

Experimental and Numerical Investigations with Respect to the Material Properties of Geotechnical Barriers

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften

der Geowissenschaftlichen Fakultät
der Eberhard-Karls-Universität Tübingen

vorgelegt von
Dipl.-Geol. Irina Engelhardt
aus Hannover

2004

Tag der mündlichen Prüfung: 23.01.2004

Dekan: Prof. Dr. Dr.h.c. Muharrem Satir

1. Berichterstatter: Prof. Dr. Olaf Kolditz

2. Berichterstatter: Prof. Dr. Manfred Wallner

Zusammenfassung

Quellfähige Tone spielen eine bedeutende Rolle bei aktuellen Konzepten zur Endlagerung hoch-radioaktiver Abfälle in kristallinem Wirtsgestein. Zum Schutz vor dem Austritt radioaktiver Substanzen wurden Multi-Barrieren-Konzepte entwickelt. Die Barrieren bestehen aus einem Kupferkanister, aus kompaktiertem Bentonit als Verfüllmaterial (die Geotechnische Barriere) sowie dem Wirtsgestein. Durch Korrosion der Kupferkanister oder Radiolyse kann bei hoch-radioaktiven Abfällen Wasserstoff entstehen. Durch die in diesem Konzept vorgesehene Aufstättigung des Verfüllmaterials mit Kluftwasser wird seine Permeabilität stark reduziert, so dass sich Wasserstoffgas in dem Raum zwischen Kanister und der Geotechnischen Barriere aufstauen kann. Durch diese Gasansammlung kann der Eindringdruck des Verfüllmaterials überschritten werden, und es kommt dann zu einer Migration der Gase durch die Geotechnische Barriere.

Zur Untersuchung der thermischen und hydraulischen Eigenschaften des Verfüllmaterials unter Bedingungen, die in untertägigen Endlagern für radioaktiven Abfall herrschen, wurden verschiedene Laborexperimente konzipiert. Alle Experimente wurde mit Natrium- (SPV Volclay) oder Kalzium-Bentonit (Calcigel), der mit Gesteinsmehl vermischt wurde, unter Verwendung von Wässern aus dem Felslabor Äspö durchgeführt. Kapillardruckkurven wurden für alle Sättigungsbereiche mit einer Kapillardruckmessdose und einem Thermohygrometer bestimmt. Hydraulische Säulenexperimente wurden mit einem speziell angefertigten Permeameter durchgeführt. Unter Anwendung der Darcy-Gleichung konnte die Permeabilität berechnet werden. Die thermischen und nicht-isothermalen Drainage Experimente wurden mit Hilfe inverser Modellierung mit dem Computerprogramm iTOUGH2 ausgewertet. Die thermischen Experimente wurden bis zur konstanten Temperaturverteilung durchgeführt. Für alle Zeitpunkte und an allen Messpunkten entsprach die simulierte Temperaturverteilung sehr gut den Messdaten. Die invers geschätzte gesättigte thermische Leitfähigkeit und gesättigte spezifische Wärmekapazität waren konsistent mit Ergebnissen aus empirischen Gleichungen. Anhand von nicht-isothermalen Drainage Experimenten wurden Drücke, Temperaturen und die drainierte Wassermenge gemessen. Mit Hilfe des automatisierten Kalibrierungsverfahrens im iTOUGH2 wurden die gesättigte Permeabilität, die thermische Leitfähigkeit, spezifische Wärmekapazität und der Gaseindringdruck der Bentonit/Gesteinsmehl-Mischung geschätzt. Diese Inversion ergab den gleichen Parametersatz zur Beschreibung der Kapillardruck–Sättigungsbeziehung wie die Messung mit der Kapillardruckmessdose und dem Thermohygrometer. Das nicht-isothermale Drainage Experiment diente des weitern zum Codevergleich zwischen TOUGH2 und RockFlow/RockMech sowie zur Validierung von RockFlow/RockMech.

Anhand unterschiedlichster experimenteller, numerischer und analytischer Verfahren konnten konsistente Materialparameter für das Verfüllmaterial bestimmt werden. Diese Materialparameter können nun als Basis zur Simulation weiterer thermisch-hydraulisch gekoppelter Prozesse in untertägigen Deponien für radioaktive Abfälle dienen. Die neu entwickelten Experimente in Kombination mit inverser Modellierung erlauben somit die Bestimmung von Materialparametern die für thermisch-hydraulische Prozesse unter Endlagerbedingungen von ausschlaggebender Bedeutung sind.

Summary

Swelling clays play a major role in current concepts for the underground disposal of high-level nuclear waste in deep geological formations. In one of the multi-barrier concepts for preventing the escape of radioactive substances from a high-level nuclear waste repository, the barrier consists of a copper container, compacted bentonite as buffer and backfill (the geotechnical barrier), and the repository host rock. Corrosion of the copper canister and radiolysis both produce hydrogen. When the buffer and backfill are saturated with water and the permeability of the bentonite is reduced by swelling, any hydrogen that is produced can accumulate in the space between the container and the geotechnical barrier. This will result in pressures exceeding the entry pressure of the buffer and backfill, and passage of gas through the geotechnical barrier.

An experimental program was developed to investigate the thermal and hydraulic properties of the buffer and backfill under conditions expected to exist in a permanent repository for radioactive waste. All experiments were conducted with mixtures containing sodium- (SPV Volclay) or calcium-bentonite (Calcigel) and crushed rock, and we used water from the Äspö test site. Water retention curves were measured from low to high saturation using a pressure cell and a thermohygrometer. Hydraulic column experiments were carried out with a specially designed permeameter and Darcy's law was applied to determine the permeability. The thermal and non-isothermal drainage laboratory experiments were analyzed with inverse modeling techniques using iTOUGH2. The thermal experiments were conducted until a time-invariant temperature distribution was reached. The simulated temperature distribution matched the measured data very well at all locations along the column and for all times. The inversely estimated thermal conductivity and specific heat were consistent with the predictions of the empirical relationships. Pressure, temperature and the drained water volume were measured with non-isothermal drainage experiments and jointly inverted to estimate absolute permeability, thermal conductivity, specific heat, and capillary strength parameters of the bentonite/crushed rock mixtures. Consistent capillary pressure curves were obtained with the inversion of transient data and the direct pressure cell method. One of the non-isothermal drainage experiments was treated as a benchmark between TOUGH2 and RockFlow/RockMech. The simulation of the experiment served also a validation for RockFlow/RockMech.

The parameters estimated using different experimental, numerical, and analytical procedures were consistent with one another, providing backfill material properties useful for the simulation of gas- and heat-generating nuclear waste repositories. The newly developed experimental setup in combination with inverse modeling allows the identification of key parameters governing hydraulic and thermal processes under repository conditions.

Experimentelle und numerische Untersuchungen zum Materialverhalten geotechnischer Barrieren

von

Dipl.-Geol. Irina Engelhardt

1. EINLEITUNG

Das schwedische Felslabor „HRL Äspö“ (Hard Rock Laboratory Äspö), das sich bereits seit 1986 in der Entwicklung befindet, gehört zu den untertägigen Versuchslaboren im kristallinen Grundgebirge. Aufgabe des HRL Äspö ist eine umfassende Untersuchung der Methodenanwendung und ihrer Weiterentwicklung zur Endlagerung hochradioaktiven Abfalls. Das Felslabor besteht aus einer bis auf 500 m abgeteuften Tunnelspirale, in der Versuche zur geologischen Charakterisierung, zum Schadstoff-, Wärme- und Wassertransport, zum Maschineneinsatz und zur Verfüllungstechnik durchgeführt werden.

Grundkonzept der Endlagerung radioaktiven Abfalls ist das Zusammenwirken dreier Barrierschichten bestehend aus technischer, geotechnischer und geologischer Barriere (vgl. Abb. 1).

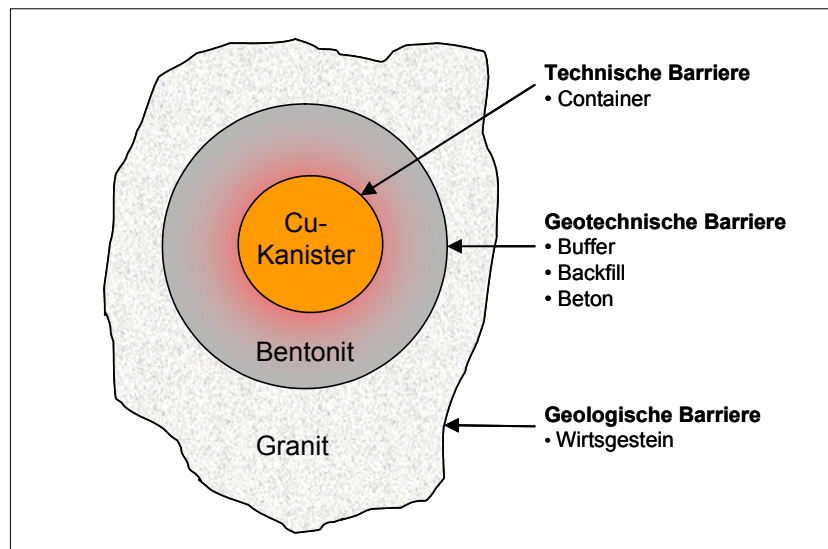


Abb. 1: Barriersysteme untertägiger Deponien

Der hochradioaktive Abfall soll in Containern, die aus einer äußeren 10 cm dicken Kupfer- und einer dünnen inneren Schicht (technische Barriere) bestehen, in vertikale Bohrlöcher eingelagert werden. Auf der Containeroberfläche wird die Temperatur unter Endlagerbedingungen nach Berechnungen von SKB (Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company) maximal 90°C betragen. Die Container sind im Nahfeld von Bentonit (Buffer) als Verfüllungsmaterial zum umliegenden Gebirge und Klüftgrundwasser umgeben. Als Versiegelungsmaterial im Fernfeld zum Verschluss der künstlich geschaffenen Verbindungswege (Stollen, Schächte, Bohrlöcher) werden Bentonit/Gesteinsmehl-Mischungen (Backfill) verwendet. Buffer und Backfill stellen die geotechnische Barriere dar. Die Container und das Verfüllungsmaterial umgibt als Verschluss des Endlagers zur Erdoberfläche das kristalline Grundgebirge (geologische Barriere).

2. KONZEPT DER GEOTECHNISCHEN BARRIERE

Im tiefsten Abschnitt des HRL Äspö werden auf 450 m Teufe in sechs Bohrlöchern die hydraulischen, mechanischen und thermischen Eigenschaften der geotechnischen Barriere getestet. Abb. 2 zeigt die Konstruktion der geotechnischen Barriere. Das „Buffer“ besteht aus 100% Na-Bentonit, während sich das „Backfill“ aus 30 % Na-Bentonit und 70 % gemahlenem Wirtsgestein (Äspö Diorit) zusammensetzt. Buffer und Backfill sind im Einbau bereits zu 60% mit Äspöwasser gesättigt (vgl. Abb. 2)

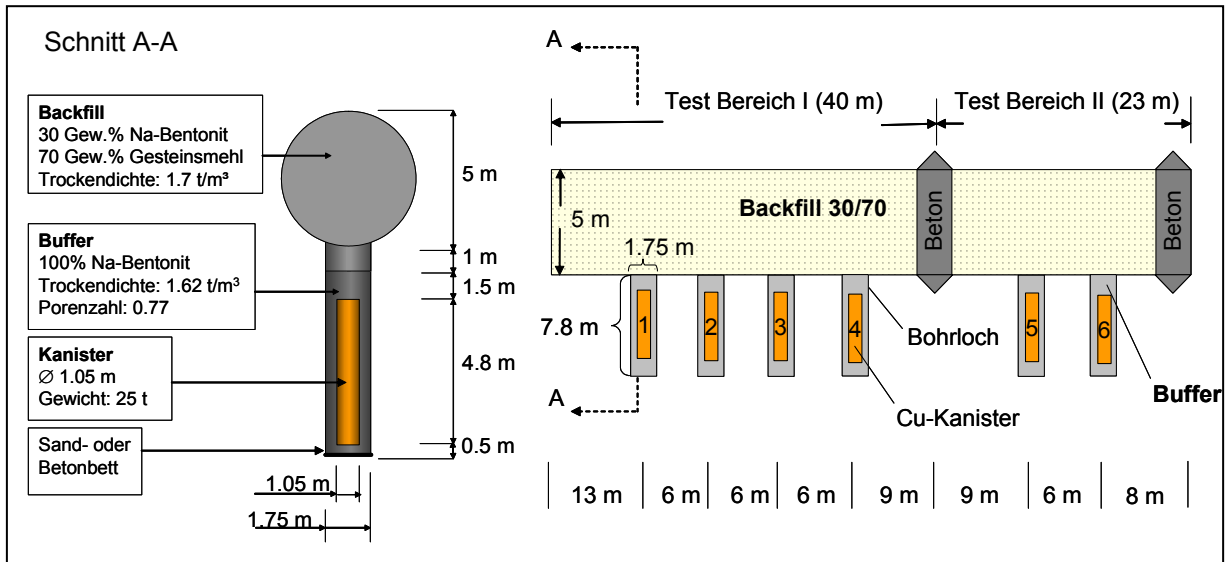


Abb. 2: Schnitt durch die geotechnische Barriere im Felslabor Äspö

Die Integrität der geologischen Barriere wieder herzustellen ist die Hauptaufgabe der geotechnischen Barriere. Darüber hinaus bildet der Bentonit eine bedeutende hydraulische, chemische und mechanische Schutzzone um den einzulagernden Abfall und soll über sehr lange Zeiträume den Transport durch Konvektion ausschalten sowie den Schadstofftransport durch Diffusion eingrenzen. Die wesentlichen Aufgaben der geotechnischen Barriere sind:

- * die Behinderung des Fließens des Wassers und damit die Minimierung des Transports korrosiver Substanzen zum Abfallcontainer,
- * die Gewährleistung eines günstigen chemischen Umfeldes bezüglich der Korrosionsraten,
- * die Verzögerung bzw. Begrenzung der aus dem Behälter freigesetzten Radionuklide im Schadensfall und
- * die Gewährleistung einer möglichst gleichförmigen zentrischen Behälterbeanspruchung auch bei ungleichförmiger Gebirgsbeanspruchung und/oder ungleichförmiger Wassergehaltsverteilung im Bentonit.

Aus diesen Aufgaben ergeben sich zahlreiche Anforderungen an die Materialeigenschaften des Bentonits: geringe Permeabilität gegenüber anstehenden Wässern, Reduktion des Nuklidtransports auf reine Diffusion, große Quellfähigkeit, hohe Sorptionskapazität, hohe Festigkeit, geringe Verformung, hohe Langzeitstabilität (bis 100.000 Jahre), hohe Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität sowie geringe Schrumpfung.

3. PROZESSE IM SYSTEM BENTONIT-WASSER-THERMISCHE ENERGIE

Die Wechselwirkung von Bentonit, Wasser und thermischer Energie wird durch eine Vielzahl miteinander gekoppelt ablaufender Prozesse gesteuert. Abb. 3 zeigt die zu einem Prozess gehörenden direkt abhängigen Materialparameter. Es ist jedoch zu beachten, dass jeder Prozess (z.B. Temperaturerhöhung) zusätzlich alle parallel ablaufenden Prozesse (Hydraulik, Mechanik,

Chemie, Mineralogie) beeinflusst, so dass das gesamte Systemverhalten nur als thermo-hydro-mechanisch-chemisch gekoppelter Prozess verstanden werden kann. Am Beispiel einer Temperaturerhöhung zeigt sich die Komplexität folgendermaßen: Thermische Prozesse (Temperaturerhöhung) wirken sich auf die thermischen Parameter aus (thermische Leitfähigkeit, spezifische Wärmekapazität), sie beeinflussen aber parallel auch:

- * die Mineralogie (Strukturänderungen durch Illitisierung),
- * die Hydraulik (Reduktion der Viskosität, Dichte und Oberflächenspannung; Verringerung der relativen Permeabilität der Wasserphase durch Phasenübergänge),
- * Mechanik (Festigkeitseigenschaften verbessern sich; Rissbildung durch Austrocknung; ab 200°C verliert der Bentonit seine Quellfähigkeit),
- * Chemie (Anstieg des diffusiven Transports; Erhöhung des Kationenaustausches; Abnahme des pH-Wertes)

ein.

Umgekehrt aber wirken sich:

- * die Mineralogie (Wertigkeit der in der diffusen Ionenschicht gebundenen Kationen beeinflusst die Energiespeicherung)
- * die Hydraulik (Sättigung und Druckgradienten beeinflussen den Wärmetransport),
- * die Mechanik (Quellung verringert die Porosität und verändert so den Anteil der die Wärme schlecht leitenden Gasphase, thermische Expansion),
- * die Chemie (Salinität verändert die Ausbildung der diffusen Ionenschicht und beeinflusst damit Ausbildung der Wärmebrücken),

auf die thermischen Eigenschaften des Bentonits aus.

Den thermo-hydraulischen Prozessen im „Backfill“ wurden im Rahmen dieser Arbeit besondere Aufmerksamkeit geschenkt. Dieses System wird von den Prozessen Wärmetransport, Austrocknung, Aufsättigung und der Drainage im Schadensfall dominiert (vgl. Abb. 4). Die physikalische Beschreibung der nicht isothermalen Drainage im Backfill und die Erzeugung von Datensätzen zur numerischen Analyse dieses Drainageprozesses war der Schwerpunkt der Untersuchungen.

