

DURCHSTRÖMUNG UND DIFFUSION IN TONEN

Flow and Diffusion in Clays

W. DEGEN & R. HASENPATT

Institut für Grundbau und Bodenmechanik
ETH-Zürich
8093 Zürich

KURZFASSUNG

Grundsätzlich können in einem Ton zwei verschiedene Transportmechanismen unterschieden werden:

1. Die Diffusion, deren treibende Kraft im Konzentrationsgefälle der diffundierenden Ionen besteht.
2. Die Durchströmung, deren treibende Kraft durch ein Wasserdrukgefälle entsteht.

Diese Transportphänomene werden für den stationären und instationären Fall miteinander verglichen.

Die Übereinstimmungen der Diffusion und Durchströmung und ihre Unterschiede werden anhand eines Beispiels vorgeführt; die mathematischen Lösungen werden unter verschiedenen Randbedingungen dargestellt. Desweiteren werden die Veränderungen, die ein quellfähiger Ton unter dem Einfluss eines chemisch belasteten Wassers erfahren kann, an einem extremen Beispiel vorgestellt.

$$q_h = k_H \cdot i_h \cdot A \quad (\text{Gl. 2.1})$$

$$\text{cm}^3/\text{s} = \text{cm}/\text{s} \cdot \text{cm}/\text{cm} \cdot \text{cm}^2$$

mit q_h = Durchflußmenge [cm^3/s]
 k_h = Durchlässigkeitsbeiwert [cm/s]
 i_h = Gradient [cm/cm]
 A = Durchflußfläche [cm^2]

Bei der Diffusion findet ein Ionentransport einer Konzentration c [mol/cm^3], bedingt durch ein Konzentrationsgefälle i_s [$\text{mol}/\text{cm}^3/\text{cm}$] mit der Menge J_S [mol/s] in einer bestimmten Zeit über die Fläche A [cm^2] statt und wird mit dem 1. Fick'schen Gesetz beschrieben (Bild 2).

$$J_S = D_S \cdot i_s \cdot A \quad (\text{Gl. 2.2})$$

$$\text{mol}/\text{s} = \text{cm}^2/\text{s} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}/\text{cm} \cdot \text{cm}^2$$

$$= \text{cm}^2/\text{s} \cdot \text{mol}/\text{cm}^4 \cdot \text{cm}^2$$

mit J_S = Durchflußmenge [mol/s]
 D_S = Diffusionskoeffizient [cm^2/s]
 i_s = Gradient [$\text{mol}/\text{cm}^3/\text{cm}$]
 A = Durchflußfläche [cm^2]

k_h und D_S stellen die Proportionalitätsfaktoren dar, deren Zahlenwerte aus den empirisch ermittelten Daten q_h , i_h und A bzw. J_S , i_s und A berechnet werden. Durch die unterschiedlichen Inhalte eines Flusses im Fall der Durchströmung und einer Konzentration im Fall der Diffusion lassen sich k_h und D_S durch ihre Dimensionen nicht vergleichen.

k_h und D_S werden jeweils für einen bestimmten Boden oder Ton bei Sättigung mit einer definierten Dichte γ oder einem bestimmten Wassergehalt bestimmt.

3. VERGLEICH DURCHSTRÖMUNG UND DIFFUSION IM INSTATIONÄREN ZUSTAND

Im Falle instationärer Durchströmung oder Diffusion sind die den Transport beschreibenden Gleichungen komplizierter als im stationären Fall.

Dies liegt daran, daß sich Wasserdruck bzw. Ionenkonzentration sowohl zeitlich als auch räumlich ständig ändern.

Bei der Lösung des Problems führt dies zu der bekannten partiellen Differentialgleichung zweiter Ordnung in Weg und Zeit:

$$dx/dt = \text{const} \cdot d^2x/dz^2 \quad (\text{Gl. 3.1}),$$

wobei man für x im Falle der Diffusion die Ionenkonzentration c , im Falle der Durchströmung (Konsolidation) den Porenwasserüberdruck Δu einzusetzen hat.

