

- Ross, C.S. & E.V. Shannon (1926): Minerals of bentonite and related clays and their physical properties
J. Am. Ceram. Soc. **9**, 77-96
- Ross, C.S. & P.F. Kerr (1931): The kaolin minerals
U.S. Geol. Surv., Profess. Paper **165E**, pp. 151-175
- Ross, C.S. & P.F. Kerr (1934): Halloysite and allophane
U.S. Geol. Surv., Profess. Paper **185G**, pp. 135-148
- Schachtschabel, P. (1937): Mikroskopische und röntgenographische Untersuchungen von Böden
Bodenkde. und Pflanzenernährung **5(50)**, 375-389
- Schwarz, R. & Walker (1925): Über die Genesis der natürlichen Aluminiumhydroxysilicate
Z. anorg. u. allg. Chemie **304-310**
- Schwarz, R. & G. Trageser (1932): Über die künstliche Umwandlung von Feldspat in Kaolin
Z. anorg. u. allg. Chemie **215**, 190-200
- Stremme, H. (1912): Die Chemie des Kaolins
Fortschr., Min., Krist. u. Petrogr. **2**, 83-128
- Wada, I. (1967): A structural scheme of soil allophane
Amer. Mineral. **52**, 690-708
- Wada, K. & Y. Tokashiki (1972): Selective dissolution and difference infrared spectroscopy in quantitative mineralogical analysis of volcanic-ash soil clays
Geoder. **7**, 149-213
- Wada, S.I. & K. Wada (1980): Formation, composition and structure of hydroxy-aluminosilicate ions
J. Soil Sci. **31**, 457-467
- Wada, S.I. (1987): Imogolite synthesis at 25 °C
Clays Clay Min. **35**, 379-384
- Way, J.T. (1852): On the power of soils to absorb manure
J. Roy. Agr. Soc. (Engl.) **13**, 123-143

METHODEN ZUR UNTERSUCHUNG DER DIFFUSION IN REINEN TONEN

Ruth Degen

Institut für Grundbau und Bodenmechanik der ETH Zürich
ETH Hönggerberg, CH-8049 Zürich

Abstract

The methods for diffusion tests under a nitrogen atmosphere are demonstrated for Fe²⁺-ions in highly compacted bentonite. The application of the measured parameters in the diffusion-dispersion equation and the extrapolation of the results for long-time behaviour are presented.

Zusammenfassung

Die Diffusion von Eisen-II-Ionen in hochverdichteten Bentoniten in Stickstoffatmosphäre wurde als Modellversuch für Diffusionstests angesehen. Es werden die Verwendbarkeit der gemessenen Parameter in der Diffusions-Dispersionsgleichung und die Extrapolationsmöglichkeiten der Ergebnisse auf das Langzeitverfahren geprüft.

1 Danksagung und Einleitung

Für die Auszeichnung durch den Karl-Jasmund-Preis, der mir für Arbeiten auf dem Gebiet der bodenmechanischen Veränderungen reiner Tone durch den Einfluß von Chemikalien und für Diffusionsuntersuchungen verliehen wurde, bedanke ich mich bei dem Vorstand der DTTG und besonders bei meinem Lehrer, Herrn Prof. Dr. Max Müller-Vonmoos. Ohne ihn wären diese Arbeiten nicht möglich gewesen.

In dem folgenden Artikel will ich entsprechend des Themenschwerpunktes der Tagung "Methoden in der Tonmineralogie" auf die Durchführung und Auswertung von Diffusionsversuchen eingehen und dieses am Beispiel der Eisendiffusion in hochverdichtetem Bentonit darstellen.

2 Diffusionsversuche

Diffusionsversuche werden durchgeführt, um Daten über die Ausbreitungsgeschwindigkeit eines Schadstoffes in einer Tonbarriere zu erhalten. Der im Labor gemessene Diffusionskoeffizient gilt nur für den einen Versuch mit einer Tonart, einer bestimmten Dichte, einem bestimmten Wassergehalt und für die diffundierenden Ionen oder Moleküle. Aus den durch mindestens zwei Versuche ermittelten Schadstoffverteilungen läßt sich mit Hilfe hydrodynamischer Berechnungen der apparente Diffusionskoeffizient, d.h. der Diffusionskoeffizient unter Berücksichtigung linearer Adsorption, berechnen. Der Einfluß einer überlagerten Durchströmung und Durchbruchzeit wird ebenfalls erfaßt (KAHR et al, 1985; HASENPATT et al., 1988).