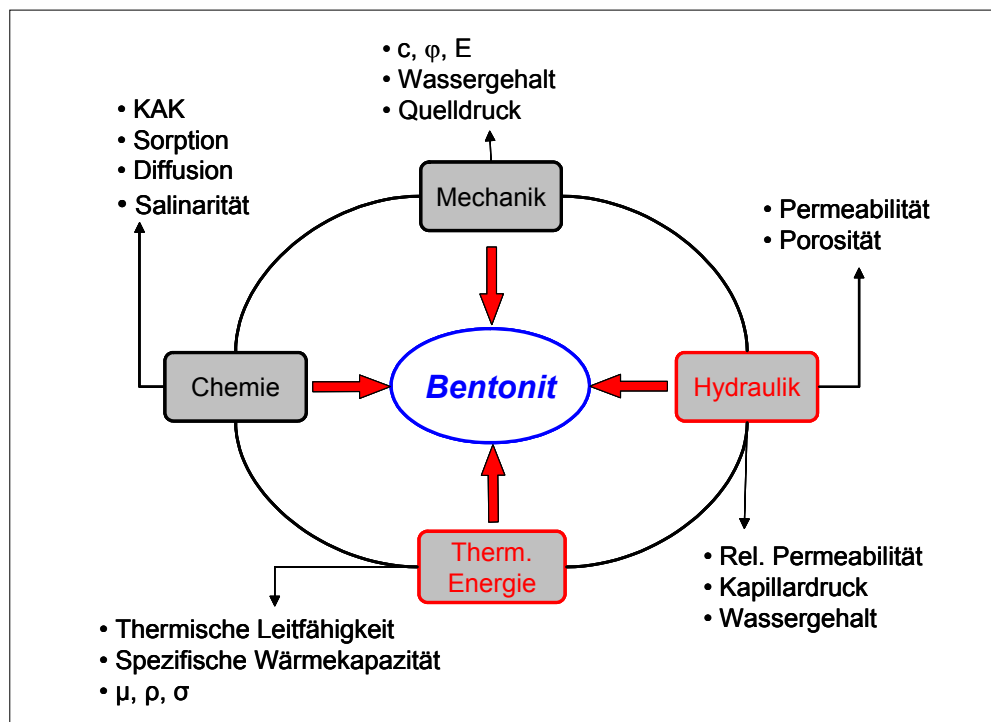


Abb. 3: Thermo-hydro-mechanisch-chemische Prozesse

3.1. Wärmetransport und Austrocknung

Nach der Verfüllung des Tunnels sowie der Ummantelung der Container mit teilgesättigtem Backfill beginnt zunächst durch die Temperaturabgabe an der Containeroberflächen eine initiale Austrocknungsphase des Bentonits. Die damit verbundene Verminderung der thermischen Leitfähigkeit und Wärmekapazität führt zu einer Temperaturerhöhung, die zu einer weiteren Austrocknungsphase überleiten kann (vgl. Abb.4). Durch diese Austrocknung können Schrumpfungsrisse und wasserwegsame Spalten entstehen (Radhakrishna et al., 1992). Die thermische Leitfähigkeit und spezifische Wärmekapazität hängen von der Temperatur, den hydraulischen Bedingungen (Sättigung), mineralogischen Eigenschaften (Kationenbelegung) und der Salinität ab. Thermische Materialparameter für das Backfill als Funktion der Kationenbelegung wurden anhand experimenteller Untersuchung und inverser Modellierung von Engelhardt & Finsterle (2003) bestimmt.

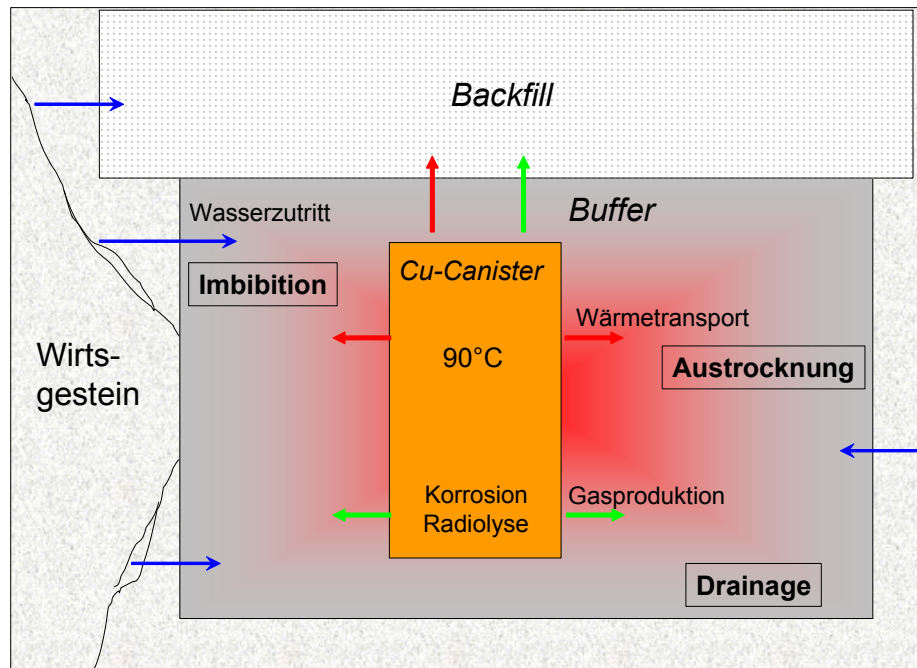


Abb. 4: Thermo-hydraulische Prozesse in der geotechnischen Barriere

3.2. Aufsättigung

Über das umgebende, geklüftete Gebirge tritt Wasser in Kontakt mit dem Bentonit und führt zum Quellen des Bentonits. Der Grad der Quellung des Bentonits ist abhängig von seiner mineralogischen Zusammensetzung und der Salinität des Porenwassers. Buffer und Backfill verringern beim Quellen ihre Porosität und Permeabilität und werden nahezu wasserundurchlässig. Dadurch wird der Hohlraum zwischen Container und Wirtsgestein wirkungsvoll abdichtet, die Korrosion der Container verhindert und im Schadensfall gelangen die radioaktiven Nuklide nur langsam in das Grundwasser.

Die Ausbreitung der Wasserphase im teilgesättigten Bentonit wird physikalisch durch die Imbibitionskurve der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und die relative Permeabilität-Sättigungsbeziehung beschrieben. Die Zunahme der Wasserpermeabilität gemäß der der relativen Permeabilität-Sättigungsbeziehung bei der Imbibition wird durch die Quellung vermindert. Beide Prozesse sind bezüglich ihres Einflusses auf die Permeabilität gegenläufig. Die Quellprozesse wirken sich jedoch nicht nur auf die hydraulischen Eigenschaften aus, sondern führen durch die Volumenvergrößerung und Quelldruckausbildung der geotechnischen Barriere auch zu einer mechanischen Beanspruchung des Wirtsgesteins.

3.3. Gasproduktion und Drainage

Die während der Einlagerung des Abfalls oder im Schadensfall freigesetzten Gase können die mechanischen und chemischen Verhältnisse im Endlager stark beeinflussen. Zahlreiche Mechanismen führen zur Produktion von Gasen im Endlager. Art und Menge hängen von den physikalischen und chemischen Bedingungen, der Endlagerkonstruktion sowie dem Abfallinventar ab. Als Gasbildungsmechanismen sind bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle Korrosion, Radiolyse, mikrobielle Zersetzung, thermische Gasfreisetzung, primäre Gasfreisetzung und radioaktiver Zerfall zu berücksichtigen. Gasbildung durch mikrobielle Zersetzung tritt nur bei Abfällen aus organischen Materialien auf. Thermische Gasbildung kann durch radioaktiven Zerfall und die damit verbundene Wärmeentwicklung entstehen und zu einer Aufheizung der Abfallprodukte, des Verfüllmaterials und des umgebenden Wirtsgesteines führen. Eine Steigerung der Temperatur bei thermischer Zersetzung, kann durch Verdampfung oder Desorption ebenfalls die Bildung von Gasen bewirken. Primäre Gasfreisetzung entsteht beim Einsatz von Bohrmaschinen und Sprengungen zum Auffahren der Bohrlöcher, der Kammern und Strecken. Beim Zerfall von Radium Isotopen und Uran können sich H₂, Radon-Isotope, Krypton und Xenon bilden.

Die wichtigsten Gasproduktionsquellen bei hochradioaktivem Abfall sind jedoch Korrosion und Radiolyse. Im Endlager stehen korrosionsanfällige Metalle im Abfall selbst, im Container sowie in der gesamten Endlagerkonstruktion zur Verfügung. Als korrodierende Agenzien kommen Sauerstoff, der in der Geosphäre, den Poren des Backfills, des Buffers sowie des Abfalls vorhanden ist, Restwasser im Abfall, Backfill und Buffer sowie Kluftwasser in Betracht (Rodwell et al., 1999). Des weiteren bilden sich korrodierende Stoffe als Sekundärprodukte. Speziell bei hochradioaktivem Abfall entstehen bei der Radiolyse hoch reaktive Radikale, die wiederum zur Korrosion führen. Mikrobiologischer Abbau produziert ebenfalls korrodierende Säuren. Darüber hinaus ist die Produktion korrosiver Chemikalien durch die hohe Temperatur, speziell bei hoch radioaktivem Abfall, möglich. Die steuernden physikalischen Parameter bei der Korrosion sind Temperatur, Strahlung und Druck. Der Temperatur kommt dabei die größte Bedeutung zu, da bei erhöhter Temperatur, die Reaktionsrate und somit die Gasproduktion steigt. Der bedeutendste chemische Parameter ist die Verfügbarkeit des Wassers. Experimente von Hallenberg et al. (1988) ergaben als Korrosionsrate für reines Kupfer 1.5×10^{-5} mm/a, so dass bei einer Einlagerung über einen Zeitraum von 100.000 Jahren mit einer maximalen Korrosionstiefe von 7.5 mm zu rechnen ist. Bei der Korrosion von Kupfer entstehen nach experimentellen Untersuchungen von Telander & Westerman (1997) in einem geschlossenen System Drücke von 4.9 bis 11.5 bar für H₂. Radiolyse bedeutet eine durch radioaktive Strahlung bewirkte Zersetzung von Materialien. Radiolyse kann innerhalb des Abfalls (interne) sowie im Verfüllungsmaterial und Wirtsgestein (externe) stattfinden. In Abhängigkeit vom Ionengehalt im Wasser, Druck, pH-Wert, von der Art der gelösten Gase und der Strahlungsintensität entstehen bei diesem Prozess H₂, O₂, CO₂ und CH₄. Maximale H₂ Werte werden durch die Aussendung von α -Strahlung erzeugt. Innere Radiolyse tritt bei hochradioaktivem Abfall nicht auf. Externe Radiolyse ist bei hochradioaktivem Abfall dagegen der Hauptmechanismus zur Gasproduktion. Rodwell et al. (1999) stellen anhand numerischer Simulationsergebnisse eine Abschätzung der gesamten Gasproduktion je nach Endlagerkonstruktion vor (vgl. Tab. 1).

Tab. 1: Gasproduktion je Endlagerkonzept (Rodwell et al., 1999).

Abfall-inventar	Geologische Barriere	Geotechnische Barriere	Technische Barriere	Gasproduktion [m ³ /a]
LLW* ¹ ILW* ²	Geklüftetes Kristallin	Zementgrus	Stahl	260-350 pro 10.000m ³ Abfall
HLW* ³	Geklüftetes Kristallin	Bentonit	Kupfer	1-2 pro Container
LLW ILW	Ton	Zementgrus	Stahl	260-350 pro 10.000m ³ Abfall
HLW	Ton	Bentonit	rostfreier Stahl	1 pro Container
HLW	Salz	Salzgrus	rostfreier Stahl	< 0.01 pro Container
HLW	Tuff	keine	rostfreier Stahl	< 0.002 pro Container

*¹ schwachradioaktiver Abfall; *² mittlradioaktiver Abfall; *³ hochradioaktiver Abfall

Das Verhalten und die Wirkung der im Endlagersystem gebildeten Gase muß für die Betriebs- und Nachbetriebsphase hinreichend bekannt sein. Daher müssen neben der Menge auch ausreichende Informationen über die physikalischen Gesetzmäßigkeiten, die die Ausbreitung der Gase beschreiben, zur Verfügung stehen. Bei den austretenden Gasen handelt es sich um Fluide, die nur gering löslich sind. Sie liegen im Bentonit als getrennte Phase vor, so dass die Durchströmung als Mehrphasenprozess beschrieben werden muss. Bei der Drainage handelt es sich somit um ein offenes thermodynamisches System bestehend aus Gas, Wasser und Gestein. Die Grundlage zur Beschreibung dieses Prozesses ist die Drainagekurve der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und die relative Permeabilität-Sättigungsbeziehung. Die Untersuchung dieser Beziehungen unter Berücksichtigung der Temperatur, Mineralogie und Salinität und die numerische Analyse werden in Engelhardt et al. (2003) und Engelhardt (2003) ausführlich diskutiert.

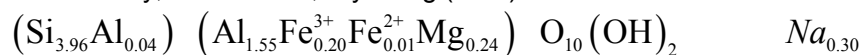
4. MATERIALEIGENSCHAFTEN

Im Gegensatz zu den anderen silikatischen Mineralen zeichnen sich Bentonite durch besondere mineralogische, hydraulische, mechanische, chemische und thermische Eigenschaften aus. Die für die Endlagerung radioaktiver Abfälle relevanten Materialparameter werden im Folgenden beschrieben.

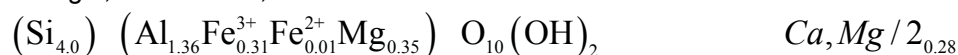
4.1 Mineralogische Beschreibung

Bentonite entstehen durch syndimentäre submarine Umwandlung vulkanischer Aschen (Halmyrolyse), fluviatile oder lakustrine Sedimentation von Smektit in vulkanischen Gebieten sowie hydrothermale Umwandlung basischer Gesteine (Jasmund & Lagaly, 1993). Fast die Hälfte der Bentonitlagerstätten befinden sich in den USA (Wyoming, South Dakota, Montana) und Kanada. Ein weiteres bedeutendes Bentonitvorkommen liegt in Bayern, nordöstlich von München. Der Bentonit wird in Tagebauen gewonnen und anschließend in einer Prozessstufe getrocknet, zerkleinert und klassiert. Nach Müller-Vonmoos & Kahr (1983) können die beiden meist verwendeten Bentonite mineralogisch folgendermaßen beschrieben werden (vgl. Tab. 2):

SPV Volclay, Na-Bentonit, Wyoming (USA)



Calcigel, Ca-Bentonit, Deutschland



Tab. 2: Mineralogische Zusammensetzung der Bentonite nach Müller-Vonmoos & Kahr (1983).

Bentonit	Mineralgehalt in %					
	Montmorillonit	Quarz	Feldspat	Glimmer	Karbonat	Sonstige Minerale
SPV Volclay	75	15.2	5-8	<1	1.4	2.4
Calcigel	66	8.3	2-4	12-15	3.8	5.5

Der Hauptbestandteil des Bentonits ist der zu den Smektiten gehörende Montmorillonit (vgl. Tab. 2). Der Montmorillonit ist die unter den Smektiten am häufigsten vorkommende dioktaedrische Varietät der Dreischichtsilikate und besteht aus $[\text{SiO}_4]$ -Tetraedern sowie $[\text{M}(\text{O},\text{OH})_6]$ -Oktaedern. Die Tetraeder sind über gemeinsame Sauerstoffionen zu Schichten verknüpft, so dass die freien Spitzen der Tetraeder in eine Richtung weisen. In der Ebene bilden die Tetraeder ein Netzwerk von Sechseringen (vgl. Abb. 5). Die Tetraederschicht ist an eine Oktaederschicht kondensiert. Die Oktaeder sind über ihre Kanten verknüpft, dabei liegen zwei ihrer Dreiecksflächen parallel zur Ebene der Tetraederringe (vgl. Abb. 5). Die Sauerstoffionen der Tetraederspitzen gehören also gleichzeitig den Oktaedern an. Alle freien Sauerstoffionen der Oktaederschicht haben ein Proton gebunden, sie liegen als OH^- vor. Bei den Dreischichtmineralen ist an die Oktaederschicht eine weitere Tetraederschicht ankondensiert, deren Spitzen den Spitzen der anderen

Tetraederschichten entgegengerichtet sind. Beim Montmorillonit sind die Schichten negativ geladen, da die dreiwertigen Metallionen der Oktaederschicht durch zweiwertige ersetzt wurden. Zum elektrostatischen Ausgleich der negativen Schichtladung werden zwischen den Schichten positive Gegenionen (K^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Ba^{2+}) gebunden (vgl. Abb. 5).

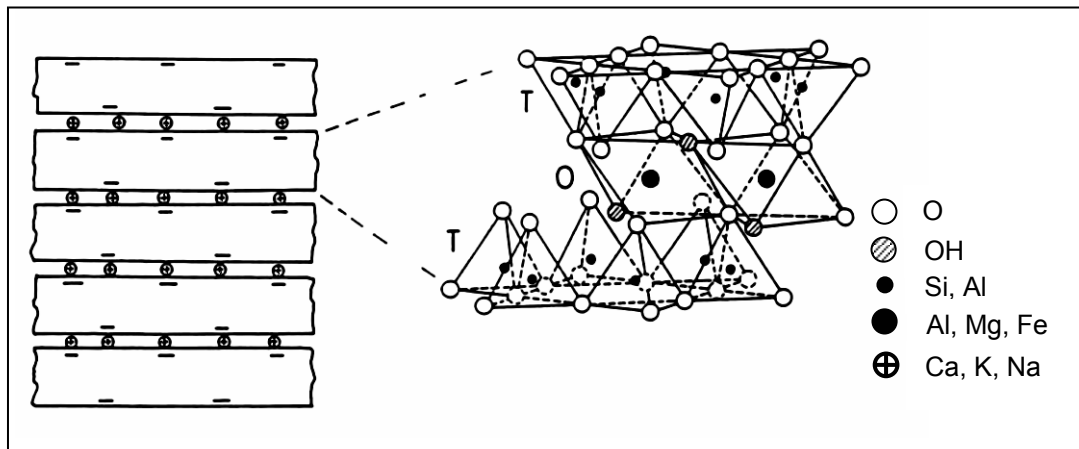


Abb. 5: Räumliche Darstellung der Dreischichtminerale (T= Tetraeder, O= Oktaeder)

Zum Ausgleich der negativ geladenen Flächenladung des Tonminerals werden neben dem Einbau der Zwischenschichtkationen im Porenwasser gelöste Kationen in der diffusen Doppelschicht angelagert (vgl. Abb. 6). Die diffuse Doppelschicht, DDL, gliedert sich in die elektrische Doppelschicht (Stern Schicht), EDL, und die diffuse Ionenschicht, DL (z.B. Yong et al., 1992). Die elektrische Doppelschicht besteht aus dem negativen Ladungsüberschuss des Tonpartikels und der ersten Schicht positiver Ladungen, die durch große elektrische Kräfte an die Tonmineraloberfläche gebunden sind. Entsprechend der Ionenverteilung in der Doppelschicht verläuft ein mit zunehmender Entfernung von der Teilchenoberfläche abnehmendes negatives Potential. Das Porenwasser beginnt, wenn das Potential nahezu Null wird. Die Dicke der Doppelschicht ist von der Art und Konzentration der Kationen abhängig und nimmt mit steigender Wertigkeit, zunehmendem Durchmesser der Kationen sowie zunehmender Elektrolytkonzentration des Porenwassers ab (vgl. Abb. 6).