Gleichung 3.1 kann man entweder iterativ-numerisch oder analytisch unter Zugrundelegen gewisser Lösungsfunktionen (Errorfunktion) relativ einfach berechnen.

Die Hauptschwierigkeit ist deshalb nicht die eigentliche Lösung der Gleichung 3.1, sondern die vernünftige Annahme der geeigneten zeitlichen und räumlichen Randbedingungen des Problems. Diese Randbedingungen sollen im folgenden anhand von zwei konkreten Beispielen erläutert werden.

Hierzu wird ein Problem aus der Praxis des Grundbaues einem Diffusions-Laborversuch gegenübergestellt.

Grundbauliches Problem

Auf einem tonigen Untergrund soll eine Straße erstellt werden. Hierzu wird ein Damm geschüttet, der den Ton mit der Spannung $\Delta \sigma$ [kN/m^2] plötzlich belastet (s. Bild 3).

ABSTRACT

Generally, two transport mechanisms can be distinguished in a clay.

1. Diffusion, for which the propelling force is the concentration gradient of the diffusing ions.
2. Flow, for which the propelling force is the water pressure gradient.

These two transport phenomena are compared for the stationary and transient cases.

The similarities and differences between diffusion and flow are demonstrated in an example. The mathematical solutions for the different boundary conditions are explained.

Finally, the changes in a clay caused by chemically contaminated water are demonstrated in an extreme example.

1. EINLEITUNG

Die Bedeutung von Tonen als Barrierematerial für Abfalldeponien ist in den vergangenen Jahren ständig gestiegen. Im folgenden wird bewußt von Barrierematerial und nicht von Abdichtmaterial gesprochen, da vielleicht eine ausreichende, nie aber eine völlige Undurchlässigkeit der Tonbarriere erreicht werden kann.

Über die Veränderungen eines Tones in Kontakt mit Abfällen war bislang recht wenig bekannt. Die Tone wurden vor allem wegen ihrer extrem geringen Durchlässigkeit zur Isolierung von Schadstoffen zum Schutz vor einem Eintritt in die Biosphäre durch das Grundwasser eingesetzt. Durch die erhöhte Sensibilisierung in Fragen des Umweltschutzes wurden in jüngster Zeit Altlasten und ungeordnete Deponien verstärkt analysiert. Immer wieder wurden

Schadensfälle über Kontaminationen des Bodens unter natürlichen oder künstlich erstellten tonigen Deponiebarrieren registriert.

Schadensfälle über Kontaminationen des Bodens unter natürlichen oder künstlich erstellten tonigen Deponiebarrieren registriert.

Deshalb stellt sich die Frage, nach welchen Mechanismen und in welcher Zeit Schadstoffe durch eine als dicht angesehene Barriere migrieren können.

Grundsätzlich können zwei Mechanismen unterschieden werden:

1. Die Diffusion, deren treibende Kraft im Konzentrationsgefälle der diffundierenden Ionen besteht.
2. Die Durchströmung, deren treibende Kraft durch ein Wasserdruckgefälle entsteht.

2. VERGLEICH DURCHSTRÖMUNG UND DIFFUSION IM STATIONÄREN ZUSTAND

Die stationäre Diffusion beschreibt ebenso wie die stationäre Durchströmung eine Massenbewegung zwischen zwei Punkten mit verschiedenen Potentialen ohne zeitliche und räumliche Änderungen der Konzentration oder der Wassermenge.

Unter "Potential" wird im folgenden ganz allgemein ein bestimmtes Energieniveau, und nicht, wie in der Bodenmechanik üblich, nur ein bestimmtes Druckniveau verstanden.

Für den stationären Zustand wird die Durchlässigkeit durch das Gesetz von Darcy und die Diffusion durch das 1. Fick'sche Gesetz beschrieben.

