiche tecniche fondamentali:

- proprietà fisiche del terreno da trattare;
- composizione chimica del terreno da trattare;
- chimica e concentrazioni dei contaminanti.

Esistono alcuni dati fondamentali per valutare inizialmente se il Soil Washing può essere un'opzione di trattamento valida, tra cui:

- distribuzione granulometrica (da 0,24 a 2 mm è l'intervallo ottimale e non dovrebbe esserci una grande frazione di argilla o limo);
- tipo di terreno (i materiali a grana grossa sono i più adatti);
- forma fisica / forma delle particelle;
- proprietà di movimentazione e contenuto di umidità;
- tipo e concentrazione dei contaminanti;
- struttura;
- contenuto organico;
- capacità di scambio cationico;
- pH;
- capacità di buffering.

3.2.1.1 Le proprietà fisiche del suolo

La composizione fisica del materiale da trattare deve essere ben caratterizzata. Tra i fattori importanti vi sono:

- la granulometria del terreno e la sua variabilità, che devono essere caratterizzate: il materiale grossolano (ghiaia o sabbia) è probabilmente più adatto al Soil Washing, mentre la frazione più fine viene separata durante il processo e potrebbe richiedere un trattamento aggiuntivo;
- eterogeneità del suolo: granulometrie diverse e la presenza di parti di materiale più grandi (come frammenti di mattoni) possono influenzare la distribuzione del fluido di lavaggio nel suolo contaminato;
- la permeabilità e la plasticità del materiale, che possono anch'esse influenzare la distribuzione del fluido di lavaggio nel terreno contaminato;
- il contenuto di acqua, che può essere elevato se si deve trattare un terreno proveniente da una falda freatica (o sedimenti in un corpo idrico superficiale).

Ulteriori fattori per comprendere bene le proprietà fisiche del terreno sono il rapporto limo/argilla (a seconda dei contaminanti i limi potrebbero essere trattabili) e la mineralogia dell'argilla (in particolare la presenza di argille che si ritirano o si rigonfiano).

3.2.1.2 La composizione chimica del suolo

La composizione del materiale da trattare deve essere ben caratterizzata. Tra i fattori più importanti da tenere in considerazione vi sono:

- le distribuzioni delle concentrazioni e della massa dei contaminanti nei terreni e l'obbligo di individuare e trattare la contaminazione che supera determinate concentrazioni, tenendo conto che la contaminazione può essere irregolare in termini di estensione e localizzazione;
- la concentrazione massima consentita e la variazione di concentrazione dei contaminanti nel terreno trattato. Se si applicano obiettivi di bonifica molto restrittivi, potrebbero essere necessari più cicli di lavaggio o un volume di suolo maggiore potrebbe richiedere un ulteriore trattamento o la rimozione dal sito;
- acidi umici e materiale organico. I contaminanti tendono ad aderire alle particelle organiche quindi, se il terreno ha un elevato contenuto organico, è probabile che sia meno ricettivo al trattamento mediante lavaggio;
- le concentrazioni massime consentite e le forme di materiali vari come sistemi di rivestimento in plastica, acciaio, roccia o amianto, e i requisiti per l'esclusione dei materiali che non possono essere trattati. I terreni sono generalmente sottoposti a vagliatura prima del lavaggio per rimuovere il materiale sovradimensionato o non consentito prima del trattamento;
- il contenuto di sali, ad esempio quello che può verificarsi se si devono lavare sedimenti di acque saline, e la possibilità di smaltire il flusso di materiali all'alto contenuto salino che ne deriva.

3.2.1.3 I flussi di materiali

Una volta che il suolo è stata lavato, ci saranno flussi di materiali generati dal processo che necessiteranno di un ulteriore trattamento e/o smaltimento, tra cui ad esempio:

- materiale sovradimensionato scartato durante la preselezione;
- materiale trattato (che non soddisfa gli obiettivi di bonifica);
- materiale in frazione fine contenente concentrazioni più elevate di contaminanti e acqua;
- materiali esauriti dal sistema di trattamento dei reflui;
- dispositivi di protezione individuale usati e materiali di consumo associati.

3.2.2 I contaminanti trattabili

Il Soil Washing è più comunemente usato per trattare:

- metalli pesanti;
- idrocarburi di petrolio;
- alcuni composti organici volatili. [5]

Tuttavia, a seconda delle condizioni del sito e dei tipi di suolo (si veda anche il capitolo 4), può essere efficace anche per il trattamento dei seguenti contaminanti:

- bifenili policlorurati;
- Idrocarburi Policiclici Aromatici;
- acidi;
- esplosivi
- radionuclidi, pesticidi ed erbicidi;
- cianuri; [6]
- PFAS. [7]

3.2.3 Le matrici trattabili

Il Soil Washing è più adatto al trattamento di terreni a grana grossa o sabbiosi con un contenuto di argilla e limo inferiore a circa il 30% del suolo. I terreni con una frazione fine più dominante possono essere bonificati con questo metodo, ma è probabile che volumi significativi di materiale di scarto debbano essere smaltiti o richiedere un ulteriore trattamento dopo il completamento del processo, il che può ridurre l'efficacia dei costi [7].

Il Soil Washing tramite estrazione chimica, in confronto, può non essere soggetto a tali vincoli di matrice, poiché i contaminanti possono essere lisciati da materiale relativamente fine.

3.2.4 I requisiti normativi

Le autorità di controllo, in particolare quelle responsabili della protezione dell'ambiente, della pianificazione urbanistica e dell'autorizzazione degli impianti di trattamento, devono essere consultate per determinare i requisiti specifici relativi all'ottenimento delle approvazioni, dei permessi e delle licenze necessarie, e i controlli che si possono prevedere, prima di condurre il programma di bonifica con il Soil Washing [8].

4 TEST DI CAMPO

Il Soil Washing è una tecnologia fisico-chimica che separa i componenti del suolo contaminati da quelli non contaminati sfruttando le differenze fisiche tra di essi, come le dimensioni, la forma, la densità e/o le proprietà superficiali delle particelle.

Le fasi principali dell'applicazione del Soil Washing come tecnologia di trattamento sono quattro:

- preparazione e vagliatura del suolo;
- separazione fisica;
- estrazione chimica;
- trattamento delle acque reflue.[3]

Il Soil Washing è raramente una tecnologia di trattamento a sé stante, poiché i terreni fini e le acque reflue richiedono generalmente un ulteriore trattamento dopo il completamento del processo di lavaggio; mentre le acque reflue sono generalmente trattate secondo le pratiche industriali standard, i fanghi generati durante il trattamento delle acque reflue possono richiedere un trattamento con una tecnologia di bonifica alternativa, come la solidificazione/stabilizzazione, il biorisanamento, il trattamento chimico (ad esempio, il processo di catalisi) o il trattamento termico.

4.1 Studi di trattamento

Il Soil Washing è una tecnologia di trattamento per la riduzione dei volumi e la minimizzazione del quantitativo di rifiuti, basata su processi fisici e/o chimici.

Se non è certo che il Soil Washing raggiunga i risultati desiderati in termini di suolo trattato, o se vi siano altri aspetti che rendono incerta l'efficacia del Soil Washing, può essere necessario condurre studi piloti di trattabilità per studiare l'applicazione e i risultati del Soil Washing nelle condizioni prevalenti nel sito da bonificare.

La progettazione dello studio di trattabilità può richiedere il contributo di diversi specialisti tecnici, tra cui specialisti ambientali, ingegneri chimici, ingegneri meccanici e esperti di qualità dell'aria, per garantire che lo studio sia mirato a ottenere i dati necessari per sviluppare una strategia di attuazione adeguata.

Le informazioni aggiuntive necessarie possono essere determinate esaminando la letteratura pubblicata e le informazioni sui casi di studio relativi all'applicazione del Soil Washing.

Le fasi di analisi che possono essere intraprese sono generalmente quattro:

- **studio preliminare:** per determinare se il Soil Washing è una soluzione di trattamento praticabile per il sito specifico;
- **test di laboratorio:** per valutare l'efficacia del Soil Washing in base alle condizioni sito specifiche e le concentrazioni di contaminanti. In generale, i test di laboratorio consentono di selezionare le componenti del sistema adatte, di personalizzare la configurazione del sistema e gli additivi di estrazione. Di conseguenza, il Piano d'Azione per la Bonifica (PAB) può essere progettato e scritto al termine di questa fase;
- **prova pilota:** per determinare i parametri operativi specifici e i criteri di prestazione e fornire informazioni sufficienti a consentire il completamento del PAB;
- **processo del test di trattabilità nella valutazione della tecnologia di bonifica:** gli studi di trattabilità devono essere eseguiti in modo sistematico.

I dati di ogni fase dei test di trattabilità devono essere esaminati e interpretati congiuntamente dal consulente e dall'appaltatore della bonifica, con una proiezione dei risultati che si otterranno con il funzionamento su scala reale e con la definizione dei requisiti per l'attuazione [7].

4.1.1 La valutazione preliminare

La valutazione preliminare ha lo scopo di valutare a grandi linee l'applicabilità del Soil Washing alle condizioni generali del sito. In molti casi, questa fase può essere preceduta da alcuni test su campioni discreti di terreno nella fase di valutazione del sito, come screening preliminare delle opzioni e come parte della determinazione dei materiali adatti per i test di trattabilità.

La fattibilità del Soil Washing viene solitamente valutata sulla base di una revisione dei dati disponibili da una precedente valutazione della contaminazione in cui, ad esempio, le cassette catalogatrici dei sondaggi del suolo documentano le condizioni del sottosuolo e i rapporti analitici dettagliano le concentrazioni dei contaminanti. La distribuzione granulometrica dovrebbe essere nota e i vincoli sullo smaltimento della frazione fine, dove si concentrano i contaminanti, sono probabilmente fattori critici nel determinare la fattibilità del Soil Washing.

Tuttavia, se non sono disponibili dati sufficienti per valutare il potenziale del Soil Washing, è possibile eseguire test preliminari e speditivi a scala di laboratorio, che possono essere completati in poche ore utilizzando il terreno e il fluido di lavaggio in specifici contenitori.

4.1.2 Test di laboratorio

I test di laboratorio mirano a valutare se il Soil Washing può raggiungere gli obiettivi di bonifica e la sua applicabilità al tipo specifico di materiale nelle condizioni specifiche del sito.

Le prove di laboratorio di Soil Washing comprendono generalmente test per eseguire un bilancio di massa e valutare le concentrazioni di contaminanti nel terreno lavato. I risultati dovrebbero consentire di stimare la quantità di terreno che sarà trattata in modo sufficiente a soddisfare gli obiettivi di bonifica (cioè il tasso di successo del Soil Washing).

I probabili obiettivi dei dati per la seconda fase dei test di trattabilità sono:

- valutare quali sostanze chimiche/reagenti saranno necessari per trattare i contaminanti presenti nel terreno (ad esempio, acidi o tensioattivi) che possono influire sui requisiti di trattamento del residuo. Possono essere trattati?
- valutare le concentrazioni di contaminanti nella frazione di terreno pulito ottenuta dopo il trattamento (per determinare se i criteri di bonifica nominati possono essere soddisfatti) e la percentuale di terreno che soddisfa gli obiettivi di bonifica.
- valutare le concentrazioni di contaminanti nella frazione di terreno residuo concentrato dopo il trattamento (per determinare i requisiti di disidratazione e smaltimento o trattamento). È necessario considerare la variabilità delle concentrazioni dei contaminanti, poiché il Soil Washing comporterà un aumento delle concentrazioni nel materiale di scarto. Il Soil Washing sarà economicamente vantaggioso?
- qual è il probabile bilancio idrico – in che misura l'acqua può essere riciclata e sono necessari dei reintegri? Ci sarà un accumulo di sali solubili nell'acqua riciclata? Qual è il rapporto più efficace tra suolo e fluido di lavaggio?

I test di laboratorio sono più costosi di una valutazione a tavolino e in genere richiedono diverse settimane per essere pianificati e realizzati. Questi test hanno l'obiettivo di riprodurre più fedelmente i parametri fisici e chimici del sito in esame. Le informazioni ottenute nella seconda fase dei test sono solitamente sufficienti per consentire lo sviluppo del Piano d'azione per la bonifica [5].

TABELLA 2-1. Test fisici di pre-screening sulla caratterizzazione del terreno

| Parametri | Descrizione | Metodo Analitico Standard | Referenze |
|--------------------------------------|--|----------------------------|-----------|
| Analisi/distribuzione granulometrica | Vagliatura al setaccio con vagli #10 e #60 o equivalenti e Analisi di sedimentazione | ASTM D422 ASTM D7928 | 4 |
| Capacità di scambio cationico | Acetato di Ammonio o Sodio | Method 9080 Method 9081 | 5,6 |

4.1.3 Test Pilota

Se durante le prove di laboratorio non si sono ottenuti dati sufficienti per progettare il full scale, si può intraprendere una terza fase di test di trattabilità per ottenere le informazioni necessarie alla stesura del Progetto Operativo di Bonifica (POB) con Soil Washing, specifico per le condizioni del sito.

Le prove sul campo di solito comprendono un test su piccola scala dell'intero programma di bonifica. Un grande volume di terreno da bonificare può essere portato in un impianto di Soil Washing e fatto passare attraverso l'unità con varie miscele chimiche per valutare l'efficienza del Soil Washing in diverse condizioni operative.

Il costo di questa fase di test è elevato (paragonabile a quello dell'intero programma di bonifica), pertanto è necessario determinare fin dall'inizio obiettivi chiari in termini di dati. Al termine di questa fase di test di trattabilità, dovrebbe essere possibile stabilire i requisiti per l'implementazione su scala reale, la tempistica per il completamento delle opere di bonifica e una stima migliore del livello dei costi.

4.1.4 Processo di verifica della trattabilità nella valutazione di una tecnologia

Gli studi di trattabilità devono essere eseguiti in modo sistematico per garantire che i dati generati possano supportare il processo di valutazione della bonifica. Questa sezione descrive un approccio generale che dovrebbe essere seguito dai responsabili del progetto di bonifica, dalle parti potenzialmente responsabili e dagli appaltatori durante tutti i livelli di test di trattabilità.

In genere si possono intraprendere tre fasi di test.

Fase di pianificazione:

- stabilire gli obiettivi di qualità dei dati;
- selezione di un meccanismo di contrattazione;
- emissione dell'incarico di lavoro;
- preparazione del piano di lavoro;
- preparazione del piano di campionamento e analisi;
- preparazione del piano di salute e sicurezza.

Esecuzione:

- svolgimento delle relazioni con la comunità;
- rispetto dei requisiti normativi;
- esecuzione dello studio;
- raccolta dei dati.

Redazione dei rapporti:

- analizzare, convalidare e interpretare i dati;
- segnalazione dei risultati.

Gli studi di trattabilità per un particolare sito spesso comportano più livelli di analisi. L'efficienza può essere aumentata riconoscendo questa possibilità nelle prime fasi di pianificazione del progetto. L'incarico di lavoro, il piano di lavoro e gli altri documenti di supporto devono includere tutte le attività previste. Esistono tre livelli di studi di trattabilità: screening delle tecnologie, selezione della tecnologia e test di progettazione della tecnologia. Alcuni o tutti i livelli possono essere necessari a seconda del caso specifico. La necessità e il livello dei test di trattabilità richiesti sono decisioni gestionali in cui il tempo e il costo necessari per eseguire i test sono bilanciati rispetto ai rischi inerenti alla decisione (ad esempio, la selezione di un'alternativa di trattamento non adeguata). Queste decisioni si basano sulla quantità e sulla qualità percepita dei dati disponibili e su altri fattori decisionali (ad esempio, l'accettazione della bonifica da parte delle Autorità preposte al procedimento).

ambientale e della comunità locale o nuovi dati sul sito). Il diagramma di flusso per l'approccio graduale riportato nella Figura 4.2 traccia l'esame graduale dei dati con i punti di decisione e i fattori da considerare. Le tecnologie vengono generalmente valutate prima al livello di screening della bonifica e progrediscono attraverso la selezione della bonifica fino alla verifica della progettazione della bonifica. Tuttavia, una tecnologia può entrare nel processo di selezione a qualsiasi livello sia appropriato in base ai dati disponibili sulla tecnologia e ai fattori specifici del sito. Per esempio, una tecnologia che è stata applicata con successo in un sito con condizioni e contaminanti simili può non richiedere uno screening per determinare se ha il potenziale per funzionare. Piuttosto, può passare direttamente ai test di selezione della tecnologia per verificare che gli standard di prestazione possano essere soddisfatti e generare stime preliminari dei costi. Gli studi di trattabilità, a un certo livello, saranno normalmente necessari per assicurare che la tecnologia possa raggiungere gli obiettivi di bonifica del sito, anche se gli studi precedenti o l'implementazione effettiva hanno riguardato condizioni del sito simili. La Figura 4.3 mostra la relazione dei tre livelli di uno studio di trattabilità tra loro e con il processo di Remedy Investigation/Feasibility Study.

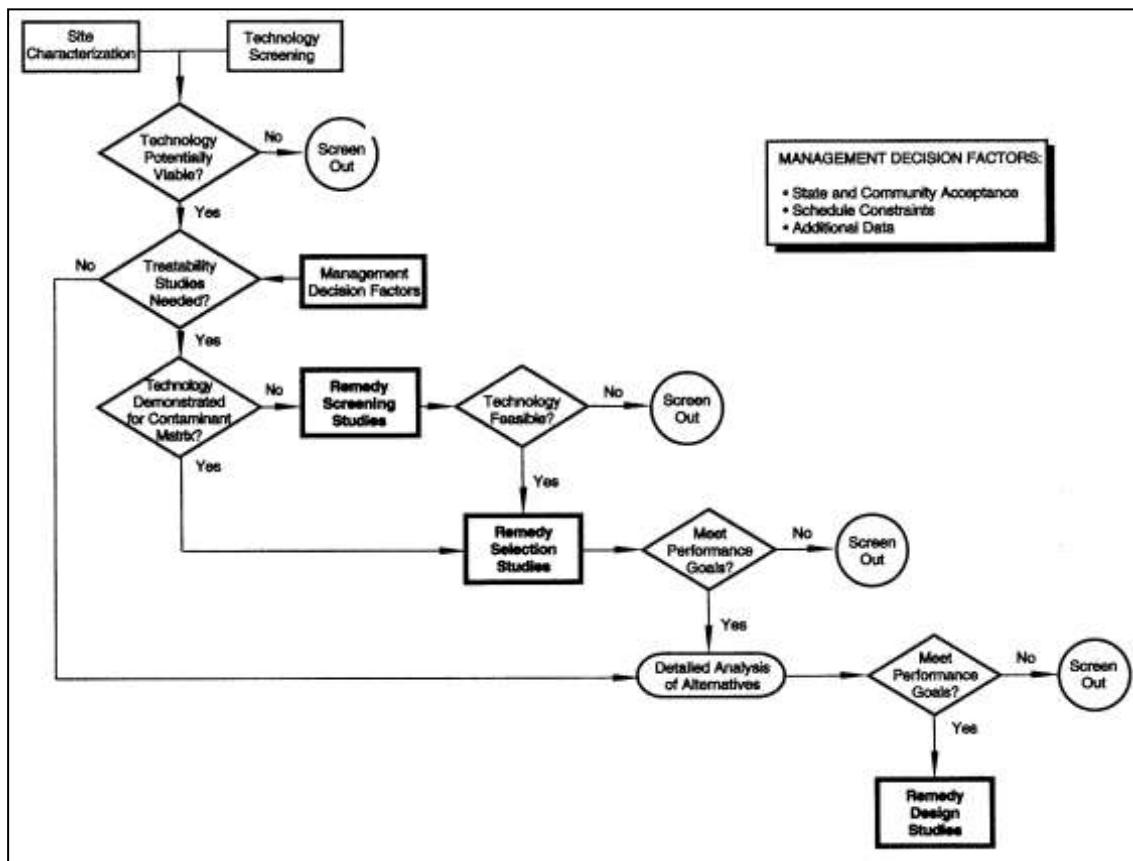


Figure 4.2- Diagramma di flusso del Soil Washing con approccio graduale.

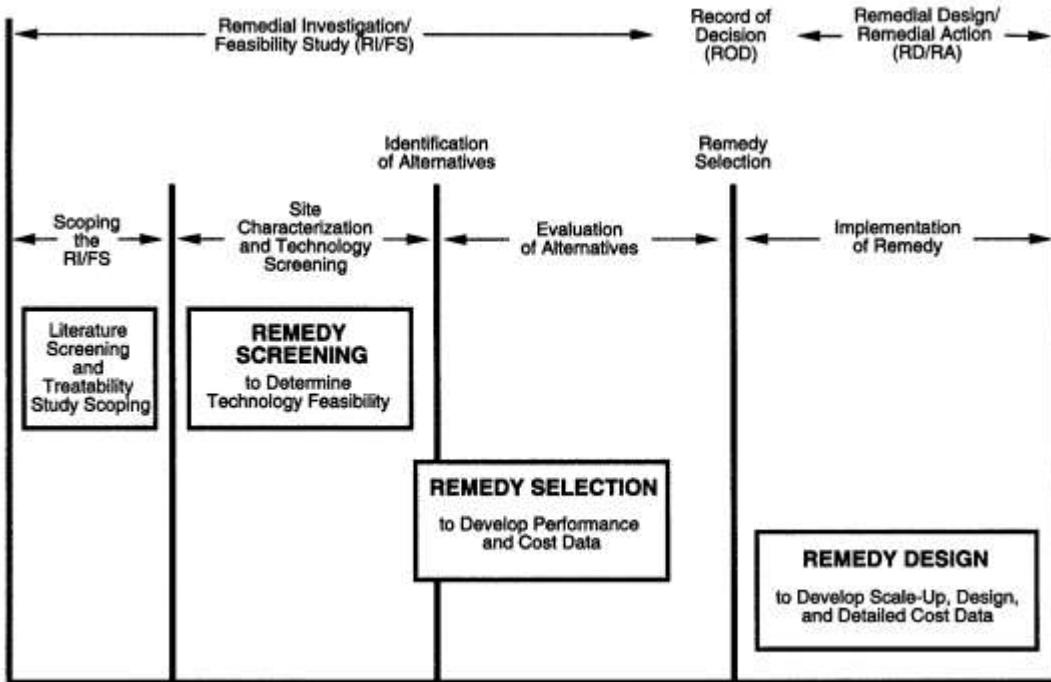


Figure 4.3 Il ruolo degli studi di trattabilità nel Soil Washing [12]

Prima di condurre gli studi di trattabilità, è necessario stabilire gli obiettivi di ciascun livello di analisi. Gli obiettivi dello studio di trattabilità del Soil Washing si basano sulle esigenze specifiche dell'indagine di Remedial Investigation/Feasibility Study. Ci sono nove criteri di valutazione specificati nel documento "Guidance for Conducting Remedial Investigations and Feasibility Studies Under CERCLA" (Interim Final)[12] gli studi di trattabilità forniscono dati per un massimo di sette di questi criteri. Questi sette criteri sono:

- protezione generale della salute umana e dell'ambiente;
- Requisiti appropriati e applicabili o pertinenti (ARAR);
- riduzione della tossicità, della mobilità o del volume attraverso il trattamento;
- efficacia a breve termine;

- implementabilità;
- efficacia e permanenza a lungo termine;
- costi.

I primi quattro di questi criteri di valutazione riguardano il grado di riduzione dei contaminanti ottenuto dal processo di Soil Washing:

- quali saranno le concentrazioni residue di contaminanti?
- i livelli di contaminanti residui saranno sufficientemente bassi da soddisfare gli ARAR stabiliti e i obiettivi di bonifica risk-based?
- quali sono le concentrazioni di contaminanti e le differenze fisiche e chimiche tra le frazioni di terreno non trattate e quelle trattate (la tossicità, la mobilità e il volume dei contaminanti sono stati ridotti)? Il quarto criterio, l'efficacia a breve termine, riguarda i rischi posti dalla tecnologia di trattamento durante l'attuazione della tecnologia stessa [6, 8].

5 Monitoraggio delle prestazioni

5.1 Introduzione

Il soil washing è una tecnologia di bonifica a breve e medio termine (settimane/mesi) utilizzata per il trattamento del terreno contaminato. La durata e l'efficacia del trattamento dipendono dalle dimensioni dell'impianto e dalla velocità del processo di trattamento [13]. Una volta stabiliti i parametri per l'applicazione della tecnologia, sulla base dei dati di caratterizzazione, il monitoraggio consente di valutare i progressi della bonifica al fine di verificare il raggiungimento degli obiettivi di bonifica.

5.2 Report sulla performance

Il percorso e la direzione della tecnologia di bonifica vanno delineati in uno specifico report in cui vanno inserite anche le informazioni sul sito, la descrizione della matrice e del sistema di trattamento, le prestazioni e i costi del sistema di trattamento. [4]. In particolare, le prestazioni del sistema di trattamento devono includere [4]:

- obiettivi di bonifica;
- dati sulle prestazioni del trattamento (compresi i metodi di campionamento/analisi, la frequenza/localizzazione dei campioni, il riepilogo dei dati dei test, il riepilogo dei dati dei test sostenuti su scala reale);
- valutazione dei dati sulle prestazioni;
- completezza dei dati sulle prestazioni;
- qualità dei dati sulle prestazioni.

Il soil washing è una tecnologia ex-situ intensiva che mira a ridurre il volume del materiale di scavo contaminato che richiede un ulteriore trattamento o lo smaltimento. Il costo del soil washing dipende da una serie di fattori, tra cui le dimensioni dell'attrezzatura necessaria, gli obiettivi di bonifica, la natura dei contaminanti, la distribuzione granulometrica (in particolare la percentuale di limo e argilla), i requisiti di preparazione del sito e il volume di suolo da trattare [13, 14]. Un terreno con una bassa percentuale di limo e argilla e una soluzione di lavaggio senza additivi (solo acqua) aumentano l'efficacia del processo in termini di costi-benefici.

5.3 Tipi di monitoraggio

Le prestazioni del trattamento devono essere valutate con un approccio integrato. Un vantaggio del Soil Washing è che il processo è flessibile e può essere modificato in diverse fasi per massimizzarne l'efficienza. Sebbene gli studi su scala sperimentale costituiscano il punto di partenza per progettare il processo di Soil Washing per uno specifico sito contaminato, le prestazioni di un sistema continuo possono essere più complesse e richiedere quindi aggiustamenti.

Più il piano di monitoraggio è dettagliato e strutturato, maggiore è la possibilità di adeguare l'approccio e correggere i problemi durante il processo.

Prima dell'applicazione del Soil Washing, i parametri che possono essere valutati sono [15]:

- tipologie e concentrazioni dei contaminanti;
- distribuzione delle dimensioni delle particelle;
- ripartizione dei contaminanti tra terreno e soluzione di lavaggio;

- altre caratteristiche chimiche del suolo (ad esempio pH, concentrazioni di ioni ad esempio cloruro, sodio, calcio, magnesio, sulfato, carbonato, ferro, sulfuro, ecc.);
- capacità di scambio cationico del suolo;
- capacità tamponante per gli acidi;
- contenuto di sostanza organica;
- mineralogia (in particolare: mineralogia delle argille);
- contenuto di umidità (influisce inizialmente sulla resistenza del lisciviato);
- comportamento dei contaminanti a diversi pH;
- potenziali redox.

5.3.1 Fase operativa-tecnologica

I parametri di caratterizzazione dei terreni contaminati includono:

- Distribuzione granulometrica e capacità di scambio cationico;
- Tipo, forma fisica, proprietà di manipolazione e contenuto di umidità;
- Contaminanti: organici e/o inorganici, tra cui classe, concentrazione, volatilità, coefficiente di ripartizione, acidi umici;
- pH, capacità tampone.