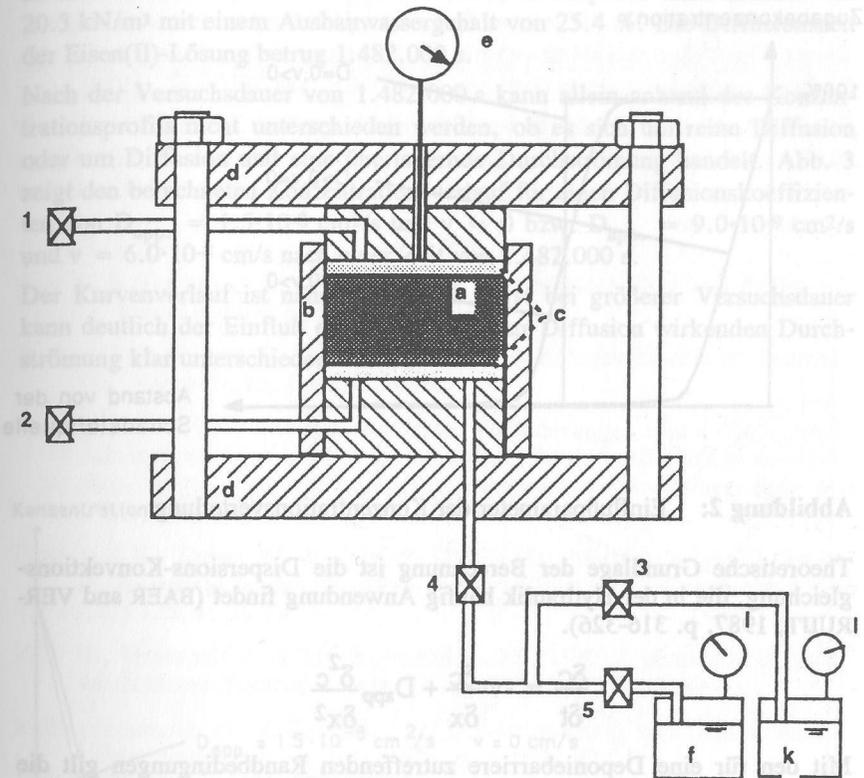
2.1 Versuchsdurchführung am Beispiel einer Fe^{2+} -Diffusion in hochverdichtetem Bentonit

Ein mögliches Konzept für die Endlagerung radioaktiver Abfälle sieht die Einlagerung der mit radioaktiven Abfällen gefüllten Stahlbehälter in Kavernen vor, die mit Bentonit ausgefüllt werden. Es wird vermutet, daß bei einer Korrosion der Stahlbehälter Eisen-II-ionen unter reduzierenden Bedingungen entstehen. Es galt zu untersuchen, ob zweiwertiges Eisen einen Einfluß auf das Quellverhalten des Bentonits ausüben und mit welcher Geschwindigkeit es sich in hochverdichtetem Bentonit ausbreiten kann. Letzteres sollte durch Diffusionsversuche geklärt werden.

2.2 Versuchsaufbau und -ablauf

Um eine Oxidation des zweiwertigen Eisens zu dreiwertigem zu verhindern, müssen die Versuche selbst, aber auch der Einbau und die Analyse in einer Stickstoffatmosphäre durchgeführt werden.

Deshalb wird der lufttrockene Bentonit wiederholt im Exikkator evakuiert und anschließend mit Stickstoff geflutet.



- a. Tonprobe
 - b. Probenzelle
 - c. Filterplatte
 - d. Versuchsrahmen
 - e. Wegmesser
 - f. Wasservorratsbehälter
 - k. Lösungsverratsbehälter
 - l. Druckmanometer
 - 1-5 Ventile
- (aus Hasenpatt, 1988)

Abbildung 1: Diffusionsapparatur

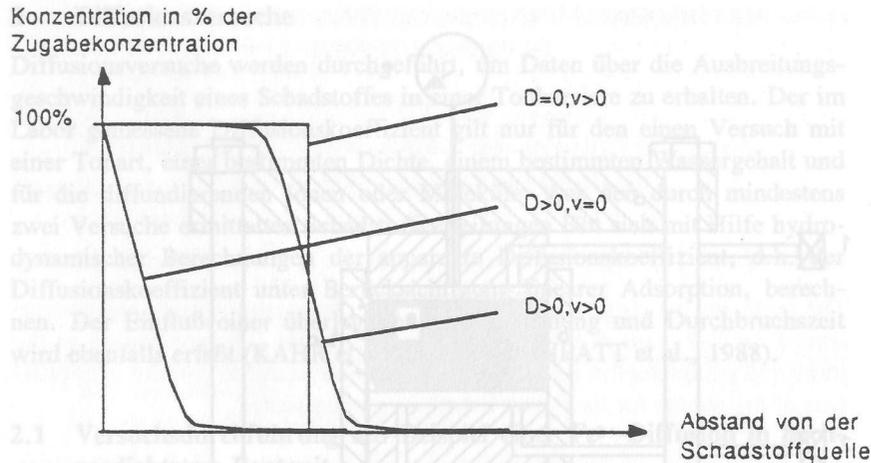


Abbildung 2: Einflußparameter der Konzentrationsverteilung

Theoretische Grundlage der Berechnung ist die Dispersions-Konvektionsgleichung, die in der Hydraulik häufig Anwendung findet (BAER and VERWIJ, 1987, p. 316-326).