Die Analogien in den beiden Gesetzen lassen sich in den Modellen der Durchströmung und der Diffusion am besten über ihre Dimensionen aufzeigen. Gleichzeitig werden auch die Unterschiede deutlich; nach Darcy wird bei der Durchströmung ein Wasser- oder Flüssigkeitsfluss, bedingt durch ein Gefälle oder Potential i_h [cm/cm], mit der Menge q_h [cm/s] in einer vorgegebenen Zeit über die Fläche A [cm²] transportiert (Bild 1).

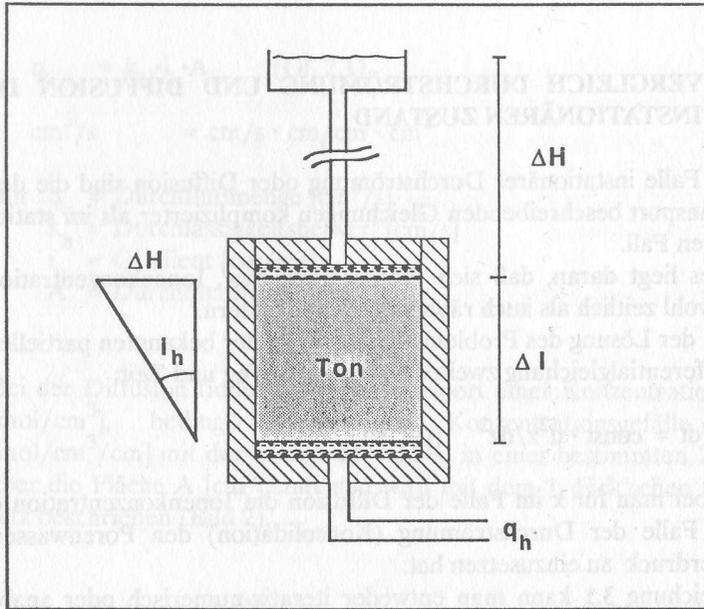


Bild 1: Stationäre Durchströmung

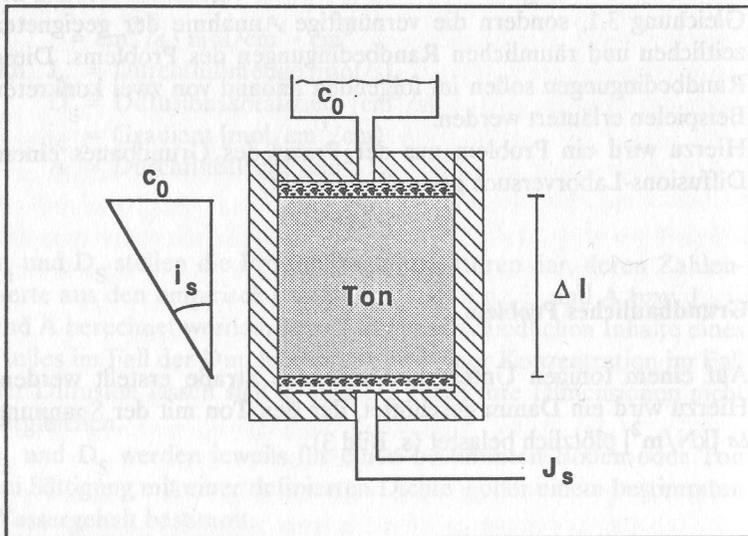


Bild 2: Stationäre Diffusion

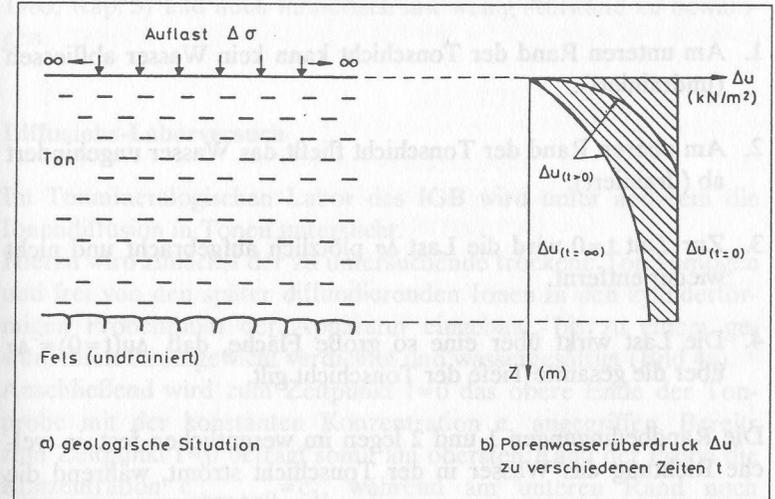


Bild 3: Grundbauliches Problem

Da der Ton als vollständig gesättigt angenommen wird und das Wasser verglichen mit dem Teilchengerüst des Tones als inkompressibel gelten kann, wird zum Zeitpunkt $t=0$ über die gesamte Höhe der Tonschicht schlagartig ein Porenwasserüberdruck $\Delta u_{(t=0)} = \Delta \sigma$ aufbauen (s. Bild 3).

Dieser Druck wird daraufhin über die Zeit entsprechend den Kurven in Bild 3b abgebaut.

Der zeitliche Druckabbau gehorcht dabei Gleichung 3.1 in der folgenden modifizierten Form:

$$d\Delta u/dt = c_v \cdot d^2\Delta u/dz^2 \quad (\text{Gl. 3.2}),$$

dabei ist $c_v = k \cdot M_E / \gamma_W$

mit $\Delta u =$ Porenwasserüberdruck $[\text{kN}/\text{m}^2]$

$c_v =$ Konsolidationsbeiwert $[\text{m}^2/\text{s}]$

$z =$ Tiefe ab OK-Terrain $[\text{m}]$

$M_E =$ Zusammendrückungsmodul des Bodens $[\text{kN}/\text{m}^2]$

$k =$ Wasserdurchlässigkeitsbeiwert $[\text{m}/\text{s}]$

$\gamma_W =$ Raumgewicht des Wassers $[\text{kN}/\text{m}^3]$