Una caratterizzazione non adeguata del sito può influenzare l'efficienza del processo. Se, ad esempio, il terreno in situ è diverso dal materiale testato nello studio di trattabilità a scala pilota, la proporzione della frazione a grana fine potrebbe essere diversa da quella prevista e di conseguenza anche l'entità della contaminazione cambia [2]. Anche la scelta del fluido di lavaggio appropriato e la sua capacità di promuovere la rimozione dei contaminanti possono influenzare notevolmente l'efficienza del processo. Se non vengono selezionati su base sito-specifica, gli additivi di lavaggio possono interferire con il trattamento e aumentare i costi del processo [14]. Nonostante gli additivi al fluido di lavaggio siano stati individuati sulla base delle caratteristiche del sito, del suolo e delle proprietà dei contaminanti (ad esempio, agenti chelanti, solventi, tensioattivi), il monitoraggio delle prestazioni può richiedere di regolare/ridefinire la combinazione ottimale della soluzione di lavaggio, con l'obiettivo di solubilizzare, mobilizzare, precipitare e complessare i costituenti chimici organici e/o inorganici [14]. Pertanto, le variazioni, ad esempio dei contaminanti e della concentrazione nella matrice di alimentazione, possono influenzare l'efficienza del processo e richiedere aggiustamenti.

Durante il funzionamento su scala reale, i costi e le prestazioni possono essere influenzati dalla portata del suolo in ingresso, dall'uso del fluido di lavaggio, dalle dosi di additivi, dalla natura e dalla forma del contaminante nella frazione fine, dal costo dello smaltimento o dell'ulteriore trattamento della frazione fine, dall'identificazione dei contaminanti e dalla concentrazione degli stessi nel fluido di lavaggio [14]. Inoltre, occorre prendere in considerazione il rilascio di contaminanti organici volatili (VOC) o le reazioni chimiche degli additivi del fluido di lavaggio e dei contaminanti non identificati o la mineralogia del materiale stesso, che potrebbero portare a emissioni fuggitive nel funzionamento su scala reale [14].

5.3.2 Conferma della bonifica e del post risanamento

La bonifica è efficace quando vengono raggiunti gli obiettivi/standard di bonifica prestabiliti. Nel caso specifico del Soil Washing, devono essere considerati diversi flussi: materiali sovradimensionati, materiali granulari grossolani (sabbie prodotte dal trattamento), la frazione granulare fine contenente i contaminanti concentrati e l'acqua di processo [14]. Per quanto riguarda i flussi con contaminanti (ad esempio, la frazione fine), possono essere trattati o smaltiti in base a parametri predefiniti/normativi.

Il fluido di lavaggio può essere riciclato e riutilizzato nel processo di lavaggio del suolo o trattato ai fini del rispetto dei limiti previsti per le acque di scarico (in caso di requisiti di qualità inferiore e superiore, rispettivamente). Le caratteristiche del fluido di lavaggio da tenere in considerazione sono: le concentrazioni dei contaminanti, le variazioni del valore del pH, la presenza di altri elementi/composti, la matrice (ad esempio, il contenuto di sali), il contenuto di eventuali sabbie a grana grossa (con contaminazione leggera o assente), di solidi a grana fine, di composti organici umici, di sali discolti (presenti nel terreno originale), di metalli pesanti discolti o solubilizzati [14]. Tutto ciò può influire sull'efficienza del processo di lavaggio del suolo e porre ulteriori sfide per il trattamento del fluido di lavaggio, influenzandone l'efficienza del riciclo o del trattamento.

La frazione fine può essere separata e disidratata a creare piccoli panetti o sottoposta a un ulteriore trattamento (sfruttando la riduzione della matrice contaminata, si ottiene un processo economicamente vantaggioso in quanto è necessario trattare un numero inferiore di residui rispetto alla massa totale del suolo).

Gli studi sulla capacità di trattamento e i dati relativi al monitoraggio delle prestazioni aiutano a controllare la quantità dei flussi finali prodotti. Ad esempio, se il fluido di lavaggio ha dei limiti nel promuovere la rimozione dei contaminanti, saranno necessari più cicli di lavaggio che porteranno a un volume maggiore da trattare. Se un terreno ha una frazione fine più dominante, sarà necessario smaltire o trattare ulteriormente volumi più elevati di materiale di scarto.

Dopo il trattamento, devono essere applicati requisiti predeterminati per supportare la decisione sulla destinazione del materiale trattato (frazione grossolana), ad esempio, il riutilizzo come riempimento del sito, il riempimento in un'altra area o procedere ad un'altra fase di bonifica.

5.4 Valutazione e controllo della qualità

La valutazione e il controllo della qualità (QA/QC) deve essere applicata nella fase di progettazione del processo di Soil Washing, nelle procedure di controllo del processo, nella regolazione delle prestazioni del sistema e per le procedure di campionamento e analisi [15].

Il programma di QA/QC dovrebbe prendere in considerazione almeno i seguenti punti:

- Responsabilità; tutti, dai vertici aziendali ai singoli individui che partecipano a ogni fase del lavoro, sono coinvolti nell'assicurazione della qualità;
- Formazione e certificazione; solo una formazione e una certificazione adeguate possono garantire che i dati raccolti siano rilevati e interpretati correttamente;
- Documentazione; devono essere sviluppate e utilizzate SOP per la raccolta e l'interpretazione dei dati;
- Calibrazione degli strumenti; per garantire un'adeguata raccolta dei dati e la comparabilità intra- e inter-laboratorio, sono indispensabili standard e procedure di calibrazione degli strumenti [16];

I campioni QA/QC devono fornire informazioni sulla variabilità e sull'utilizzabilità dei risultati operativi (vedere le sezioni precedenti).

In laboratorio, il QA/QC deve tenere conto delle repliche sul campo, dei campioni per la valutazione delle prestazioni, dei campioni di picchi di contaminazione, dei campioni di fondo o di altri campioni QA/QC, se necessario. I tipi e il numero di campioni QA/QC necessari per ottenere un'idea dell'errore e della fiducia nei dati sono correlati agli obiettivi di campionamento (ad esempio, monitoraggio del sito o obiettivi di bonifica) e ai corrispondenti obiettivi QA/QC.

Il programma di laboratorio QA/QC è quindi una parte critica del sistema di gestione che deve essere utilizzata per prevenire, individuare e correggere i problemi nel processo di misurazione e/o per dimostrare il raggiungimento del controllo statistico. L'obiettivo del programma di QA/QC è limitare gli errori nelle misurazioni analitiche a un livello accettabile e garantire che i risultati analitici abbiano un'alta probabilità di essere di qualità accettabile.

Le principali fasi chiave per la definizione di AQ/QC sono:

- pianificazione per definire i tassi di errore accettabile;
- controllo della qualità per stabilire i tassi di errore a livelli accettabili;
- valutazione della qualità per verificare che il processo analitico operi entro limiti accettabili;
- la rendicontazione e la verifica della qualità dei dati all'interno del laboratorio [16].

6 Conclusioni

Il Soil Washing è un metodo di trattamento applicato a valle dello scavo del suolo contaminato. La sua applicazione è determinata dalla granulometria del materiale scavato, dal tipo di contaminanti e dalla loro distribuzione nelle varie frazioni granulari.

Il Soil Washing può essere eseguito in situ per i progetti di bonifica di grandi dimensioni o ex-situ presso impianti di lavaggio esistenti per i casi più piccoli o più complessi. Per gli impianti in situ che trattano grandi volumi di scavo e che effettuano un elevato recupero di aggregati riciclabili, i volumi di trasporto possono essere ridotti, migliorando così la valutazione del ciclo di vita dell'operazione.

Il Soil Washing mira a frazionare e pulire il materiale di scavo contaminato per ottenere aggregati riciclabili o per poter abbassare i costi di smaltimento in caso di mancato raggiungimento degli obiettivi di bonifica. In generale, il lavaggio del terreno può rimuovere gli inquinanti dalle frazioni a grana grossa o almeno ridurne l'inquinamento, con conseguente accumulo di inquinanti nelle acque di processo e/o nelle frazioni a grana fine (fanghi).

A seconda della legislazione relativa alla gestione dei materiali, al Soil Washing può seguire un trattamento di immobilizzazione degli inquinanti per poter raggiungere i limiti di ammissibilità per lo smaltimento in discarica.

Il Soil Washing è raramente l'unico metodo di trattamento, poiché flussi parziali di rifiuti finiscono solitamente in altri impianti di smaltimento (come impianti di trattamento termico del suolo o discariche) direttamente o come residui del Soil Washing. Lo smaltimento di questi flussi di rifiuti è una parte obbligatoria del successo dello smaltimento e del trattamento attraverso un impianto di Soil Washing.

I fattori chiave che determinano l'efficacia del Soil Washing sono:

- Distribuzione dell'inquinamento nella diverse frazioni granulometriche: maggiore è la percentuale di ghiaia e sabbia, più il materiale di scavo contaminato è adatto al Soil Washing. Mediante processi meccanici a umido, le frazioni grossolane possono essere liberate dalla maggior parte degli inquinanti. Queste frazioni grossolane possono essere riciclate anche come materiali da costruzione. Le frazioni fini, limo e argilla, vengono separate nel processo di lavaggio del suolo mediante sedimentazione e poi disidratate con filtropresse. Queste frazioni hanno solitamente un elevato contenuto di inquinanti. Nel caso di inquinanti organici, un trattamento termico della frazione fine o l'utilizzo come materia prima alternativa nell'industria del cemento consente la mineralizzazione degli inquinanti. In presenza di inquinanti non organici rilevanti, può essere necessaria un'immobilizzazione prima dello smaltimento in discarica.
- Inquinamento da inquinanti sotto forma di particelle: le particelle che causano l'inquinamento devono avere proprietà fisiche il più possibile diverse da quelle della matrice del suolo. Ciò garantisce una netta separazione mediante il processo meccanico a umido. Il trattamento mediante Soil Washing diventa più complesso se le particelle estranee hanno proprietà simili a quelle della matrice del suolo o formano con quest'ultima conglomerati difficili da separare. Affinché il Soil Washing abbia successo, gli inquinanti devono essere solubilizzati o trasferiti nella frazione fine nel modo più completo possibile. Questo processo può essere favorito dall'uso di additivi. Se gli inquinanti aderiscono alla frazione a grana grossa o vi si sono addirittura diffusi, il Soil Washing potrebbe non essere la scelta giusta.

I principali vantaggi sono:

- Se i requisiti sopra citati per il lavaggio del suolo sono soddisfatti, le frazioni grossolane lavate possono essere quasi interamente riciclate;

- La riduzione dei materiali da smaltire in discarica o dei materiali da sottoporre a trattamento termico e il riciclo della frazione pulita determinano di solito un buon bilancio ecologico per il processo di Soil Washing;
- Con gli impianti in situ è possibile ridurre notevolmente i trasporti, il che, a seconda dell'energia richiesta per la costruzione dell'impianto in situ, può avere un effetto positivo sul bilancio ambientale globale delle operazioni di bonifica;
- Grazie alla tecnologia di trattamento flessibile e all'ampia gamma di additivi, è possibile trattare un'ampia gamma di inquinanti e miscele;
- I cicli chiusi di trattamento e riciclo dei fluidi di lavaggio possono ridurre al minimo il consumo di acqua.

Gli svantaggi e i limiti sono:

- Il Soil Washing non è una tecnologia di bonifica in sé, ma un metodo di trattamento. Ciò significa che i terreni devono essere scavati e poi lavati in un impianto on site o ex-situ.
- Il Soil Washing non è raccomandato per i materiali di scavo a grana prevalentemente fine, poiché questi possono difficilmente essere privati dei contaminanti e ne risulterebbero solo basse frazioni riciclabili. Un'eccezione è rappresentata dai materiali a grana fine contaminati da Cr VI.
- Durante il Soil Washing, gli inquinanti si accumulano nelle frazioni a grana fine, che di solito devono essere avviate a costi elevati in impianti di desorbimento termico o smaltite in discariche.

In sintesi, il Soil Washing è un metodo efficace di trattamento per ripulire il materiale di scavo a grana grossa dalle particelle inquinanti e dagli agenti inquinanti, al fine di poter riciclare le frazioni grossolane (ghiaia e sabbia) generalmente senza restrizioni.

Sebbene si tratti di un processo di trattamento relativamente semplice, il successo dei progetti e degli impianti di trattamento richiede ampie conoscenze ed esperienze specialistiche. L'efficacia e l'efficienza dipendono da una solida comprensione dei vari componenti, dall'equipaggiamento e macchinari necessari, dalla progettazione del processo, dalle caratteristiche del suolo e dei contaminanti da trattare.

RIFERIMENTI

- [1] Understanding Soil Washing, September 2007, CLAIRE Technical Bulletin, TB
- [2] CRC for Contamination Assessment and Remediation of the Environment, 2018, National Remediation Framework - Technology guide: Soil washing,
- [3] DERMONT, BERGERON, MERCIER & RICHER-LAFLECHE, 2008, Soil washing for metal removal: A review of physical/chemical technologies and field applications, *Journal of Hazardous Materials*, Vol. 152(1), pp 1-31.
- [4] Technical and Regulatory Guidelines for Soil Washing, Interstate Technology and Regulatory Cooperation Work Group Metals in Soils Work Team Soil Washing Project, 1997 USA
- [5] FRTR, 2014, *Remediation technologies screening matrix and reference guide (V4): Issue 4.19 Soil Washing* [Online]: United States Federal Remediation Technologies Roundtable. Available: <https://frtr.gov/matrix2/section4/4-19.html> [Accessed 10 June 2014].
- [6] US DOD, 2013, *United Facilities Guide Specification: Soil washing through separation/solubilization*, UFGS-02-54-23, United States Department of Defence, Washington, DC.
- [7] QUINNAN, MORELL, NAGLE & MAYNARD, 2022, Ex situ soil washing to remove PFAS adsorbed to soils from source zones, *Remediation –The Journal of Environmental Clean Up Costs, Technologies, & Techniques*, Vol. 32(3), pp 151-166. [8] US EPA, 1991, *Guide for conducting treatability studies under CERCLA: Soil washing (interim guidance)*, EPA/540/2-91/020A, United States Environmental Protection Agency, Cincinnati, OH.
- [9]https://www.qu.edu.qa/static_file/qu/colleges/engineering/civil/documents/Lab%20Manuals/Geotechnical_Laboratory_Manual.pdf
- [10] <https://www.epa.gov/sites/default/files/2015-12/documents/9080.pdf>
- [11] <https://www.epa.gov/sites/default/files/2015-12/documents/9081.pdf>
- [12] US EPA, 1993, Innovative Site Remediation Technology Soil Washing/Soil Flushing Volume 3, EPA/542/B-93/012
- [13] USEPA. 1996b. Soil Screening Guidance: Technical Background Document. Office of Emergency and Remedial Response, Washington, DC. EPA/540/R95/128USEPA. (1993).
- [14] Innovative Site Remediation Technology, Vol 3: Soil Washing/Soil Flushing. 1993. *United States Environmental Protection Agency*. Ed. William C. Anderson, 1993.
- [15] Remedial Treatment for Contaminated Land, Vol IX: In-situ methods of remediation. *Construction Industry Research and Information Association*. Special Publication 109, 1995.
- [16] Innovative Site Remediation Technology, Design and Application, Volume 3, Liquid Extraction Technologies, Soil Washing, Soil Flushing, Solvent/Chemical, US EPA, 1998.



European Union Network for the Implementation
and Enforcement of Environmental Law

Annex 1

Soil Washing – Case studies

IMPEL Project no. 2021 /08 WG6



1. Your contact details - CASE STUDY: SW n.1

| | |
|----------------------------------|--|
| 1.1. Name and Surname | Alessandro Teani |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Italy |
| 1.3. Organisation | Ambientthesis S.p.A., now Greenthesis S.p.A. |
| 1.4. Position | CTO |
| 1.5. Duties | |
| 1.6. Email address | Alessandro.teani@greenthesisgroup.com |
| 1.7. Phone number | + 39 335 62 01 002 |

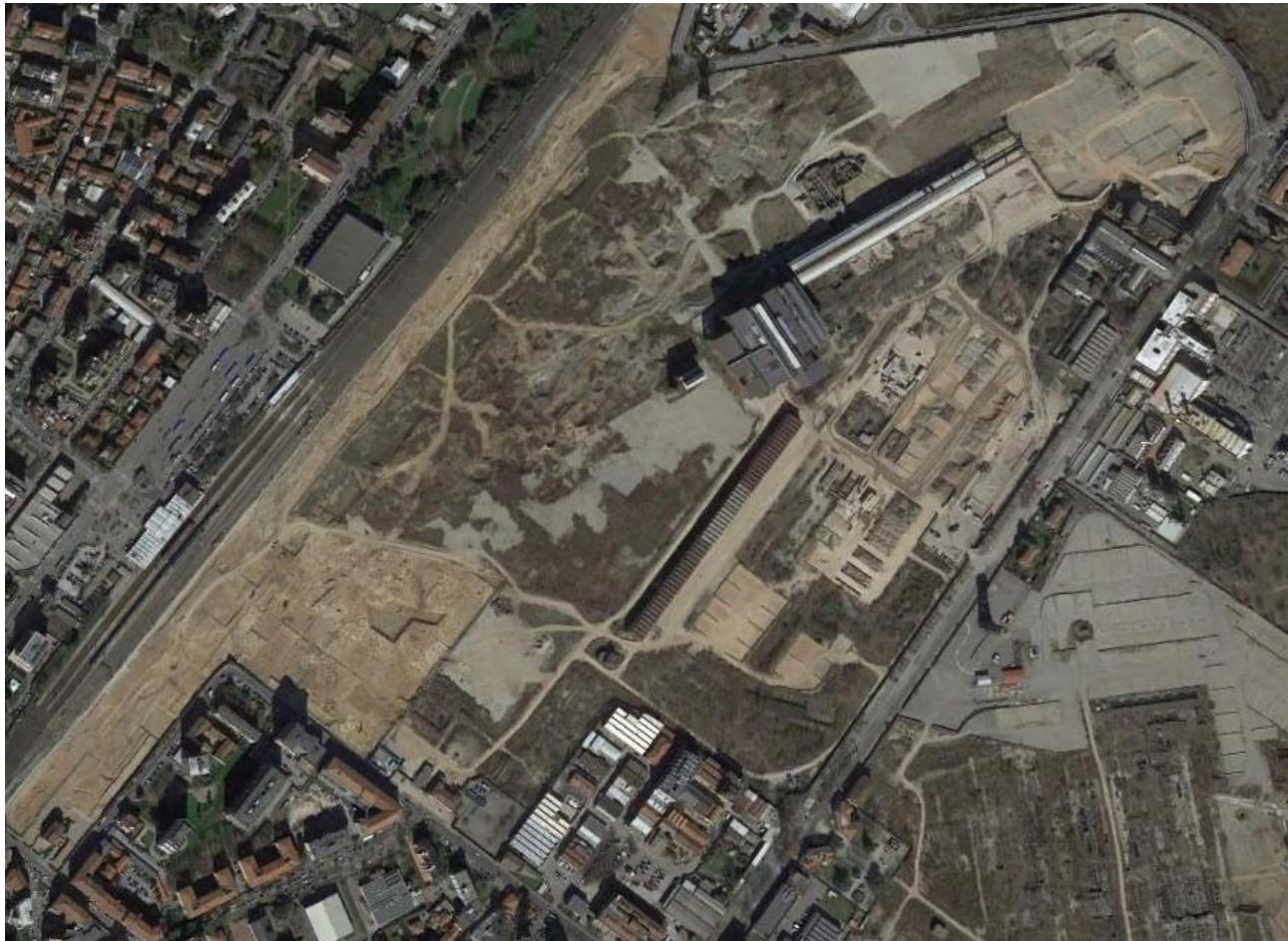
2. Site background

2.1 History of the site

The concerned area subject to the remediation is located near Milan, Italy. It's an old industrial site used before for the steel and metallurgical production activities.

The area is divided into sections and is about 1,290,000 m², approximately.

Only the area near the railroad will be subject to the remediation activities and is about 400,000 m², approximately.



2.2 Geological setting

The area of interest is flat, about 140 m above sea level. The soil is composed by gravelly-sandy and sandy alluvial deposits.

The aquifer is at a depth of 30 meters below ground surface.

The first meter of the superficial soil contains slag and other residues mixed with the soil.





2.3 Contaminants of concern

The major part of contaminants is composed by hydrocarbons (light and heavy) and metals (Zn, Cd, Pb, Cr).

The range of contamination is between 100 and 20,000 mg/kg for hydrocarbons and between 300 and 7000 mg/kg for metals.

During the excavations, residues of materials with asbestos were also found, as well as bombs left over from the war, and other waste that was managed separately and safely.

2.4 Regulatory framework

The intervention on the site is developed according to the project approved by the Italian Ministry of the Environment. The soils had to be treated with soil washing in order to allow the recovery of the fractions conforming to the future uses of the residential areas. The non-recoverable fractions that did not comply with the limits of use were sent to landfills. Some portions of land have been subjected to preliminary screening before being subjected to soil washing. Demolition residues were also subjected to volumetric reduction treatment for on-site recovery.

The remediation objectives were measured in relation to the contamination threshold concentrations allowed by Italian law for sites for future residential use, as well as in relation to the eluate for monitoring the quality of the groundwater.

3. Pilot-scale application in field

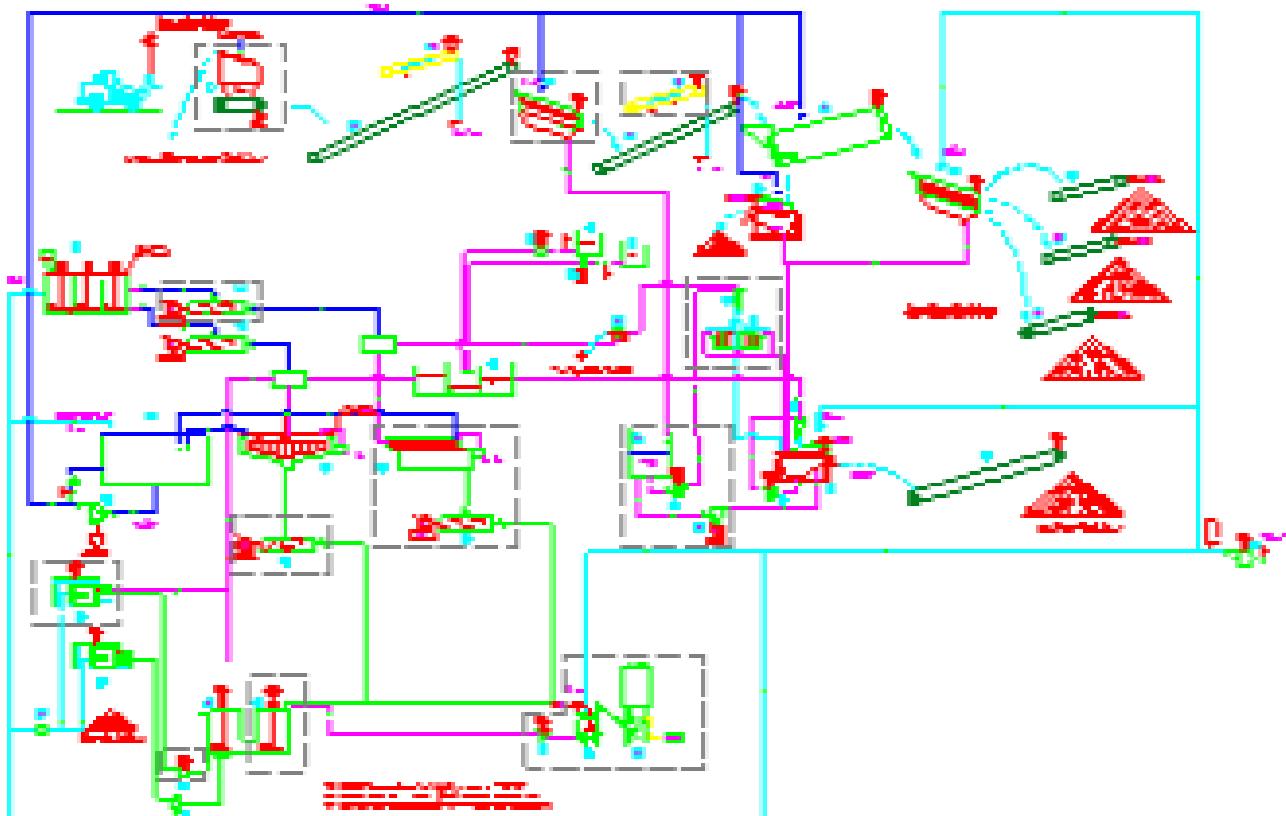
3.1 Soil washing system

There's no pilot-scale application. Only full scale application based on the lab test of the tender.

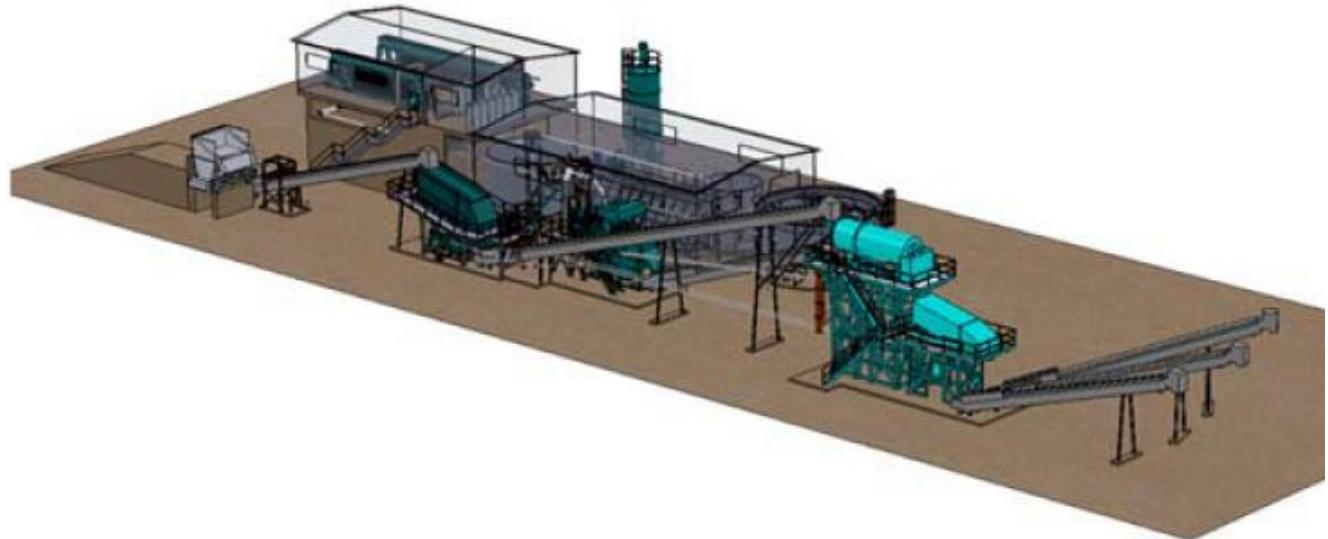
4. Full-scale application

4.1 Soil washing system

The plant is composed of few modular components, transportable and positionable on a flat waterproofed ground.



There is an overhead loading hopper, followed by a series of wet screens, capable of selecting the different cuts of sand and gravel, a drum washing, a series of hydrocyclones and the water treatment circuit with two filter presses for extraction of the sludge.



The plant can treat about 130 tons/h, in relation to the characteristics of the incoming materials.

4.2 Feasibility study

The most present contaminants were heavy metals and TPH. The contamination level was between some ppm to 10.000 ppm.

Some hot spot were characterized by the presence of persistent contaminants (PCBs) with a concentration of 100 ppm, approximatively.

The process is performed without the use of particular additives. Only water was used, extracted from the active barrier to protect the groundwater and introduced into the washing plant.

Particular attention was paid to the granulometric aspects and to the very heterogeneous composition of the first most superficial layer which also collected residual anthropic fractions of the production process of the industrial plant.

The structure of the plant has been initially perfected and adapted to improve efficiency precisely in relation to the site-specific aspects mentioned above.

4.3 Water Treatment

The sludge and water are treated in the Waste Water Treatment & sludge dewatering section of the plant. The WWTP is fully automatic in operation by using Thickeners & Filter Press.

The process is composed by a closed cycle, therefore the plant was optimized through the insertion of a water purification section, sand filters and activated carbon filters.

The treatment was carried out without discharges of liquid effluents, with recharge of clean water for about 60-70 l / ton of treated soil.