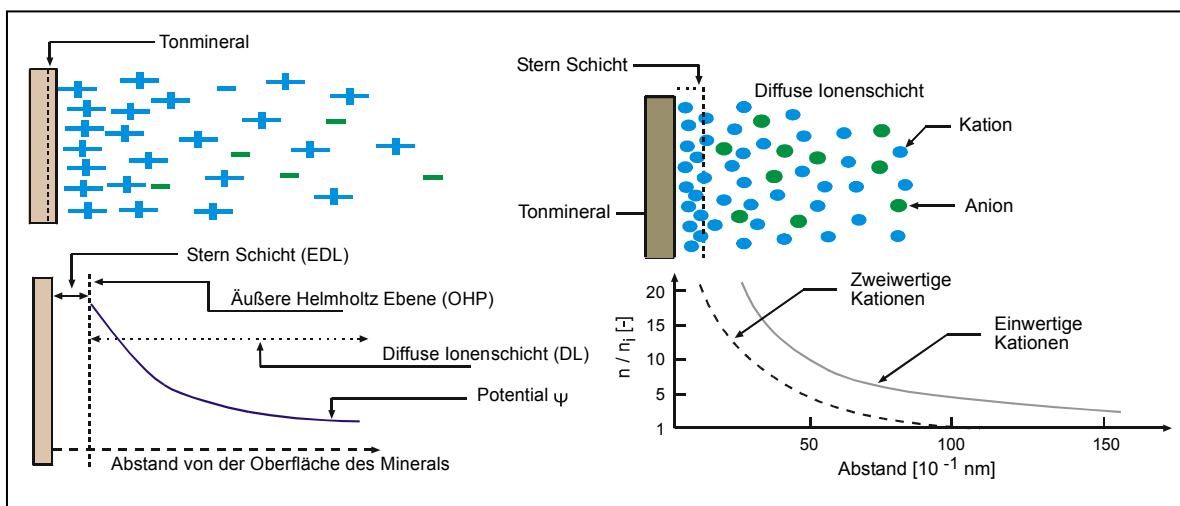


Abb. 6: Ausbildung der diffusen Doppelschicht (Yong et al., 1992)

Tab. 3 zeigt für die Endlagerung radioaktiver Abfälle relevante, mineralogische Eigenschaften von SPV Volclay und Calcigel (Müller-Vonmoos & Kahr, 1983). In dem schwedischen Konzept zur Endlagerung radioaktiver Abfälle ist geplant, für das Buffer und Backfill Na-Bentonit einzusetzen. Andere Konzepte der geotechnischen Barriere sehen jedoch auf Grund seiner höheren

chemischen Stabilität die Verwendung von Ca-Bentonit vor (z.B. Felslabor Grimsel in der Schweiz, das von der NAGRA [Nationale Genossenschaft für die Lagerung Radioaktiver Abfälle] betrieben wird).

Als Zuschlagstoff wird 70% gemahlenes Gesteinsmehl verwendet. In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde granitischer Splitt aus dem Odenwald verwendet, der eine Dichte von 2.71 g/cm³ und einen maximalen Korndurchmesser bis zu 5 mm aufweist.

Tab. 3: Mineralogische Eigenschaften von SPV Volclay und Calcigel (Müller-Vonmoos & Kahr, 1983)

Eigenschaft	SPV Volclay	Calcigel
Spezifische Oberfläche [m ² /g]	562	493
Dichte [g/cm ³]	2.755	2.847
Kationenaustauschkapazität [meq/100g]	76.4	62.0
Austauschbare Kationen [meq/100g] Na / K / Mg / Ca	62.4 / 0.2 / 3.0 / 7.4	1.8 / 0.2 / 22.4 / 37.6

4.2 Hydraulische Eigenschaften

Die hydraulischen Eigenschaften der geotechnischen Barriere müssen für den gesättigten und teilgesättigten Zustand unterschieden werden. Im vollgesättigten Zustand ist die hydraulische Leitfähigkeit die entscheidende Eigenschaft. Die Ermittlung der gesättigten hydraulischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der Temperatur und Mineralogie wird von Engelhardt & Finsterle (2003) beschrieben.

Die hydraulische Leitfähigkeit ist eine Funktion der Temperatur. Sie nimmt bei einem Temperaturanstieg von 20°C auf 90°C durch die Reduktion der Viskosität und Dichte um 30% zu. Aus den strukturellen Eigenschaften der Bentonite ergibt sich, dass bei einem zunehmenden Calciumgehalt die hydraulische Leitfähigkeit sich erhöht (vgl. Abb. 7).

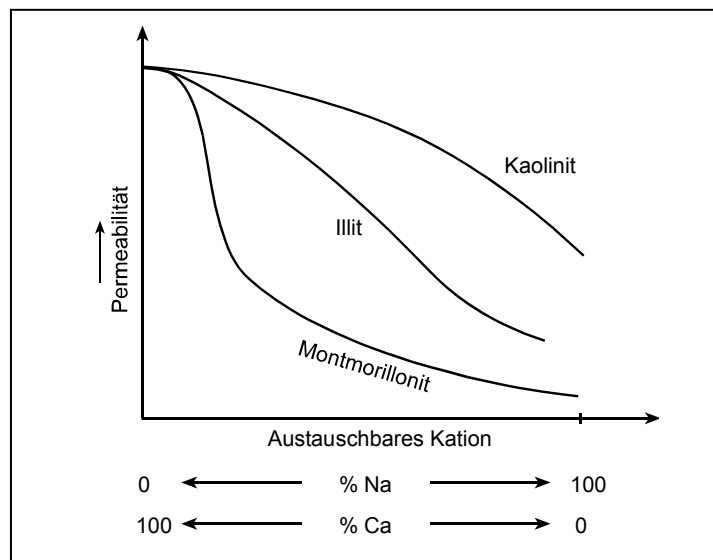


Abb. 7: Permeabilität als Funktion der Kationenbelegung (Yong & Warkentin, 1966)

Einwertige Kationen bilden eine größere diffuse Ionenschicht aus und binden dabei mehr Wasser in der Zwischenschicht als zweiwertige Kationen. In der diffusen Ionenschicht vergrößert sich die Viskosität des Wassers, so dass die Fluidbewegung zwischen den Tonmineralen mit zunehmenden Na⁺-Gehalt reduziert wird (vgl. Abb. 7). Auch die Salinität des Porenwassers hat einen großen Einfluss auf die hydraulische Leitfähigkeit. Mit erhöhter Elektrolytkonzentration

verringert sich die Ausdehnung der diffusen Ionenschicht, so dass eine bessere Fluidbewegung möglich ist. Des weiteren nimmt die Permeabilität grundsätzlich mit zunehmender Trockendichte ab. Zahlreichen empirischen Gleichungen liegt diese Annahme zu Grunde. Mit steigendem Druckgradienten kommt es zu einer Öffnung von Poren und einem Verschieben der Tonteilchen und damit zu einer Zunahme der hydraulischen Durchlässigkeit.

Im ungesättigten System sind die Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und die relative Permeabilität-Sättigungsbeziehung weitere entscheidende Materialeigenschaften. Die experimentelle Bestimmung dieser Funktionen für das Backfill in Abhängigkeit von der Temperatur sowie die numerische Analyse der Ergebnisse wird in Engelhardt et al. (2003) diskutiert.

Die hydraulische Leitfähigkeit ist direkt mit dem Bentonitgehalt verknüpft und nimmt mit steigendem Anteil von Splitt deutlich zu. Die Kapillardruck-Sättigungsbeziehung zeigt mit anwachsendem Splittanteil einen abnehmenden Kapillardruck. Allerdings hat nicht nur der Anteil des Zuschlagstoffes einen Einfluss auf die hydraulischen Parameter, sondern auch seine Körnung und Beschaffenheit der Oberfläche.

4.3 Mechanik

Die mechanischen Prozesse der geotechnischen Barriere charakterisieren das Quellen, Schrumpfen und Festigkeitsverhalten. Der Zuschlagstoff Splitt vermindert das Quellen und Schrumpfen, verbessert aber die Festigkeitseigenschaften.

Osmotische Quellung

Die treibende Kraft der osmotischen Quellung ist der Konzentrationsunterschied zwischen den nahe der Tonoberfläche elektrostatisch festgehaltenen Ionen der diffusen Doppelschicht und der Elektrolytkonzentration im Lösungswasser. Die Ionenkonzentration der Doppelschicht zwischen zwei Fläche orientierten negativen Tonmineralteilchen ist viel höher als die Elektrolytkonzentration des Lösungswassers. Die Kationen der diffusen Ionenschicht werden elektrostatisch von den negativen Tonmineraloberflächen zurückgehalten. Ein Konzentrationsausgleich ist somit nur möglich, wenn Wasser in den Raum zwischen den Tonmineraloberflächen eindringt. Die osmotische Quellung hängt somit von der Ladung der Tonmineraloberfläche, den austauschbaren Kationen und der Elektrolytkonzentration ab (vgl. Abb. 8).

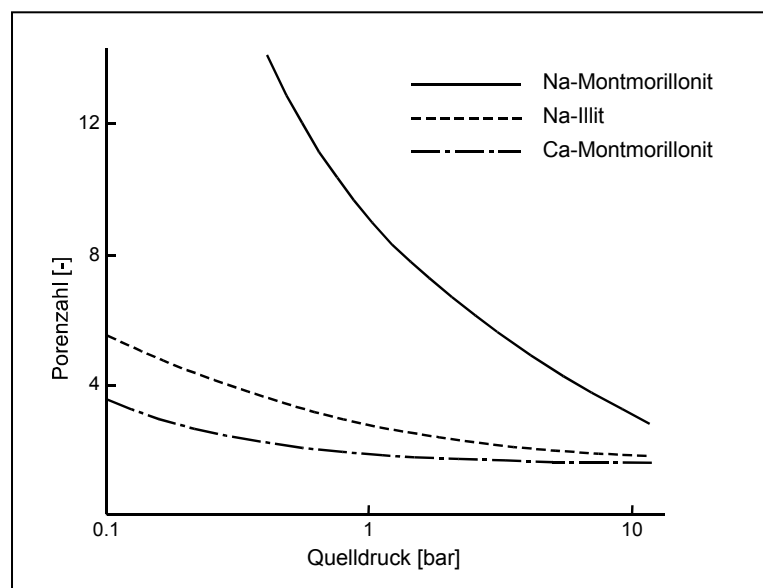


Abb. 8: Quelldruck verschiedener Tonminerale (Hillel, 1980)

Nach der DDL Theorie (z.B. Hillel, 1980) können in Abhängigkeit von den austauschbaren Kationen, der Elektrolytkonzentration, dem Wassergehalt und der Temperatur die abstoßenden Kräfte zwischen zwei Tonteilchen berechnet und somit der osmotische Quelldruck bestimmt werden. Hinsichtlich der osmotischen Prozesse wird einwertiger Na-Bentonit auf Grund der höheren Ionenkonzentration zwischen den Tonteilchen durch einen größeren osmotischen Druck als Ca-Bentonit charakterisiert (vgl. Abb. 8).

Innerkristalline Quellung

Interkristallines Quellen entsteht durch Hydratation der austauschbaren Zwischenschichtkationen. Die Wasseraufnahme und die damit verbundene Aufweitung der Basisabstände erfolgt hierbei stufenweise. Bei der Hydratation der Kationen orientieren sich die Wassermoleküle mit ihren negativen Dipolen zum Zwischenschichtkation und schirmen dadurch seine Ladung ab. Die elektrostatische Anziehungskraft zwischen den negativen Elementarschichten und den Zwischenschichtkationen wird dadurch zusätzlich reduziert, so dass eine weitere Aufweitung und Wasseranlagerung ermöglicht wird. Bei Na- und Mg-Smektit können sich die Schichtabstände durch bis zu drei Hydratationsstufen von 10 Å bis auf 20 Å aufweiten. Bei K- und Ca-Smektit bilden sich nur zwei Hydratationsstufen, die eine Erhöhung der Basisabstände bis zu maximal 16 Å zur Folge haben (vgl. Abb. 9). Die interkristalline Quellung kann aus der experimentell bestimmbar Wasserampf-Adsorptionsisotherme berechnet werden (z.B. Kahr et al., 1986).

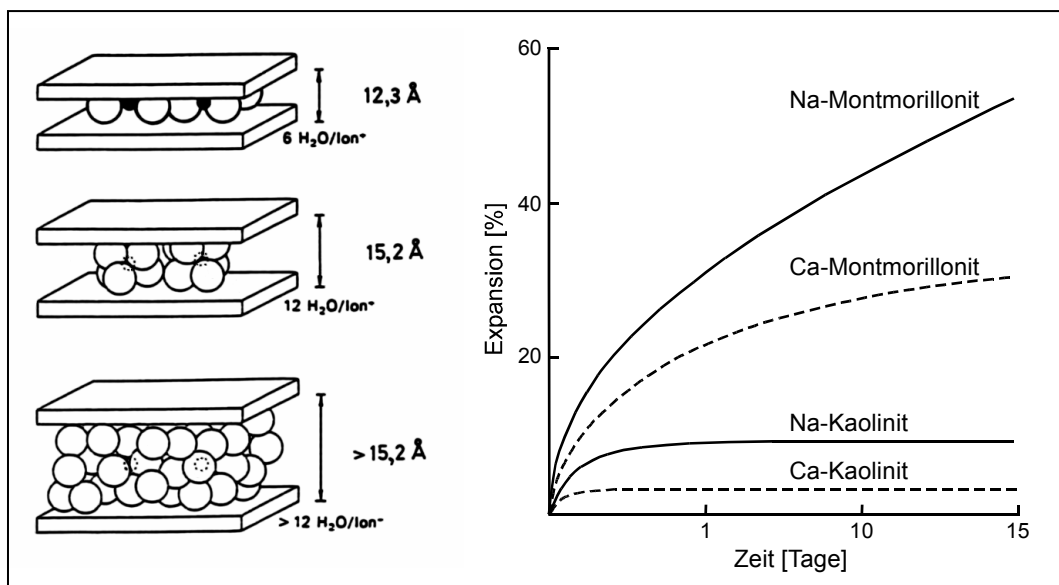


Abb. 9: Hydratation der Dreischichtminerale (Jasmund & Lagaly, 1993)

Zahlreiche empirische Gleichungen beschreiben den Quelldruck als Funktion der Trockendichte. Anhand dieser empirischen Gleichungen kann bei bekanntem Quelldruck die Trockendichte abgeleitet und anschließend die Porosität berechnet werden. Aus der Verringerung der Porosität als Funktion der Quellung lässt sich bei behinderter Volumenausdehnung schließlich die reduzierte Permeabilität berechnen.

Schrumpfen

Schrumpfungsprozesse sind Umkehrvorgänge der Quellung. Montmorillonite weisen jedoch einige Besonderheiten auf. Wird von der Fließgrenze her getrocknet, so nimmt zunächst bis zum Erreichen des Wassergehaltes der Schrumpfgrenze das Volumen linear ab. Bei einem Wassergehalt oberhalb der Schrumpfgrenze erfolgt die Volumenreduzierung allein durch die Abgabe von Porenwasser. Unterhalb der Schrumpfgrenze ist dann die Volumenreduktion weniger stark, da sie durch den Verlust von gebundenem Zwischenschichtwasser erfolgt (Nachschrumpfen). Von besonderer Bedeutung für die Endlagerung ist das Nachschrumpfen, da sich das Volumen, das sich hierbei einstellt, von der Trockendichte zu Beginn des Schrumpfens bestimmt wird. Das Nachschrumpfen ist von Rissbildung begleitet. Bei Calcigel bilden sich viele kleine Risse, während bei SPV Volclay sich wenige breite Risse entwickeln. Durch diese

Rissbildung ist eine signifikante Veränderung aller Materialeigenschaften der geotechnischen Barriere zu erwarten.