Die Randbedingungen sind im vorliegenden Fall die folgenden:

1. Am unteren Rand der Tonschicht kann kein Wasser abfließen (undrainiert).
2. Am oberen Rand der Tonschicht fließt das Wasser ungehindert ab (drainiert).
3. Zur Zeit $t=0$ wird die Last $\Delta\sigma$ plötzlich aufgebracht und nicht wieder entfernt.
4. Die Last wirkt über eine so große Fläche, daß $\Delta u(t=0) = \Delta\sigma$ über die gesamte Tiefe der Tonschicht gilt.

Die Randbedingungen 1 und 2 legen im wesentlichen fest, in welche Richtung das Wasser in der Tonschicht strömt, während die

Randbedingungen 3 und 4 etwas über die Verteilung der Potentialdifferenz aussagen, unter der die Strömung auftritt.

Der Bauingenieur benötigt oft Kenntnis über den zeitlichen Abbau der Porenwasserüberdrücke $d\Delta u/dt$, da die zeitliche Setzung der Bodenoberfläche unter der Last proportional zum Abbau dieser Drücke verläuft.

Im konkreten Beispiel könnte also gefragt sein, zu welchem Zeitpunkt die Setzungen unter dem Damm bis auf ein bestimmtes Mass abgeklungen sind, so daß man den Straßenbelag aufbringen kann ohne Setzungsriße zu befürchten.

Zur Beantwortung dieser Frage wird aus der Tonschicht eine Bodenprobe entnommen und in dieser die Parameter k und M_E in Oedomerversuchen bestimmt.

Mit der recht weitgehenden Annahme, daß das Produkt $k \cdot M_E$ unabhängig von der Zusammendrückung des Tones konstant bleibt, ist Gleichung 3.2 sofort lösbar und damit der zeitliche Verlauf von Δu bekannt.

Die Lösungen des beschriebenen Problems sind für die verschiedensten Randbedingungen tabelliert (LANG & HUDER,

1985, Kap. 5) und auch numerisch mit wenig Aufwand zu bewältigen.