4.4 Control parameters

The effectiveness of the treatment is related to granulometry of incoming materials, the type and quantity of contaminants.

With regard to the particle size, the treatment was applied to materials with silt and clay values <25%.

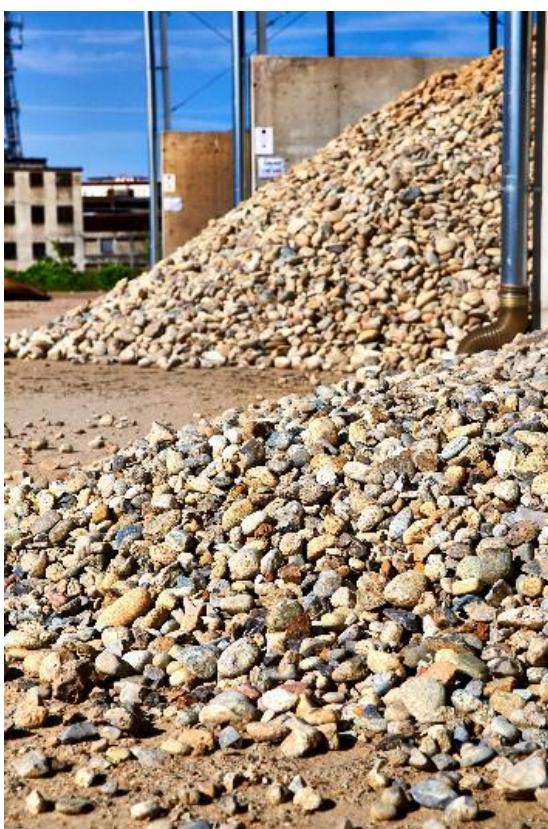
With regard to the type of contamination, the treatment was applied to organic contamination (hydrocarbons) with concentration <5000 ppm, in some cases also to hazardous waste. The treatment of metal contamination is less effective as in the anthropogenic fractions they are also found in the coarser fractions coming out of the treatment.

In any case, the material entering the plant was subjected to analytical verification (granulometric and contamination content) for batches of approximately 1000 cubic meters.

The treated materials were accumulated and also analytically verified, to check their compliance with the target limits (limits of residential sites).

In addition to the individual batches treated, the overall mass balance of the process was also checked, comparing the transfer of contamination to the individual outgoing fractions.







5. Results

5.1 Removal rate

Although it is possible to add chemicals to the washing solutions in order to improve the removal effectiveness, in this case the process was carried out with the use of clean water only, no additives were added.

The operation was carried out with a liquid / solid ratio of an average equal to 3. In relation to the content of silts and clays, the hourly production remained between 30 and 70 tons / hour. However, the production is reduced with the increasing of the fine fractions.

75.000 tons of contaminated soil were treated per year, recovering about 75% of the output materials produced.

The contamination abatement efficiency has proved to be excellent in the case of organic contaminants (> 90%), lower in the case of inorganic contaminants.

In this case the inorganics contaminants will be found in the final treated soil.

6. Post treatment and/or Long Term Monitoring

6.1 Post treatment and/or Long Term Monitoring

The procedures envisaged by the approved project do not contemplate long-term checks on the processed material. Instead, checks were carried out on elution, in order to safeguard the groundwater where the material was relocated.

All the recovered materials met the conditions envisaged for the protection of the groundwater, guaranteeing levels of contamination in the eluates compatible with the contamination limits envisaged for the groundwater.

7. Additional information

7.1 Lesson learnt

The intervention carried out allowed to highlight the following success and limits of the process:

- particle size distribution of the matrix being treated (more clay and silts means less efficiency and sustainability of process).
- the anthropogenic fractions.

We can say that:

- organic contamination can be treated with good results
- the process can work without water discharges
- In absence of particular contaminants, the process proves effectiveness even without the application of additives
- Prior to application on an industrial scale, it is convenient to acquire information on contamination, particle sizes, availability and cost of the landfill where the unrecovered fractions are to be delivered.

If adequate space and time are available in the reclamation sites, the application of soil washing can undoubtedly allow the saving of considerable economic resources and the recovery of land otherwise destined for disposal.

7.2 Additional information

The installation of a plant with capacity of treatment equal 50 tons / hour requires an average surface area of 1 hectare, to have the spaces for maneuvering and accumulating materials. It is possible to conduct the treatment H24, operating on average with 4 operators and two work vehicles. An average of 1 day of ordinary maintenance every week is to be foreseen.

Treatment costs are between € 20 and € 50/ton, approximatively, excluding the disposal of waste in landfills. To consider separately the costs of procurement and installation of the plant.



7.3 Training need

Running a soil washing plant requires experience in the geological, chemical and mechanical fields. The management of the process is completely automatic and can be carried out, even remotely, by a process engineer. A supervisor must be present on site, able to coordinate 1 maintenance technician and 2-3 operators.

It is important to have a collaboration with chemists able to evaluate the quality of incoming and processed materials, to allow free sapce in the storage areas and operational continuity.

7.4 Additional remarks

Applying soil washing treatments to reclamation sites is very different from applying the same technology to fixed plants. In remediation sites, the quality of the metarialls to be treated is usually not programmable and / or selectable. It must be managed and processed in real time. Often the technical characteristics of the plant are also defined specifically for the site, therefore it is essential to have qualified personnel who know how to better manage the situation, as well as to have characterization data as reliable as possible.

It is important to ensure an organization and documentary availability such as to allow the best traceability of flows, from the origin of the excavation to the recovery location.



1. Your contact details - CASE STUDY: SW n.2

| | |
|----------------------------------|-----------------------------------|
| 1.1. Name and Surname* | Dr. Benjamin Faigle |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Germany |
| 1.3. Organisation | Züblin Umwelttechnik GmbH |
| 1.4. Position | Deputy Manager R&D |
| 1.5. Duties | In-situ methods, PFAS remediation |
| 1.6. Email address | benjamin.faigle@zueblin.de |
| 1.7. Phone number | Tel. +49 (0)7145 9324-249 |

2. Site background

2.1 History of the site

The German city of Ingolstadt is conveniently located between the Bavarian cities of Nuremberg, Regensburg, Munich and Augsburg, and was thus selected as the place to erect five oil refineries in 1960. After construction began in 1962, the oil refinery ERIAG ("Erdölraffinerie Ingolstadt AG") began its operation on this specific site in 1964, and commenced in operation until 2008, when decommissioning of the operational site began.



Figure 1: Areal view of the site of the former oil refinery. Copyright: AUDI AG

The main tank fields and processing plants and chimneys were dismantled from 2010-2013, and 75ha out of a total of 105ha of land was acquired by IN-Campus GmbH, a Joint venture of AUDI AG and the City of Ingolstadt.

Thorough investigations into contamination at the site were conducted beginning in 2007. These primarily involved exploratory investigations and detailed investigations in multiple stages with downstream remediation investigations. After the site was acquired by IN-Campus GmbH, investigations were stepped up and an analysis carried out focusing



on its later use as a research and technology campus.

A total of over 1,200 exploratory drilling operations and digs were carried out and tests conducted at over 250 groundwater control points over the years. Three groups of contaminants have been identified: Petroleum-derived hydrocarbons (C10 - C40) can be found from groundwater level down to depths of up to 8 m below the groundwater level. Volatile aliphatic (C5 – C9) and aromatic hydrocarbons (BTEX) are present in the groundwater as well as in the unsaturated zone. And Polyfluoroalkyl substances (PFAS) are observed in the upper layer of the soil and in the groundwater.

In 2016, a remediation contract got approval, and remediation efforts began.

In 2017, a consortium of companies ZÜBLIN Umwelttechnik GmbH, Geiger Umweltsanierung GmbH, Wilhelm Geiger GmbH & Co. KG und Strabag Umwelttechnik GmbH was attributed with the remediation of the main area of 50 hectares.

2.2 Geological setting

The site is located next to the river Danube and abandoned meanders. Therefore, the soil consists of former fluvial deposits, which means it is largely sandy gravel with small content of fine material, so the soil is appropriate for the treatment method of soil washing.

The groundwater table lies around 1-3m below Surface level, and is mainly governed by the level of the river danube, which is controlled by dams. Due to the soils high permeability, the natural flow velocity of the groundwater is very high and lies between 2 and 6 meters per day. Approximately 6-8m below groundwater level, a dense layer is addressed as the base of the first aquifer.

2.3 Contaminants of concern

The input material featured the following range of contaminants:

- TPH (BDL – 10,000 mg/kg)
- C5-C9 (BDL – 1,000 mg/kg)
- BTEX (BDL – 500 mg/kg)
- PFAS (BDL – 20 µg/l) with main compound PFOS

2.4 Regulatory framework

- A general remediation strategy was developed that acknowledges the sites future usage as an industrial site. An integral part of this strategy was the method of soil washing, with the potential to reuse the clean output fractions on site.
- The soil treatment plant was designed and permitted exclusively for on-site treatment of contaminated soil originating from the former refinery site in Ingolstadt.
- Treatment targets for the washing process and the output fraction is defined by the remediation plan for the former refinery site as criteria for backfill soil
- The soil washing plant plant is permitted acc. to German Legislation BImSchG “Bundes-Immissionschutzgesetz”. The permit includes all attendant facilities such as the treatment facilities for the washing fluid, the legal framework for material flow (clearance of material before and after soil washing) as well as safety precautions for the workforce on the site.

3. Pilot-scale application in field

3.1 Soil washing system

- Pilot tests were carried out in a company-owned soil washing plant in Germany, involving 100 t of contaminated soil.
- As the pilot system was able to produce soil without relevant PFAS contamination, the pilot test showed that the contaminated material is washable on a scale larger than typical laboratory tests. The main contaminant sink was the washing water; hence an elaborate treatment procedure for the washing fluid is essential.

3.2 Feasibility study

General Parameters

- Integrated remediation concept setting feasible conditions for the treated soil to be reused as backfill soil on the site
- Suitable contaminant inventory
- Average grain size distribution curve suitable for washing process
- Coarse soil characteristics simplifies the technical treatment steps for soil washing
- As the filter cake needs to be disposed of, a low clay content of the soil is economically beneficial.
- Large soil quantities requiring treatment to allow the installation of an on-site treatment facility
- Space requirements for on-site treatment fulfilled

Minimum requirements in regards of soil quality:

- Detailed preliminary investigation in regards of contaminant inventory and soil quantities
- Representative grain size distribution curves from relevant contaminated soil zones (e.g. at different depth intervals)
- Detailed description of the soil incl. e.g. content of organics, non soil fraction like debris and other waste, existence of agglomerations etc.

3.3 Water Treatment

- Granulated activated carbon
- Reactivation of used activated carbon off-site



3.4 Control parameters

The following prerequisites are essential for the pilot test:

- Representative selection of soil for the pilot test
- Setup and execution of a detailed monitoring programme

During the pilot test, the following degrees of freedom should be investigated:

- Test run at different performance levels
- Test run involving different potential treatment steps

The feasibility full scale can then be determined by means of:

- Evaluation of the treatment efficiency for an outlook on the overall project
- Design of a mass balance and mass flow, depending on necessary projected treatment steps
- Definition of feasible disposal procedures and reuse strategy for the resulting output depending on the expected material quality per output stream. Here, the expected output mass balance comes into play.

4. Full-scale application

4.1 Soil washing system

Overview

- In the period from 2018-2021, a total of 150,000t of soil mainly contaminated with PFAS and an additional of 280,000t of material with hydrocarbons have been successfully washed and reused on the site. Overall, a total of 430,000 t of contaminated material has been washed in this project.
- From the remediation areas, the excavated material is transported onto a sealed area comprising over 25,000m², and therein into an enclosed unloading area equipped with off-gas treatment. An encased conveyor belt feeds the contaminated material into the soil washing plant (Figure 2).



Figure 2: Areal view of the soil washing plant (front), sludge treatment facility (left hand side) and the reception hall (in the back).
Copyright: ARGE AUDI IN-Campus GbR.

The core-unit for soil washing

- The feeding station is located in the receiving hall to prevent emissions of dust and volatile substances. An encased conveyor belt transports the contaminated material upwards to the uppermost point of the washing tower.
- The rather coarse fraction from the first classifying screen enters a powerscrub logwasher to break up loamy bulbs.

- The material then passes several vibrating screens of different sizes, where the material is washed with the washing fluid applied with various spray bars
- The fine sands are washed and separated from the process water in the hydrocyclone.
- Washing fluid is recirculated in a closed cycle, which is both environmentally friendly and cost-saving
- Only pure water but no additives like tensides and the like are used

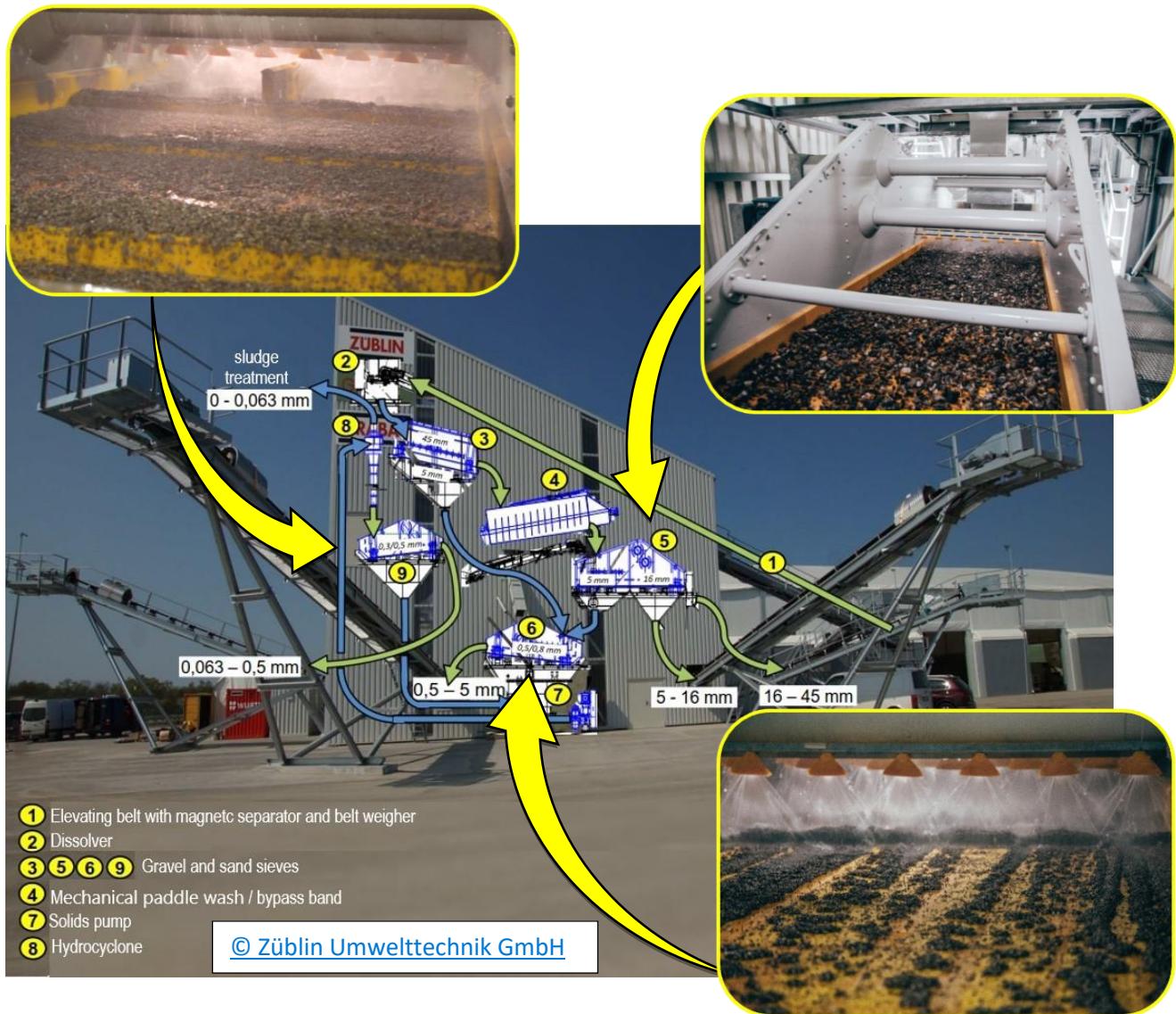


Figure 3: Treatment steps of the soil washing plant.

4.2 Feasibility study

- The plant was designed and customized for the project. As such, treatment targets were reached after the first treatment cycle.
- The single treatment steps are described in Chapter 0.1 (solid matter) and 0.3 (sludge and water).

4.3 Water Treatment



Figure 4: Areal view of the sludge treatment plant, Copyright: ARGE AUDI IN-Campus GbR.

Washing fluid is recirculated in a closed cycle

- The process water is rich with sediments and is processed in a sludge treatment plant with a capacity of 400 m³/h ([Error! Reference source not found.](#)). The slurry water originating from the hydrocyclone is homogenised and pumped to the flocculation step, after which separation is achieved by baffle plate thickeners. The separated clear water is still loaded with contaminants, so the water is transferred to large buffer basins for further treatment.
- After separation, the sludge is dewatered by a fully automated filter press ([Error! Reference source not found.](#)). The filter cake constitutes the sink for the contaminants. As the filter cake gets disposed on landfills at high costs, especially if PFAS are involved, it is economically reasonable to reduce the water content as low as possible to values below 30 %.



Figure 5: Chamber press, the small picture shows the filter cake, Copyright: ARGE AUDI IN-Campus GbR.

- After the sludge treatment, the clear water is transferred to its final treatment step, the water treatment plant ([Error! Reference source not found.](#)).



Figure 6: Water management using large basins to reduce the capacity of the water treatment plan, Copyright: ARGE AUDI IN-Campus GbR.

The water treatment units purifies approximately $140 \text{ m}^3/\text{h}$ of clear water, removing the dissolved contaminants with sand filters and activated carbon. Depending on the contaminations at hand, different types of activated carbon are employed to optimize the adsorption capacity.

A share of the washing fluid is lost by adhesion to the output soil, and needs to be replenished with fresh water (external supply).

4.4 Control parameters

A thorough monitoring programm for the output material is essential to establish the reliability in the washing process. The monitoring has to be performed by an independent external expert, who is then responsible for correctly and regularly sampling, analytics and clearance of each output batch, see Chapter 0. The target values depend on local regulatory requirements and the project-specific range of contaminants involved.

An additional analytical monitoring programm by the operator of the soil washing facility is only recommended, for the supervision and establishment of the operation parameters.

For the sludge and water treatment, the typical control parameters such samples for settling time for the quantification of the flocculation agents, fluid levels in buffer tanks or pressure drops in filter are relevant for a safe and uninterrupted operation of the treatment facilities. As these are not special to the process of soil washing, their detailed description is omitted in the report.

In this project, only purified groundwater but no washing supplements have been employed.

5. Results

5.1 Removal rate

The output soil quality after treatment was as follows:

- TPH (BDL - <100 mg/kg)
- C5-C9 (BDL – 1 mg/kg)
- BTEX (BDL – 1 mg/kg)
- PFAS (BDL – 0.1 µg/l) with main compound PFOS

In this project, no washing supplements have been employed, the target values could be achieved with proper operation conditions (high volume of washing water, appropriate flow input material).



6. Post treatment and/or Long Term Monitoring

6.1 Post treatment and/or Long Term Monitoring

- The Output of the soil washing plant was stockpiled by means of a frontloader.
- Output fractions “sand” and “gravel” were stockpiled separately
- After target pile size of 500 m³ was reached , sampling acc. to relevant regulation was performed by an independent external consultant
- Long term monitoring is not required

7. Additional information

7.1 Lesson learnt

The project was successfully completed in 2021, one finds that:

- Soil washing turned out to be a very effective technology for the given contaminant inventory
- Over the duration of several years, the treatment procedure was stable and reliable
- Low energy consumption and CO₂-footprint compared to alternative solutions (e.g. thermal desorption or off-site disposal on landfills)
- Competitive price under the given site conditions

Over the duration of plant operation, the relevant mass fluxes were monitored to prepare a contaminant mass balance, see the following figures. As the concentrations measured are not totally precise, the depicted values are not corrected in order to gain round sums, but are kept as they were as an indicator of the accurateness of the flow chart.

Owing to their physical properties, PFAS tend to the water phase and do not adhere to the solid fraction. Therefore, the main sink for PFAS-removal is the activated carbon at the end of the water treatment, see [Error! Reference source not found..](#)

Hydrocarbons in contrast remain attached to solid particles and are concentrated in the filter cake, see [Error! Reference source not found..](#)

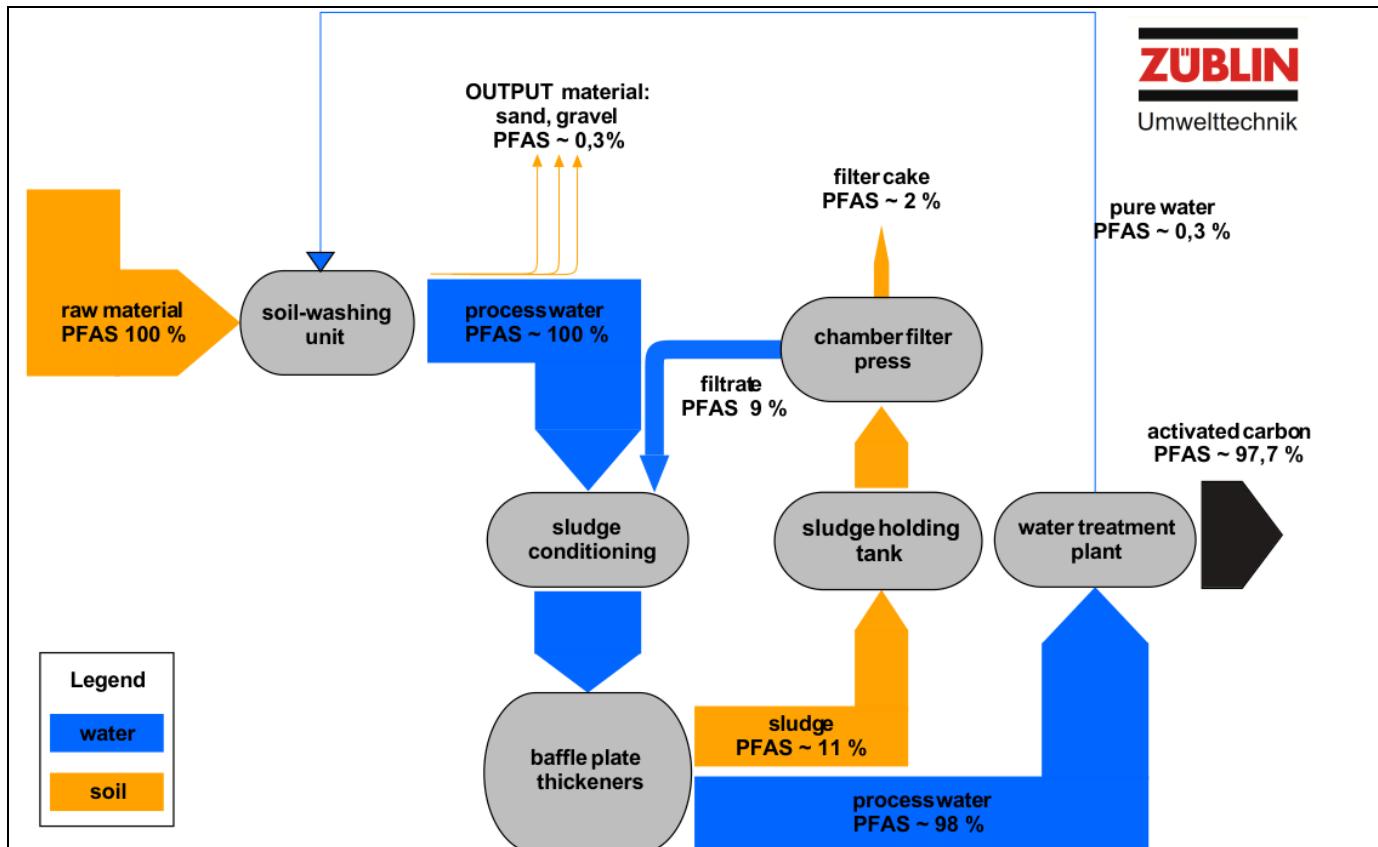


Figure 7: Contaminant sink for the removal of PFAS: water path and activated carbon.

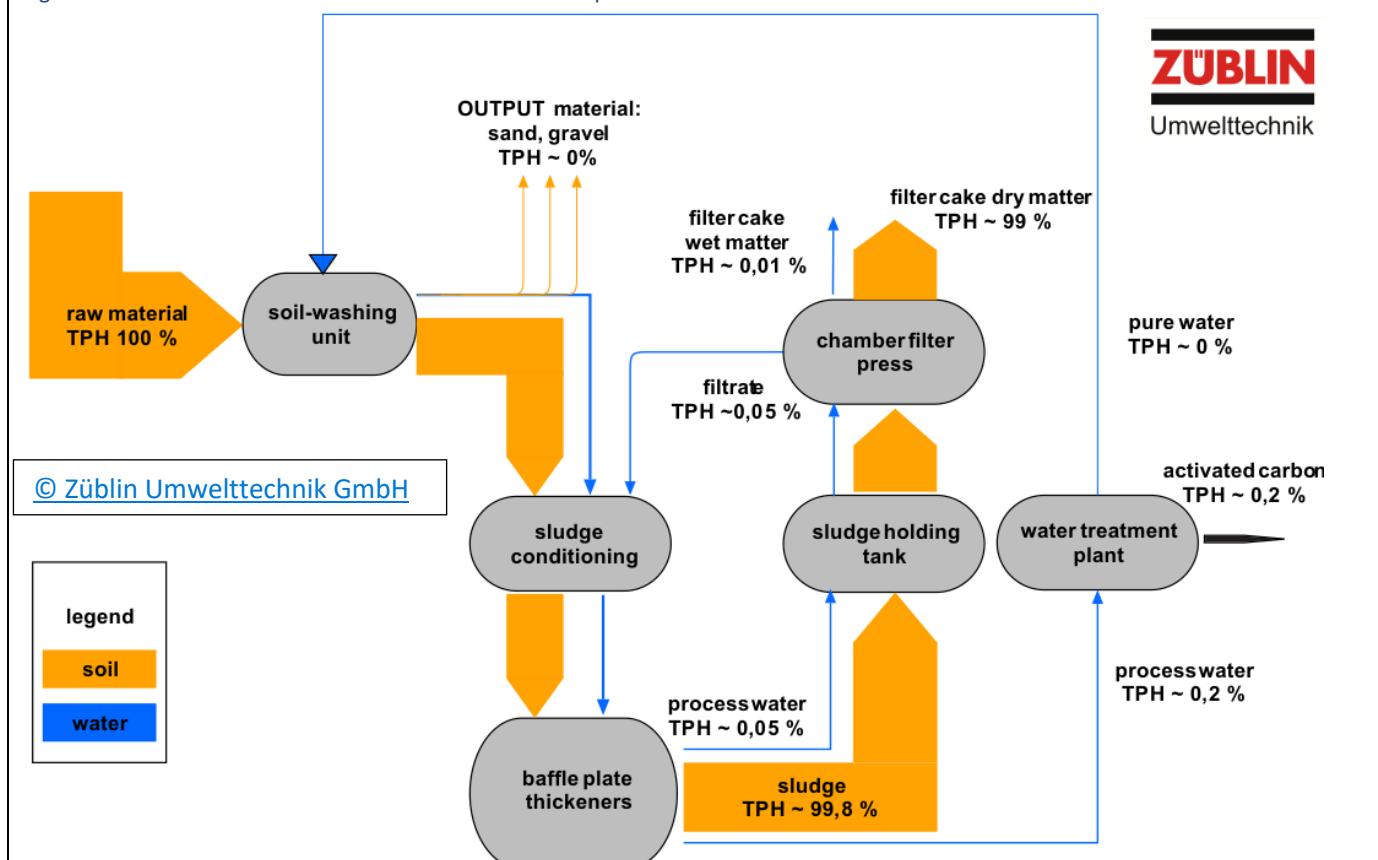


Figure 8: Contaminant sink for the removal of longchained petroleum hydrocarbons (TPH): the solid fraction of the filter cake.