Festigkeitsverhalten

Die Scherfestigkeit ist gekennzeichnet durch die Schubspannung, die das Material aufnehmen kann, ohne dabei plastisch zu versagen. Der Zusammenhalt der Schichten im Bentonit nimmt mit der Schichtladung, dem Ionenradius der Zwischenschichtkationen und der Wertigkeit zu und beeinflusst damit auch die Scherfestigkeit und Scherdeformation des Bentonits (Jasmund & Lagaly, 1993). Montmorillonite zerfallen beim Scheren in einzelne Schichtpakete und ordnen sich allmählich zu einer glatten Scherebene an. Der deutliche Anstieg ihrer Scherfestigkeit und der starke Abfall der Restscherfestigkeit (Scherfestigkeit nach bereits eingetretenem Versagen) lassen sich durch das Überwinden des Zusammenhaltes der Schichten und ihre Anordnung in der Scherebene erklären. Höchste Scherfestigkeit wird bei Anwesenheit geringer Mengen hoch salinärer Wässer erreicht. Bei Übersättigung tritt ein deutlicher Rückgang der Festigkeit ein. Der Scherwiderstand des Bentonits kann mit Hilfe der Coulombschen Formel (z.B. Schmidt, 1996) beschrieben werden. Makroskopische Parameter des Scherverhaltens sind die innere Reibung und Kohäsion. Beide Parameter sind abhängig von Temperatur, Dichte und Wassergehalt, der insbesondere auch die Konsistenzgrenzen bestimmt.

Die Plastizitätszahlen hängen beim Bentonit weitgehend von der Kationenbelegung und der Elektrolytkonzentration des Porenwassers ab. Bentonite weisen sehr große Plastizitätszahlen auf. Die Größenordnung der Plastizitätseigenschaften wird nicht durch die Teilchenoberfläche, sondern durch das Hydratationsvermögen der Zwischenschichtkationen maßgeblich beeinflusst, denn die innere Oberfläche beträgt ein Vielfaches der äußeren. Durch eine deutlich geringere Aufweitung des Schichtabstands im Ca-Bentonit weist dieser über 50% kleinere Plastizitätszahlen als Na-Bentonit auf.

4.4 Chemische Eigenschaften

In diesem Kapitel werden die Materialparameter, die im Zusammenhang mit dem Stofftransport im Bentonit (Diffusion und Sorption) stehen, als auch die Eigenschaftsänderungen des Bentonits durch chemische Einwirkungen, erläutert. Der Zuschlagstoff Splitt reduziert sowohl den Transport durch Diffusion als auch die aus dem System sorbierte Masse. Die chemischen Eigenschaften werden daher fast ausschließlich vom Tonanteil bestimmt.

Diffusion

Neben advektivem Transport ist molekulare Diffusion der entscheidende Transportmechanismus gelöster Schadstoffe. Dem diffusiven Beitrag im Stoffmassenfluss liegt das FICK'sche Gesetz zu Grunde, dass analog zur Permeabilität die Abhängigkeit der Diffusivität von der Sättigung beschreibt. Im Bereich niedriger Wassersättigung nimmt die hydraulische Diffusivität zunächst mit zunehmender Sättigung ab. Nach dem Erreichen eines Minimums im mittleren Sättigungsbereich steigt die Diffusivität mit zunehmender Sättigung dann an und wird im vollgesättigten Zustand schließlich unendlich groß (Hillel, 1980). Nach Gleichungen von Yong et al. (1992) können neben dem Einfluss der Wassersättigung auch die Einwirkung von Volumenänderung und Deformation auf den Diffusionskoeffizienten berücksichtigt werden. Zur Beschreibung von Bentoniten hat sich auf Grund ihrer stark veränderbaren Porosität und einer ausgeprägten Tortuosität die Verwendung des effektiven Diffusionskoeffizienten als sinnvoll erwiesen. Für den diffusiven Transport steht als maximales Wasservolumen das wassergefüllte Porenvolumen im vollgesättigten Zustand zur Verfügung. Im teilgesättigten Bentonit nimmt dann durch das reduzierte Wasservolumen und die damit vergrößerte Tortuosität der Diffusionskoeffizient ab. Bei niedriger Sättigung ist fast das gesamte Porenwasser in der diffusen Ionenschicht gebunden, weist dort eine größere Viskosität auf und verzögert somit den diffusiven Transport. Nicht nur die Sättigung und Tortuosität bestimmen die effektive Diffusivität, sondern auch die Konzentration der transportierten Ionen. Bei kleiner Wassersättigung vergrößert sich schließlich die Dichte, der in der diffusen Ionenschicht gebunden Kationen stark, was wiederum zu einer Änderung des Diffusionskoeffizienten führt. Die Konzentration der Ionen wird auch durch den advektiven Transport beeinflusst, so dass sich beide Prozesse überlagern und so sowohl behindern als auch verstärken können (Hillel, 1980). Abb. 10

zeigt für das System Bentonit-Wasser exemplarisch alle verschiedenen auf ein Kation wirkenden Kräfte.

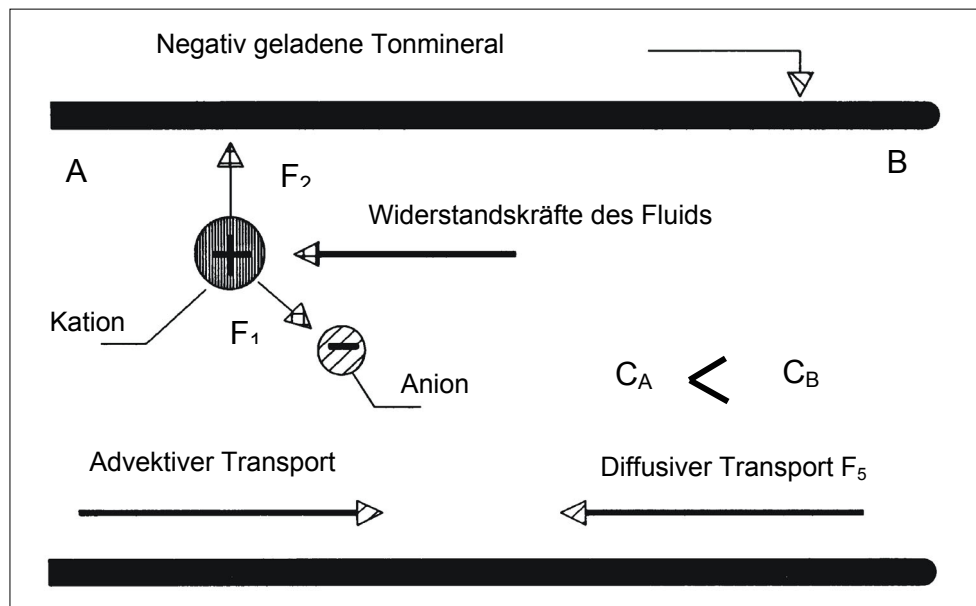


Abb. 10: Wechselwirkungen zwischen Kation, Tonmineral und Wasser (Yong et al., 1992)

Folgende Parameter wirken sich die Diffusion aus:

- * Sättigung,
- * Quelldruck,
- * Porosität,
- * Tortuosität,
- * Relative Permeabilität,
- * Temperatur,
- * Kationenbelegung des Tonminerals
- * Elektrolytkonzentration und Salinität,
- * advektiver Transport und Druckgradienten.

Die Diffusion der Gasphase findet sowohl in der Porenluft als auch im Porenwasser statt. Wie in der Wasserphase ist auch die Diffusion in reiner Luft weitaus größer als in der Porenluft und hängt stark vom luftgefüllten Anteil des Porenraums ab.

Sorption

Adsorptionsprozesse werden, wenn durch lineare Adsorptionsisothermen beschrieben, an Hand der lineare Verknüpfung zwischen Retardationskoeffizienten und dem Verteilungskoeffizienten definiert. Analog zum Diffusionskoeffizienten nimmt der Verteilungskoeffizient mit abnehmenden Atomgewicht und Ionenradius zu (Studer et al., 1984). Abb. 11 zeigt die Verteilungskoeffizienten und Diffusionskoeffizienten verschiedener Elemente. Bei der Anwendung nicht-linearer Adsorptionsisothermen ist der Retardationskoeffizient eine Funktion der Gleichgewichtskonzentration der Lösung.

Ursache für die Adsorption von Kationen in Bentoniten sind die negativen Oberflächenladungen der Smekтите. Die Ladungen entstehen durch den isomorphen Ersatz höherwertiger Kationen (z.B. Si^{4+}) durch ein niedrigerwertiges (z.B. Al^{3+}) in der Tetraederschicht oder durch den Ersatz von Al^{3+} durch zweiwertige Metallionen in der Oktaederschicht. Hierbei entsteht eine „permanente“ Ladung des Tonminerals (spezifische Adsorption). Oberflächenladungen können des weiteren durch Dissoziation der Hydroxylgruppen, bei der je nach pH-Wert eine positive oder negative Oberflächenladung erzeugt wird, entstehen. Schließlich können Oberflächenladungen auch durch

nicht abgesättigte Bindungen an den Grenzflächen der Tonminerale entstehen. Bei diesen beiden Vorgängen wird eine „variable“ Ladung hervorgerufen.

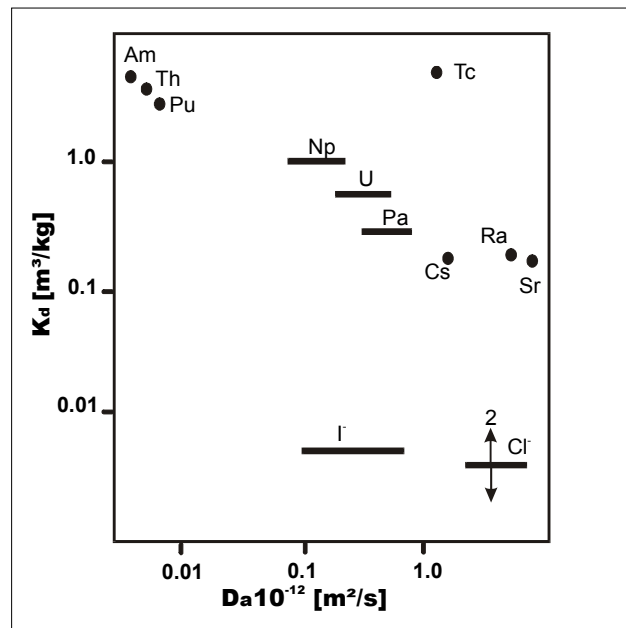


Abb. 11: Verteilungskoeffizient und effektiver Diffusionskoeffizient (Studer et al., 1984)

Die Adsorption von Anionen ist generell viel geringer als die der Kationen. Die Kationenadsorption nimmt mit steigendem pH-Wert zu, während die Anionenadsorption mit fallendem pH-Wert größer wird. Die spezifische Adsorption nimmt in abnehmender Reihenfolge der Hydrolysekonstante zu, z.B. $Cd < Ni < Co < Zn \ll Cu < Pb \ll Hg$. Cd, Ni, Co, Zn können erst bei hohen pH-Werten spezifisch adsorbiert werden, während Hg, Pb, und Cu schon bei niedrigen pH-Werten gebunden werden. Bei gleichen Beträgen wird das größere Ion stärker spezifisch adsorbiert.

Beim Kationenaustausch wird die Haftfestigkeit der Kationen in starkem Maße von der Ladung und der Hydratationsenergie beeinflusst, so dass die Haftfestigkeit z.B. von $Na < Ca^{2+} < Cr^{3+} < Th^{4+}$ zunimmt. Bei Kationen gleicher Ladung steigt die Haftfestigkeit mit steigendem Radius des Ions an: $Li < Na < K < Rb < Cs$. Kationenaustauschkapazitäten von SPV Volclay und Calcigel sind in Tab. 3 dargestellt.

Wechselwirkung von Kluftwässern mit Bentonit

Beim Ionenaustausch zwischen dem Bentonit und dem Kluftwasser kann dem Wasser Ca entzogen werden, wodurch die Karbonate im Na-Bentonit gelöst werden können. Diese Reaktion ist mit einer starken Erhöhung des pH-Wertes begleitet. Aus den strukturellen Eigenschaften der Bentonite kann abgeleitet werden, dass bei niedrigem pH-Wert in der Zwischenschicht adsorbierte Kationen wieder durch H^+ verdrängt werden. Bei sehr hohem pH-Wert findet der umgekehrte Prozess statt, d.h. Protonen in Austauschposition werden durch Kationen aus der Lösung verdrängt. Bei hohem pH-Wert können Si^{4+} und Al^{3+} aus den Tetraeder- und Oktaederschichten herausgelöst werden. Diese Lösungsprodukte können mit anderen Kationen neue Minerale (Zeolithe, Kalifeldspat, AlOOH und Quarz) bilden.

4.5 Thermische Eigenschaften

Bentonite haben ungünstige thermische Eigenschaften hinsichtlich der Verwendung zur Verfüllung von Endlagern für radioaktive Abfälle. Die sehr niedrige thermische Leitfähigkeit führt die Wärme, die insbesondere in der Nachbetriebsphase produziert wird, nur langsam ab. Dadurch kann eine unerwünscht hohe Temperatur, Austrocknung und Rissbildung auftreten. Granitoide Gesteine

weisen dagegen eine große thermische Leitfähigkeit auf, so dass im verdichteten Backfill die geringe Wärmeleitfähigkeit des Bentonits durch den Zuschlagstoff Splitt kompensiert werden kann.

Die thermischen Eigenschaften des Backfills unter besonderer Berücksichtigung der Mineralogie, der Temperatur und der Sättigung werden in Engelhardt & Finsterle (2003) ausführlich beschrieben. Die schnellere Molekularbewegung bei Temperaturerhöhungen verbessert die thermische Leitfähigkeit. Mit zunehmender Sättigung nimmt ebenfalls die Wärmeleitung zu, da sich der Anteil der die Wärme schlecht leitenden Gasphase erniedrigt. Schließlich ist die Wärmeleitung parallel zur Kristallachse höher als rechtwinklig dazu (Farouki, 1986).

Des Weiteren bewirkt eine erhöhte Temperatur Strukturänderungen im Bentonit. Nach Pusch (2000) erfolgt bei einer Erwärmung des Bentonits eine Si^{4+} Abgabe, die eine Umwandlung des Smektit in Illit zur Folge hat (Illitisierung).

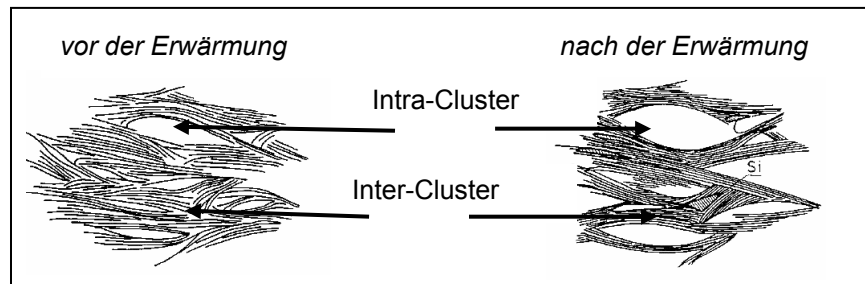


Abb. 12: Einfluss der Temperatur auf das Hohlräumvolumen (Pusch, 2000)

Das so gebildete amorphe $\text{Si}(\text{OH})_4$ führt zu einer sekundären Verkittung der Tonaggregate, so dass der ursprünglich zwischen den Tonaggregaten vorhandene „Inter-Cluster“-Porenraum verkleinert wird. Gleichzeitig führt diese Zementation zu einer Vergrößerung des „Intra-Cluster“-Porenraumes (vgl. Abb. 12). Diese Veränderungen im Porenraum führen nach Experimenten von Pusch (2000) zu einer Reduktion der Permeabilität.

5. EXPERIMENTELLE METHODEN

Zur Untersuchung der nicht-isothermalen Drainageprozesse im Backfill wurden verschiedene Laborexperimente durchgeführt. Zunächst wurden die thermodynamischen Eigenschaften der in Äspö vorkommenden Kluftwässer, „Äspöwasser“, untersucht. In einem speziell konstruierten Permeameter wurden die hydraulische Leitfähigkeit, die thermische Leitfähigkeit und die spezifische Wärmekapazität des Backfills bestimmt. Das Permeameter diente des Weiteren zur Durchführung von nicht-isothermalen Drainageversuchen, bei denen Stickstoff in ein zuvor wassergesättigtes System injiziert wurde. Zusätzlich wurde in einer speziell angefertigten Kapillardruckmesszelle die Kapillardruck-Sättigungsbeziehung gemessen. Die Durchführung der Experimente ist ausführlich in Engelhardt (2003), Engelhardt et al. (2003) und Engelhardt & Finsterle (2003) beschrieben.

5.1 Bestimmung der thermodynamischen Eigenschaften der Fluide

Die thermodynamischen Eigenschaften des Äspöwassers wurden experimentell bestimmt. Die Messung der kinematischen Viskosität wurde gemäß DIN 51562-1 mit dem Ubbelohde-Viskosimeter durchgeführt (vgl. Abb. 13). Es wurde die Zeit gemessen, die ein durch zwei Ringmarken (M1 und M2) begrenztes Volumen der zu messenden Flüssigkeit benötigt, um unter dem Einfluss der Schwerkraft laminar durch eine Kapillare zu strömen. Zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Viskosität wurde die Messung in einem Temperierbad durchgeführt. Die Auswertung der Messung erfolgte auf Grundlage der aus dem Hagen-Poiseuilleschen Gesetz abgeleiteten Viskosimetergleichung unter Berücksichtigung der Hagenbach-Korrektur.