$$\frac{\delta C}{\delta t} = -v \cdot \frac{\delta C}{\delta x} + D_{app} \frac{\delta^2 C}{\delta x^2}$$

Mit den für eine Deponiebarriere zutreffenden Randbedingungen gilt die Lösung nach der Errorfunktion.

$$C(x,t) = \frac{1}{2} C_0 \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{x-v \cdot t}{\sqrt{4D_{app}t}} \right) + e \left(\frac{x \cdot v}{D_{app}} \right) \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{x+v \cdot t}{\sqrt{4D_{app}t}} \right) \right]$$

Dabei ist:

v = $k \cdot i / n$ = effektive Geschwindigkeit des Porenwassers

$C_{(x,t)}$ = Konzentration im Porenwasser an der Stelle x zur Zeit t

C_0 = Konzentration der angebotenen Lösung.

D_{app} = apparenter hydrodynamischer Dispersionsbeiwert

$D_{mech} + D_{molekular} / R$, mit

D_{mech} = Dispersion infolge v ,

$D_{molekular}$ = Dispersion infolge Diffusion

R = Retentionsfaktor.

In dem beschriebenen Versuch hat die Bentonitprobe eine Dichte von 20.3 kN/m³ mit einem Ausbauwassergehalt von 25.4 %. Die Diffusionszeit der Eisen(II)-Lösung betrug 1.482.000 s.

Nach der Versuchsdauer von 1.482.000 s kann allein anhand des Konzentrationsprofils nicht unterschieden werden, ob es sich um reine Diffusion oder um Diffusion und eine überlagernde Durchströmung handelt. Abb. 3 zeigt den berechneten Konzentrationsverlauf für einen Diffusionskoeffizienten von $D_{app} = 1.5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ und $v = 0$ bzw. $D_{app} = 9.0 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ und $v = 6.0 \cdot 10^{-8} \text{ cm/s}$ nach einer Zeit von 1.482.000 s.

Der Kurvenverlauf ist nahezu identisch. Erst bei größerer Versuchsdauer kann deutlich der Einfluß einer zusätzlich zur Diffusion wirkenden Durchströmung klar unterschieden werden.

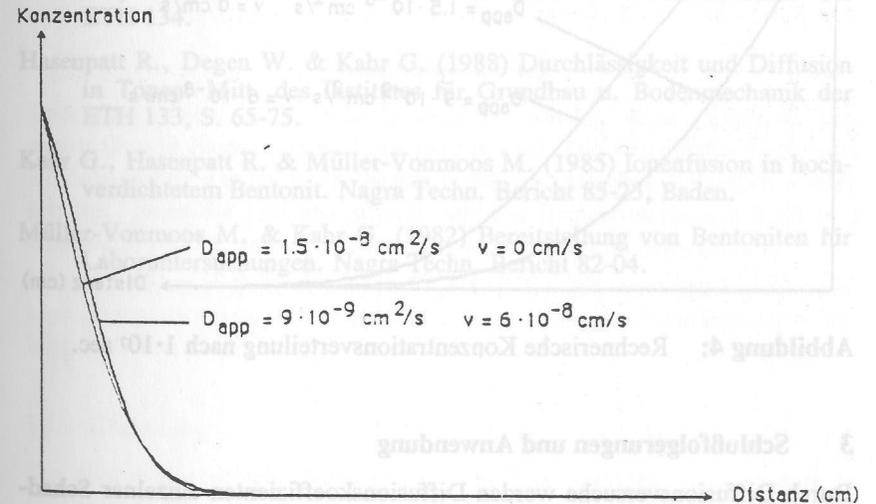


Abbildung 3: Rechnerische Konzentrationsverteilung nach 1.4 · 10⁶ sec.

Abbildung 4 zeigt den unterschiedlichen Konzentrationsverlauf für $D_{app} = 1.5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ und $v = 0$ bzw. $D_{app} = 9.0 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ und $v = 6.0 \cdot 10^{-8} \text{ cm/s}$ nach einer Zeit von $1 \cdot 10^7 \text{ s}$.