7.2 Additional information

During the operation of the soil washing plant, it was used as a testing facility for many other remediation sites for washing tests under field-scale conditions. Typically, between 200-500 t of contaminated material was investigated. In all cases, even material deemed hardly washable because of certain criteria (too high content of recycling material; low percentage of coarse gravel; relatively large fine fraction; etc.) have been successfully washed. Therefore, one should refrain from defining hard criteria allotted with the soil structure for declaring a material to be washable or not. Whether soil washing is an economically feasible method may be a tough decision, which can be answered if a pilot test investigates the limits and potential of the washing procedure, see chapter 0.4. In many cases, however, a soil-washing strategy can be developed without a pilot test.

7.3 Training need

Especially with recent contaminants without long-lasting remediation experience such as PFAS, there is a tendency to doubt that soil-washing of large quantities of contaminated material can be reliably successful and economically attractive. To overcome these doubts, site visits to existing projects might be a useful instrument to acknowledge that there is a technical solution apart from disposal in landfills.

Basic requirements and site conditions of the soil washing technology is described in this report. As the success of the washing procedure depends on a variety of operation parameters, specialists should be consulted. For pilot tests or a feasibility study for a specific project, competent companies with a wide range of longterm experience should be involved in the decisionmaking. As every project provides its own unique challenges, one should be critical from generalising statements such as “soil-washing is not possible for the given material”.



Glossary of Terms

| Term (alphabetical order) | Definition |
|----------------------------------|---|
| BDL | Concentration which is below the detection limit. |
| BTEX | Benzene, toluene, ethylbenzene and xylenes |
| C5-C9 | Volatile hydrocarbons with a chainlength of five to nine. |
| CHC | Chlorinated aliphatic hydrocarbons |
| PAH | Polycyclic aromatic hydrocarbons |
| PFAS | Per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) are synthetic organofluorine chemical compounds that have multiple fluorine atoms attached to an alkyl chain. |
| TPH | Total petroleum hydrocarbons |
| VOC | Volatile organic compounds (VOCs) are organic chemicals that have a high vapor pressure at ordinary room temperature |



1. Your contact details - CASE STUDY: SW n.3

| | |
|----------------------------------|--|
| 1.1. Name and Surname* | Massimiliano Confalonieri Beatrice Melillo Paola Canepa |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Lombardy Region (Italy) |
| 1.3. Organisation | Environmental Protection Agency |
| 1.4. Position | |
| 1.5. Duties | |
| 1.6. Email address | m.confalonieri@arpalombardia.it b.melillo@arpalombardia.it p.canepa@arpalombardia.it |
| 1.7. Phone number | |

2. Site background

2.1 History of the site

The contaminated site is located in the south east of Milan (about 5.5 km from the center of the city) and it covers 641.000 m². Since 1910, in these area, there was a chemical industry (Montedison Spa) that produced fertilizers (e.g. Rogor); the industrial plant operated until the 1970s.

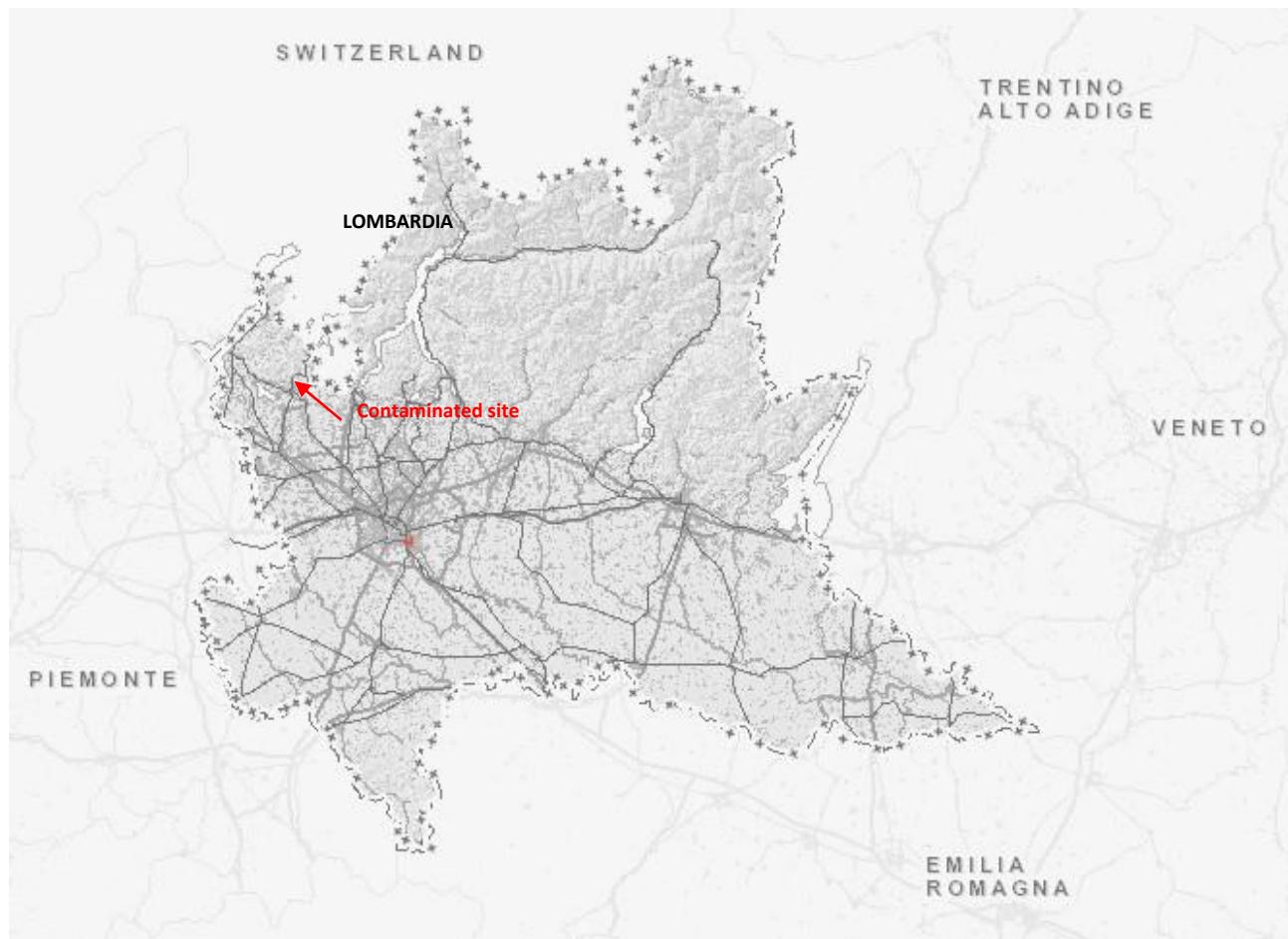


Figure 9 - Location of the contaminated site within the Lombardy region

This area (the so-called “North Area”) corresponds to a part of a large urban redevelopment project (“Montecity-Rogoredo” Integrated Intervention Program), started in 2005. The project covers an area of about 1.100.000 m²; it is aimed at requalifying a large abandoned industrial area previously occupied by the Montedison plants to the north and the Redaelli steel mills to the south. The area is located in a strategic point of the city as it is between the Milano - Rogoredo station (the station through which the high-speed railway line passes), the eastern Milan ring road and the Linate airport.



Figure 10 - Location of the contaminated site (in red) with respect to the city center and Milan Linate airport



Figure 11 - Location of the contaminated site (in red), with respect to the railway station and the eastern ring road of Milan

2.2 Geological setting

The area is characterized by a “backfill” layer (a mixed layer of variable grain size soil and anthropic materials, e.g. fragments of brick and firebrick, concrete, fewer slag) located above natural terrain consisting of gravels and sands. The thickness of the “backfill” layer varies from some tens of centimeters to a few meters.

The depth to ground water is between 4,5 e 8,5 meters below ground surface.

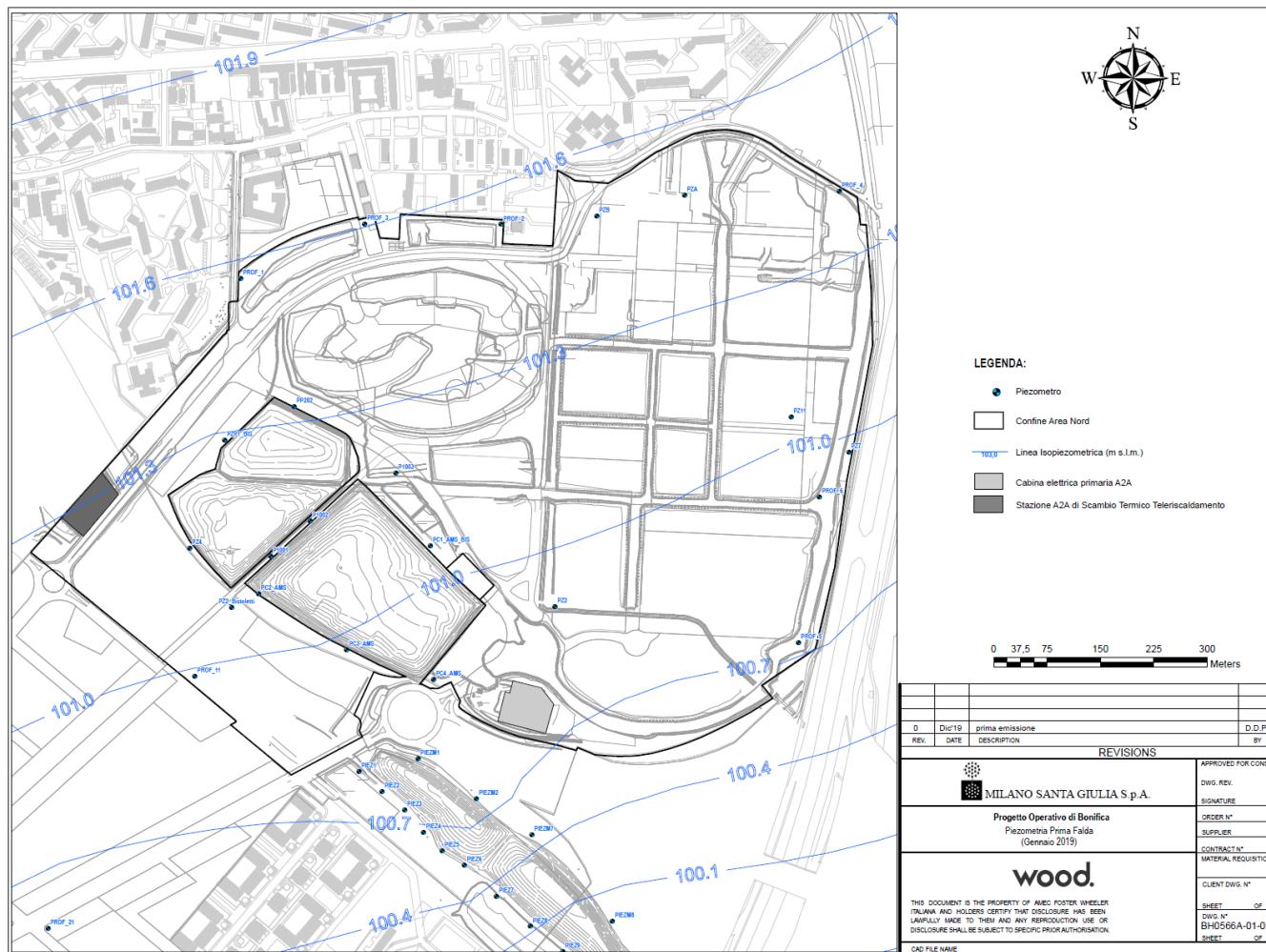
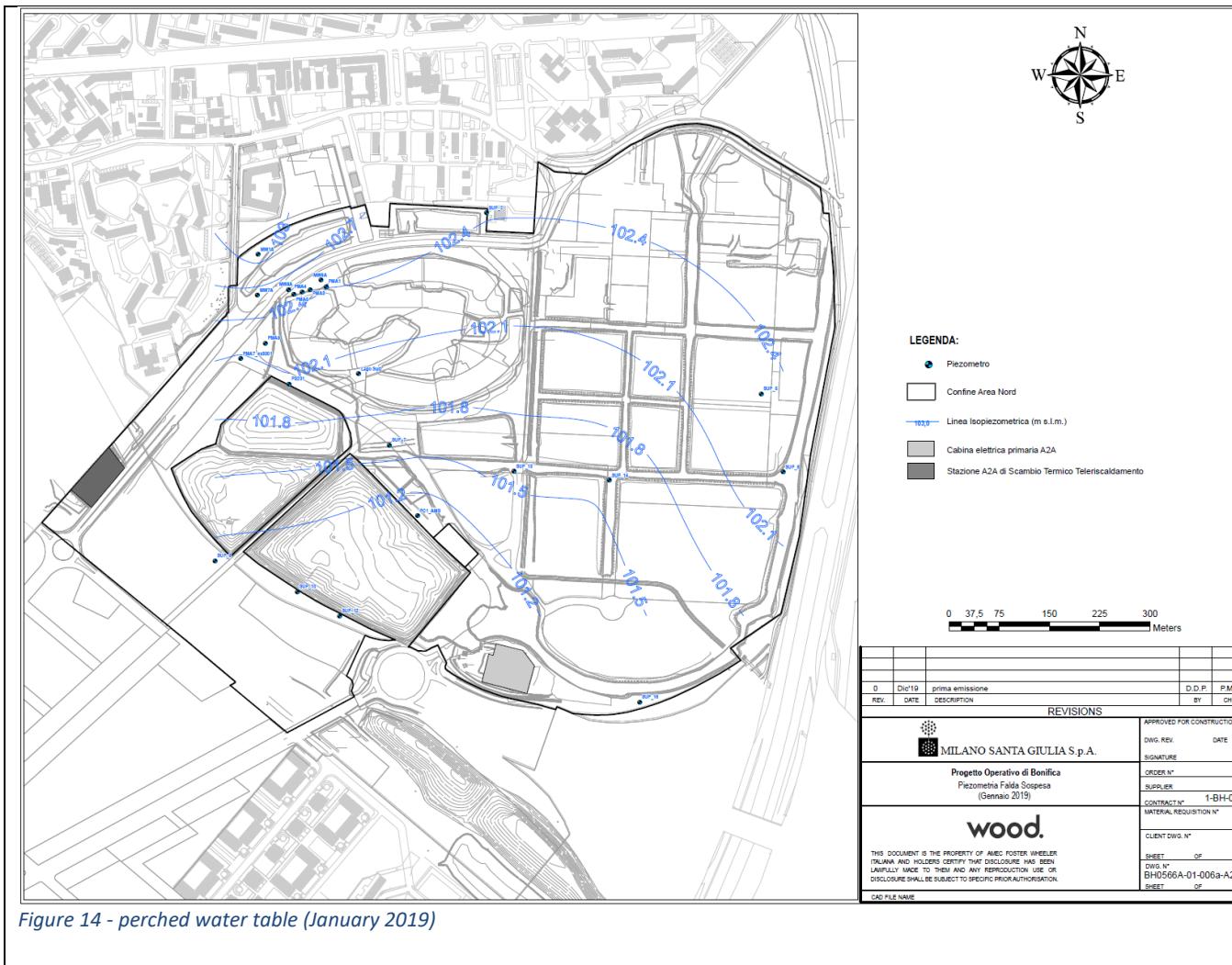


Figure 12 – Water table (January 2019)

Locally, at an average depth of 6 m from the ground level, there is a layer of sandy-clayey silt; the maximum observed thickness of the clay lens is 2,6 meters. A perched water table is located above this clay lens.



Figure 13 - Location and thickness of the silt lens



2.3 Contaminants of concern

Backfill material and soil:

- Metals (mainly Zinc, spread throughout the area, and secondly As, Cd, Cr tot, Pb, Cu e Hg)
- BTEX
- PAH (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons), PCBs.
- Chlorinated Solvents and Chlorobenzenes (mainly Hexachlorobenzene)
- Pesticides (mainly DDT, DDD and DDE)
- Light Hydrocarbons ($C < 12$) and Heavy Hydrocarbons ($C > 12$)

Most of the samples that exceed the legal limit concentration, for one or more parameters, are backfill material samples.

Groundwater: Organic halogen compounds, Metals and Pesticides.

2.4 Regulatory framework

The contaminated site covers 641.000 m²; about 65% of this area (about 408.000 m²) is intended for residential use and about 35% (about 233.000 m²) is intended for commercial use. According to the intended use of the area, the concentration of contaminants was compared with the legal limits referred to in Legislative Decree 152/06 and subsequent amendments, part IV, title V, annex 5, table 1 - Column A or B; the comparison shows that most of the samples that exceed the legal limit concentration, for one or more parameters, are backfill material samples.



Figure 15 – Intended use of the site: residential (in green) or commercial use (in yellow)

The remediation objectives for the this site were calculated with the Risk Analysis; for some Metals (Cd, Pb, Cu and Zn) the maximum concentration detected on site (Cmax) was taken as the remediation objective. The remediation target for the excavated material (soil and fill materials) that will be reused on site is the legal limits referred to in Legislative Decree 152/06 and subsequent amendments, part IV, title V, annex 5, table 1 - Column A or B, according to the intended use.

3. Pilot-scale application in field

3.1 Soil washing system

The pilot test was conducted on about 310 m³ of material and involved two phases:

1. Soil screening (on-site) with a mobile soil screener: the soil was separated in pebbles ($\varnothing > 50$ mm), coarse and medium gravel ($8 \text{ mm} < \varnothing < 50 \text{ mm}$) and finer fractions of soil ($\varnothing < 8 \text{ mm}$, that is fine gravel, sand, silt and clay). Each particle size fraction was weighed to define the particle size distribution. An average sample of each particle size fraction was subjected to chemical analysis to evaluate its qualitative status. The fine materials ($\varnothing < 8 \text{ mm}$, about 53% of the excavated material) have been sent to a suitable authorized disposal or recovery plant.

| IN | OUT | | | | | | |
|--------|----------------------------|-----------|-------------|---|---|-------------------------------|----------------------------------|
| | Ingresso (% dello scavato) | % in peso | N° campioni | % Eluato conforme (Tab. 2 D.Lgs. 152/06 Acque) | % Tal quale conforme (d.u. Commerciale) | Destino | % Riutilizzo del Terreno Scavato |
| | | | | | | | Residenziale |
| <8mm | 100% | 53% | 9 | 0% | 11% | Smaltimento/ Recupero Offsite | 0% |
| 8-50mm | | 40% | 9 | 0% | N.A. | Smaltimento/ Recupero Offsite | 0% |
| >50mm | | 7% | 9 | 78% | N.A. | Riutilizzo Onsite | 5% |
| | | | | | | | 5% |

Figure 16 - Quality of the excavated material after on site screening

2. Crushing and washing (off site) at an authorized Soil Washing plant: only the coarser fractions of soil ($\varnothing > 8 \text{ mm}$, 47% of the excavated material ~ 210.320 tons) were washed (material treatment flow: about 20 t/h). Only water was used for washing.

The plant that was used for the pilot test consists of a jaw crusher, a star screener equipped with an iron remover, an aggregate scrubber, a horizontal wet vibrating screener, n. 2 hydrocyclones, a vibrating dryer and a water treatment system.

In the following table, particle size distribution of the washed material (210.320 tons of material) is indicated:

| FRAZIONE OUT SW | Peso materiale lavato (tonn) | Ripartizione % materiale sul totale entrante |
|------------------|------------------------------|--|
| > 2/3mm | 145.340 | 69,10% |
| 0,06-2/3 mm | 41.340 | 19,66% |
| Fango (<0,06 mm) | 23.640 (*) | 11,24% |



The fine material (0,06 -2/3 mm) resulting from the washing treatment derives from the primary crushing and removal of the particulate adhering to the coarse material.

| IN | OUT | | | | | | % Riutilizzo del Terreno Scavato | |
|-----------|---|----------------|--|--|---------|--------------------------------|----------------------------------|-----|
| | % in peso Ingresso (% dello scavato) | N° campioni | % Eluato conforme (Tab. 2 D.Lgs. 152/06 Acque) | % Tal quale conforme (d.u. Commerciale) | Destino | | | |
| | | | | | | Residenziale | Commerciale | |
| fango | 47% | 11% | 3 | 0% | N.A. | Smaltimento/ Recupero Off/site | 0% | 0% |
| 0.063-3mm | | 20% | 5 | 80% | 100% | Riutilizzo Onsite | 0% | 8% |
| 3-50mm | | 69% | 6 | 100% | N.A. | Riutilizzo Onsite | 30% | 30% |

Crushing and washing of the coarser ($\varnothing > 8$ mm) fractions of soil (about 47% of the total excavated material) produced little sludge to dispose of (about 11%) and washed materials (about 89%); 20% of these materials are made up of sand and 69% of gravel. The washed material was subjected to chemical analyses to assess its compliance with legal limits: 38% of the excavated material is suitable for reuse in commercial areas and 30% in residential area.

3.2 Feasibility study

Based on the experience of Amec Foster Wheeler Italiana srl, Soil Washing does not give satisfactory results if it is applied to soils with a percentage of fine materials ($\varnothing < 0,06$ mm) greater than 20%. Generally speaking, the higher the percentage of sand and coarse material, the more effective the washing process will be.

3.3 Water Treatment

The soil washing tests were performed in an authorized plant outside the contaminated site, therefore the wastewater treatment plant is not described in the remediation plan.

3.4 Control parameters

To assess the removal efficiency, the contaminants of concern are measured at the output of any washing cycle.

4. Full-scale application

4.1 Soil washing system

The soil washing facility was started up in early March 2022; the information below comes from the remediation project of the area and describes the plant as planned and not after its construction.

The soil washing facility includes:

- **Pre – Screening:** large materials ($\varnothing > 50$ mm), such as construction debris, pieces of rock, pebbles, are removed by a vibrating screen equipped with an iron remover. These materials are generally not contaminated and so on they are sent to the crushing section to recovery on site;
- **Aggregate scrubbing:** the material is loaded at the lower end of an inclined tank and it is transported to the upper end by two rotating shafts, equipped with blades to facilitate the disintegration of it. Silt and clay are removed by the water added to the top of the tank. Impurities and light substances flow out with the water at the lower end of the tank. The pH of the water can be modified to facilitate the solubilization of inorganic compounds, mainly metals;
- **Screening:** the coarse material (2 mm $<\varnothing <50$ mm) passes from the top of the scrubber onto a vibrating screener which separates the residual fine material. The coarse material is then further washed to remove the last fine fractions ($\varnothing <2$ mm, sand, silt, clay) and it accumulates at the base of the vibrating screener;
- **Sand recovery:** the water containing the fine material is collected in a tank downstream of the vibrating screener, then it is pumped into a hydrocyclone. In the hydrocyclone, the centrifugal force separates the water with silt and clay from the sand; the water with silt and clay flow upwards of the hydrocyclone while the sand comes out from the bottom of it. The wet sand passes through a dispenser that corrects the density of the mixture (60% - 80% of solids) and enters the attrition cells. These cells, thanks to the mixing blades, remove the clay particles and any contaminants on the sand particles. The sands coming from the attrition cells is dried with a vibro dryer. The dry sand mixed with the treated coarse material is transported to the storage platforms.

The Soil Washing plant can process about 200 t/h of material. Actually, the washing is carried out only with water; if the removal of inorganic compounds from the treated material will not be efficient, pH conditioners will be added (strong acids and bases, typically HCl and NaOH).

4.2 Feasibility study

The concentration of contaminants in the material to be treated is just above the legal limit, therefore it is assumed that a single wash is sufficient to obtain a material that complies with the legal limits. After the first washing cycle, the treated material will be subjected to a chemical analysis; if it still does not comply with the legal limits, a second washing cycle will be performed.

4.3 Water Treatment

The soil washing facility was started up in early March 2022; the information below comes from the remediation project of the area and describes the water treatment plant as planned and not after its construction.

About 350-400 m³/h of water to be treated will derive from the Soil Washing plant.

The water treatment plant includes:

- **sedimentation tanks:** the sludge is concentrated, i.e. the silt and clay fall to the bottom of the tank thanks to the addition of a flocculant. The resulting sludge is transferred to a homogenization silo, while the clarified water is returned to the soil washing plant;
- **sludge homogenization silos:** in the silos the sludge is constantly mixed to avoid sedimentation and to maintain the density suitable for the subsequent treatment in the filter press. Milk of lime can be added to improve sludge drainage capacity;
- **filter press:** the filter presses further reduce the water content in the homogenized sludge, which is now ready to be sent to the Stabilization / Solidification plant;
- **chemical-physical treatment of water:** the water from the filter presses (about 15-20 m³/h) is transferred to a treatment plant where any dissolved contamination is eliminated by adding additives; the treated water can be used again in the Soil Washing process.

4.4 Control parameters

To assess the removal efficiency, the contaminants of concern are measured at the output of any washing cycle.



1. Contact details - CASE STUDY: SW n.4

| | |
|----------------------------------|---|
| 1.1. Name and Surname | Prof. Dr. Domen Lestan |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Slovenia |
| 1.3. Organisation | Envit Ltd. |
| 1.4. Position | Assistant assistant manager & CTO of Envit Ltd. |
| 1.5. Duties | Full professor at Biotechnical Faculty, University of Ljubljana |
| 1.6. Email address | info@envit.si domen.lestan@bf.uni-lj.si |
| 1.7. Phone number | <u>+386 59 924 819</u> |

2. Site background

2.1 History of the site

In the Meza valley in Slovenia, lead - zinc ore has been exploited and processed for more than 300 years. At the end of the 20th century, the Meža River was considered a stream with the highest concentrations of heavy metals in Slovenia. When the mine and processing plants ceased to operate, the direct transfer of heavy metals into the environment has strongly decreased. However, the deposits of poor ore and wastes from ore processing have remained as an indirect source of heavy metal pollution. From those places heavy metals have been washed out into the nearby streams, and carried into the Meža River (Fux, J., & Gosar, M. (2007). Lead and other heavy metals in stream sediments in the area of Meža valley. *Geologija*, 50(2), 347–360.

<https://doi.org/10.5474/geologija.2007.025>.



Figure 1: Depicted area of demonstration site 35 x 35 m in Meza Valley, Slovenia.

2.2 Geological setting



Figure 2: Pasture soil from the upper 30 cm soil layer. Soil was calcareous, contaminated with Pb, Zn and Cd by floods of Meza River.

| | |
|--|--------------|
| pH (CaCl_2) | 7.28 |
| Org. matter (%) | 5.3 |
| C/N | 10.7 |
| P_2O_5 (mg 100 g^{-1}) | 7.5 |
| K_2O (mg 100 g^{-1}) | 4.8 |
| CaCO_3 (%) | 21 |
| Sand (%) | 59.2 |
| Silt (%) | 32.3 |
| Clay (%) | 8.5 |
| CEC($\text{mmol}_c/100g$) | 18.48 |

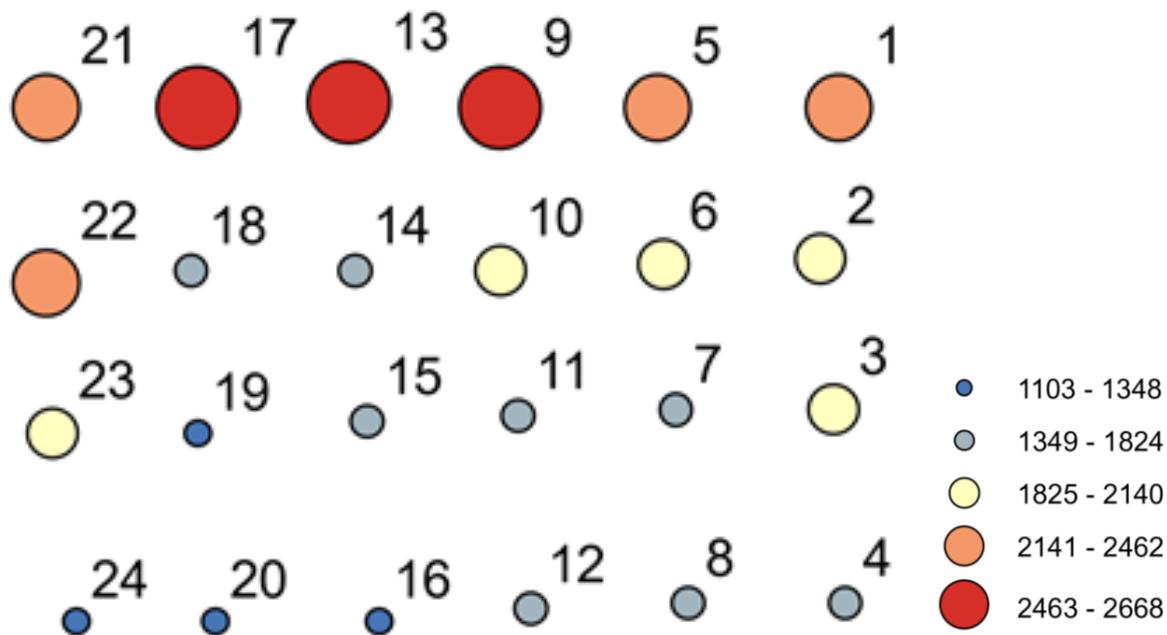
Figure 3: Standard pedological properties of soil.