Diffusions-Laborversuch

Im Tonmineralogischen Labor des IGB wird unter anderem die Ionendiffusion in Tonen untersucht.

Hierzu wird zunächst der zu untersuchende trockene Ton homogen und frei von den später diffundierenden Ionen in den zylinderförmigen Probenraum der Apparatur eingebaut, bis zu einem gewünschten Raumgewicht verdichtet und wassergesättigt (Bild 4a).

Anschließend wird zum Zeitpunkt $t=0$ das obere Ende der Tonprobe mit der konstanten Konzentration c_1 angegriffen. Bereits zum Zeitpunkt $t=0$ beträgt somit am obersten Rand der Probe die Konzentration $c_{\text{oben}, t=0} = c_1$, während am unteren Rand noch $c_{\text{unten}, t=0} = 0$ gilt (s. Bild 4b).

Im Laufe der Zeit diffundieren die Ionen in Richtung auf das untere Ende der Probe und die Ionenkonzentrationen nehmen entsprechend den Kurven in Bild 4b zu.

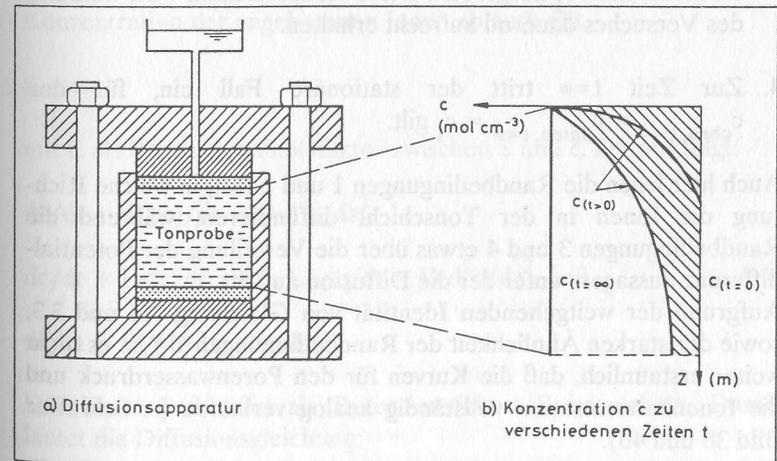


Bild 4: Diffusions-Laborversuch

Die zeitliche Zunahme der Ionenkonzentration gehorcht dabei wiederum der Gleichung 3.1 in der folgenden modifizierten Form:

$$dc/dt = D \cdot d^2c/dz^2 \quad (\text{Gl. 3.3}),$$

mit D = Diffusionsbeiwert [m^2/s]
 c = Lösungskonzentration [mol/cm^3]
 z = Tiefe ab OK-Terrain [m]

Die Randbedingungen sind vergleichbar mit denen des oben beschriebenen grundbaulichen Problems und sind im folgenden in der Reihenfolge entsprechend dieser Analogie durchgeführt:

1. Am unteren Rand der Probe beträgt die Anfangskonzentration $c_{\text{unten}, t=0} = 0$.
2. Am oberen Rand der Probe beträgt die Anfangskonzentration $c_{\text{oben}, t=0} = c_1$.
3. Zur Zeit $t=0$ wird die Probe plötzlich einer Lösung mit der Konzentration c_1 ausgesetzt. Diese Konzentration wird während des Versuches dauernd aufrecht erhalten.
4. Zur Zeit $t=\infty$ tritt der stationäre Fall ein, für den $c_{\text{oben}, t=\infty} = c_{\text{unten}, t=\infty} = c_1$ gilt.

Auch hier legen die Randbedingungen 1 und 2 fest, in welche Richtung die Ionen in der Tonschicht diffundieren, während die Randbedingungen 3 und 4 etwas über die Verteilung der Potentialdifferenz aussagen, unter der die Diffusion auftritt.