Der Anteil $v = 1 \cdot 10^7$ cm/s entspricht bei einer Porosität von $n = 0.41$ und einem Gradienten von 800 einem Durchlässigkeitsbeiwert $k = 1 \cdot 10^{-13}$ m/s. Dieser Durchlässigkeitswert wurde in früheren Untersuchungen für die hochverdichteten Bentonite bestimmt (BUCHER und SPIEGEL, 1984).

Die Versuche der Eisendiffusion über einen großen Zeitraum sind noch nicht abgeschlossen. Ihre Auswertung soll die berechneten Schadstoffausbreitungen verifizieren. Die Ergebnisse der Eisendiffusion werden in Kürze separat publiziert.

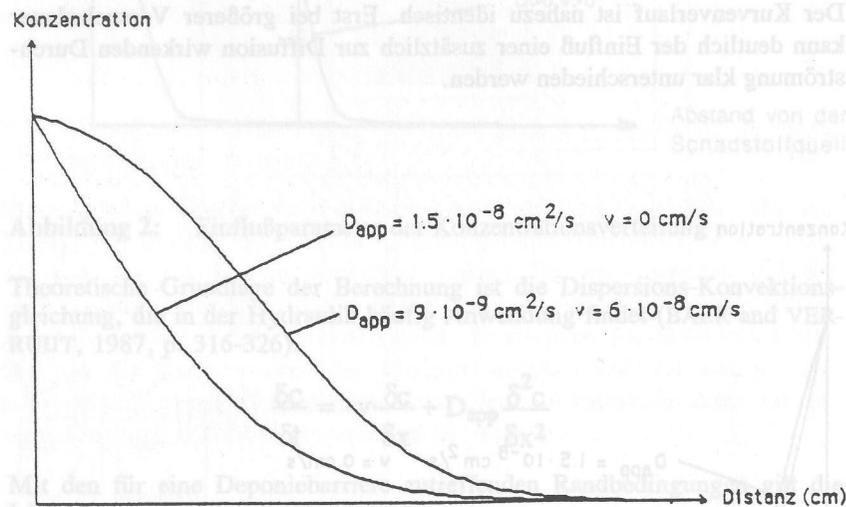


Abbildung 4: Rechnerische Konzentrationsverteilung nach $1 \cdot 10^7$ sec.

3 Schlußfolgerungen und Anwendung

Durch Diffusionsversuche werden Diffusionskoeffizienten einzelner Schadstoffe ermittelt, die zur Berechnung einer Schadstoffausbreitung unter Berücksichtigung der Retention benötigt werden.

Anwendungen finden diese Berechnungen z.B. bei der Dimensionierung einer Dichtwand, bei der Sanierung oder dem Neubau einer tonigen Deponebarriere, bei der Vorhersage über das Langzeitrückhaltevermögen einer Dichtwandmasse oder Tonbarriere, bei der Durchbruchzeit und der Schadstoffmenge, die durch eine Barriere diffundieren kann. Diese Diffusionsver-

suche können zu einem wichtigen Kriterium bei der Wahl des Tones für die Dichtwandmasse werden.

Mit zwei Durchlässigkeitsversuchen kann die Durchbruchzeit und auch die transportierte Schadstoffmenge vorausberechnet werden. Diese Werte sind besonders für tonige Barrieren oder Dichtwandmassen beim Bau oder der Sanierung von Deponien von großer Bedeutung.

Literatur

- Baer J. & Verruijt A. (1987) Modelling Groundwater Flow and Pollution. D. Reidel Publishing Company, 414 pp.
- Bucher F. & Spiegel U. (1984) Quelldruck von hochverdichteten Bentoniten. Nagra-Techn. Bericht 84-18.
- Hasenpatt R. (1988) Bodenmechanische Veränderungen reiner Tone durch Adsorption chemischer Verbindungen (Batch- und Diffusionsversuche). Mitt. des Institutes für Grundbau u. Bodenmechanik der ETH 134.
- Hasenpatt R., Degen W. & Kahr G. (1988) Durchlässigkeit und Diffusion in Tonen. Mitt. des Institutes für Grundbau u. Bodenmechanik der ETH 133, S. 65-75.
- Kahr G., Hasenpatt R. & Müller-Vonmoos M. (1985) Ionenfusion in hochverdichtetem Bentonit. Nagra Techn. Bericht 85-23, Baden.
- Müller-Vonmoos M. & Kahr G. (1982) Bereitstellung von Bentoniten für Laboruntersuchungen. Nagra Techn. Bericht 82-04.