2.3 Contaminants of concern

Pseudo total concentrations of contaminated soils with Pb, Zn (upper 30 cm layer), flooded by Meza River.

1. Pb 1734 ± 78
2. Zn 3313 ± 178
3. Cd 24 ± 1

In situ investigations using a portable X-ray fluorescence spectrophotometer (XRF, see below [Figure 4](#)) showed a strong concentration gradient of Pb contamination from the riverbank.



[Figure 4](#): Average soil Pb concentration (0-30 cm, mg kg^{-1}) in site 35m x 35m.

2.4 Regulatory framework

In decree on limit values, alert thresholds and critical levels of dangerous substances into the soil (Uradni list RS, št. [68/96](#) in [41/04](#) – ZVO-1) from Slovenia, this soil are contaminated because concentration of all three toxic elements (Pb, Zn and Cd) are exceeding legislation value for non-contaminated soil ($\text{Pb} > 100$, $\text{Zn} \geq 300$ and $\text{Cd} \geq 2 \text{ mg kg}^{-1}$). Plants that are grown on that soil are also exceeding legislation value which are set by COMMISSION REGULATION (EC) No 1881/2006 Setting maximum levels for certain contaminants in foodstuffs.

3. Pilot-scale application in field

3.1 Soil washing system

Washing solution is made by 100 mM EDTA (65% of calcium form, 20% of acid form, 15 % of sodium form). Soil/water ratio is 1:1. Soil are after filtration in filter press 3 times rinsed with recycled solution from previous batch and at the end with fresh water Fresh water was added to the system to compensate for the losses of process water: due to the moisture difference between the soil entering and leaving the process, water lost with the wet solid wastes, and the hydration of the quicklime (*Figure 5*).

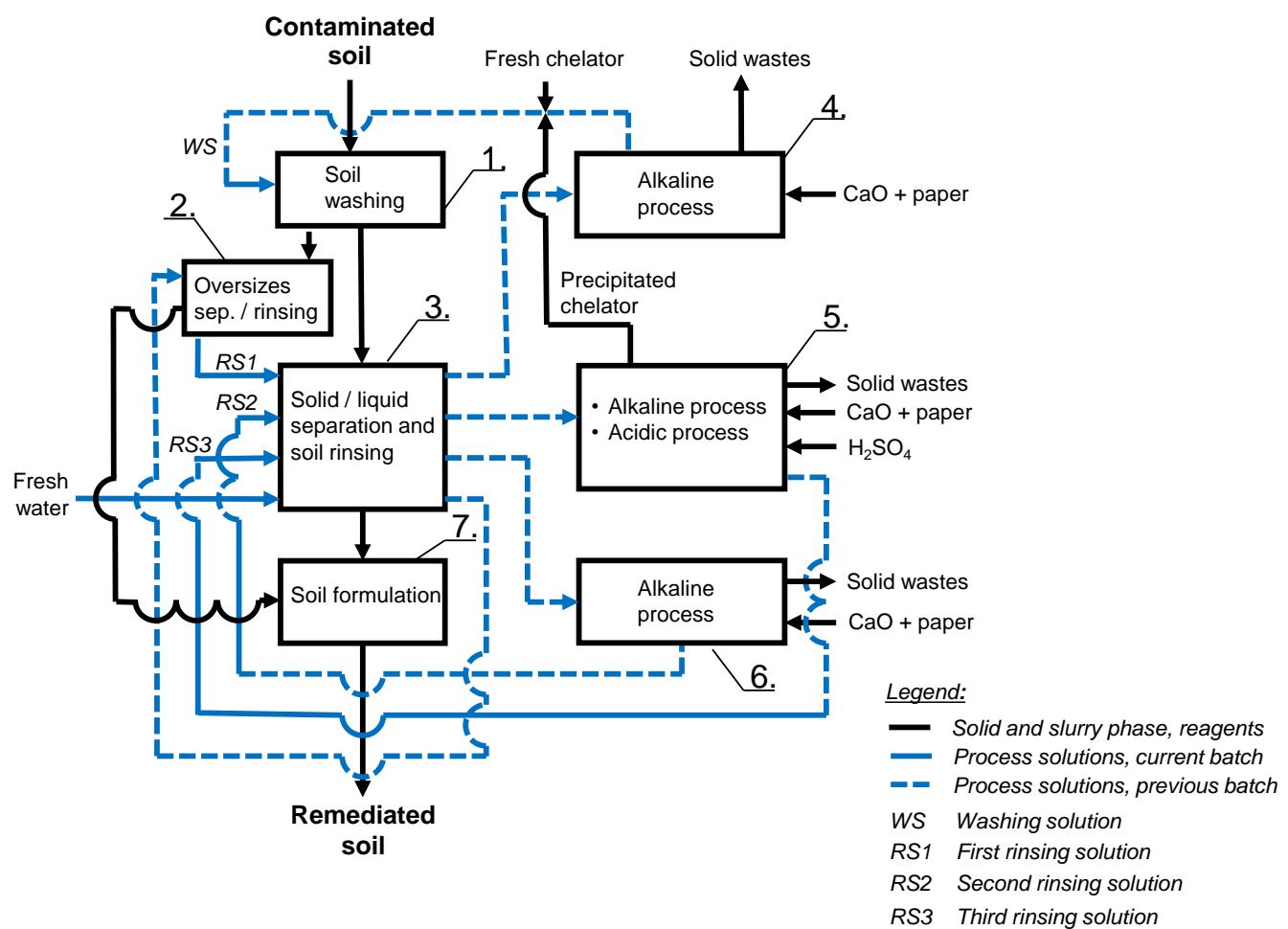


Figure 5: The flowchart of ReSoil® soil remediation process with material mass flows per batch.

The used RS1 (uRS1) from the previous batch is not treated; it issued directly as RS1 in the current batch. The used WS (uWS), used RS2 (uRS2), and used RS3 (uRS3) are treated by alkalinization with quicklime (CaO, pH > 12, 30 min) to remove toxic metals and recycle the chelator in the form of Ca salt (steps 4, 5, 6). The uWS, uRS3 and uRS2 are treated with waste paper for alkaline adsorption of toxic metals. The waste paper is applied into the

uRS2 in step 6 and separated from the solution (RS2) by a filter press after 10 min of adsorption reaction. The paper from step 6 is reused in the same way, first in step 5 and then in step 4. Solid waste: hydrated lime from step 4, 5, 6 and the final paper enriched with toxic metals from step 4 is removed from the process solutions by filtration and disposed of safely. The uRS1 is acidified to pH 2 in step 5 by adding 96% H₂SO₄ to precipitate and recover (120 min reaction time) the remaining chelator in acidic form by filter press. The recycled WS is then prepared by adding acidic and fresh chelator to compensate for the loss of chelator in the process: the chelator is removed with the waste and bound to ZVI in the soil solid phase.

ReSoil® is designed as a close loop process (circular economy), everything is designed to have no negative impact on the environment, everything is emission free (no leakage, no gaseous emissions, only solid waste). ReSoil® enables dual action: removal of heavy metals by EDTA and auxiliary extractants & immobilization of residual pollutants by zero-valent Fe (ZVI) and auxiliary adsorbents.

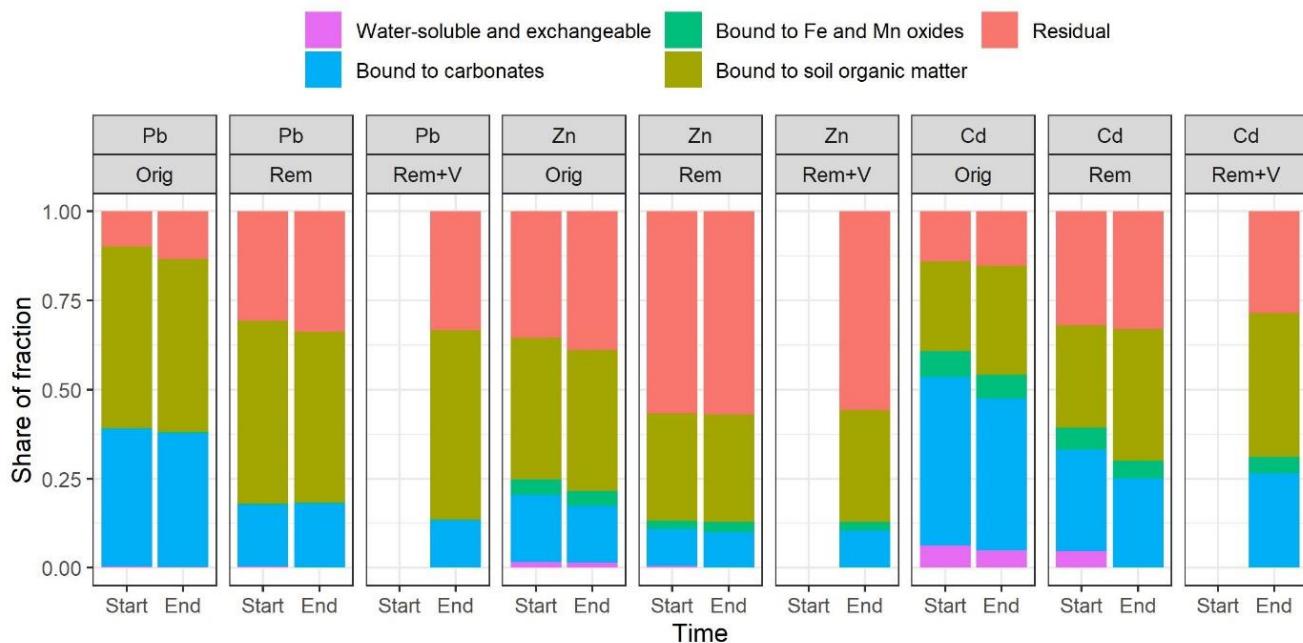


Figure 6: Scheme of ReSoil® system.

3.2 Feasibility study

Fraction share of toxic elements are presented in [Figure 7](#).

Pb is mainly bound to carbonates and organic matter fraction, Zn is mainly bound to residual and organic matter fraction, Cd is mainly bound to carbonates and organic matter fraction. Soil washing was able to remove toxic metals from more labile fraction. Toxic metals which are strong bound to soil particels are not mobile and therefore do not pose a treat for environment and human. With remediation we where able to reduced Pb, Zn and Cd for 68%, 28% and 50%.



[Figure 7](#): Share of heavy metal fractionation.

The important parameter is difference between stability of EDTA-toxic metals complex and stability of chemicals form of toxic metals present in soil. The toxic metals which could not be removed by ReSoil® process are biological and chemical unattainable. Most of toxic metals after remediation is present in soil as soil minerals, which are inert and non-toxic.

Important parameter is also soil functionality and purpose to use soil as plant substrat after remediation:

Common biological indicators of soil quality ([Figure 8](#)) were used to assess soil functioning. Most of microbialactivity in soil was similar then in original or recovered in 1 year of gardening. The results of our experiments clearly show that functional arbuscular mycorrhiza can be established without inoculations in remediated soils under environmental conditions. Soil washing has minor effect on standrad soil pedological properties ([Figure 8](#)).

| <i>Calcareous soil</i> | | |
|---|-----------------|-------------------|
| | <i>Original</i> | <i>Remediated</i> |
| <i>pH (CaCl₂)</i> | 7.28 | 7.67 |
| <i>Org. matter (%)</i> | 5.3 | 5.6 |
| <i>C/N</i> | 10.7 | 11.9 |
| <i>P₂O₅ (mg 100 g⁻¹)</i> | 7.5 | 11.1 |
| <i>K₂O (mg 100 g⁻¹)</i> | 4.8 | 6.3 |
| <i>CaCO₃ (%)</i> | 21 | 19 |
| <i>Sand (%)</i> | 59.2 | 37.2 |
| <i>Silt (%)</i> | 32.3 | 51.9 |
| <i>Clay (%)</i> | 8.5 | 10.9 |
| <i>CEC(mmol_c/100g)</i> | 18.48 | 18.23 |

Figure 8: Standard pedological analysis of soil.

3.3 Water Treatment

ReSoil® soil washing process does not produce waste water. All solution which are used are recycled in a closed process loop.

3.4 Control parameters

Field monitoring and sampling program that will adequately monitor the effectiveness of the treatment in three dimensions.

- Leaching of EDTA and metal complex from remediated soil.
- Checking soil rinsing efficiency in large filter press.

4. Full-scale application

4.1 Soil washing system

In ReSoil® (*Figure 9*) the soil is excavated and grid sieved to remove oversize material.

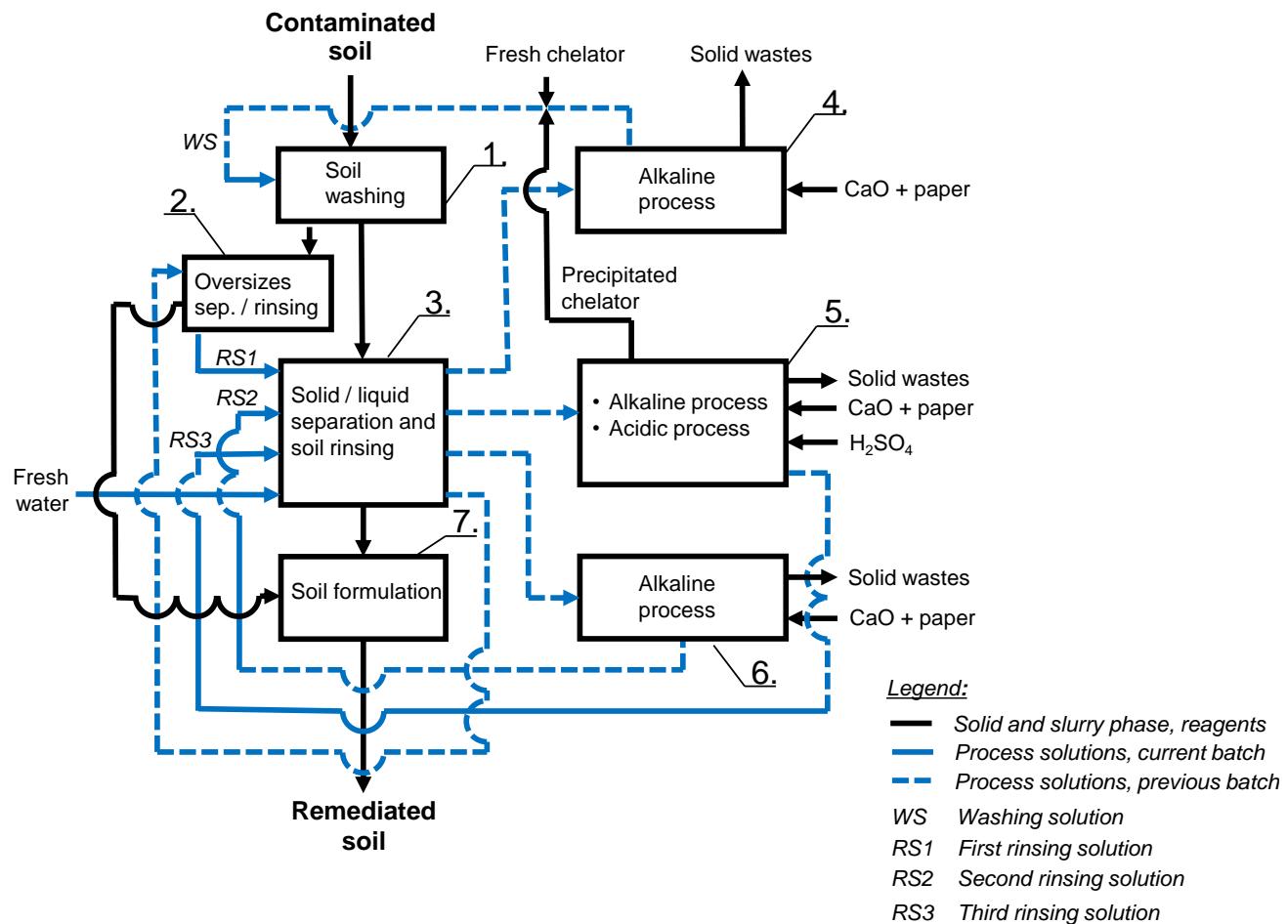
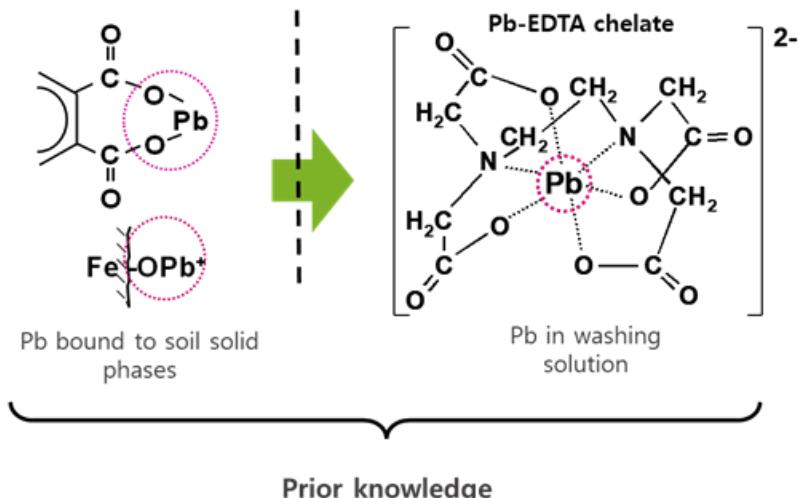


Figure 9: The flowchart of ReSoil® soil remediation process with material mass flows per batch.

Soil is washed in mixer to remove Pb and other toxic metals (Zn, Cd). Washing solution contain ethylenediamine tetraacetate (EDTA), as washing agent. The mechanisms of contaminants removal are explained bellow (*Figure 10*).

ReSoil® technology – Pb example

EDTA-based soil-washing efficiently remove Pb and other heavy metals from soil:



- More than 20-years of research by many groups worldwide.
- No feasible technological solutions for EDTA recycling, for problems with vast amounts of waste waters, for EDTA environmental persistence and toxic emissions.



Figure 10: Example of successful Pb removal with ReSoil® technology.

In a downstream process, the washed soil will be rinsed in a filter press with three consecutive rinsing solutions recycled from the previous batch and with fresh water to compensate for water losses (Figure 2).

Washing solution is made by EDTA (65% of calcium form, 20% of acid form, 15 % of sodium form). Soil/water ratio is 1:1. Soil are after filtration in filter press 3 times rinsed with recycled solution from previous batch and at the end with fresh water. Fresh water was added to the system to compensate for the losses of process water (**Figure 12**): due to the moisture difference between the soil entering and leaving the process, water lost with the wet solid wastes, and the hydration of the quicklime.



Figure 12: Stationary ReSoil® facility with capacity of 6 t/day constructed under [LIFE+ programme](#).

The flowchart of ReSoil® soil remediation process did not change between pilot and full-scale application. The used RS1 (uRS1) from the previous batch is not treated; it issued directly as RS1 in the current batch. The used WS (uWS), used RS2 (uRS2), and used RS3 (uRS3) are treated by alkalinization with quicklime (CaO , $\text{pH} > 12$, 30 min) to remove toxic metals and recycle the chelator in the form of Ca salt (steps 4, 5, 6). The uWS, uRS3 and uRS2 are treated with waste paper for alkaline adsorption of toxic metals. The waste paper is applied into the uRS2 in step 6 and separated from the solution (RS2) by a filter press after 10 min of adsorption reaction. The paper from step 6 is reused in the same way, first in step 5 and then in step 4. Solid waste: hydrated lime from step 4, 5, 6 and the final paper enriched with toxic metals from step 4 is removed from the process solutions by filtration and disposed of safely. The uRS1 is acidified to pH 2 in step 5 by adding 96% H_2SO_4 to precipitate and recover (120 min reaction time) the remaining chelator in acidic form by filter press. The recycled WS is then prepared by adding acidic and fresh chelator to compensate for the loss of chelator in the process: the chelator is



removed with the waste and bound to ZVI in the soil solid phase.

Process is made in closed cycle loop (described above). In demonstrational plant (**Figure 10**) we are able remediated 1 ton of soil per day, with possibility to work 6 ton per day.

4.2 Feasibility study

The feasibility of ReSoil® novel soil remediation technology can be made in small scale. Only 1kg of soil is needed to make pre-treatment experiment to check efficiency of EDTA (concnetration selection of EDTA).

4.3 Water Treatment

ReSoil® soil washing process does not produce waste water. All solution which are used are recyled in a closed process loop.

4.4 Control parameters

To assess the removal efficiency, the contaminants of concern are measured at the output of any washing cycle. Remediated soil water extraction test is used for assessing soil leaching suitability, by mesuring toxic metals and EDTA concentration in extracts.

5. Results

5.1 Removal rate

The average concentrations of toxic metals were 1854.0 ± 69.4 mg/kg Pb, 3833.2 ± 77.8 mg/kg Zn and 21.2 ± 0.7 mg/kg Cd in the original soil and 545.1 ± 9.6 mg/kg Pb, 2743.4 ± 69.4 mg/kg Zn and 9.9 ± 0.2 mg/kg Cd in the remediated soil. On average, remediation reduced the concentration of Pb, Zn and Cd by 71, 28 and 54%, respectively. Zn removal was characterized by lower extractability, likely due to the predominant Zn association with non-labile soil fractions.

Most of the Pb in original soil was in carbonate, organic, and residual fractions. Washing with EDTA removed on average 86% of Pb from the carbonate fraction and 69% of Pb from the organic fraction. For this reason, the share of Pb in the residual fraction increased, although the total Pb concentration in the residual fraction decreased slightly. EDTA was apparently able to extract a small amount of Pb from the solid matrix of soil minerals as well. Up to 40% of the Zn in original soil was present in the residual fraction. This high proportion of highly non-labile Zn explains the low extractability with EDTA. Nevertheless, EDTA efficiently reduced the water-soluble and exchangeable fraction of Zn by 75%. Zn was also removed from the carbonate, oxide and organic soil fractions by 60%, 59% and 44%, respectively.

Most of Cd was present in the carbonate and organic soil fraction. However, compared to Pb and Zn, Cd was more evenly distributed among the fractions. Similar to Pb and Zn, remediation efficiently removed 67% of Cd from the water-soluble and exchangeable fractions. In addition, 70%, 59% and 44% of the Cd was removed from the carbonate, oxide and organic fractions, respectively.

Overall, the sequential extraction results suggest that most of the toxic metals remaining in the soil after ReSoil® were allocated in no labile soil fractions, making them less accessible and hazardous.

6. Post treatment and/or Long Term Monitoring

6.1 Post treatment and/or Long Term Monitoring

We conducted raised (demonstrational) bed experiments (*Figure 13*). Demonstrational beds filled with homogenised remediated soil are constructed as lysimeters with drainage system for collection / sampling of soil leachates. The purpose of lysimeter beds was to demonstrate through monitoring that ReSoil® process does not produce toxic emissions / leachates e.g. prevents emissions into environment. Fast growing, all season plant species e.g. buckwheat were used. Lysimeters are installed in beds for easy to sample leachate collection: toxic metals and EDTA in leachates were measured.

We monitored different parameters as:

- leaching of toxic metals and EDTA
- soil physical properties
- soil biological properties (microbial activity and mycorrhizae)
- plant growth and toxic metal accumulation



Figure 13: Vegetable garden with remediated soil as a concept of post treatment and/or longterm monitoring.
The growth of leek, lettuce and carrots is depicted.



7. Additional information

7.1 Lesson learnt

1) methodology and procedures

Procedure was very effective, there was no problems with recycling solutions. Selected equipment in ReSoil demonstration on large scale worked well. There is some room for improvement of reduction dangerous waste after solutions recycling.

2) technical aspects

Because of strong concentration gradient it is important to good mixed soil before treatment to get consistent performance of remediation process.

3) legislative, organizational aspects

Legislative is only made for whole toxic metals concentration in soil. However, after ReSoil® remediation soil with toxic metals concentration above legislative limits are safe because all potential mobile fraction of toxic metals were removed. From organizational aspect we can say that it is very important to use right dissemination of the procedures when presenting innovative remediation technology to the lay public. If local people are scared of your process (soil washing with EDTA) it is hard to work and cooperate in that environment.

7.2 Additional information

Toxic metal fractionation, more mobile fraction better success of remediation.

Glossary of Terms

| Term (alphabetical order) | Definition |
|---------------------------|------------------------------|
| ZVI (Fe^0) | Zero valent iron |
| EDTA | ethylenediamine tetraacetate |
| H_2SO_4 | Sulfuric acid |
| CaO | Quick lime |
| | |
| | |
| | |



1. Your contact details - CASE STUDY: SW n.5

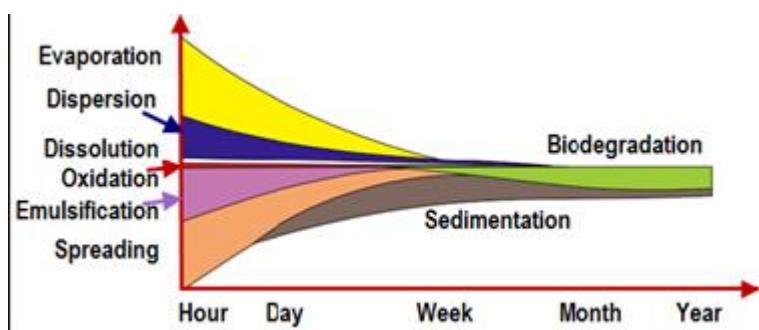
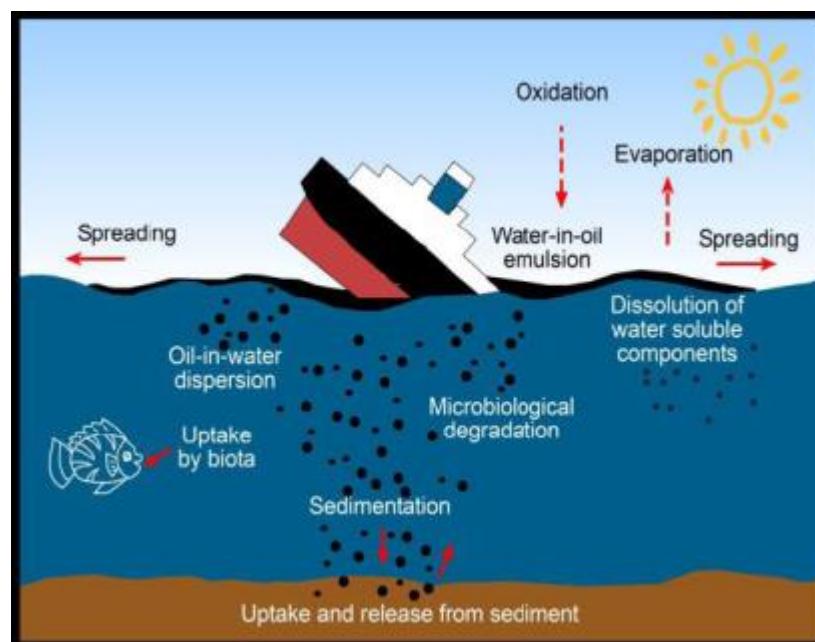
| | |
|----------------------------------|---|
| 1.1. Name and Surname* | Alessia Arelli |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Italy |
| 1.3. Organisation | DICAM, University of Bologna - Italy |
| 1.4. Position | Official - Soil Protection Department - Geological Survey of Italy - ISPRA - Italian National Institute for Environmental Protection and Research |
| 1.5. Duties | PhD student (2013 – 2015) – DICAM, University of Bologna - Italy |
| 1.6. Email address | Alessia.arelli@isprambiente.it |
| 1.7. Phone number | 0039-3406262512 |

2. Site background

2.1 History of the site

- **Oil spills**

Hydrocarbons contamination of coastal environments due to accidental oil spills and activities related to the petrochemical industry is of high concern. Ocean contamination is due by several sources including the river releases, natural resource exploitation over the oil spills pollution by ships and oil tankers [1]. Was estimated that every year nearly 4 million tons of oil are globally spilled in the sea [2] determining a strong impact on the coastal environment.