Aufgrund der weitgehenden Identität von Gleichung 3.2 und 3.3, sowie der starken Ähnlichkeit der Randbedingungen 1-4 ist es nicht weiter erstaunlich, daß die Kurven für den Porenwasserdruck und die Ionenkonzentration vollständig analog verlaufen (s. Schraffur Bild 3b und 4b).

Ein methodischer Unterschied besteht darin, daß im grundbaulichen Problem der Beiwert $c_v = k \cdot M_E / \gamma_W$ aus Oedometerversu-

chen bekannt ist, und der linke Teil der Gleichung ($d\Delta u/dt$) gesucht wird, während man im Diffusionsversuch den Beiwert D nicht kennt und dafür den linken Teil der Gleichung (dc/dt) im Versuch mißt.

Hierzu wird ein Diffusionsversuch mehrfach durchgeführt und nach verschiedenen Diffusionszeiten t abgebrochen.

Anschließend wird für jeden Versuch die Verteilung der Ionenkonzentration über die Probenhöhen bestimmt.

Damit erhält man ein Konzentrationsprofil über die Probe zu verschiedenen Zeiten t und kennt hierdurch einzelne Punkte der Lösungsfunktion $c=f(t,z)$ der Gleichung 3.3.

Im weiteren soll kurz auf die gebräuchlichsten Lösungsansätze für die instationäre Diffusion eingegangen werden.

Neben der Diffusion werden Ionen auf der Oberfläche der Tonteilchen adsorbiert, dabei wird die Adsorption durch den Wert S beschrieben. S entspricht somit der Menge der auf der Tonoberfläche

adsorbierten Ionen. Daraus folgt die Diffusionsgleichung:

$$dc/dt + dS/dt = D \cdot d^2c/dz^2$$

Unter der Annahme, daß die Adsorption proportional zur Konzentration der angebotenen Ionen abläuft, gilt

$$S = Lc$$

mit L als Proportionalitätsfaktor zwischen S und c . Daraus folgt:

$$dc/dt + d(Lc)/dt = D \cdot d^2c/dz^2$$

$$dc/dt + L \cdot dc/dt = (1+L) \cdot dc/dt = D \cdot d^2c/dz^2, L \geq 0$$

$$dc/dt = D/(1+L) \cdot d^2c/dz^2$$

Der Term $1+L$ wird als Retentionsfaktor R bezeichnet. Damit lautet die Diffusionsgleichung:

$$dc/dt = D/R \cdot d^2c/dz^2$$

Der durch die Adsorption um den Faktor $R = 1+L$ kleinere Diffusionskoeffizient D wird durch den "apparanten" Diffusionskoeffizienten D_{app} ersetzt (KAHR et al., 1985).

$$dc/dt = D_{app} \cdot d^2c/dz^2$$

Der apparente Diffusionskoeffizient konnte bisher nur unter instationären Bedingungen gemessen werden und läßt sich nicht ohne weiteres auf den stationären Fall übertragen (KAHR et al., 1985).

Diffusion und Durchströmung

Oft wird die instationäre Diffusion von einer gleichzeitigen Durchströmung mit der Geschwindigkeit v überlagert. Diese Durchströmung kann additiv sein, d.h. in der gleichen Richtung verlaufen oder der Diffusion entgegenwirken (GRAY & WEBER, 1984).

Die überlagerte Durchströmung wird in der Diffusionsgleichung wie folgt berücksichtigt:

$$dc/dt = D \cdot d^2c/d(z-vt)^2$$

mit v = Geschwindigkeit der Porenflüssigkeit

4. BEISPIEL DER VERÄNDERUNG EINES REINEN BENTONIT DURCH DIFFUSION KATIONISCHER DETERGENTIEN

Die Veränderungen der bodenmechanischen Eigenschaften, die ein reiner Ton durch die Diffusion und Anlagerung von chemischen Verbindungen erfahren kann, soll an einem Beispiel dargestellt werden. Einleitend wird darauf hingewiesen, daß dieses Experiment im Labor unter extremen Bedingungen durchgeführt wurde, um den konservativen Fall der Veränderungen einer tonigen Barriere darzustellen (HASENPATT, 1988).