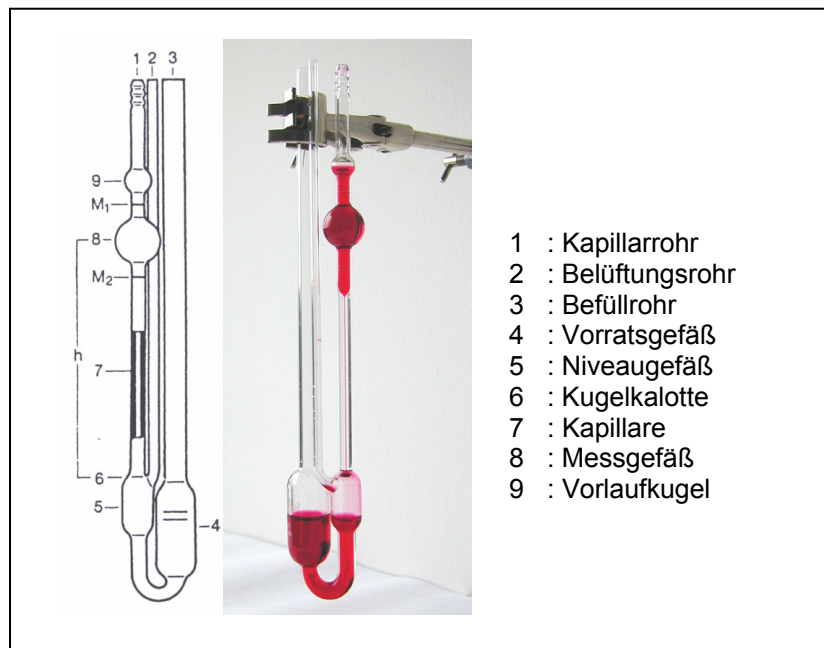


Abb. 13: Ubbelohde-Viskosimeter

Die Bestimmung der Dichte erfolgte nach DIN 12797. Zunächst wurde die Masse der trockenen Pyknometer bestimmt. Ihr Nennvolumen wird vom Hersteller angegeben (vgl. Abb. 14). Die mit dem Fluid gefüllten Pyknometer wurden im Wasserbad auf eine definierte Temperatur erhitzt und erneut gewogen, so dass die Dichte des Wassers als Funktion der Temperatur bestimmt werden konnte.

Zur Bestimmung der Oberflächenspannung wurde die Ringmethode nach de Noüy (vgl. DIN 53993) eingesetzt (vgl. Abb. 14). Es wurde die maximale Kraft gemessen, die erforderlich war, um einen Ring von der wässrigen in die nicht wässrige Phase zu ziehen. Die beim Herausziehen des Messkörpers aus der Flüssigkeit gemessene Maximalkraft, die deutlich vor dem Abriss des Wasserfilms vom Messkörper auftrat, ist der Oberflächenspannung der Flüssigkeit direkt proportional.



Abb. 14: Pyknometer (links) und Ringtensiometer (rechts)

5.2 1D Säulen Experimente

Packung des Permeameters

Materialportionen von je 33 g Bentonit (Berücksichtigung des initialen Wassergehaltes von 9%) und 70 g Splitt wurden unter Äspöwasser vermischt bis eine homogene Masse entstand. Mit Hilfe eines Stempels wurde das wasserübersättigte Material in der Probensäule verdichtet (vgl. Abb. 15). Über einen Spanngurt, der den Stempel in die Säule presste, konnte der nötige Druck erzeugt werden, um eine Trockendichte von 1.6 g/cm^3 zu erreichen. Geöffnete Schrauben im Stempel dienten dabei zum Luftaustritt und ermöglichten das Packen ohne Lufteinschluss. Die Verwendung von zwei Filtern aus Phosphor-Bronze-Gewebe und Geotextil verhinderten das Ausschwemmen des Bentonits durch die Stempellöcher.

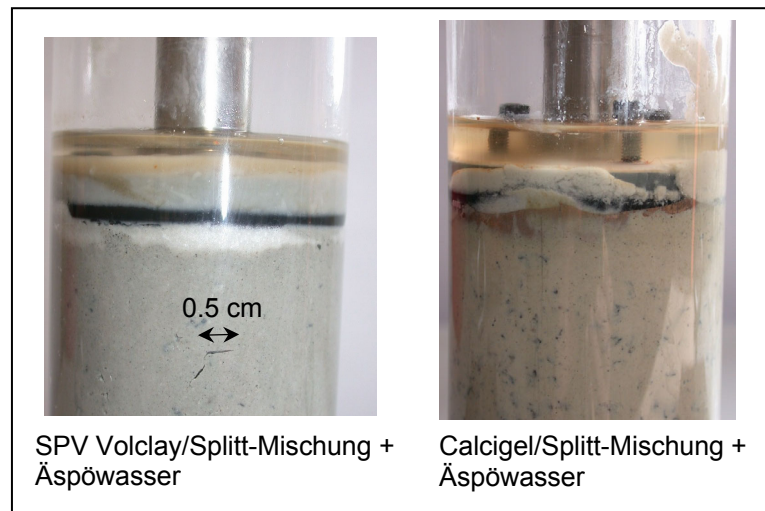


Abb. 15: Verdichtungstechnik und Rissbildung

Die SPV Volclay/Splitt- und Calcigel/Splitt-Mischungen konnten zunächst rissfrei in die Probensäule eingebaut werden. Beim Kontakt der SPV Volclay/Splitt-Mischungen mit Äspöwasser entstanden nach ca. 10 h Risse von bis zu 0.5 cm Länge und 2 mm Breite (vgl. Abb. 15). Die Calcigel/Splitt-Mischungen wiesen weder unter Zugabe von Äspöwasser noch mit destilliertem Wasser eine Rissbildung auf (vgl. Abb. 15). Beim Vermengen von destilliertem Wasser mit SPV Volclay/Splitt-Mischungen entstanden ebenfalls keine Risse, so dass die Rissbildung auf ein Koagulieren des Na-Bentonits zurückzuführen ist (Engelhardt & Finsterle, 2003).

Durchlässigkeitsversuche

Das Permeameter besteht aus einer 30 cm langen (Durchmesser 5 cm) Stahlsäule, die, wie oben beschrieben, mit Bentonit/Splitt-Mischungen befüllt wurde. Zum Anlegen eines konstanten Drucks oder eines Druckgradienten dient ein Wassercontainer im Vorlauf der Säule, der einen Wasserdruck bis zu 20 bar erzeugen kann. An die andere Seite der Säule ist eine Bürette angeschlossen, die, je nach Versuchsbedingungen, vom System getrennt, zur Atmosphäre geöffnet, oder mit bis zu 10 bar Wasserdruck an das System angeschlossen ist (vgl. Abb. 16).

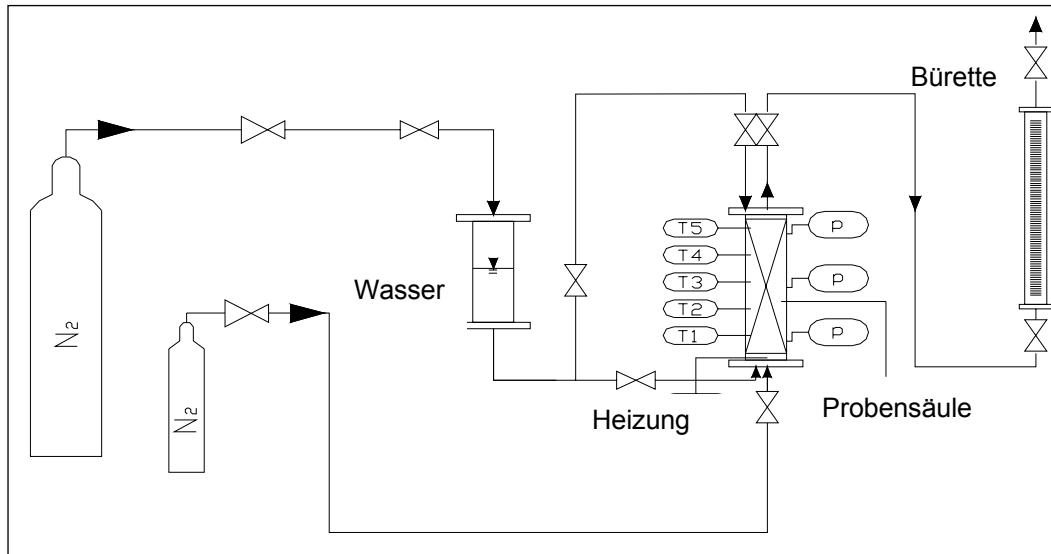


Abb. 16: Permeameter zur Durchführung der hydraulischen und thermischen Experimente (T1 bis T5 = Temperaturfühler und P = Manometer)

Zur Bestimmung der hydraulischen Durchlässigkeit wurde ein Druckgradient von 20 bar entlang der Probensäule angelegt. Wasser strömte aus dem Wasserzulauf mit 20 bar durch den Boden der Säule in den Probenkörper. Die angeschlossene Bürette wurde zur Atmosphäre hin geöffnet und diente zum Auffangen des die Probe durchströmenden Wassers (vgl. Abb. 16 und 17a). Am Boden und Top der Säule waren Filterschichten aus Feinsand, Geotextil und Metallgewebe eingebaut, um eine ein-dimensionale Strömung zu erzeugen und um den Bentonit nicht mit dem Wasser aus der Probe zu schwimmen. Unter Anwendung des DARCY'schen Gesetzes konnte aus dem gemessenen Volumenzufluss in die Bürette und dem angelegten Druckgradienten die Permeabilität berechnet werden. Die Permeabilität wurde anschließend in die hydraulische Leitfähigkeit umgerechnet. Mit Hilfe der zuvor experimentell bestimmten Temperaturabhängigkeit der Viskosität und Dichte konnte nun die hydraulische Leitfähigkeit bis 90°C skaliert werden. Die Durchlässigkeitsversuche wurden mit SPV Volclay/Splitt-Mischungen sowie Calcigel/Splitt-Mischungen unter Verwendung von Äspöwasser und destilliertem Wasser ausgeführt. Des weiteren wurden hydraulische Versuche nach einer mehrtägigen Erhitzung der Probe durchgeführt, um den Einfluss der Illitisierung auf die Permeabilität zu analysieren.

Thermische Experimente

Für die thermischen Experimente wurde mit Hilfe des Wasservorlaufes ein konstanter Wasserdruck von 10 bar oder 5 bar am Boden und Top der Probensäule angelegt. Die Bürette wurde bei diesem Versuch von der Säule abgetrennt. Die Probensäule wurde mit Isolierwatte ummantelt, um Wärmeverluste zu minimieren. Anschließend wurde die Heizspirale am Boden der Säule auf 90°C aufgeheizt. Mit Hilfe der entlang der Achse der Probensäule angebrachten Temperaturfühler (T1 bis T5) wurde der Temperaturanstieg bis zu einer zeitunabhängigen Temperaturverteilung gemessen (vgl. Abb. 16 und 17b). Die thermischen Experimente wurden mit Mischungen aus SPV Volclay und Splitt, Calcigel und Splitt unter Verwendung von Äspöwasser und destilliertem Wasser mit variierendem Wasserdruck durchgeführt.

Nicht-isothermale Drainage

In das bereits aufgeheizte, wassergesättigte System mit einem Wasserdruck von 10 bar wurde Stickstoff in den Boden der Säule injiziert. Die Injektion des Stickstoffs fand in mehreren Stufen statt. Zunächst wurde ein Injektionsdruck von 11.5 bar gewählt, um den Kapillardruck am Boden der Säule unterhalb des vermuteten Gaseindringdruckes der Bentonit/Splitt Mischungen zu halten (vgl. Abb. 16 und 17c). Nach ca. 4 Tagen wurde der Gasinjektionsdruck auf 15 bar und nach weiteren 6 Tagen auf 20 bar erhöht. Die Temperaturfühler und Manometer in der Säule zeichneten die Temperatur und den Druck als Funktion von Zeit und Ort auf. Die Bürette war bei diesem Versuch wieder mit der Probensäule verbunden und mit ca. 50 ml (maximales Wasservolumen= 150 ml) Äspöwasser gefüllt. Die Bürette besaß anfangs einen Druck von 10 bar, der bei durch den Zufluss der Wasserphase oder einen Gasdurchbruch ansteigen konnte. Die Versuche wurden jeweils bis zum Gasdurchbruch durchgeführt, der optisch durch das Austreten kleiner Gasblasen am Boden der Bürette erkennbar war. Der Gasdurchbruch erfolgte schlagartig und führte zu einem Druckausgleich von 20 bar in der Probensäule und der Bürette. Die Versuche wurden mit Mischungen aus SPV Volclay oder Calcigel und Splitt unter Verwendung von Äspöwasser sowie destilliertem Wasser durchgeführt.

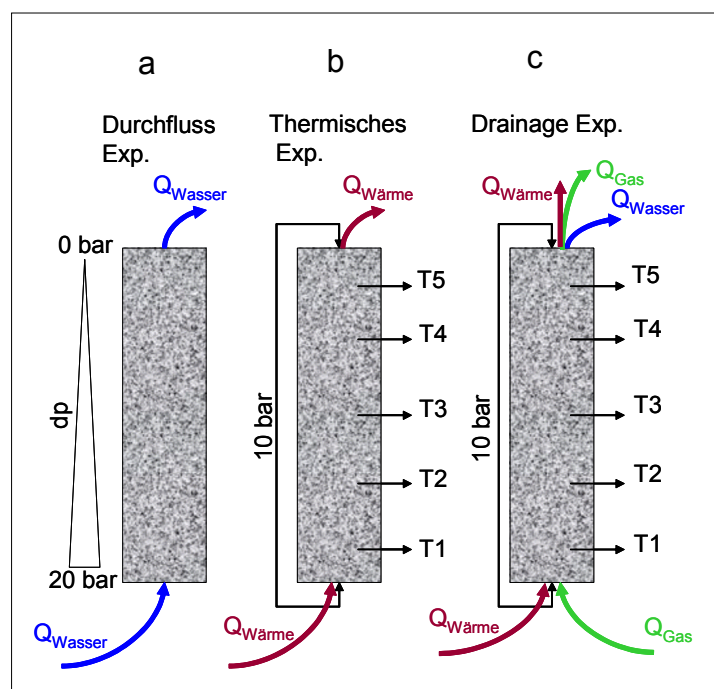


Abb. 17: Versuchsdurchführung des Durchfluss (a), thermischen (b) und Drainage (c) Experimentes

Kapillardruckmesszelle und Thermohygrometer

Zur Bestimmung der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung wurde für Kapillardrücke bis 100 bar das Prinzip einer Kapillardruckmesszelle angewendet (vgl. Abb. 18). Die Kapillardruckmesszelle ist eine spezielle Anfertigung für hohe Drücke und spitzkantiges Material. Die Bentonit/Splitt-Mischungen wurden mit einer Wassersättigung von 100% und einem Zuschlag von 1 ml Wasser in die Kapillardruckmesszelle eingebaut. Die Verdichtung auf eine Trockendichte von 1.6 g/cm^3 erfolgte mit einem speziell angefertigten Stempel. Am Boden der Probe war eine semipermeable Membran eingebaut, die bis 100 bar nur für die Wasserphase durchlässig ist. Am Top der Messzelle wurde ein konstanter Gasdruck eingestellt, um eine definierte Wassermenge in die an den Boden der Probe angeschlossene Bürette zu entwässern und somit die gewünschte Sättigung der Probe zu erzeugen. Nach Beenden des Drainagevorgangs wurde das wassergefüllte Kapillarrohr gegen die Bürette verschlossen und der sich einstellende Wasserdruck gemessen. Aus der Differenz zwischen dem angelegten Gasdruck und dem sich einstellenden Wasserdruck konnte nun der Kapillardruck berechnet werden. Befand sich das System im Gleichgewicht, so wurde analog der eingangs beschriebenen Versuchsdurchführung eine erneute Entwässerung vorgenommen und der zugehörige Kapillardruck bestimmt.

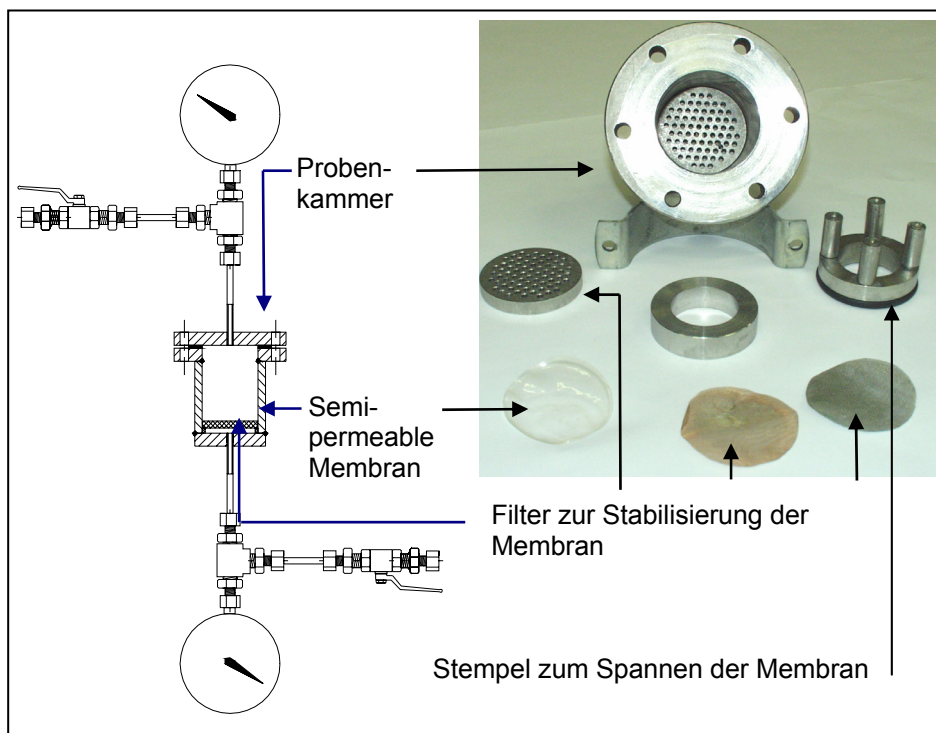


Abb. 18: Kapillardruckmesszelle

Bei einem Kapillardruck oberhalb 100 bar konnte aus technischen Gründen die Kapillardruckmesszelle nicht angewendet werden. Kapillardrücke über 100 bar stellten sich bei einer Sättigung unterhalb 40%, bei der an die Tonmineraloberfläche adsorbiertes Wasser überwiegt, ein. Um eine umfassende Kapillardruck-Sättigungskurve über alle Sättigungsbereiche zu erhalten, musste für diesen Sättigungsbereich ein Thermohygrometer verwendet werden. Das Thermohygrometer hängt in einem temperaturkonstanten Container, der zur Umgebung luftdicht abgeschlossen ist, oberhalb der Probe mit einem definierten Wassergehalt. Bei dieser Methode wird die relative Feuchte in der Luft oberhalb des Probenmaterials gemessen (vgl. Abb. 19). Zwischen dem Dampfdruck der Probenluft und der Luft im Container stellt sich ein Gleichgewicht ein, so dass aus der Kelvin Gleichung der Kapillardruck berechnet werden kann.