[1] Fingas M (2011) Introduction to Oil Chemistry and Properties. In: Fingas M (ed) Oil Spill Science and Technology, DOI:10.1016/B978-1-85617-943-0.10003-6

[2] Cohen MA (2013) Water Pollution from Oil Spills. In: Encyclopedia of Energy, Natural Resource and Environmental Economics, DOI:10.1016/B978-0-12-375067-9.00094-2

2.2 Geological setting

- **Beach sand contamination**

A beach sand collected from the shore near Ravenna (northern Italy) was used. From the screening of the sands (<2mm) the matrix was classified as sand, based on the USDA classification. The organic carbon content was estimated <1% (determination of organic carbon with the Sprinter-Klee method), given in agreement with the sandy matrix; and the pH ≈7.2 (potentiometric method). The sand was contaminated in the laboratory with IFO180 (Intermediate Fuel Oil 180) marine fuel by Shell, a mixture of 98% of residual oil and 2% of distillate oil obtained from the heavy and medium fractions of crude oil. Briefly, IFO180 fuel was dissolved at 40 g/L in hexane: dichloromethane (1:20). Different volumes of the fuel solution were then added to the sand and thoroughly mixed, followed by complete solvent evaporation and weathering of oil hydrocarbons, to obtain sand samples contaminated at different final concentrations in the range 0.5 - 20 g/kg.

2.3 Contaminants of concern

- **IFO180, marine fuel, by Shell is regulated from ISO8217.**

IFO180 is composed of 80-92% by high viscosity residues and 5-20% by distillates (IMO, <http://www.imo.org/>). The chemical composition of the residue is quite variable, usually IFO180 is characterized by long chains of aliphatic hydrocarbons from C10 to C40, cycloalkanes and aromatics. These constitute the non-polar fraction. Furthermore, the refining residue contains asphaltenes, present in the solid state and slightly hydrophobic. Resins and asphaltenes also consist of heterocyclic compounds with sulphur, nitrogen and oxygen representing the polar and heaviest fraction of IFO180. There are also traces of metals (vanadium). In IFO180 there are polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), typically 1.5%, and traces of benzo [a] pyrene at 0.2% (Material Safety Data Sheet Fuel Oil, Tesoro 2012). Due to the high viscosity of IFO180, this product is suitably pre-treated, the sample untreated is dissolved in a hexane solution: dichloromethane (1:20) overnight, under a hood; in this way the product is treatable and loses the most volatile fraction of hydrocarbons, simulating the natural weathering process that undergoes an oil stain when it is released into the sea and reaches the coasts.

2.4 Regulatory framework

The surfactant aided ex situ washing technology has been proposed for cleaning up oil-contaminated sands; however, while the use of synthetic commercial surfactants at concentrations well above their critical micelles concentrations (CMCs) has been shown to effectively remove hydrophobic pollutants from contaminated soils [3], the environmental compatibility of such remediation practice is limited due to the toxicity, recalcitrance and persistence of such synthetic surfactants in the washed soil. The opportunity to use cheap, non-toxic, and biodegradable pollutant-mobilizing agents in this process has been previously investigated for soils contaminated by polycyclic aromatic hydrocarbons [3], petroleum hydrocarbons [4,5] and chlorinated aromatics [6,7]. So, in this context was tested the effectiveness of biogenic, non toxic and biodegradable pollutant-mobilizing agents or surfactants in the washing of oil-contaminated beach sands. this approach is allowed by the Italian law which promotes the use of bio-sustainable substances in contaminated sites remediation

- [3] Von Lau E, Gan S, Ng HK, Poh PE (2014). Extraction agents for the removal of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from soil in soil washing technologies. Environ Pollut 184:640.
- [4] Singh AK, Cameotraet SS (2013). Efficiency of lipopeptide biosurfactants in removal of petroleum hydrocarbons and heavy metals from contaminated soil. Environ Sci Pollut Res 20:7367.
- [5] Hernández-Espriú A, Sánchez-León E, Martínez-Santos P, Torres LG (2013). Remediation of a diesel-contaminated soil from a pipeline accidental spill: enhanced biodegradation and soil washing processes using natural gums and surfactants. J Soils Sediments 13:152.
- [6] Berselli S, Benitez E, Fedi S, Zannoni D, Medici A, Marchetti L, Fava F (2006). Development and Assessment of an Innovative Soil-Washing Process Based on the use of Cholic Acid-Derivatives as Pollutant-Mobilizing Agents. Biotechnology and Bioengineering 93:761
- [7] Berselli S, Milone G, Canepa P, Di Gioia D, Fava F (2004). Effects of Cyclodextrins, Humic Substances, and Rhamnolipids on the Washing of a Historically Contaminated Soil and on the Aerobic Bioremediation of the Resulting Effluents. Biotechnology and Bioengineering 88:11.

3. Pilot-scale application in field

3.1 Soil washing system

- Biosurfactant and mobilizing agents investigated in sand washing**

A number of biogenic mobilized agents commercially available at low cost were used in washing tests, namely: two soy lecithin commercial products: SOLEC™ F (SL-1) by Solae Italia s.r.l. and TEXTROL™ F (SL-2) having hydrophobic/lipophilic balances of 7 and 4, respectively; a more hydrophilic (hydroxypropyl- β -cyclodextrin, HPB-CD) and a more hydrophobic (randomly methylated β -cyclodextrin, RAMEB) technical grade cyclodextrins mixture, both provided by Amaizo-Cerestar (USA); four commercial cleaning products based on plant extracts (SuperSolv Safety Solvent, SC1000, Aircraft Cleaner, OmniBrite Acid Cleaner, all provided by BioBased Europe) and bovine bile acids (BB), provided by ICE srl, Italy, that mainly contains cholic acid. In addition, three microbial surfactants were employed, namely rhamnolipids (RL) sophorolipids (SR) and surfactin (SF). Finally, the synthetic surfactant Triton X-100 (TX) was used as reference, given its high hydrocarbons removal efficiency in the washing of soils contaminated by petroleum hydrocarbons.

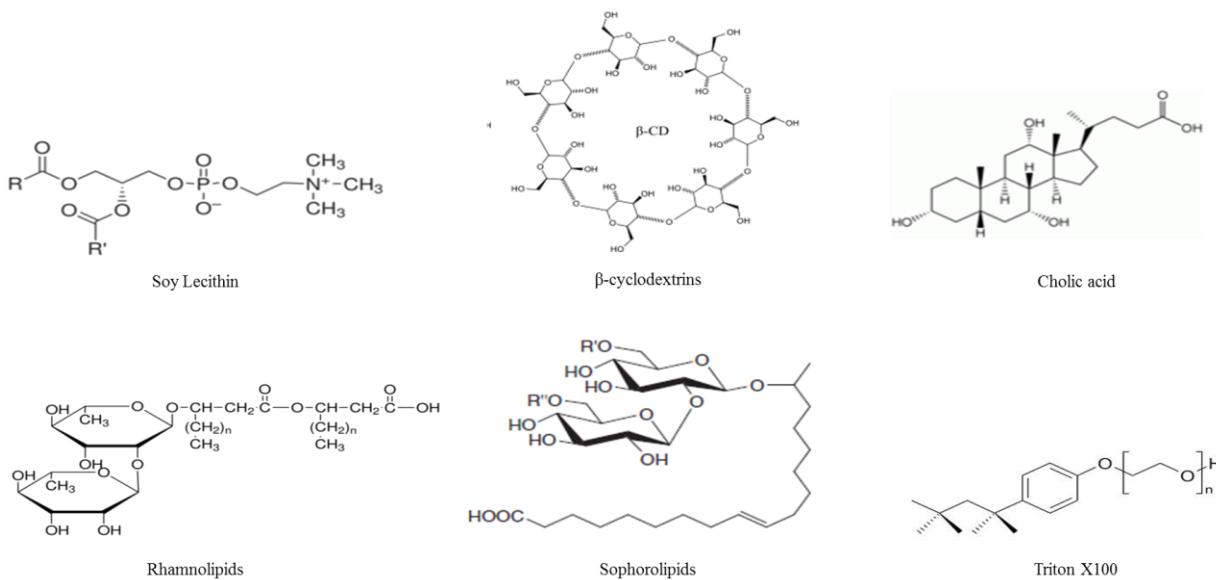


Fig. 1 Agents of plants and animal origin (Soy Lecithin – SL-1 e SL-2; β -cyclodextrin – HPB-CD e RAMEB) and microbial surfactants (Rhamnolipids – RL; Sophorolipids - SR) compared to Triton X100

- Preliminary screening of the agents in the washing of oil-contaminated beach sands**

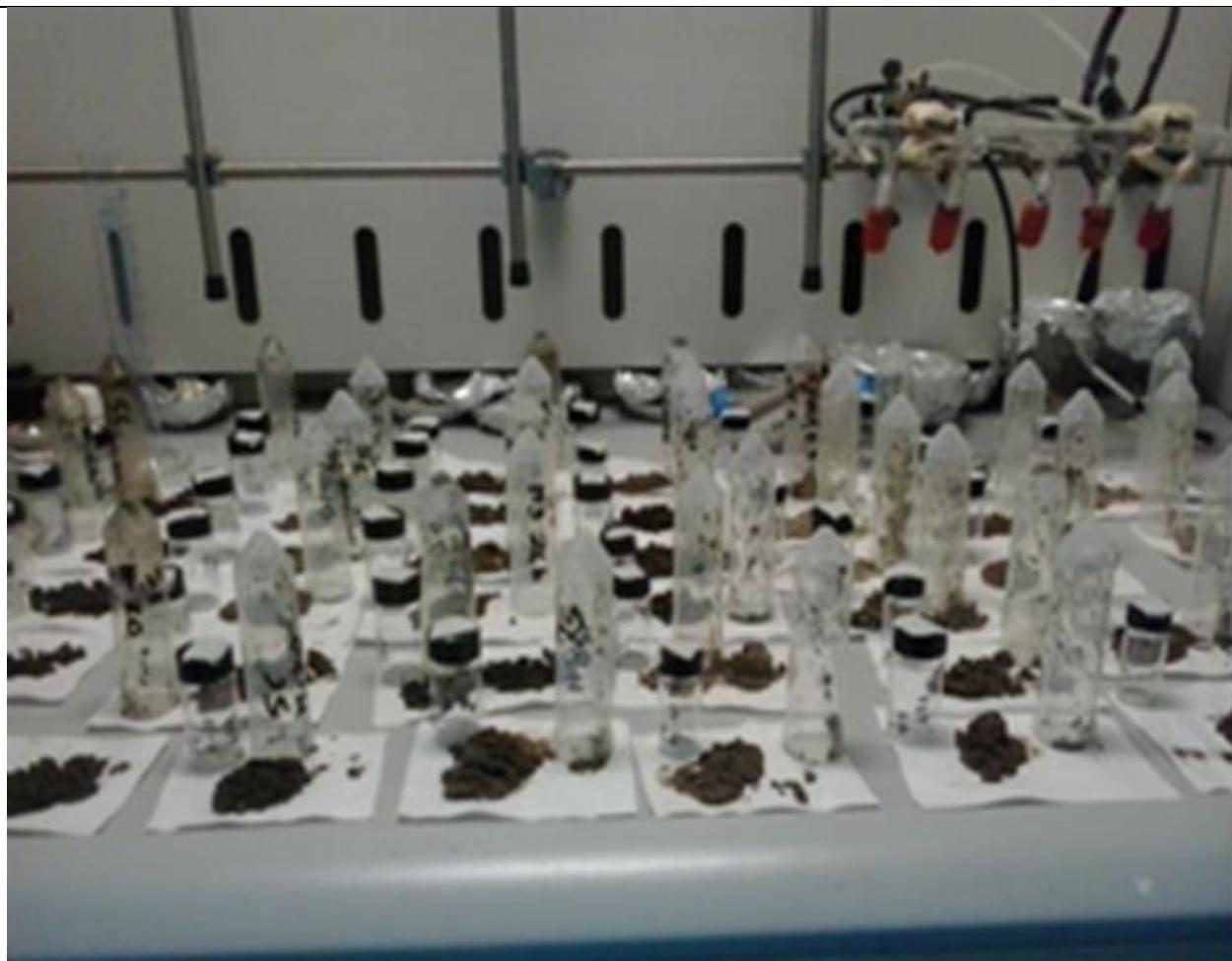
In the first phase of the study, washing tests were performed on 50 g of contaminated

beach sand with 350 mL of a water solution (sand:water ratio equal to 1:7) of each agent, in 1 L shaken reactors for 48h at room temperature under mixing at 150 rpm. All agents were used at 1% (w/v) concentration in the water phase, except for RL and SR that were employed at 0.1 % (w/v), due to their very low critical micelle concentration (0.1-0.2 g/L). The washing process was monitored after 4, 8, 24 and 48 hours. the most promising agents selected in the first phase, was SL-1, HPB-CD and SR in terms of hydrocarbons removal %, HC.



- **Sampling, extraction and analytical methods**

At each sampling during the washing procedure, an aliquot of homogeneous sand suspension was withdrawn from the reactor and sand allowed to settle. After removal of the water phase, sand was air dried overnight and hydrocarbons batch extracted overnight from 5 g of sand with 5 mL of the solvent mixture hexane:acetone (1:1). Batch extraction was assisted with ultrasonication for 5 min before and after overnight mixing. Qualitative and quantitative analysis of IFO180 fuel hydrocarbons (total hydrocarbons and n-alkanes) in the organic extracts was performed with an Agilent Technologies gas-chromatograph 6890N equipped with a HP-5 capillary column and a flame ionization detector (Hewlett-Packard Co., Palo Alto, CA, USA) under the analytical conditions described in Zanaroli et al. [8]. Total hydrocarbons were quantified, previous 12 points IFO180 calibration curve in concentration range 0.1-20 g/l ($R^2 \geq 0.99$). N-alkanes were quantified, previous 7 points standard mixture of n-C10 to n-C40 alkanes calibration curve in concentration range 0.01-50 ppm ($R^2 \geq 0.99$).



[8] Zanaroli G, Di Toro S, Todaro D, Varese GC, Bertolotto A, Fava F (2010). Characterization of two diesel fuel degrading microbial consortia enriched from a non acclimated, complex source of microorganisms. *MICROBIAL CELL FACTORIES*, vol. 9, pp. 10.

3.2 Feasibility study

- **Preliminary screening of the agents and selection of the most promising ones**

Total hydrocarbons removals of $71.2 \pm 4.3\%$ and $82.9 \pm 0.7\%$ and n-alkane removals of $57.4 \pm 4.3\%$ and $76.0 \pm 0.5\%$ were attained with the synthetic surfactant Triton X-100 (Triton X) after 4h and 48h of treatment, respectively. Comparable removals of both total hydrocarbons ($68.2 \pm 1.5\%$ and $83.2 \pm 0.3\%$ after 4 and 48 hours, respectively) and n-alkanes ($56.0 \pm 1.7\%$ and $79.1 \pm 0.5\%$ after 4 and 48 hours, respectively) were obtained with the more hydrophilic soy lecithin product (SL-1), whereas remarkably lower removals of both total hydrocarbons and n-alkanes were attained with the more hydrophobic soy lecithin (SL-2) after the same treatment time. Similarly, remarkably higher removals of total hydrocarbons and n-alkanes were obtained with the more hydrophilic cyclodextrins mixture (HPB-CD) compared to the more hydrophobic one (RAMEB-CD). Removals obtained with the best performing cyclodextrin (HPB-CD) were approximately 70% of those obtained with TX and SL-1 for total hydrocarbons ($50.9 \pm 0.5\%$ and $57.2 \pm 2.9\%$ after 4 and 48 hours, respectively) and 80-90% of those obtained with TX and SL-1 for n-alkanes ($53.9 \pm 3.2\%$ and $64.2 \pm 5\%$ after 4 and 48 hours of washing, respectively). All other plant derived products and BB exhibited both total hydrocarbons and n-alkanes removal efficiencies remarkably lower than that of TX. Among the two microbial surfactants, SR allowed to obtain higher removals of both total hydrocarbons ($57.3 \pm 1.0\%$ and $63.2 \pm 1.3\%$ after 4 and 48 hours, respectively) and n-alkanes ($36.8 \pm 1.0\%$ and $76.8 \pm 9.3\%$ after 4 and 48 hours, respectively) than RL. Although both microbial surfactants were applied at concentrations apparently well above their CMC, the typically lower CMC of SR (approximately one half of that of RL, i.e., approximately 0.1 g/L vs 0.2 g/L), might explain its higher hydrocarbons removal efficiency[9].

Overall, under the washing conditions used in these preliminary tests, only SL-2 exhibited hydrocarbons removals comparable to that of TX, and HPB-CD and SR hydrocarbons removals slightly lower (70% or more) than that of TX. These agents were therefore selected for the second phase of the study aiming at optimizing the washing conditions.

[9] Arelli A., Zanaroli G., Fava F (2014). Washing of oil-contaminated beach sands aided with biogenic, non toxic and biodegradable pollutant-mobilizing agents and microbial surfactants, in: Ecomondo 2014 - Green Economy: ricerca, innovazioni e azioni nel mediterraneo, RECLAIM EXPO, Maggioli Editore, pp. 528-533.

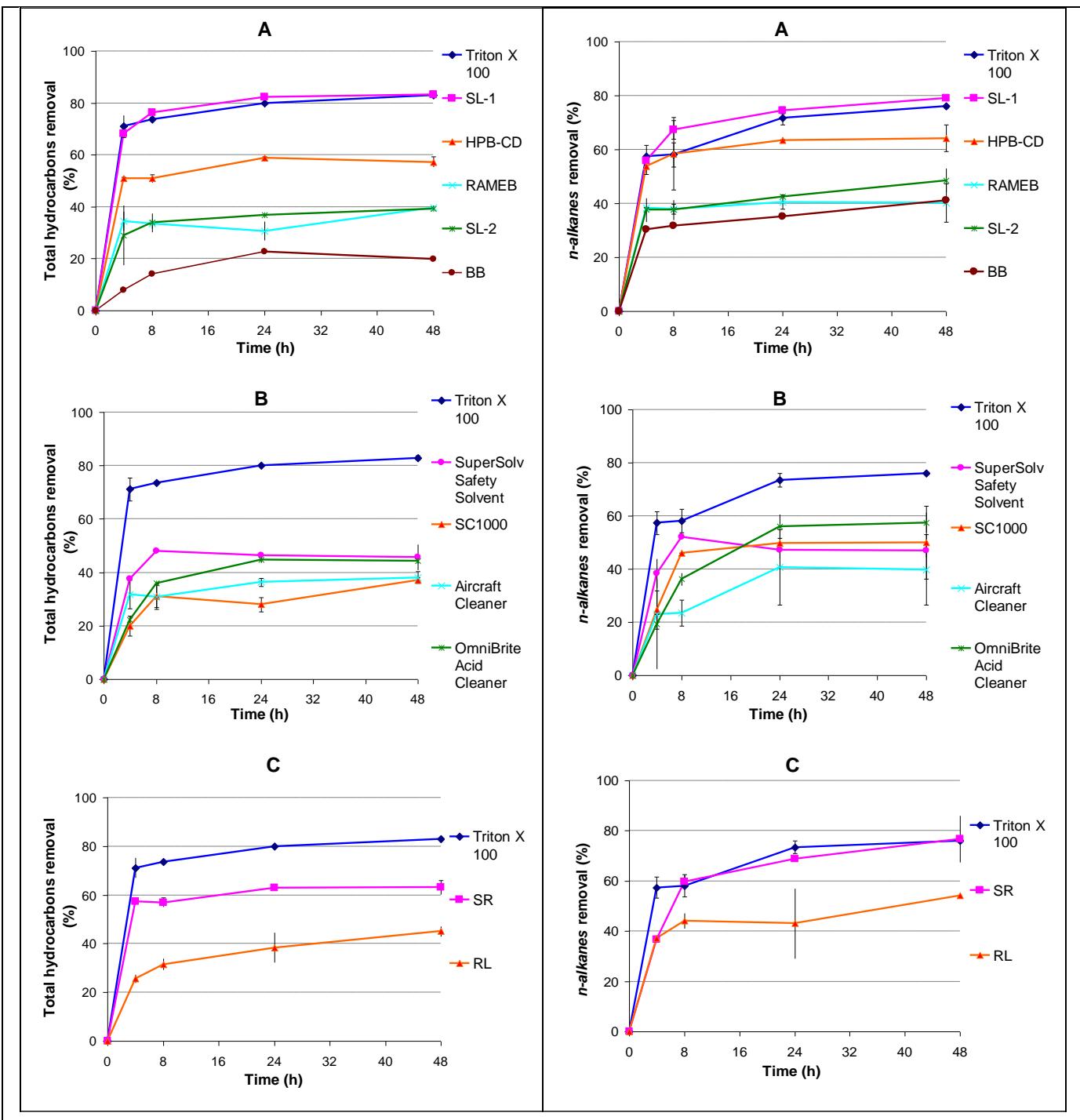


Fig. 2 Total hydrocarbons removal (C/C_0) obtained with agents of plant and animal origin (A), cleaning products (B) and microbial surfactants (C) compared to Triton X-100

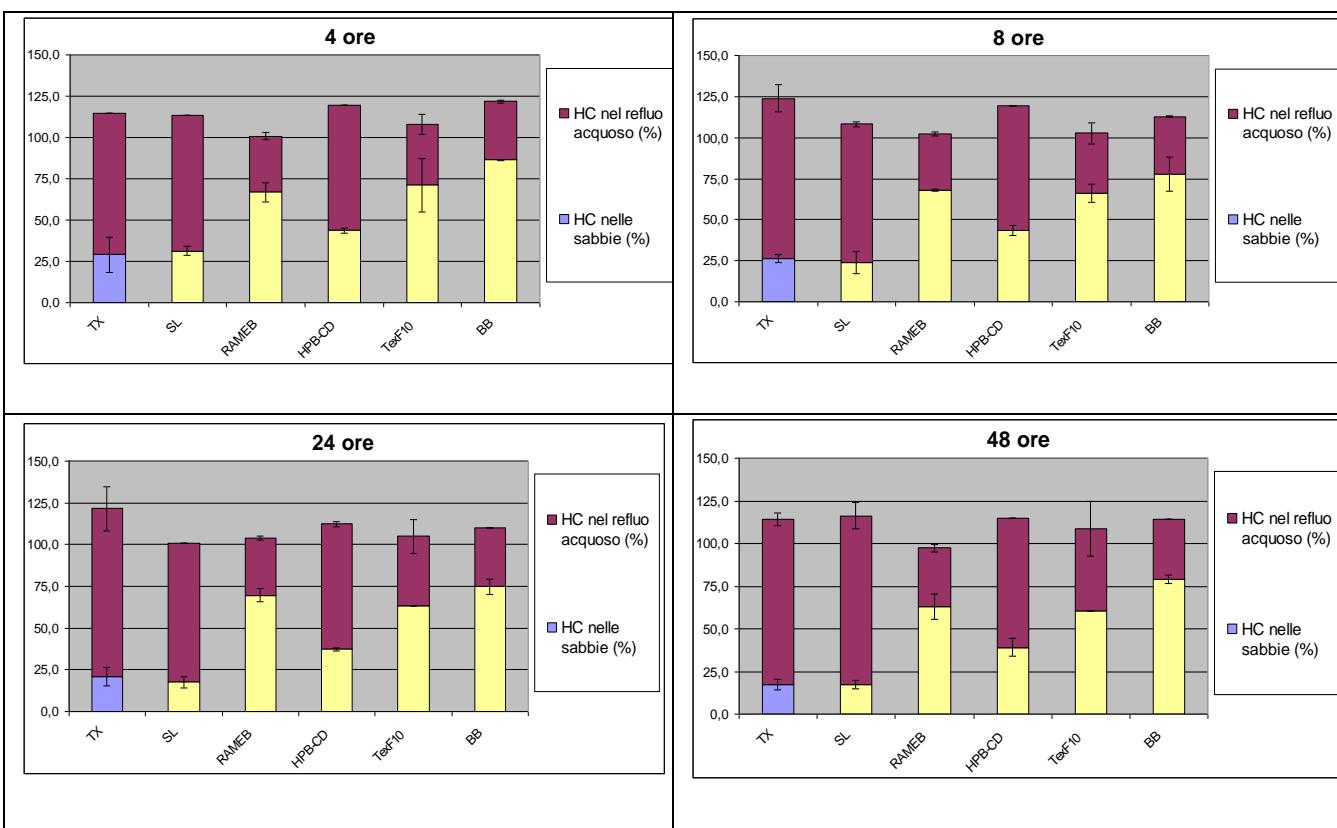
Fig. 3 n-alkanes removal (C/C_0) obtained with agents of plant and animal origin (A), cleaning products (B) and microbial surfactants (C) compared to Triton X-100.

3.3 Water Treatment

- **Mass balance (HC).**

About water phase, was only verified the mass balance, to support the results obtained in the first experimental phase, relating to the removal percentages in terms of total hydrocarbons. For each tested surfactant, the aqueous wastewater was sampled during the washing treatment, in a quantity proportional to the sands extracted. Below are reported the results of the percentage mass balance observed between HC present in the sands and in the aqueous wastewater, in the samples taken after 4, 8, 24, 48 hours of washing for the agents of animal and vegetable origin compared with TX.

The results appear satisfactory; the mass balances mostly fall within the range of 100 - 120%.



3.4 Control Parameters

- **Control parameters and their optimization by ANOVA approach**

In the second phase of the study, the parameters mainly affecting the washing efficiency and the optimal washing conditions were investigated for the most promising agents selected in the first phase, namely SL-1, HPB-CD and SR, and for TX and the agent-free control. The following operating parameters were considered: surfactant concentration (% w/v), water/sand ratio (v/w), mixing rate (rpm), IFO180 concentration (g/kg). The statistical design of experiment (DoE) based on the Central Composite Design (CCD) was used for the above 4 parameters (except surfactant concentration in the case of the surfactant-free control) using 3 levels and 1 response (hydrocarbons removal %, HC). For the experimental design, ANOVA and identification of optimal washing parameters, the Design Expert software was used [10].