Es soll durch dieses Beispiel auf die Gefahren hingewiesen werden, die beim Einsatz von Tonen langfristig auftreten können und zeigen, daß die Zusammenarbeit zwischen Tonmineralogen und Bauingenieuren bei der Auswahl des Barrierematerials sinnvoll und notwendig erscheint.

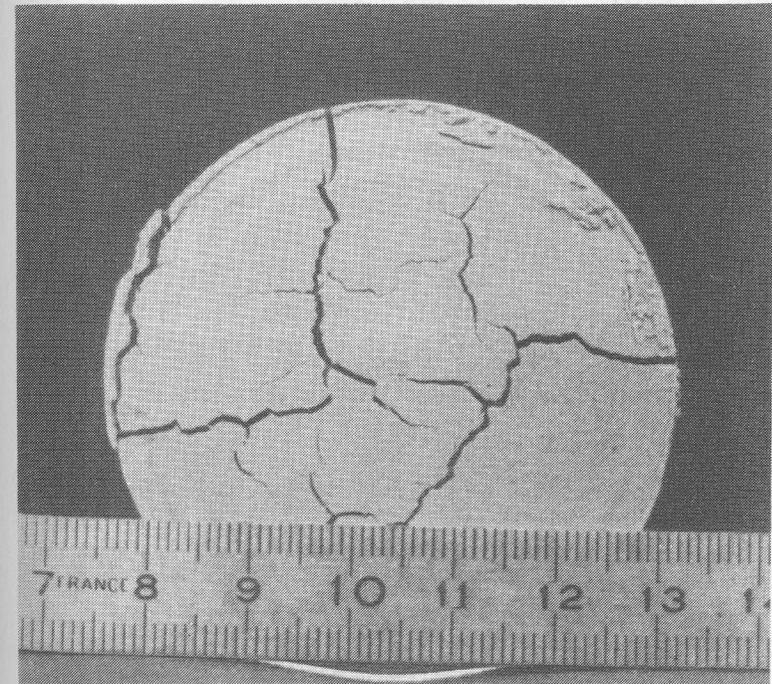


Bild 5: Schrumpfrisse in einer Bentonitprobe nach Diffusion von Dodecyldiammonium

In einer Diffusionszelle wurde einem Probekörper aus Kalziumbentonit einseitig eine 0,3 molare Dodecyldiammoniumlösung angeboten. Diese Verbindung fällt u.a. als ein Abfallprodukt

in der Seifenindustrie an und hat die chemische Zusammensetzung $(\text{NH}_3)_2\text{C}_{12}\text{H}_{24}$. Nach einer 16-tägigen Diffusionszeit wurde die Probe ausgebaut und zeigte beim Ausbau im wassergesättigten Zustand die auf Bild 5 deutlich erkennbaren Risse.

Nach dem Ausbau wies der wassergesättigte Bentonitprobekörper (Annahme $S_r = 1$) einen Wassergehalt von 59% und eine Feuchtraumdichte von $\gamma = 16,1 \text{ kN/m}^3$ auf. Der apparente Diffusionskoeffizient wurde unter den obengenannten Randbedingungen (Kap. 3) aus der Konzentrationsverteilung des Dodecyldiammoniums berechnet und betrug $5,3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$.

Interpretation

Durch die Einlagerung der Dodecyldiammoniumkette wird der Schichtabstand von 2,0 auf 1,3 nm zusammengezogen und bewirkt durch diese Kontraktion des Zwischenschichtraumes eine Zunahme des Porenraumes, d.h. des Raumes zwischen den Tonteilchen, die sich als Rißbildung zeigen kann.

Ob solche Riße in wirklichen Barrieren auftreten, hängt unter anderem vom vorhandenen Spannungszustand des Tones ab.