Mit Hilfe der zuvor bestimmten Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Temperatur konnte der Kapillardruck auf bis zu 90°C skaliert werden.

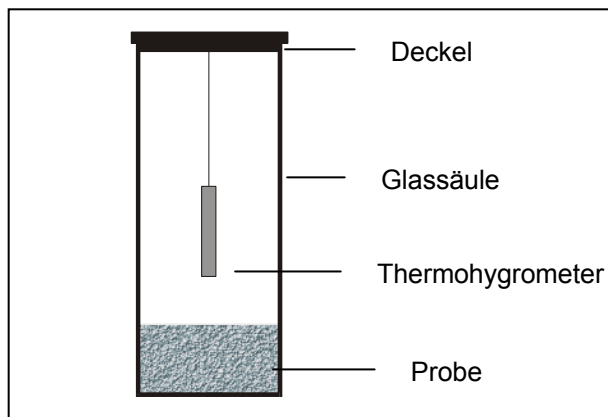


Abb. 19: Messung der relativen Feuchte mit dem Thermohygrometer

6. DATENANALYSE

Nachfolgend wird ein Überblick über die experimentellen und numerischen Ergebnisse gegeben, die detailliert in Engelhardt (2003), Engelhardt & Finsterle (2003) und Engelhardt et al. (2003) beschrieben sind.

6.1 Thermodynamische Parameter

Die Viskosität und Dichte des Äspöwassers wurden anhand empirischer Gleichungen von Chierici (1994) berechnet und anschließend mit den Messwerten verglichen. Die experimentell bestimmten Werte entsprachen gut den berechneten (vgl. Abb. 20).

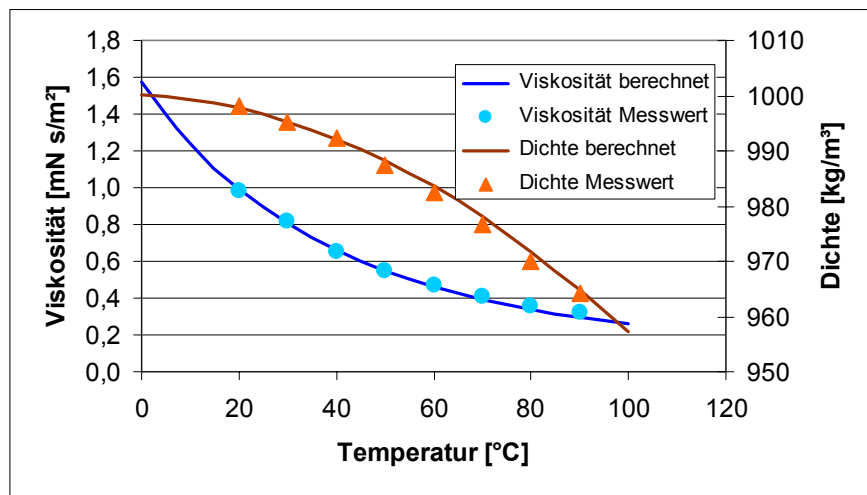


Abb. 20: Berechnete und gemessene Viskosität und Dichte als Funktion der Temperatur

Die Oberflächenspannung des Äspöwassers wurde bei 20°C gemessen. Die Gleichungen nach Poling et al. (2000) gaben gut den Messwert wieder und wurden daher zur Berechnung der Oberflächenspannung als Funktion der Temperatur gewählt (vgl. Abb. 21).

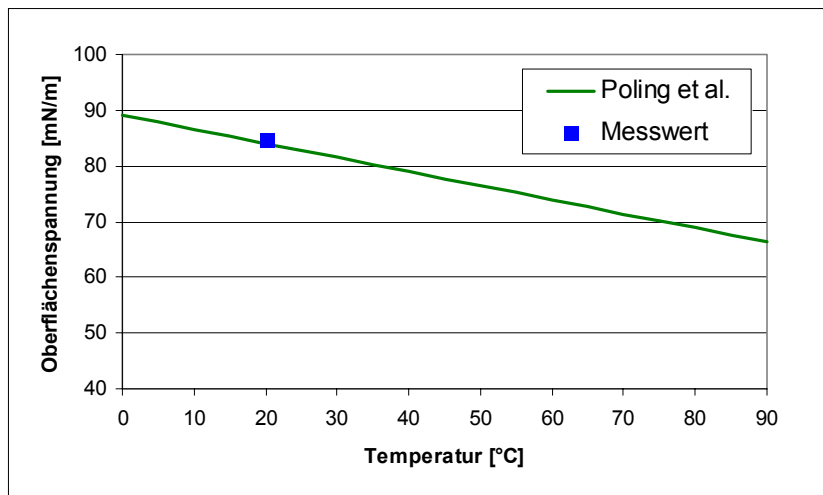


Abb. 21: Berechnete und gemessene Oberflächenspannung als Funktion der Temperatur

6.2 Hydraulische Leitfähigkeit

Mittelwert und Standardabweichung der hydraulischen Durchlässigkeit wurden berechnet und sind in Tab. 4 zusammengefasst. Der Mittelwert der hydraulischen Durchlässigkeit von SPV Volclay/Splitt-Mischungen stieg von 1.64×10^{-11} m/s bei 20°C auf 4.87×10^{-11} m/s bei 90°C an (vgl. Abb. 22). Die schnelle Reduktion der hydraulischen Durchlässigkeit am Anfang des Versuchs kann durch eine Umverteilung und Komprimierung offener, wenig stabiler Porenräume erklärt werden. Durch Illitisierungsprozesse reduziert sich die hydraulische Leitfähigkeit der SPV Volclay/Splitt-Mischungen nach Erhitzen der Probe um etwa 33% (vgl. Kap 4.4).

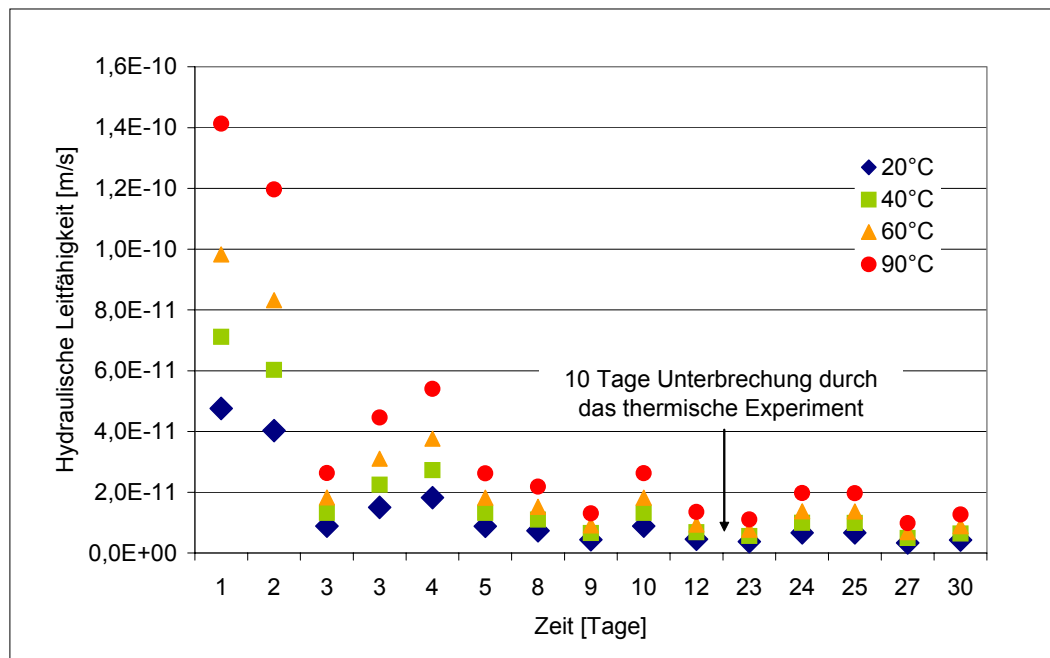


Abb. 22: Hydraulische Leitfähigkeit als Funktion der Temperatur für SPV Volclay/Splitt-Mischungen mit Äspöwasser

Die hydraulische Leitfähigkeit der Calcigel/Splitt-Mischungen betrug bei 20°C 4.93×10^{-9} m/s und stieg auf 1.46×10^{-8} m/s bei 90°C an (vgl. Abb. 23). Diese deutlich höhere hydraulische Leitfähigkeit gegenüber SPV Volclay/Splitt-Mischungen spiegelt den Einfluss der diffusen Ionenschicht auf die hydraulischen Materialparameter wieder (vgl. Kap. 4.2). Die Messwerte wurden abschließend mit Literaturdaten verglichen. Die Differenz zwischen den im Permeameter erzielten Messwerten und den Literaturdaten können aus Unterschieden zwischen der Körnung der verwendeten Bentonite oder der Salinität der verwendeten Wässer resultieren.

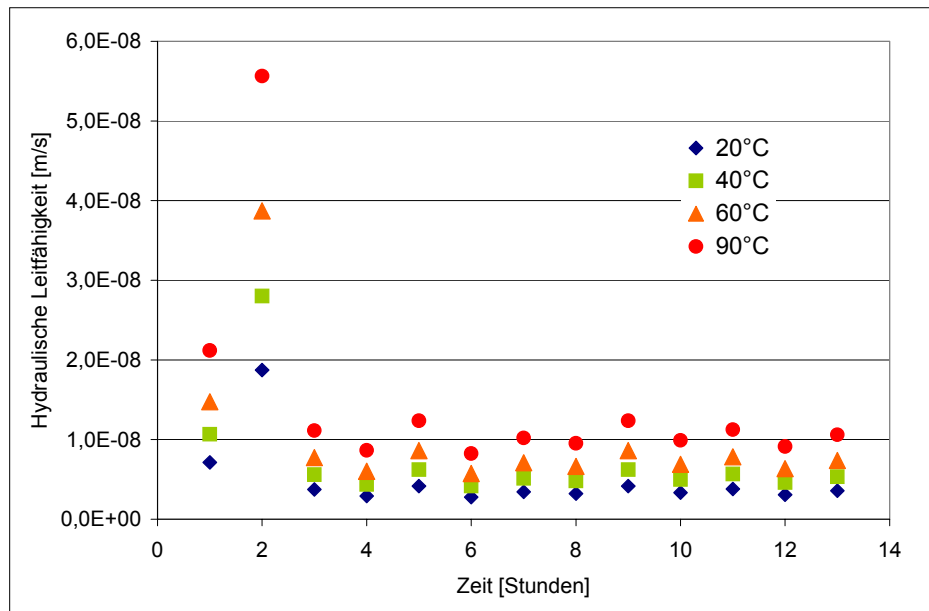


Abb. 23. Hydraulische Leitfähigkeit als Funktion der Temperatur für Calcigel/Splitt-Mischungen mit Äspöwasser

Tab. 4: Ergebnisse der hydraulischen Experimente

	SPV Volclay/Splitt-Mischungen + Äspöwasser	Calcigel/Splitt-Mischungen + Äspöwasser
Hydraulische Experimente bei 20°C vor dem thermischen Experiment		
Mittelwert k, gemessen; 20°C	1.64×10^{-11} m/s	4.93×10^{-9} m/s
Mittelwert k, berechnet für 90°C	4.87×10^{-11} m/s	1.46×10^{-8} m/s
Anzahl der Experimente	10	12
Hydraulische Leitfähigkeit bei 20°C aus Literaturdaten		
Mingarro et al. (1991)	-	9.5×10^{-9} m/s
Johannesson et al. (1999)	9.0×10^{-10} m/s	-
Hydraulische Experimente bei 20°C nach dem thermischen Experiment		
Mittelwert k, gemessen; 20°C	5.53×10^{-12} m/s	-
Mittelwert k, berechnet für 90°C	1.64×10^{-11} m/s	-
Anzahl der Experimente	7	-

6.3 Bestimmung der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung

Mit der Kapillardruckmesszelle und dem Thermohyrometer wurde für die SPV Volclay/Splitt-Mischungen bei Zugabe von Äspöwasser die Kapillardruck-Sättigungsbeziehung gemessen (vgl. Abb. 24). Zur Beschreibung der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung wurden für die empirischen Funktionen von van Genuchten (1980) und Brooks- Corey (1964) die Modellparameter bestimmt (vgl. Tab. 5). Die Messwerte und die besten Kurvenanpassungen sind in Abb. 24 dargestellt. Der bei 20°C gemessene Kapillardruck wurde in Anlehnung an Lenhard & Parker (1987) auf eine Temperatur von 90°C skaliert. Ein Temperaturanstieg auf 90°C führt bei diesem Ansatz zu einer Verminderung des Kapillardrucks um 20%.

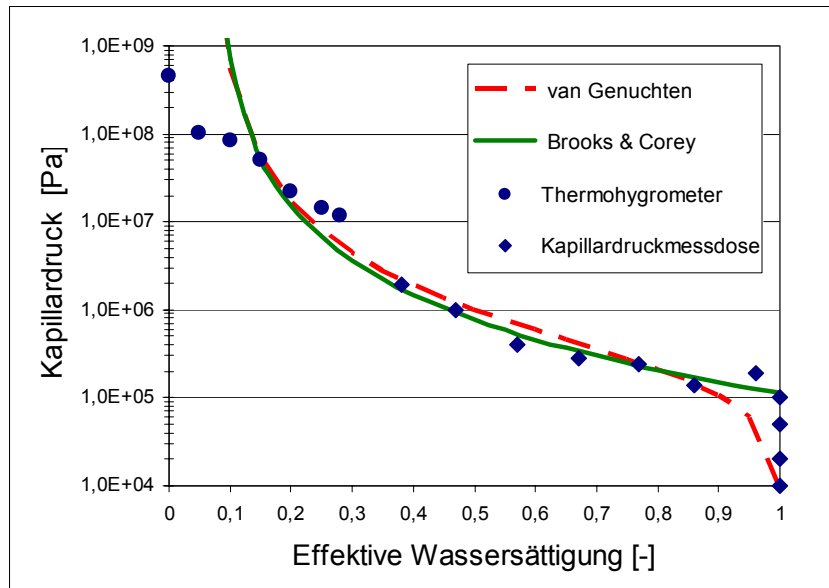


Abb. 24: Messdaten der Kapillardruck-Sättigungsbeziehung und Kurvenanpassung der van Genuchten und Brooks- Corey Funktion

Tab. 5: Parameter der Kurvenanpassung

Van Genuchten Modell		Brooks- Corey Modell	
Residuale Wassersättigung [-]	0.07	Residuale Wassersättigung [-]	0.07
Residuale Gassättigung [-]	0.01	Residuale Gassättigung [-]	0.01
Porenverteilungsindex n [-]	1.44	Porenverteilungsindex λ [-]	0.40
$1/\alpha$ [Pa]	1.89×10^5	Gaseindringdruck P_d [Pa]	1.1×10^5

6.4 Inverse Modellierung

Das inverse Modell des Programms iTOUGH2 (Finsterle, 1999) wurde zur Bestimmung der thermischen und hydraulischen Materialparameter verwendet. Die Lösung des direkten Problems wurde von dem Simulationsprogramm TOUGH2 (Pruess et al., 1999) übernommen. Das inverse Problem kann als die Quantifizierung der Modellparameter auf Grund von Messdaten, welche den Systemzustand an diskreten Punkten zu bestimmten Zeiten wiedergeben, beschrieben werden (Finsterle, 1993). Zusätzlich wurden a priori vorhandene Informationen über die Modellparameter, die Messdaten, in die Schätzung mit einbezogen. Die inverse Modellierung umfasst somit neben der Formulierung des direkten Problems auch die Charakterisierung des Systemzustandes anhand

von Messwerten sowie eine Rechenvorschrift, die die Modellparameter zu den Beobachtungen in Beziehung setzt. Bei der Verwendung des indirekten Lösungsansatzes wird das inverse Problem als eine Optimierungsaufgabe formuliert, bei der die Differenz zwischen dem gerechneten und gemessenen Systemzustand minimal ist. Die geschätzten Parameter waren: die thermische Leitfähigkeit, die spezifische Wärmekapazität, die hydraulische Leitfähigkeit und die Parameter der Kapillardruckkurve.

Thermische Parameter

Die Konzeption des inversen numerischen Modells und die Vorgehensweise zur Schätzung der thermischen Parameter unter Anwendung des Programms iTOUGH2 ist ausführlich in Engelhardt & Finsterle (2003) beschrieben. Abb. 25 zeigt die Messdaten, die mit den Temperaturfühlern T1 bis T5 gewonnen wurden sowie die Simulation der zeitlichen und räumlichen Temperaturverteilung. Die Simulation der Temperaturverteilung und Schätzung der thermischen Parameter war stark von Wärmeverlusten über die Ränder beeinflusst, so dass die thermische Leitfähigkeit des Randes ebenfalls geschätzt werden musste. Das dafür simulierte Randelement bildete den Stahlmantel der Probensäule, die Isolation und den umgebenden Raum ab. Die Heizspirale am Boden der Säule wurde auf eine Temperatur von 90°C erhitzt. Durch messtechnische Probleme musste jedoch die Temperatur des Wassers beim Eintreten in die Probe als zusätzlicher Parameter geschätzt werden.