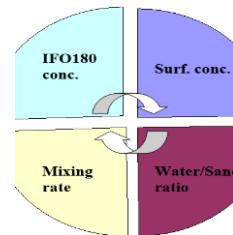
DoE (CCD) – 4 parameters (A, B, C, D) 3 levels (-1; 0; +1)

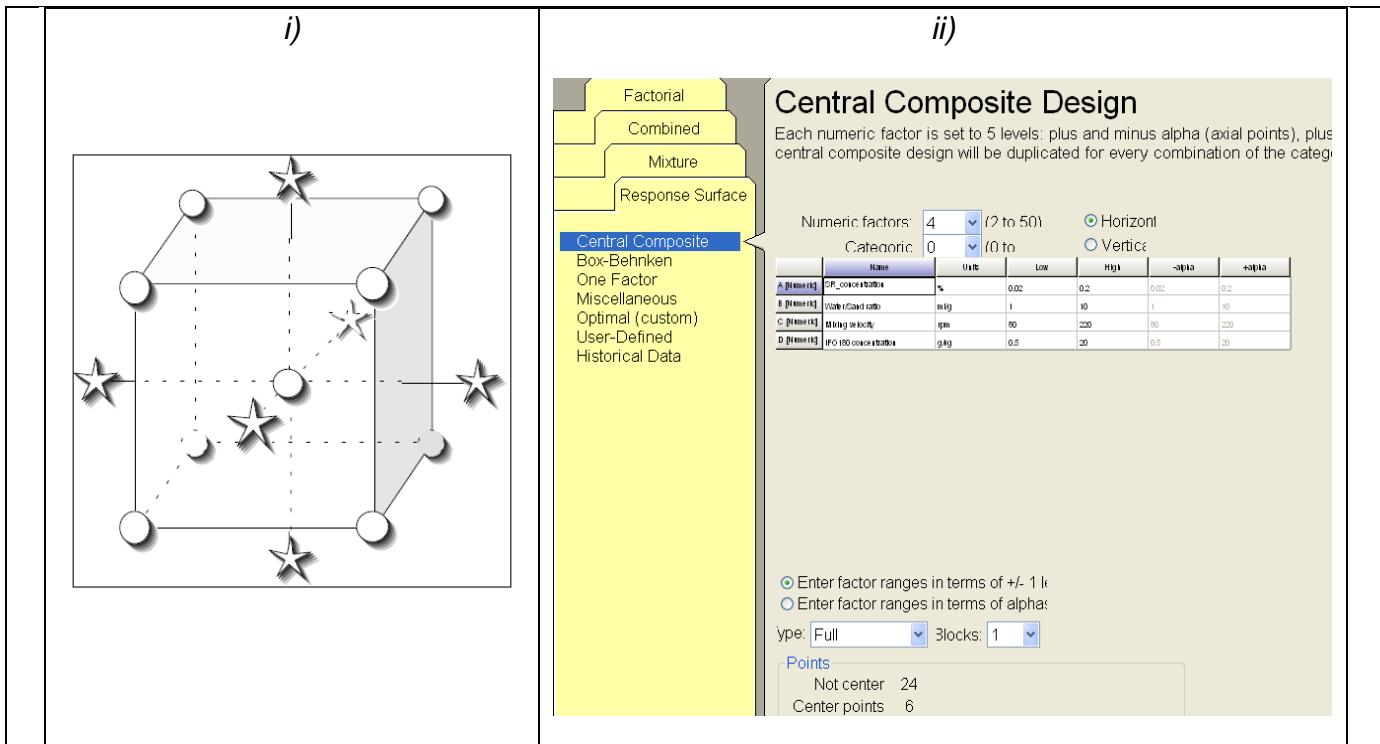
A – Sur. conc. (g/100 ml)

B – water/sand ratio (ml/g)

C – mixing rate (rpm)

D – IFO180 conc. (g/kg)





Design of experiment for TX, SL-1, HPB-CD, SR. A: surfactant concentration (% w/v), B: water: sand ratio (v/w), C: mixing rate (rpm), D: IFO180 concentration (g/kg). i) SL-1, HPB-CD, TX; ii) SR.

Design of experiment for surfactant-free water (blank). A: water: sand ratio (v/w), B: mixing rate (rpm), C: IFO180 concentration (g/kg).

| Level | A | B | C | D |
|-------|---|-----|-----|-------|
| -1 | 0.1 ⁱ⁾ – 0.01 ⁱⁱ⁾ | 1 | 80 | 0.5 |
| 0 | 2.55 ^{a)} – 0.11 ^{b)} | 5.5 | 150 | 10.25 |
| +1 | 5 ^{a)} – 0.2 ^{b)} | 10 | 220 | 20 |

An example pf run's list whith four factor (A, B, C, D) and Yeld respons (HC removal after 24 hour of washing):

| Level | A | B | C |
|-------|-----|-----|-------|
| -1 | 1 | 80 | 0.5 |
| 0 | 5.5 | 150 | 10.25 |
| +1 | 10 | 220 | 20 |

Notes for Sophorslipid_4.f

Design (Actual)

- Summary
- Graph Columns
- Evaluation
- Analysis
- Rt Yield 24 (Analysis)
- Optimization
- Numerical
- Graphical
- Post Analysis
- Point Prediction
- Confirmation
- Coefficients Table

| Run | Seq | Run | Factor 1 A, SR conc. g/100mL | Factor 2 B Water/S mg | Factor 3 C Mixing rate rpm | Factor 4 IFO180 c. g/kg | Response 1 Yield 24 % |
|-----|-----|-----|------------------------------------|-----------------------------|----------------------------------|-------------------------------|-----------------------------|
| 19 | 1 | 1 | 0.11 | 1 | 150 | 10.54 | 39.8 |
| 30 | 2 | 2 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 55.5 |
| 18 | 3 | 3 | 0.2 | 10 | 220 | 15.71 | 62.4 |
| 12 | 4 | 4 | 0.2 | 10 | 80 | 15.71 | 18.7 |
| 26 | 5 | 5 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 64.9 |
| 27 | 6 | 6 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 62.9 |
| 8 | 7 | 7 | 0.2 | 10 | 220 | 0.61 | 65.4 |
| 11 | 8 | 8 | 0.02 | 10 | 80 | 15.71 | 6.2 |
| 13 | 9 | 9 | 0.02 | 1 | 220 | 15.71 | 26.6 |
| 2 | 10 | 10 | 0.2 | 1 | 80 | 0.61 | 42.3 |
| 29 | 11 | 11 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 64.2 |
| 18 | 12 | 12 | 0.2 | 5.5 | 150 | 10.54 | 41.6 |
| 15 | 13 | 13 | 0.02 | 10 | 220 | 15.71 | 28.4 |
| 1 | 14 | 14 | 0.02 | 1 | 80 | 0.61 | 45.7 |
| 17 | 15 | 15 | 0.02 | 5.5 | 150 | 10.54 | 36.9 |
| 5 | 16 | 16 | 0.02 | 1 | 220 | 0.61 | 55.5 |
| 25 | 17 | 17 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 65.1 |
| 10 | 18 | 18 | 0.2 | 1 | 80 | 15.71 | 22.9 |
| 22 | 19 | 19 | 0.11 | 5.5 | 220 | 10.54 | 74.6 |
| 14 | 20 | 20 | 0.2 | 1 | 220 | 15.71 | 19 |
| 21 | 21 | 21 | 0.11 | 5.5 | 80 | 10.54 | 38.9 |
| 24 | 22 | 22 | 0.11 | 5.5 | 150 | 15.71 | 42.6 |
| 4 | 23 | 23 | 0.2 | 1 | 220 | 0.61 | 62.8 |
| 7 | 24 | 24 | 0.02 | 10 | 220 | 0.61 | 60.5 |
| 23 | 25 | 25 | 0.11 | 5.5 | 150 | 0.61 | 57.3 |
| 29 | 26 | 26 | 0.11 | 5.5 | 150 | 10.54 | 54.8 |
| 3 | 27 | 27 | 0.02 | 10 | 80 | 0.61 | 49.2 |
| 20 | 28 | 28 | 0.11 | 10 | 150 | 10.54 | 73.2 |

30 washing tests were performed with each agent (20 tests for the surfactant-free control) under conditions combining the different levels for all investigated parameters. In this phase, each washing experiment was monitored after 24 hours. ANOVA was then applied to obtain the best fitting model describing the effect of the investigated parameters on hydrocarbons removal by each agent. Models were validated by performing additional washing tests using different conditions (i.e., combinations of surfactant concentration, water:sand ratio, mixing rate and IFO180 concentration) and comparing the observed removal efficiencies with those predicted by the model. Finally, optimal parameters for the washing of beach sand contaminated at different IFO180 concentrations were identified for each surfactant/mobilizing agent. In particular, two

optimization criteria were used:

- maximum hydrocarbons removal when all parameters are allowed to fall within the defined range (-1 to +1 level)
- maximum hydrocarbons removal when surfactant concentration and mixing range are allowed to fall within the defined range while minimizing the water:sand ratio.

[10] Design of Experiments (DOE) Made Easy

<https://www.statease.com/software/design-expert/>

<https://www.youtube.com/watch?v=y0QovZHeubM>

- **RESULTS: ANOVA 24h, model validation. Optimization criteria: Maximum and Optimum HC removal**

The ANOVA (Analysis of Variance) was applied to solve the following equation:

$$Y = \text{Cost} + aA + bB + cC + dD + abAB + acAC + \dots a^2A^2 + ..$$

The simple model describes the effect of the investigated parameters (A, B, C, D) on hydrocarbons removal (Y) after 24h of treatment and can be represented by a response surface. Then, it is possible, to interrogate the model to find out the conditions of maximum removal, placing particular constraints, for example criteria i) and ii).

Model validation (experimental value versus the predicted value); maximum HC removal prediction (%); optimum HC removal prediction (%) (minimizing the water:sand ratio), are shown for surfactant-free water, TX, SL-1, HPB-CD and SR.

it is pointed out that:

- Every surfactant has error associated to predicted removals at level confidence of 95%; and errors associated to observed removals are experimental errors.
- Blank – surfactant free water. The sand washing under optimal conditions allows to obtain HC removals in the range 30-48% depending on HC concentration;
- TX. Under optimal washing conditions, TX allows to obtain HC removals from 50% to 86% at increasing IFO180 concentrations;
- Both under optimal washing conditions and by minimizing the water amount used, HPB-CD and SR perform better than TX only at low hydrocarbons concentrations, but at lower surfactant concentration;

- Both under optimal washing conditions and by minimizing the water amount used, SL performs better than TX at all hydrocarbons concentrations and at lower surfactant concentration.

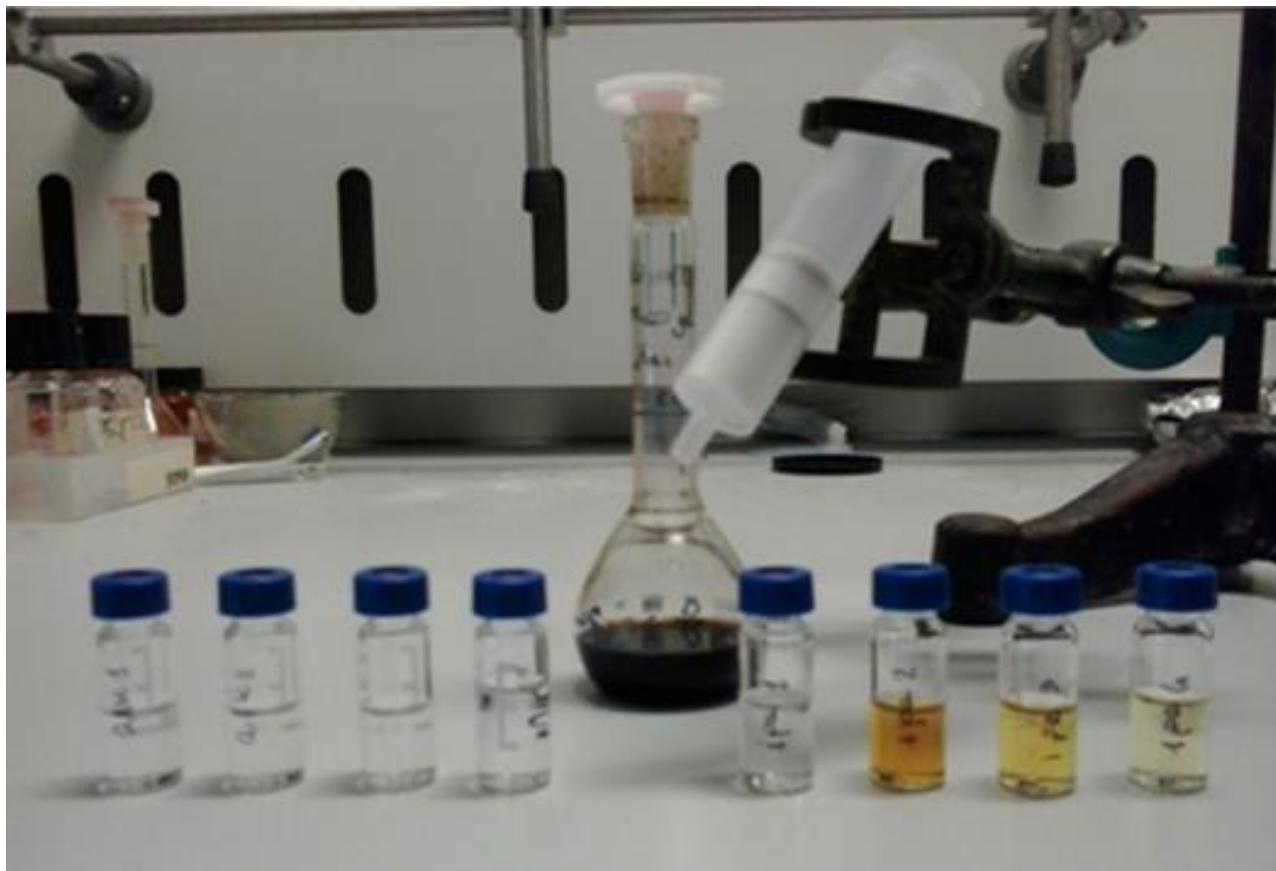
| Blank : Model validation | | | | |
|--------------------------|---------------------------|-----------------------------|--|----------------------------|
| A Water/sand (v/w) | B Mixing rate (rpm) | C IFO180 conc. (g/kg) | HC removal predicted (%) | HC removal observed (%) |
| 7 | 100 | 2.5 | 36.1 ± 5.4 | 33.3 ± 1.9 |
| 7 | 150 | 5 | 44.8 ± 5.4 | 44.9 ± 4.8 |
| 3 | 190 | 6.5 | 45.9 ± 5.4 | 43.9 ± 0.4 |
| | | | <i>Maximum HC removal predicted (%)</i> | |
| | | | <i>A,B,C : in range</i> <i>HC removal (%) : maximum</i> | |
| 1 | 220 | 0.5 | 40.2 ± 5.4 | |
| 1 | 220 | 2.5 | 43.2 ± 5.4 | |
| 10 | 220 | 6.5 | 47.9 ± 5.4 | |
| 10 | 220 | 10.25 | 47.3 ± 5.4 | |
| 10 | 220 | 20 | 29.5 ± 5.4 | |
| | | | <i>Optimum HC removal predicted (%)</i> | |
| | | | <i>C : in range,</i> <i>HC removal(%) : maximum</i> <i>B : minimum</i> | |
| | | | <i>predicted</i> | <i>observed</i> |
| 1 | 220 | 2.5 | 43.2 ± 5.4 | 42.4 ± 5.5 |
| 1 | 220 | 6.5 | 46.5 ± 5.4 | 44.4 ± 0.5 |
| 4.5 | 220 | 20 | 16.5 ± 5.4 | 21.5 ± 0.0 |

| A TX (% w/v) | B Water/sand ratio (v/w) | C Mixing rate (rpm) | D IFO 180 conc. (g/kg) | HC removal predicted (%) | HC removal observed (%) | A SL (% w/v) | B Water/sand ratio (v/w) | C Mixing rate (rpm) | D IFO 180 conc. (g/kg) | HC removal predicted (%) | HC removal observed (%) |
|--|--------------------------------|---------------------------|------------------------------|-----------------------------|----------------------------|---------------------------|--------------------------------|---------------------------|------------------------------|-----------------------------|----------------------------|
| 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 59.7 ± 6.4 | 63.0 ± 0.3 | 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 79.9 ± 7.3 | 73.3 ± 2.0 |
| 2.55 | 7 | 150 | 5 | 72.3 ± 4.4 | 80.0 ± 0.0 | 2.55 | 7 | 150 | 5 | 87.5 ± 7.3 | 82.3 ± 0.4 |
| 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 72.4 ± 4.4 | 72.7 ± 0.1 | 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 67.8 ± 7.3 | 68.3 ± 5.3 |
| TX : Maximum HC removal predicted (%) A,B,C : in range HC removal (%) : maximum | | | | | | | | | | | |
| 5 | 10 | 80 | 0.5 | 51.0 ± 8.2 | | 2.7 | 10 | 220 | 0.5 | 96.4 ± 7.3 | |
| 5 | 10 | 80 | 2.5 | 62.5 ± 5.0 | | 2.7 | 10 | 220 | 2.5 | 96.9 ± 7.3 | |
| 5 | 10 | 220 | 6.5 | 79.7 ± 3.5 | | 2.6 | 10 | 220 | 6.5 | 97.8 ± 7.3 | |
| 5 | 10 | 220 | 10.25 | 86.2 ± 3.0 | | 2.3 | 10 | 214 | 10.25 | 98.0 ± 7.3 | |
| 5 | 10 | 220 | 20 | 86.0 ± 3.4 | | 2.5 | 10 | 150 | 20 | 96.5 ± 7.3 | |
| TX : Optimum HC removal predicted (%) A, C : in range, HC removal (%) : maximum B : minimum | | | | | | | | | | | |
| 5 | 1 | 220 | 2.5 | 49.5 ± 9.1 | 50.3 ± 9.1 | 2.7 | 1 | 220 | 2.5 | 82.3 ± 7.3 | 75.3 ± 2.3 |
| 5 | 1 | 220 | 6.5 | 76.9 ± 3.8 | 82.1 ± 1.0 | 2.6 | 1 | 220 | 6.5 | 83.2 ± 7.3 | 75.1 ± 1.9 |
| 5 | 1 | 220 | 20 | 80.5 ± 3.5 | 76.7 ± 1.6 | 2.6 | 1 | 150 | 20 | 81.9 ± 7.3 | 75.9 ± 2.4 |
| A HPB-CD (% w/v) | B Water/sand ratio (v/w) | C Mixing rate (rpm) | D IFO 180 conc. (g/kg) | HC removal predicted (%) | HC removal observed (%) | A SR (% w/v) | B Water/sand ratio (v/w) | C Mixing rate (rpm) | D IFO 180 conc. (g/kg) | HC removal predicted (%) | HC removal observed (%) |
| 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 77.4 ± 7.1 | 68.5 ± 1.5 | 0.18 | 7 | 100 | 2.5 | 60.0 ± 8.6 | 62.8 ± 3.1 |
| 2.55 | 7 | 150 | 5 | 66.8 ± 7.1 | 58.9 ± 0.3 | 0.10 | 7 | 150 | 5 | 70.4 ± 8.6 | 63.0 ± 1.2 |
| 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 49.9 ± 7.1 | 52.3 ± 6.5 | 0.05 | 3 | 190 | 6.5 | 60.3 ± 8.6 | 59.5 ± 0.2 |
| HPB-CD : Maximum HC removal predicted (%) A,B,C : in range HC removal (%) : maximum | | | | | | | | | | | |
| 3.4 | 7.6 | 80 | 0.5 | 88.8 ± 7.1 | | 0.11 | 9.8 | 215 | 0.5 | 80.5 ± 8.6 | |
| 3.3 | 7.5 | 80 | 2.5 | 85.3 ± 7.1 | | 0.12 | 9.5 | 205 | 2.5 | 81.0 ± 8.6 | |
| 3.0 | 10 | 80 | 6.5 | 76.5 ± 7.1 | | 0.10 | 8.7 | 216 | 6.5 | 78.4 ± 8.6 | |
| 3.0 | 10 | 80 | 10.25 | 71.7 ± 7.1 | | 0.13 | 9.8 | 220 | 10.25 | 75.9 ± 8.6 | |
| 2.6 | 5.5 | 220 | 20 | 75.9 ± 7.1 | | 0.14 | 10 | 220 | 20 | 54.0 ± 8.6 | |
| HPB-CD : Optimum HC removal predicted (%) A, C : in range HC removal (%) : maximum B : minimum | | | | | | | | | | | |
| 3.3 | 1 | 85 | 2.5 | 82.9 ± 7.1 | 81.4 ± 0.4 | 0.11 | 1 | 220 | 2.5 | 71.1 ± 8.6 | 69.2 ± 1.3 |
| 3.0 | 1 | 80 | 6.5 | 74.3 ± 7.1 | 67.2 ± 0.6 | 0.11 | 1 | 220 | 6.5 | 69.8 ± 8.6 | 58.9 ± 1.5 |
| 2.6 | 1 | 150 | 20 | 72.6 ± 7.1 | 66.5 ± 2.6 | 0.11 | 1 | 220 | 20 | 40.7 ± 8.6 | 48.8 ± 7.5 |
| SR : Optimum HC removal predicted (%) A, C : in range HC removal (%) : maximum B : minimum | | | | | | | | | | | |
| predicted observed | | | | | | | | | | | |

• PAH removal (%)

In correspondence of the optimized conditions, samples were further analyzed in order to obtain the removing of PAH (%) from oil-contaminated sands compared to that of total hydrocarbons. was developed a protocol for n-alkane / PAH fraction separation using Upti - Clean SI/CN column. PAH compounds are environmentally critical because of their known toxicity, carcinogenicity and mutagenicity and presence in the environment.

Efficiency and removal mechanism of cyclodextrins in soil decontamination from PAH was studied by several authors [11,12,13,14,15,16], also was observed as microbial surfactants increase the apparent solubility of PAHs than 5 times compared to commercial products [17,18]. In IFO180 were identified a number of bi and tricycles compound: that represent 0.0042% (w/w) of IFO180.



Washing with no surfactant (blank) in optimal washing conditions for sands contaminated at different IFO180 concentrations: HC removal (%), n-alkanes removal (%), PAH removal (%)

Washing with TX in optimal washing conditions for sands contaminated at different IFO180 concentrations: HC removal (%), n-alkanes removal (%), PAH removal (%)

| A – TX % (w/v) | B-Water/sand ratio (v/w) | C – Mixing rate (rpm) | D – IFO180 conc. (g/kg) | HC removal (%) | n-alkanes removal (%) | PAH removal (%) |
|----------------|--------------------------|-----------------------|-------------------------|----------------|-----------------------|-----------------|
| 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 63.0 ± 0.3 | 66.6 ± 1.2 | 83.2 ± 5.6 |
| 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 72.7 ± 0.1 | 72.0 ± 4.0 | 86.2 ± 1.8 |
| 5 | 1 | 220 | 2.5 | 68.9 ± 5.3 | 69.7 ± 7.9 | 87.8 ± 0.8 |
| 5 | 1 | 220 | 6.5 | 82.1 ± 1.0 | 81.9 ± 2.7 | 86.1 ± 6.8 |
| 5 | 1 | 220 | 20 | 76.7 ± 1.6 | 78.5 ± 1.3 | 81.3 ± 1.7 |

| B-Water/Sand (ml/g) | C – Mixing rate (rpm) | D – IFO180 conc. (g/kg) | <i>HC</i> removal (%) | <i>n-alkanes</i> removal (%) | <i>PAH</i> removal (%) |
|------------------------|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| 7 | 100 | 2.5 | 33.3 ± 1.9 | 19.0 ± 0.2 | 49.6 ± 3.0 |
| 3 | 190 | 6.5 | 43.9 ± 0.4 | 23.0 ± 5.2 | 67.5 ± 1.2 |
| 1 | 220 | 2.5 | 42.4 ± 5.5 | 22.6 ± 8.2 | 43.1 ± 2.0 |
| 1 | 220 | 6.5 | 44.4 ± 0.5 | 29.0 ± 2.3 | 60.8 ± 7.8 |
| 4.5 | 220 | 20 | 21.5 ± 0.0 | 23.2 ± 0.7 | 42.5 ± 3.9 |

Washing with SL-1 in optimal washing conditions for sands contaminated at different IFO180 concentrations: HC removal (%), n-alkanes removal (%), PAH removal (%)

| A – SL % (w/v) | B- Water/sand ratio (v/w) | C – Mixing rate (rpm) | D – IFO180 conc. (g/kg) | <i>HC</i> removal (%) | <i>n-alkanes</i> removal (%) | <i>PAH</i> removal (%) |
|-------------------|------------------------------|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 73.3 ± 2.0 | 67.1 ± 2.4 | 79.4 ± 1.2 |
| 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 68.3 ± 5.3 | 63.7 ± 0.4 | 77.5 ± 4.1 |
| 2.7 | 1 | 220 | 2.5 | 75.3 ± 2.3 | 67.3 ± 1.3 | 77.3 ± 9.6 |
| 2.6 | 1 | 220 | 6.5 | 75.1 ± 1.9 | 60.0 ± 1.4 | 74.8 ± 1.6 |
| 2.6 | 1 | 150 | 20 | 75.9 ± 2.4 | 76.1 ± 2.5 | 82.5 ± 1.4 |

Washing with HPB-CD in optimal washing conditions for sands contaminated at different IFO180 concentrations:
HC removal (%), n-alkanes removal (%), PAH removal (%)

| A – HPB-CD % (w/v) | B-Water/Sand (ml/g) | C – Mixing rate (rpm) | D – IFO180 conc. (g/kg) | <i>HC</i> removal (%) | <i>n-alkanes</i> removal (%) | <i>PAH</i> removal (%) |
|-----------------------|------------------------|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| 1.8 | 7 | 100 | 2.5 | 68.5 ± 1.5 | 61.6 ± 1.3 | 82.1 ± 2.3 |
| 0.5 | 3 | 190 | 6.5 | 52.3 ± 3.5 | 43.3 ± 3.4 | 67.0 ± 0.8 |
| 3.3 | 1 | 85 | 2.5 | 81.4 ± 0.4 | 67.8 ± 3.6 | 82.1 ± 3.3 |
| 3.0 | 1 | 80 | 6.5 | 67.2 ± 0.6 | 62.1 ± 0.2 | 67.1 ± 1.0 |
| 2.6 | 1 | 150 | 20 | 66.5 ± 2.6 | 62.3 ± 1.3 | 73.0 ± 4.0 |

Washing with SR in optimal washing conditions for sands contaminated at different IFO180 concentrations: HC removal (%), n-alkanes removal (%), PAH removal (%)

| A – SR % (w/v) | B- Water/sand ratio (v/w) | C – Mixing rate (rpm) | D – IFO180 conc. (g/kg) | <i>HC</i> removal (%) | <i>n-alkanes</i> removal (%) | <i>PAH</i> removal (%) |
|-------------------|------------------------------|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---------------------------------|---------------------------|
| 0.18 | 7 | 100 | 2.5 | 62.8 ± 3.1 | 51.3 ± 4.6 | 67.4 ± 5.9 |
| 0.05 | 3 | 190 | 6.5 | 59.5 ± 0.2 | 49.2 ± 5.4 | 60.6 ± 4.3 |
| 0.11 | 1 | 220 | 2.5 | 69.2 ± 1.3 | 56.6 ± 6.1 | 83.5 ± 2.8 |
| 0.11 | 1 | 220 | 6.5 | 58.9 ± 1.5 | 38.0 ± 4.4 | 91.9 ± 0.1 |
| 0.11 | 1 | 220 | 20 | 48.8 ± 7.5 | 34.4 ± 2.2 | 62.9 ± 7.3 |



Glossary of Terms

| Term (alphabetical order) | Definition |
|---------------------------|--|
| SL-1 | <i>Soy lecithin commercial products: SOLEC™ F</i> |
| SL-2 | <i>Soy lecithin commercial products: TEXTROL™ F</i> |
| HPB-CD | <i>Hydroxypropyl-β-cyclodextrin</i> |
| RAMEB | <i>Randomly methylated β-cyclodextrin</i> |
| BB | <i>Bovine bile acids</i> |
| SR | <i>Sophorolipids</i> |
| RL | <i>Rhamnolipids</i> |
| SF | <i>Surfactin</i> |
| TX | <i>Triton X-100</i> |
| PAH | <i>Polycyclic Aromatic Hydrocarbon</i> |
| DoE | <i>Design of experiment</i> |
| CCD | <i>Central Composite Design</i> |
| SD | <i>Standard Deviation</i> |

[11] Wang JM., Marlowe EM., Miller-Maier RM., Brusseau ML (1998) Cyclodextrin enhanced biodegradation of phenanthrene. Environ. Sci. Technol. 32, 1907–1912

[12] Ye M, Sun M, Kengara FO, Wang J, Ni N, Wang L, Song Y, Yang X, Li H, Hu F, Jiang X (2014) Evaluation of soil washing process with carboxymethyl- β -cyclodextrin and carboxymethyl chitosan for recovery of PAHs/heavy metals/fluorine from metallurgic plant site. J Environ Sci (China) 26(8):1661-72

[13] Petitgirard A, Djehiche M, Persello J, Fievet P, Fatin-Rouge N (2009) PAH contaminated soil remediation by reusing an aqueous solution of cyclodextrins. Chemosphere 75:714-718

[14] Von Lau E, Gan S, Ng HK, Poh PE (2014) Extraction agents for the removal of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from soil in soil washing technologies. Environmental Pollution 181:640-649

[15] Peng S, Wu W, Chen J (2011) Removal of PAHs with surfactant-enhanced soil washing: Influencing factors and removal effectiveness. Chemosphere 82:1173-1177

[16] Sánchez-Trujillo MA, Morillo E, Villaverde J, Lacorte S (2013) Comparative effects of several cyclodextrins on the extraction of PAHs from an aged contaminated soil. Environmental Pollution 178:52-58

[17] Heyd M, Kohnert A, Tan TH, Nusser M, Kirschhäuser F, Brenner-Weiss G, et al. (2008) Development and trends of biosurfactant analysis and purification using rhamnolipids as an example. Analytical and Bioanalytical Chemistry 391(5): 1579-90

[18] Nitschke M, Araújo L, Costa S, Pires R, Zeraik A, Fernandes A, et al. (2009) Surfactin reduces the adhesion of food borne pathogenic bacteria to solid surfaces. Letters in applied microbiology 49(2): 241-7

1. Your contact details - CASE STUDY: SW n.6

| | |
|----------------------------------|---|
| 1.1. Name and Surname* | Prof. Dr. Domen Lestan |
| 1.2. Country/Jurisdiction | Slovenia |
| 1.3. Organisation | Envit Ltd. |
| 1.4. Position | Assistant assistant manager & CTO of Envit Ltd. |
| 1.5. Duties | Full professor at Biotechnical Faculty, University of Ljubljana |
| 1.6. Email address | info@envit.si domen.lestan@bf.uni-lj.si |
| 1.7. Phone number | <u>+386 59 924 819</u> |

2. Site background

2.1 History of the site

In 1992 the Pb/Zn smelter (*Figure 1*) at Arnoldstein (Austria) closed and emissions ceased. Several hundred years of emissions (Pb, Zn, Cd, and to a lesser extent Cu, As) were dispersed over the surrounding area, which was used for housing (play- grounds), horticulture, forestry, and agriculture. The smelting activities at Arnoldstein date back to 1495, beginning with the smelting of lead, followed, in the 1950's, by the production of zinc, cadmium, and germanium. Besides the roasting and smelting of metal ores, different substances such as fertilisers (superphosphate), sulfuric acid, and dye- stuffs were also produced. Official emission figures were provided for 1989 by the Carinthian State government for SO₂ (1377 t a⁻¹), and metals (total dust up to 41.9 t a⁻¹, of which 13.5 t a⁻¹ was Pb-dust). By 1992 these emissions were reduced for SO₂ to 570 t a⁻¹ and for metals (total dust) to 25.5 t a⁻¹, of which 8.9 t a⁻¹ was Pb-dust (Kasperowski, 1993). In the 1960s emission controls were improved but focused only on SO₂ because of concerns relating to forest decline. The persistent heavy metals were not considered a priority at that time. The emissions consisted mainly of oxides and sulfides (Zn, Cd), sulfates (Zn, Pb, and Cd), chloride (Pb), and carbonate (Cd) (Halbwachs et al., 1982).