Nicht nur im Zwischenschichtraum werden die Kohlenwasserstoffketten eingelagert. Auch an den äußeren Oberflächen findet eine Anlagerung statt, die einzelne Montmorillonitkristalle verknüpft und stabile Aggregate bildet, die auch im Ultraschall nicht getrennt werden können.

Durch den Kationenaustausch der Kaliumionen gegen die Kohlenwasserstoffkette bildete sich also aus dem Ton durch Aggregation ein siltiges Material. Diese Veränderung in der Korngrößenverteilung vom Ton in einen Silt zeigt sich in einer erhöhten Durchlässigkeit des umgewandelten Materials.

5. BEURTEILUNG DER FUNKTION EINER TONIGEN BARRIERE

Unter extremen Bedingungen können Tone und speziell quellfähige Tone im Kontakt mit Sickerwässern ihre tonmineralogischen und bodenmechanischen Eigenschaften verändern und die für eine Barrierefunktion notwendigen und gewünschten Verhaltensweisen verlieren.

Nach der Umwandlung des Tones bei der Migration einer Schadstoff-Front durch eine Barriere treten hohe Durchlässigkeiten auf, die den Rückhalteanforderungen an eine Tonschicht nicht mehr entsprechen. Durch den Verlust der Quellfähigkeit, d.h. durch eine irreversible Kontraktion der Schichten durch Einlagerung chemischer Verbindungen in quellfähige Tone, kann es zur Ausbildung von Schrumpfrissen kommen, wie sie auf Bild 5 zu sehen sind. In diesem Beispiel ist zwar reiner Bentonit verwendet worden, die Versuche wurden jedoch mit verdünnten Lösungen durchgeführt, deren Ionenkonzentrationen durchaus in Sickerwässern auftreten können. Das Beispiel soll zeigen, daß Ton als Barriermaterial nicht ohne Kenntnis seiner bodenmechanischen Parameter und deren möglichen Veränderungen eingesetzt werden sollte. Es bietet sich an, durch den Bau mehrschichtiger Tonbarrieren dem Sickerwasser selektiv Schadstoffe zu entziehen.

Um ein toniges Barriermaterial beurteilen zu können, sollten die wichtigsten tonmineralogischen und bodenmechanischen Parameter bestimmt werden, diese sind:

- Art der Tonminerale und ihr mengenmäßiger Anteil
- Kationenbelegung und Kationenaustauschfähigkeit des tonigen Materials
- Durchlässigkeit des chemisch unbeeinflussten Materials sowie des gleichen Materials nach vollständiger Umwandlung mit einem synthetischen oder natürlichen Sickerwasser, das in der Zusammensetzung den erwarteten Bedingungen nahekommt

- Plastizitätsgrenzen
- Quell- und Schrumpfvverhalten
- der apparente Diffusionskoeffizient im instationären Bereich unter Diffusions- und Durchströmungsbedingungen

6. LITERATUR

- ABRAMOWITZ, M.; STEGUN, I.A. (1965): Handbook of Mathematical Functions.- Dover, New York.
- DARCY, H. (1856): Les fontaines publiques de la ville de Dijon.- Paris, Dalmont.
- GRAY, D.H.; WEBER, W.J. (1984): Diffusional Transport of Hazardous Waste leachate across Clay Barriers.- 7th Annual Madison Waste Conf. Municipal and Industrial Waste, 11-12.
- HASENPATT, R. (1988): Bodenmechanische Veränderungen reiner Tone durch Adsorption chemischer Verbindungen.- Mitt. des IGB der ETH Zürich, Nr. 134.
- KAHR, G.; HASENPATT, R.; MÜLLER-VONMOOS, M. (1985): Ionendiffusion in hochverdichtetem Bentonit.- Nagra Techn. Bericht 85-23, Baden.
- LANG, H.-J.; HUDER, J. (1985): Bodenmechanik und Grundbau.- Springer, Berlin.
- OGATA, A.; BANKS, R.B. (1961): A solution of the differential equation of longitudinal dispersion in porous media.- USGS Prof. Paper 411-A.