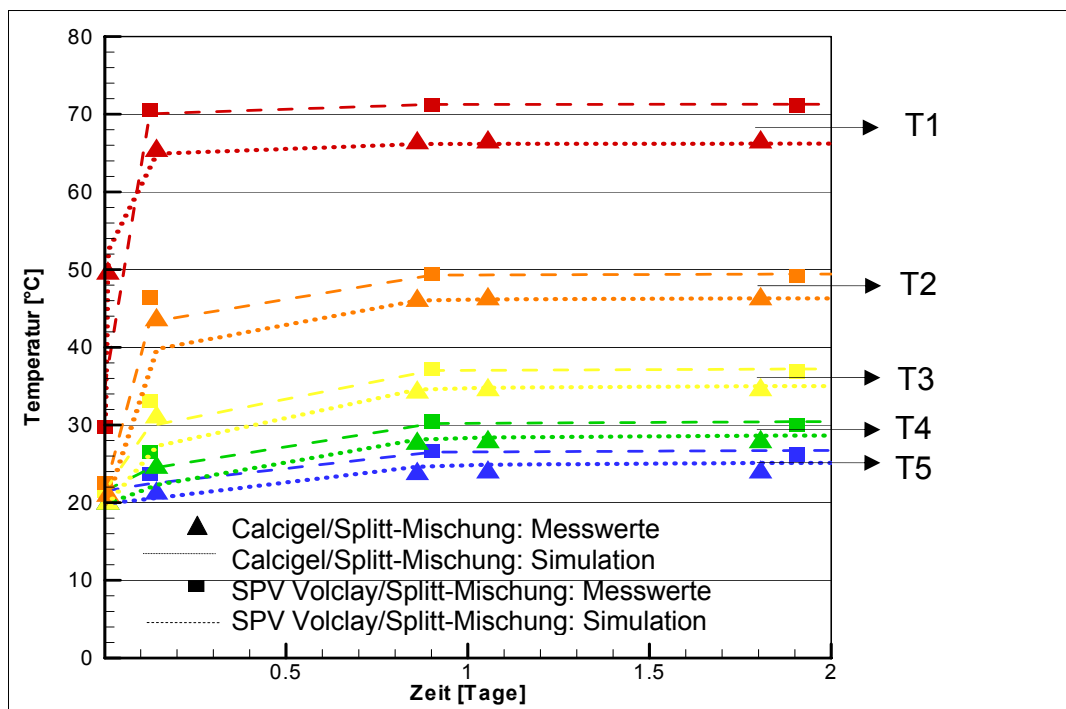


Abb. 25: Messung (Symbole) und Simulation (Linien) der Temperaturverteilung

Das Programm iTOUGH2 ermöglicht eine statistische Analyse der Simulationsergebnisse, wie z.B. Fehlerabschätzungen und Sensitivitätsanalysen. Die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse werden in Engelhardt et al. (2003) diskutiert. Tab. 6 zeigt die geschätzten thermischen Parameter, den berechneten Wärmetransport in der Säule, sowie die Wärmeverluste über die Ränder und die Standardabweichungen für alle berechneten Größen.

Die mit Hilfe des Programms iTOUGH2 geschätzte thermische Leitfähigkeit wurde mit empirischen Gleichungen, die für Bentonit entwickelt wurden, verglichen. Die mit Hilfe inverser Modellierung bestimmte thermische Leitfähigkeit entsprach gut den Werten, die sich aus den empirischen Gleichungen ergaben (Engelhardt & Finsterle, 2003)

Tab. 6: Ergebnisse der inverse Modellierung der thermischen Experimente

Material	Calcigel/Splitt-Mischungen		SPV Volclay/Splitt-Mischungen	
	Schätzwert	σ_P	Schätzwert	σ_P
Spezifische Wärmekapazität des Backfills [J/kgK]	810	90	1010	75
Thermische Leitfähigkeit des Backfills [W/mK]	1.6	0.2	2.2	0.2
Thermische Leitfähigkeit der Isolierung [W/mK]	0.15	0.02	0.23	0.03
Temperatur des Heizelements [°C]	71.5	1.0	77.2	0.9
Gesamter Wärmefluss				
Wärmefluss durch das Backfill [W]	30.1		45.0	
Wärmeverlust über die Ränder [W]	1.4		2.1	

Ungesättigte hydraulische Parameter

Eine detaillierte Beschreibung der Konzeption des inversen Modells zur Bestimmung der Permeabilität und der Kapillardruckkurve ist in Engelhardt et al. (2003) aufgeführt.

Bei der inversen Modellierung des nicht-isothermalen Drainageversuchs wurden die hydraulische Leitfähigkeit, der Gaseindringdruck, der α -Parameter, die thermische Leitfähigkeit und die spezifische Wärmekapazität geschätzt (vgl. Tab. 7). Weitere Parameter, wie der Porenverteilungsindex, die residuale Gas- und Wassersättigung wurden nicht variiert, sondern gemäß der Ergebnisse aus der Kurvenanpassung in Abb. 24 fixiert (vgl. Tab. 5). Eine Erhöhung der Anzahl der zu schätzenden Parameter hätte zu einer größeren Korrelation der Parameter und damit zu einem Anstieg der Schätzungenauigkeit geführt. Startwerte waren die Messdaten aus den Durchlässigkeitsversuchen sowie aus der Kapillardruckmessdose und dem Thermohygrometer. Als Messdaten zur Wiedergabe des Systemverhaltens dienten die Temperaturverteilung, der Wasserzufluss in die Bürette sowie der Druckanstieg in der Bürette. Abb. 26 zeigt zum einen die Messdaten des kumulativen Wasserzuflusses in die Bürette und zum anderen das simulierte Systemverhalten. Deutlich wird dabei, dass gegen Ende des Experiments beide Modelle, speziell das van Genuchten Modell, das Systemverhalten gut wiedergaben. Der anfänglich hohe Wasserzufluss in die Bürette wurde von beiden Modellen deutlich unterschätzt. Diese Unterschätzung des Wasserflusses zu Beginn der Drainage könnte andeuten, dass zunächst Makroporen im Bentonit entwässert wurden (Engelhardt et al., 2003).

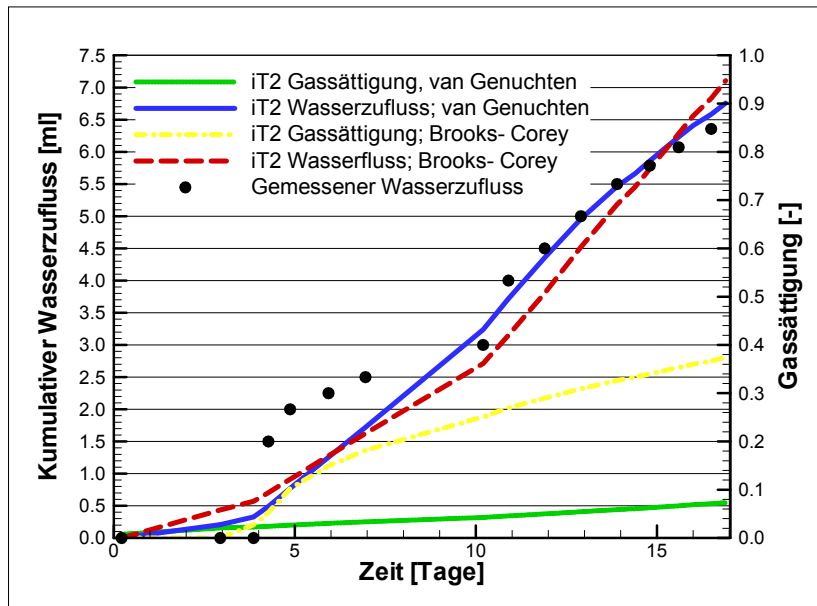


Abb. 26. Messdaten und Simulation des Wasserzuflusses in die Bürette

Erst bei der Simulation des Druckanstiegs in der Bürette kamen die Unterschiede zwischen den beiden Modellen deutlich zum Ausdruck (vgl. Abb. 27). Das van Genuchten Modell prognostizierte auf Grund des fehlenden Gaseindringdruckes einen Gasdurchbruch in die Bürette nach 10 Tagen und berechnete somit einen schlagartigen Druckanstieg in dem Moment des Gasdurchbruchs. Insgesamt breitete sich die Gasphase diffus über die gesamte Säule aus. Das Brooks-Corey Modell berechnete keinen Gasdurchbruch während des gesamten Experiments, so dass analog zu den Messdaten der Druck in der Bürette innerhalb der simulierten drei Wochen nur um 0.3 bar anstieg. Der Gaseindringdruck im Brooks-Corey Modell führte bei dieser Simulation zu einer deutlich abgegrenzten Ausbreitung der Gasphase in Form einer Front. Der restliche Bereich der Säule wies bei diesem Modell eine Wassersättigung von 100% auf.

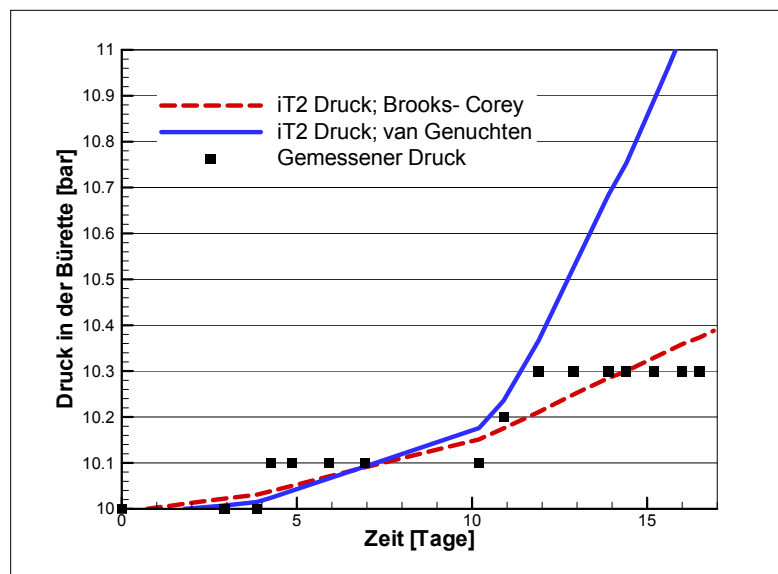


Abb. 27. Messdaten und Simulation des Druckanstiegs in der Bürette

Die geschätzte Permeabilität entspricht den Messdaten aus den Permeameterversuchen. Die Berechnung des Gaseindringdrucks ergibt einen deutlich geringeren Wert bei Anwendung des Brooks-Corey Modells gegenüber dem Wert, der aus der Kurvenanpassung an die Messdaten resultiert. Ursache hierfür ist die verminderte Permeabilität im Brooks-Corey Modell, und die große Korrelation zwischen den hydraulischen Parametern (vgl. Tab. 7). Unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit des Kapillardrucks entspricht die Schätzung des α -Parameters (van Genuchten Modell) bei 90°C gut den Messdaten bei 20°C (Engelhardt et al., 2003).

Tab. 7. Ergebnisse der inversen Modellierung des Drainage Experiments

Parameter	Model	Startwert	Beste Schätzung	σ_P	σ^*_P/σ_P
<i>Permeabilität</i>					
log (k [m ²])	van Genuchten	-18.07	-17.89	0.02	0.40
	Brooks- Corey		-18.08	0.02	0.24
<i>Gaseindringdruck</i>					
log (1/ α [Pa])	van Genuchten	5.28	5.15	0.14	0.40
log (P _d [Pa])	Brooks- Corey	5.04	4.60	0.14	0.24

7. AUSBLICK

Im Rahmen dieser Arbeit sind Experimente zur Bestimmung der Permeabilität, der thermischen Leitfähigkeit, der spezifischen Wärmekapazität und der Kapillardruckkurve entwickelt und analysiert worden. Es wurden Versuche durchgeführt, um den Einfluss der Salinität, der Kationenbelegung, des Drucks und der Temperatur auf diese Materialparameter zu bestimmen. Des Weiteren wurden die Experimente mit Hilfe inverser Modellierung ausgewertet. Die direkte Bestimmung der Permeabilität und der Parameter der Kapillardruckkurve waren konsistent mit den Werten, die bei der inversen Modellierung geschätzt wurden.

Bei der Sensitivitätsanalyse wurde deutlich, dass für zukünftige experimentelle Arbeiten die inverse Modellierung vor der Konstruktion des Versuchsaufbaus durchgeführt werden sollte. Inverse Modellierung ist ein sinnvolles Werkzeug, um im Vorfeld die Lage der Messgeräte und Versuchsdauer so zu planen, dass für die Parameterschätzung möglichst sensitive Messdaten zu Verfügung stehen. Speziell die letzten Messwerte des Wasserzuflusses im nicht-isothermalen Drainage Experiment waren am sensitivsten zur Bestimmung der Kapillardruckmesskurve, so dass eine Verlängerung der Experimentdauer zu einer besseren Schätzgenauigkeit geführt hätte.

Weiterhin wäre eine Untersuchung der Hypothese des Makroporensystems im Bentonit sinnvoll. Es gibt Arbeiten, z.B. von Durner et al (1999), die Ansätze zur Berücksichtigung von bi-modalen Porensystemen postulieren. Die Implementation dieser bi-modalen Funktionen in das iTOUGH2 und die unter Anwendung dieser Funktionen durchgeführte erneute Simulation des Drainage Experiments, würde fundiertere Aussagen über die Existenz und Eigenschaften eines Makroporensystems ermöglichen.

Die Experimente zur Bestimmung der thermischen und hydraulischen Parameter wurden im Labormaßstab durchgeführt. Zur Berechnung der großskaligen nicht-isothermalen Prozesse im HRL Äspö wäre ein Vergleich der im Labor bestimmten Materialparameter mit den in-situ gemessenen Daten sinnvoll, um Skaleneffekte bestimmen, bewerten und minimieren zu können. Bei der inversen Modellierung unter Anwendung des Programms iTOUGH2 wurden nur die thermisch-hydraulisch gekoppelten Prozesse berücksichtigt. Auf Grund der Komplexität des

Bentonits wäre jedoch eine Berücksichtigung der Mechanik und Chemie für das Erfassen des gesamten Prozesses sehr sinnvoll. Zu diesem Zweck wurden Vergleichsrechnungen mit dem Programm Rockflow erstellt. Zum einen wurden die Simulationsergebnisse von iTOUGH2 mit Rechenergebnissen aus dem thermisch-hydraulisch gekoppelten Modell von ROCKFLOW unter Übernahme der mit iTOUGH2 erstellten Geometrie, Rand- oder Anfangsbedingungen verglichen (de Jonge et al., 2003). Weiterhin werden derzeit die Experimente mit dem thermisch-hydraulisch-chemischen Modell des Programms ROCKFLOW erneut simuliert, um den Einfluss der Quellung auf die relative Permeabilität-Sättigungsbeziehung zu bestimmen (Xie et al. 2003).

8. LITERATURVERZEICHNIS

- Brooks, R. H., and A.T. Corey. 1964. Hydraulic Properties of Porous Media. Hydrology Papers No. 3. Colorado State Univ., Fort Collins.
- Chierici, G.L. 1994. Principles of Petroleum Reservoir Engineering. Springer, Berlin, Germany, ISBN 3-540-56037-8.
- de Jonge, J., I. Engelhardt, and O. Kolditz. 2003. Benchmarking Non-isothermal Multi-componental Numerical Simulations.- Int. J. Num. Anal. Math. Geomech (in preparation).
- DIN 12797. 1975. Pyknometer nach Gay-Lussac. Berlin, Germany.
- DIN 51562. 1999. Messung der kinematischen Viskosität mit dem Ubbelohde- Viskosimeter, Teil 1: Bauform und Durchführung der Messung. Berlin, Germany.
- DIN 53993. 1997. Bestimmung der Grenzflächenspannung, Bügel- oder Ringmethode. Berlin, Germany.
- Durner, W., E. Priesack, H.-J. Vogel, and T. Zurmühl. 1999. Determination Of Parameters for Flexible Hydraulic Functions by Inverse Modeling, In: M. T. van Genuchten, F.J. Leij, and L. Wu (ed.), Characterization and Measurement of the Hydraulic Properties of Unsaturated Porous Media. 2: 817–829, University of California, Riverside, CA.
- Engelhardt, I. 2003. Inverse Modeling of Gas, Water, and Heat Flow in Bentonite/Crushed Rock Backfill. Proceedings of the TOUGH Symposium 2003. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA, May 12–14, 2003.
- Engelhardt, I., and S. Finsterle. 2003. Thermal-Hydraulic Experiments with Bentonite/Crushed Rock Mixtures and Estimation of Effective Parameters by Inverse Modeling.- Applied Clay Science (accepted).
- Engelhardt, I., S. Finsterle, and C. Hofstee. 2003. Experimental and Numerical Investigation of Flow Phenomena in Non-isothermal, Variably Saturated Bentonite/Crushed Rock Mixtures [Online]. Available at <http://www.vadosezonejournal.org> (in press).
- Farouki, O. T. 1986. Thermal properties of soils. Trans Tech Publication, Clausthal-Zellerfeld, Germany.
- Finsterle, S. 1993. Inverse Modellierung zur Bestimmung hydrologischer Parameter eines Zweiphasensystems. Dissertation an der ETH Zürich, Switzerland.
- Finsterle, S. 1999. iTOUGH2 User's Guide. Report LBNL-40040. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Hallenberg, O.R., P. Östlund, and T. Wadsten. 1988. Inferences from a Corrosion Study of a Bronze Cannon, applied to High Level Nuclear Waste Disposal. Appl. Geochem. 3: 273-280.
- Hillel, D. 1980. Fundamentals in Soil Physics. Academic Press, London, UK.
- Jasmund, K., and G. Lagaly. 1983. Tonminerale und Tone. Steinkopff, Darmstadt, Germany
- Johannesson, L.-E., L. Börgesson, and T. Sandèn. 1999. Backfill Materials based on Crushed Rock. Clay Technology AB. Lund, Sweden.
- Kahr, G., F. Krähenbühl, M. Müller-VonMoos, and H.F. Stöckli. 1986. Wasseraufnahme und Wasserbewegung in hochverdichtetem Bentonit. NAGRA NTB 86-14, Wettingen, Switzerland.