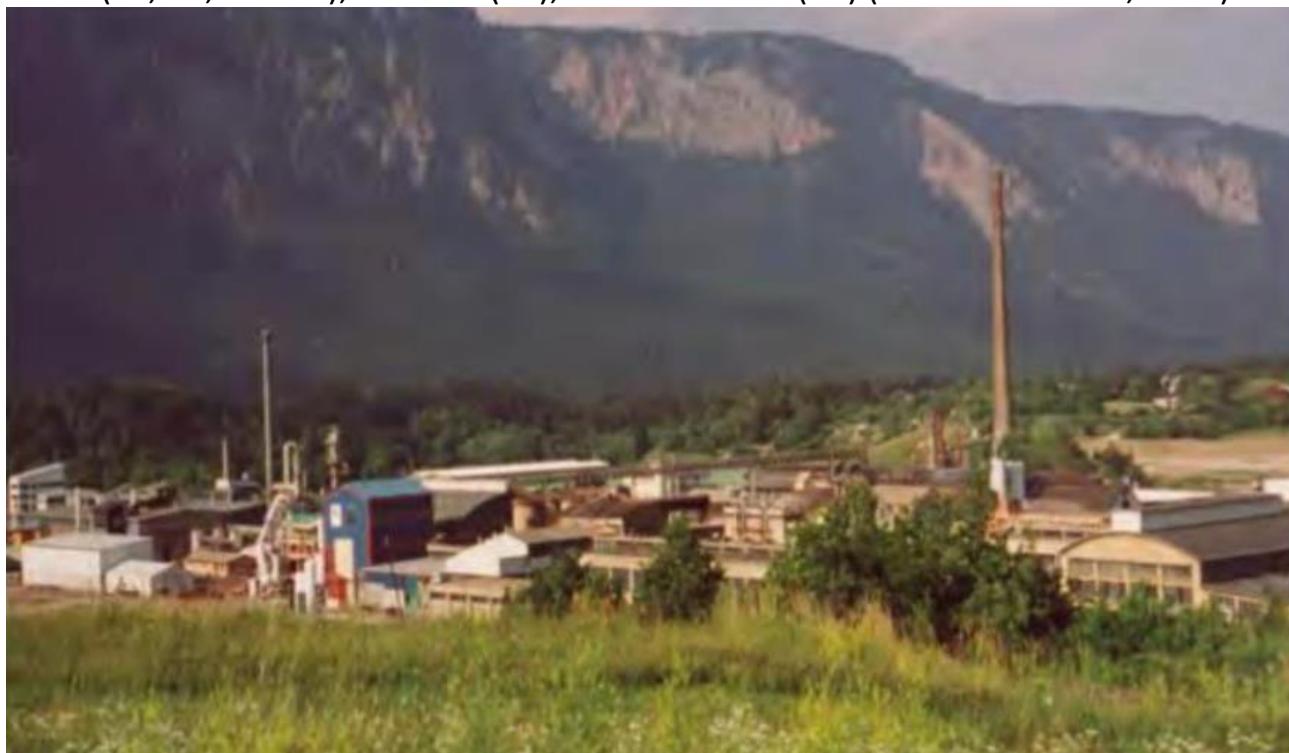


Figure 1: Lead smelter in Arnoldstein.

2.2 Geological setting

Arnoldstein ($46^{\circ}3'YN$, $13^{\circ}42'E$) is located in southern Carinthia, Austria, near the borders of Italy and Slovenia. The topography of the area is uniform at 560 m above sea level, except for some low hills originating from a landslide of the Villacher Alpe in 1348. Surrounding mountain ranges result in a typical, persistent inversion weather situation in autumn and winter. The heterogeneous soils were formed on prehistoric, limey material and replenished by glacial and alluvial sediments (Rabitsch, 1994). The surroundings of the Pb/Zn-smelter show different geological and pedological properties. Glacial sediments (**Figure 2**) covered the western part where mostly Dystric Cambisols (WRB) have developed.



Figure 2: Grassland in Arnoldstein used as experimental site.

2.3 Contaminants of concern

Toxic metals and its concentrations:

- Lead - 795 mg/kg,
- Cadmium - 4.5 mg/kg,
- Zinc - 484 mg/kg.



2.4 Regulatory framework

In Austrian legislation there is ÖNORM S 2088-2:2014 standard which deals with Contaminated sites - Part 2: Use-specific assessment of soil contamination from old sites and old landfills. In this standard guide values for pollutant levels in the soil (0-20cm) for plant production in the use class agriculture and horticulture. Lead level should not exceed 100mg/kg, cadmium 0.5 mg/kg and zinc 300 mg/kg. Reference values for assessing the mobilizable element content in the NH_4NO_4 extract of soil samples with regard to soil-plant transfer are also included. For lead 100 $\mu\text{g}/\text{kg}$ and Cadmium 40 $\mu\text{g}/\text{kg}$ value represent a risk of impairment of the quality of the food plants or fodder plants based on ÖNORM S 2088-2:2014.

3. Pilot-scale application in field

3.1 Soil washing system

Washing solution is made by 60 mM EDTA (65% of calcium form, 20% of acid form, 15 % of sodium form). Soil/water ratio is 1:1. Soil are after filtration in filter press 3 times rinsed with recycled solution from previous batch and at the end with fresh water. Fresh water was added to the system to compensate for the losses of process water: due to the moisture difference between the soil entering and leaving the process, water lost with the wet solid wastes, and the hydration of the quicklime (Figure 3).

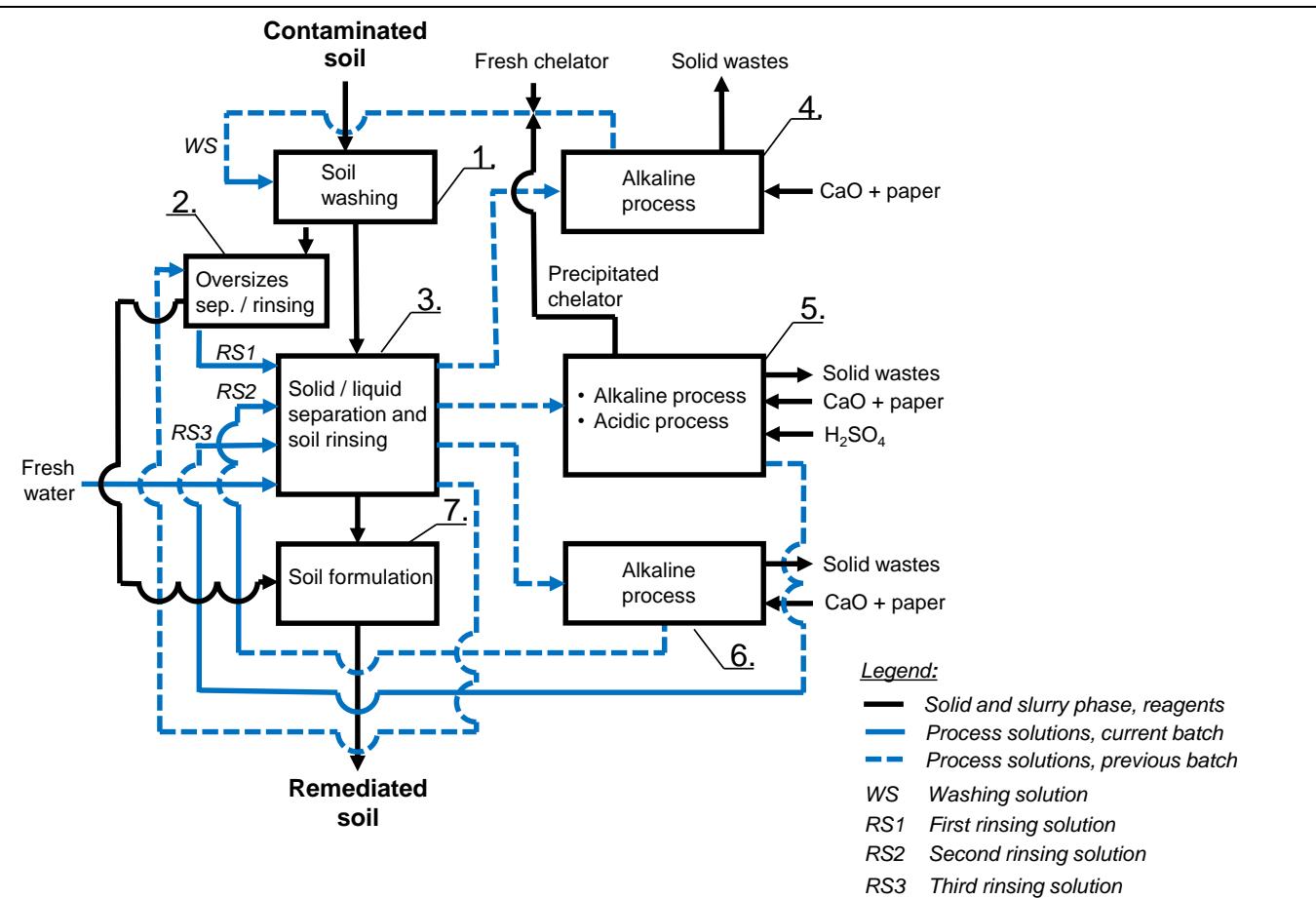


Figure 3: The flowchart of ReSoil® soil remediation process with material mass flows per batch. The used RS1 (uRS1) from the previous batch is not treated; it issued directly as RS1 in the current batch. The used WS (uWS), used RS2 (uRS2), and used RS3 (uRS3) are treated by alkalinization with quicklime (CaO, pH > 12, 30 min) to remove toxic metals and recycle the chelator in the form of Ca salt (steps 6, 7, 8). The uWS, uRS3 and uRS2 are treated with waste paper for alkaline adsorption of toxic metals. The waste paper is applied into the uRS2 in step 6 and separated from the solution (RS2) by a filter press after 10 min of adsorption reaction. The paper from step 6 is reused in the same way, first in step 7 and then in step 8. Solid waste: hydrated lime from step 6, 7, 8 and the final paper enriched with toxic metals from step 8 is removed from the process solutions by filtration and disposed of safely. The uRS3 is acidified to pH 2 in step 7 by adding 96% H₂SO₄ to precipitate and recover (120 min reaction time) the remaining chelator in acidic form by filter press. The recycled WS is then prepared by adding acidic and fresh chelator to compensate for the loss of chelator in the process: the chelator is removed with the waste and bound to ZVI in the soil solid phase. ReSoil® is designed as a close loop process (circular economy), everything is designed to have no negative impact on the environment, everything is emission free (no leakage, no gaseous emissions, only solid waste).

3.2 Feasibility study

The important parameter is difference between stability of EDTA-toxic metals complex and stability of chemicals form of toxic metals present in soil. The toxic metals which could not be removed by ReSoil® process are biological and chemical unattainable. Most of toxic metals after remediation is present in soil as soil minerals, which are inert and non-toxic.

Important parameter is also soil functionality and purpose to use soil as plant substrat after remediation:

Common biological indicators of soil quality (*Figure 4*) were used to assess soil functioning.

| | <u>Original</u> | <u>Remediated</u> |
|---|-----------------|-------------------|
| <u>pH (water)</u> | <u>5.86</u> | <u>7.14</u> |
| <u>SOC (%)</u> | <u>2.86</u> | <u>2.93</u> |
| <u>C/N</u> | <u>9.5</u> | <u>10.1</u> |
| <u>P₂O₅ (mg kg⁻¹)</u> | <u>116</u> | <u>63</u> |
| <u>K₂O (mg kg⁻¹)</u> | <u>91</u> | <u>132</u> |
| <u>Sand (%)</u> | <u>38.2</u> | <u>32.8</u> |
| <u>Silt (%)</u> | <u>47.2</u> | <u>49.9</u> |
| <u>Clay (%)</u> | <u>14.6</u> | <u>17.3</u> |
| <u>CEC_{eff} (cmol_c kg⁻¹)</u> | <u>13.4</u> | <u>11.3</u> |

Figure 4: Standard pedological analysis of soil.

3.3 Water Treatment

ReSoil® soil washing process does not produce waste water. All solution which are used are recyled in a closed process loop.

3.4 Control parameters

Field monitoring and sampling program that will adequately monitor the effectiveness of the treatment in three dimensions.

- Leaching of EDTA and metal complex from remediated soil.
- Checking soil rinsing efficiency in large filter press.

4. Full-scale application

4.1 Soil washing system

In ReSoil® (*Figure 5*) the soil is excavated and grid sieved to remove oversize material. Soil is washed in mixer to remove Pb and other toxic metals (Zn, Cd). Washing solution contain ethylenediamine tetraacetate (EDTA), as washing agent. The mechanisms of contaminants removal are explained bellow (*Figure 6*). In a downstream process, the washed soil will be rinsed in a filter press with three consecutive rinsing solutions recycled from the previous batch and with fresh water to compensate for water losses.

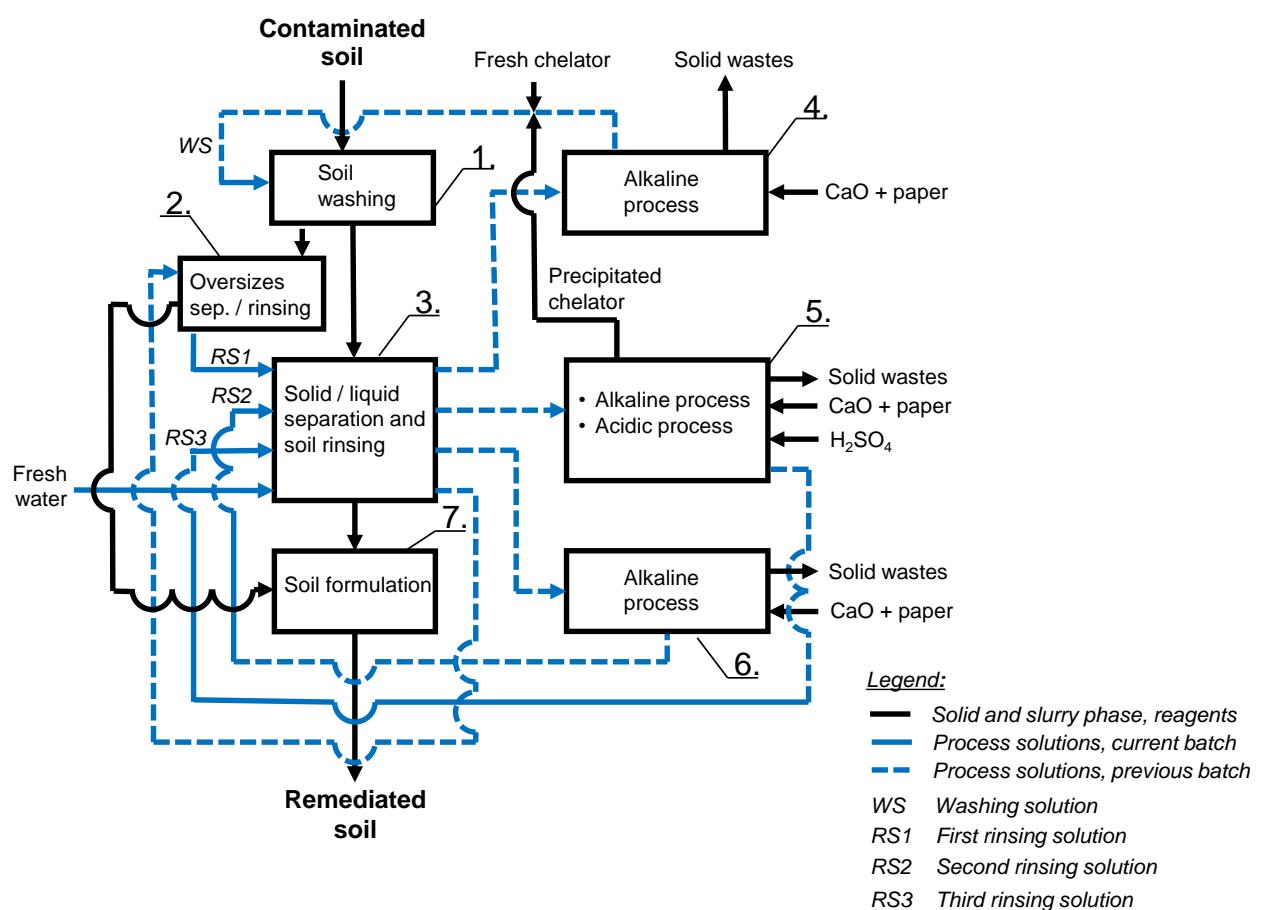
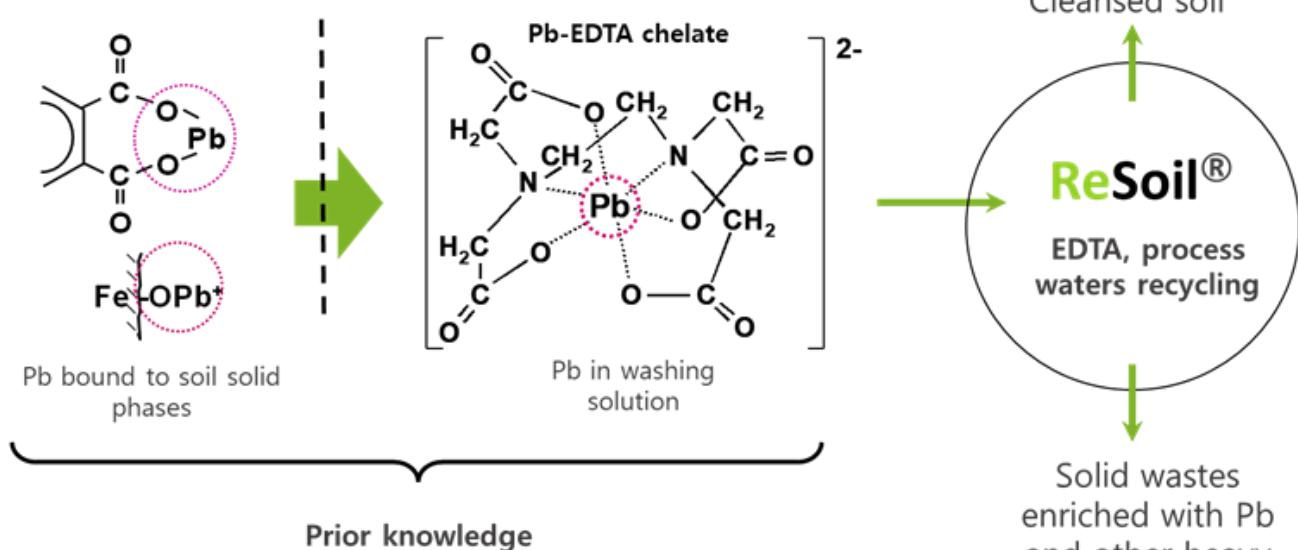


Figure 5: The flowchart of ReSoil® soil remediation process with material mass flows per batch.

ReSoil® technology – Pb example

EDTA-based soil-washing efficiently remove Pb and other heavy metals from soil:



- More than 20-years of research by many groups worldwide.
- No feasible technological solutions for EDTA recycling, for problems with vast amounts of waste waters, for EDTA environmental persistence and toxic emissions.

Figure 6: Example of successful Pb removal with ReSoil® technology.

Washing solution is made by EDTA (65% of calcium form, 20% of acid form, 15 % of sodium form). Soil/water ratio is 1:1. Soil are after filtration in filter press 3 times rinsed with recycled solution from previous batch and at the end with fresh water. Fresh water was added to the system to compensate for the losses of process water (**Figure 7**): due to the moisture difference between the soil entering and leaving the process, water lost with the wet solid wastes, and the hydration of the quicklime.



Figure 7: Stationary ReSoil® facility with capacity of 6 t/day constructed under [LIFE+ programme](#).

The used RS1 (uRS1) from the previous batch is not treated; it issued directly as RS1 in the current batch. The used WS (uWS), used RS2 (uRS2), and used RS3 (uRS3) are treated by alkalinization with quicklime (CaO , $\text{pH} > 12$, 30 min) to remove toxic metals and recycle the chelator in the form of Ca salt (steps 6, 7, 8). The uWS, uRS3 and uRS2 is treated with waste paper for alkaline adsorption of toxic metals. The waste paper is applied into the uRS2 in step 6 and separated from the solution (RS2) by a filter press after 10 min of adsorption reaction. The paper from step 6 is reused in the same way, first in step 7 and then in step 8. Solid waste: hydrated lime from step 6, 7, 8 and the final paper enriched with toxic metals from step 8 is removed from the process solutions by filtration and disposed of safely. The uRS3 is acidified to pH 2 in step 7 by adding 96% H_2SO_4 to precipitate and recover (120 min reaction time) the remaining chelator in acidic form by filter press. The recycled WS is then prepared by adding acidic and fresh chelator to compensate for the loss of chelator in the process: the chelator is removed with the waste and bound to ZVI in the soil solid phase. Process is made in closed cycle loop (described above). In demonstrational plant (**Figure 7**) we are able remediated 1 ton of soil per day, with possibility to work 6 ton per day.

4.2 Feasibility study

The feasibility of ReSoil® novel soil remediation technology can be made in small scale. Only 1kg of soil is needed to make pre-treatment experiential to check efficiency of EDTA (concentration selection of EDTA).

4.3 Water Treatment

ReSoil® soil washing process does not produce waste water. All solution which are used are recycled in a closed process loop.

4.4 Control parameters

Field monitoring and sampling program that will adequately monitor the effectiveness of the treatment in three dimensions.

To assess the removal efficiency, the contaminants of concern are measured at the output of any washing cycle. Remediated soil water extraction test is used for assessing soil leaching suitability, by measuring toxic metals and EDTA concentration in extracts.

5. Results

5.1 Removal rate

The average concentrations of toxic metals were 759 mg/kg Pb, 484 mg/kg Zn and 4.5 mg/kg Cd in the original soil and 189 mg/kg Pb, 409 mg/kg Zn and 2.4 mg/kg Cd in the remediated soil. On average, remediation reduced the concentration of Pb, Zn and Cd by 76, 15 and, 47%, respectively. Zn removal was characterized by lower extractability, likely due to the predominant Zn association with non-labile soil fractions.

The mobilizable element content in the NH₄NO₃ extract of soil samples with regard to soil-plant transfer was reduced for lead by 61.3 %, cadmium 63,3% and zinc 97,7%.

Overall, the sequential extraction results suggest that most of the toxic metals remaining in the soil after ReSoil® were allocated in non-labile soil fractions, making them less accessible and hazardous.

6. Post treatment and/or Long Term Monitoring

6.1 Post treatment and/or Long Term Monitoring

We conducted raised (demonstrational) bed experiments (*Figure 8*). Demonstrational beds filled with homogenised remediated soil are constructed as lysimeters with drainage system for collection / sampling of soil leachates. The purpose of lysimeter beds was to demonstrate through monitoring that ReSoil® process does not produce toxic emissions / leachates e.g. prevents emissions into environment. Fast growing, all season plant species e.g. buckwheat were used. Lysimeters are installed in beds for easy to sample leachate collection: toxic metals and EDTA in leachates were measured.

We monitored different parameters like:

- a. leaching of toxic metals and EDTA
- b. soil physical properties
- c. soil biological properties (microbial activity)
- d. plant growth and toxic metal accumulation



Figure 8: Vegetable garden with remediated soil as a concept of post treatment as a/or longterm monitoring.
The growth of chiness cabbage and beans is depicted.

Remediation enables growth of healthy and safe vegetables on Arnoldstein soil. Toxic metal uptake in Spinach, Radish, Chinese Cabbage and Bush Beans was reduced by over 80%. Biomass production on the remediated soil was systematically increased for all vegetables.



7. Additional information

7.1 Lesson learnt

1) methodology and procedures

Procedure was very effective, there was no problems with recycling solutions. Equipment even on larger scale did here job as it should. There is some room for improvement of reduction dangerous waste after solutions recycling.

2) technical aspects

Transferring contaminated soil through border. After excavation soil is managed as hazardous waste and a lot of papers is needed to transfer soil from one country to another.

3) organizational aspects

From organizational aspect we can say that it is very important to use right dissemination of the procedures. If local people are scared of your process is hard to work in that environment.

7.2 Additional information

Toxic metal fractionation, more mobile fraction better success of remediation.

7.4 Additional remarks

Remediated soil as an active ecosystem

Analysis of soil total C and N, DOC, NH₄, NO₃, microbial community (total microbial biomass, PLFA) and soil respiration indicated higher ecosystem activity and C/N turnover in remediated soil. Key soil micro- and mesofauna was preserved.

Glossary of Terms

| Term (alphabetical order) | Definition |
|--------------------------------|------------------------------|
| ZVI (Fe ⁰) | Zero valent iron |
| EDTA | ethylenediamine tetraacetate |
| H ₂ SO ₄ | Sulfuric acid |
| CaO | Quick lime |