- Lenhard, R.J., and J.C. Parker. 1987. Measurement and Predictions of Saturation-Pressure Relationships in Three-Phase Porous Media Systems. *J. Contam. Hydrol.* 1: 407-424.
- Mingarro, E., P. Rivas, L.P. del Villar, B. de la Cruz, P. Gómez, A. Hernández, M.J. Turrero, M.V. Villar, R. Campos, and J. Cozar. 1991. Characterization of clay (bentonite)/crushed granite mixtures to build barriers against the migration of radionuclides: diffusion studies and physical properties. Final Report EUR 13666 EN, Brussels, Belgium.
- Müller-Vonmoos, M., and G. Kahr. 1983. Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonit MX80 und Montigel. NAGRA NTB 83-12, Wettingen, Switzerland.
- Poling, B.E., J.M. Prausnitz, and J.P. O'Connell. 2001. *The Properties of Gases and Liquids*. Fifth Edition. NY (McGraw-Hill), ISBN 0-07-011682-2.
- Pruess, K., C. Oldenburg, and G. Moridis. 1999. TOUGH2 User's Guide, Version 2.0. Report LBNL-43134. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Pusch, R. 2000. On the Effect of Hot Vapor on MX80 Clay. SKB Technical Report TR-00-16, Lund, Sweden.
- Radhakrishna, H.S., A.M. Crawford, B. Kjartanson, and K.C. Lau. 1992. Numerical Modelling of Heat and Moisture Transport Through Bentonite-Sand Buffer. *Can. Geotech. J.* 29: 1044-1059.
- Rodwell, W.R., A.W. Harris, S.T. Horseman, P. Lalieux, W. Müller, L. Ortiz Amaya, and K. Pruess. 1999. Gas Migration and Two-Phase Flow through Engineered and Geological Barriers for a Deep Repository for Radioactive Waste. Status Report EUR 19122 EN, Brussels, Belgium.
- Schmidt, H.H. 1996. *Grundlagen der Geotechnik*. Teubner Verlag (ISBN 3-519-05019-6), Stuttgart, Germany.
- Studer, J., W. Amman, P. Meier, C. Müller, E. Glauser. 1984. Verfüllen und Versiegeln von Stollen, Schächten und Bohrlöchern. NAGRA NTB 84-33 (2), Wettingen, Switzerland.
- Telander, M.R., and R.E. Westerman. 1997. Hydrogen Generation by Metal Corrosion in Simulated Waste Isolation Pilot Plant Environments. Report SAND96-2538, Albuquerque, New Mexico.
- van Genuchten, M. 1980. A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44: 892-898.
- Xie, M., I. Engelhardt, O. Kolditz. 2003. Numerical Modeling of Swelling Processes in Heated Bentonite/Crushed Rock Mixtures (in preparation).
- Yong, R.N., and B.P. Warkentin. 1966. *Introduction to Soil Behavior*. The Macmillan Company, New York.
- Yong, R.N., A.M.O. Mohamed, and B.P. Warkentin. 1992. *Principles of Contaminant Transport in Soils*. Developments in Geotechnical Engineering. 73 (ISBN 0-444-882936), Amsterdam, The Netherlands.

Thermal-Hydraulic Experiments with Bentonite / Crushed Rock Mixtures and Estimation of Effective Parameters by Inverse Modeling

Engelhardt, I.^{1*} and Finsterle, S.²

*1 Federal Institute of Geosciences and Natural Research (BGR), Stilleweg 2, D-30655 Hannover, Germany, I.Engelhardt@bgr.de**

2 Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), University of California, Berkeley, CA 94720, U.S.A., SAFinsterle@lbl.gov

Abstract

The permeability and thermal conductivity of bentonite / crushed rock mixtures used as backfill for a nuclear waste repository have an important impact on the maximum radioactive load of the waste canister that can be embedded. Our research pursues useful methods for estimating the permeability, thermal conductivity and specific heat of various bentonite / crushed rock mixtures for the conditions expected to prevail at the Äspö Hard Rock Laboratory (ÄSPÖ HRL). We conducted laboratory experiments and employed inverse modeling techniques to estimate effective thermal and hydraulic parameters suitable for predictive modeling of non-isothermal flow and transport from a nuclear waste repository. Thermal parameters are often calculated based on empirical relationships developed for homogeneous clays, i.e., they are not necessarily valid for mixtures. The applicability of these methods to model thermal-hydraulic processes within the bentonite / crushed rock mixtures in a deep repository needs to be assessed.

All experiments were conducted with mixtures containing sodium- (SPV Volclay) or calcium-bentonite (Calcigel) and we used water from Äspö. Hydraulic column experiments were carried out with a specially designed permeameter and Darcy's law was applied to determine the

hydraulic conductivity, which followed a lognormal distribution with mean values of 1.64×10^{-11} m/s and 4.93×10^{-9} m/s for the two bentonite / crushed rock mixtures studied. The thermal laboratory experiments were analyzed using inverse modeling techniques. The simulated temperature distribution matched the measured data very well at all locations along the column and for all times. The inversely estimated thermal conductivity ranged from 1.6 to 2.2 W/mK, and the specific heat from 810 to 1020 J/kgK, both consistent with the predictions of the empirical relationships. However, the calculation of the effective parameters was very sensitive to heat loss through the insulation. The newly developed experimental setup in combination with inverse modeling allows the identification of key parameters governing the hydraulic and thermal processes of bentonite / crushed rock mixtures under repository conditions.

** Corresponding author: Tel. +49-511-643-2430; Fax +49-511-6433694*

Keywords: bentonite, backfill, inverse modeling, specific heat, thermal conductivity

1. Introduction

The concept of geologic disposal of high-level nuclear waste (HLW) includes a combination of engineered and natural barriers. An important function of the engineered barrier system (EBS) is to limit water flow through the repository, thus reducing the potential for corrosion, waste dissolution, and release of radionuclides. Therefore, this study is concerned with determining the hydraulic and thermal properties of the various bentonite / crushed rock mixtures into which the heat-generating waste canisters are embedded.

The thermal properties of porous media are affected by a variety of parameters. According to Farouki (1986), heat conduction is mainly influenced by the composition, structure, packing, density, porosity, grain- and pore-size structure, as well as by contacts and binding effects. Furthermore, volumetric ratios of the constituents influence the thermal conductivity of the bentonite / crushed rock mixtures. Thermal conductivity increases with increasing water content, because insulating air is substituted with more conductive water, and also because of the

changing nature of the bond between water and clay and the different thermodynamic parameters of the adsorbed water in the diffuse double layer. Furthermore, thermal conductivity is higher during the drying process than during wetting. The effect of temperature on thermal parameters can be explained by the more intense vibration of the atoms at the hotter end, which increases the heat conductivity. Birch and Clark (1940) noted that the heat flow parallel to the crystal axis of quartz is higher than perpendicular. An increase in pressure leads to compressed connections and better heat transfer.

Kahr and Müller-von Moos (1982) and Knutsson (1983) proposed two empirical relations to derive the thermal properties of clay-based materials. However, the results of these investigations vary significantly. The methods were developed for homogeneous clays without considering the influence of pressure and ionic strength. The impact of added ballast material (e.g., crushed rock or sand) is also neglected. There is thus a need for an accurate determination of the thermal conductivity of the bentonite / crushed rock mixtures under certain initial and boundary conditions, specifically for high temperature, high ionic strength, and high pressure, conditions expected to prevail at the ÄSPÖ HRL. Our studies focused on mixtures containing 30 wgt. % sodium-bentonite (SPV Volclay) and 70 wgt. % crushed rock, as it should be used for the engineered barrier system at Äspö. The goals of the research presented in this paper are:

- To develop a technique for measuring water flow and heat transfer under laboratory conditions that resemble conditions in a potential repository.
- To determine the hydraulic conductivity, heat conductivity, and specific heat of different bentonite / crushed rock mixtures.
- To examine the influence of exchangeable ions and pore water on hydraulic conductivity, heat conductivity, and specific heat.
- To compare the results with other reported measurements.

2. Materials and Methods

2.1 Materials

Commercially available sodium-bentonite (SPV Volclay) from Wyoming, U.S.A, and calcium-bentonite (Calcigel) from Bayern, Germany, are used in fine-powder form in our experiments. The ballast material was crushed diorite. Before mixing, grains larger than 5 mm were removed. The specific density was determined to be 2.755 g/cm³ for sodium-bentonite, and 2.847 g/cm³ for calcium-bentonite (Müller-von Moos & Kahr, 1983). The diorite density was found to be 2.71 g/cm³. We measured a geotechnical water content after oven drying at 105°C of 11% for SPV Volclay and 9% for Calcigel. Next, the mixture of 30 wgt. % bentonite and 70 wgt. % crushed diorite was saturated with water from Äspö. Water in the tunnel section of the Prototype Repository at Äspö is dominated by 1887 mg/l Na⁺, 770 mg/l Ca²⁺ and 4210 mg/l Cl⁻. The density and viscosity of this water was measured as a function of temperature using pycnometers and viscosimeters (see Section 3.1).

2.2 Sample Preparation

The above described sample material was packed with a piston in the steel column 30 cm long and 5 cm in diameter. Even with a saturation of 100% (corresponding to a water content of 34% for SPV Volclay / crushed rock mixtures and 26% for Calcigel / crushed rock mixtures), the bentonite / crushed rock mixture behaves as a “dry powder,” i.e., it was not possible to create a sample without any residual cavities. Therefore, to reach a homogenous installation of the material in the column without any cracks, over saturation with a water content of 40% for SPV Volclay / crushed rock mixtures and 30% for Calcigel / crushed rock mixtures was needed.

Bucher et al. (1982) showed in their Proctor tests for different bentonite types, that the attainable bulk density first increases with increasing bentonite wetness, then reaches a peak at a saturation of about 80%, beyond which the density decreases. Therefore, as the bentonite / crushed rock mixture saturation is over 80%, it can no longer be compacted, because little compressible air remains and only low compressible water is left. Henceforth, the water, which starts to hydrate the clay particles, pushes them apart, and the diffuse double layer reaches its maximal extension, causing swelling, thus reducing the attainable bulk density

(Hillel, 1980). Using our piston compaction technique, we achieved with over saturation a dry density of 1.4 g/cm^3 for the SPV Volclay / crushed rock mixtures and 1.6 g/cm^3 for the Calcigel / crushed rock mixtures.

Immediately after the addition of Äspö water, the SPV Volclay and Calcigel / crushed rock mixtures showed a homogeneous structure. However, after about 12 hours, open clusters were consistently observed for the mixture containing SPV Volclay and Äspö water. The addition of Äspö water to Calcigel / crushed rock mixtures or the combination of SPV Volclay / crushed rock mixtures with pure water generated no open clusters and flocks. In pure water, the edges of clay platelets have a positive electrical charge, and repulsive forces between the particles dominate. However, with water of high salt concentration, the diffuse double layer is compressed. The positively charged edges may approach the negatively charged surfaces of the platelets, eventually forming weakly bonded flocculates (Koorevaar et al., 1983) (see Figure 1). According to Jasmund and Lagaly (1993), sodium-bentonite always flocculates if water containing calcium is added, never forming its dispersed structure. The flocculated structure shows units of flocks sculptured as a card-house structure with random orientation of individual particles (Yong and Warkentin, 1966) and open clusters (see Figure 1).

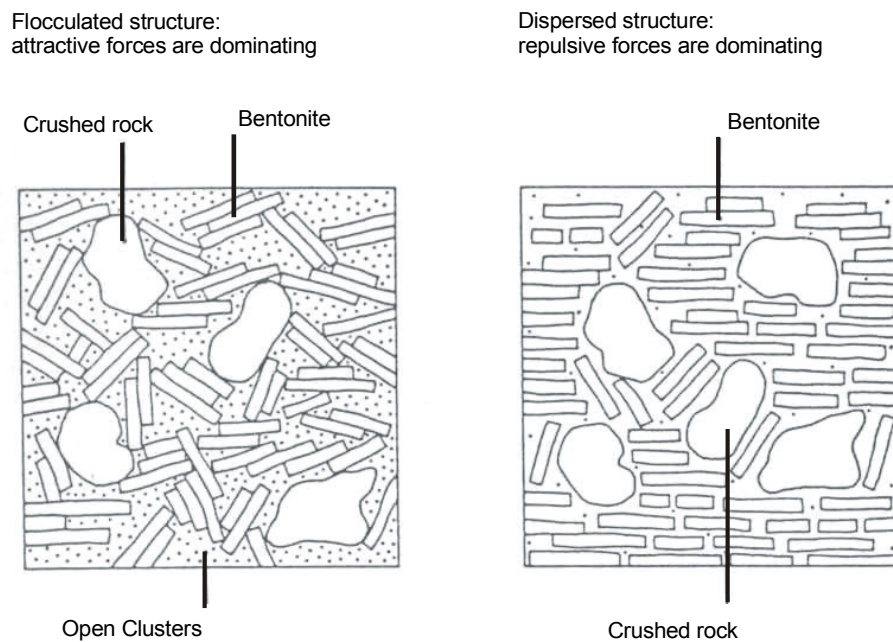


Figure 1. Flocculated and dispersed structure (modified after Jasmund and Lagaly, 1993)

2.3 Laboratory Measuring Technique

To determine the hydraulic conductivity at 20°C, the bentonite / crushed rock mixture was compacted into the steel column using the packing technique above described. Two porous plates with negligible resistance to flow were placed at the top and bottom of the column. Different filter elements consisting of fine sand, a geo-textile, and metal tissue were used to hold the bentonite in the sample during the flow experiments. Äspö water was injected from the bottom with a pressure of 20 bar (see Figure 2). The top of the column was connected to a burette, which was under atmospheric pressure. The increasing water level in the burette was measured to obtain the water volume flowing through the sample (see Figure 2). Given the imposed pressure gradient and the volumetric flow rate, Darcy's law was applied to determine the hydraulic conductivity of the sample at 20°C. The hydraulic conductivity at elevated temperatures was estimated by correcting the value obtained at 20°C using the measured temperature dependence of viscosity and density. We conducted about 10 experiments for each bentonite / crushed rock mixture to calculate the hydraulic conductivity at 20°C (see Table 1).

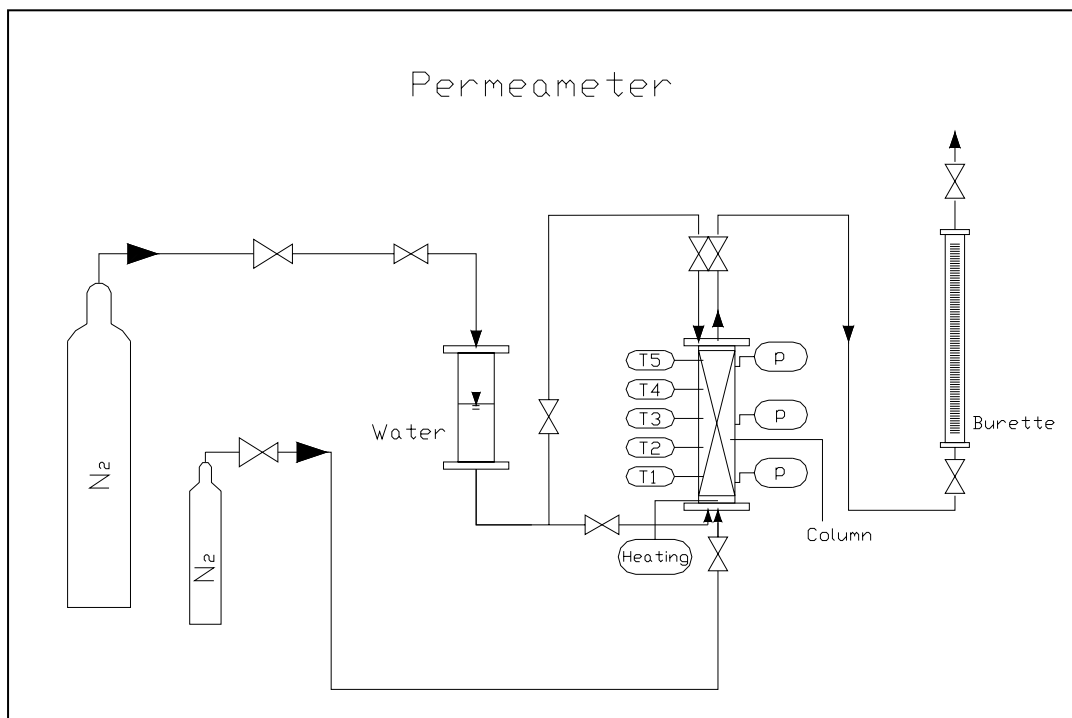


Figure 2. Experimental setup to determine hydraulic and thermal conductivity.

For the thermal experiments, a heating element at the bottom of the sample was heated to a constant, subboiling temperature, keeping the pressurized sample fully water saturated. The entire column was covered with insulating wool; the laboratory temperature was constant at 21.5°C. At the bottom and top of the column a constant water pressure of 13.5 bar was applied. The temperature increase and distribution is measured in the center of the column with five temperature sensors (T1, T2, T3, T4, T5) and recorded as a function of time and location (see Figures 2 and 5). This experiment was conducted until a time-invariant temperature distribution was reached. We performed two experiments for each bentonite / crushed rock mixture.

Finally, after cooling of the sample, we repeated a total of seven hydraulic experiments (as described above) with the SPV Volclay / crushed rock mixture to determine whether the heating-cooling cycle affected the pore structure and thus the hydraulic conductivity (see Table 1).

3. Results

3.1 Thermodynamic Parameters

Pycnometers and viscosimeters were used to measure the viscosity and density of Äspö water as a function of temperature (see Figure 3). The measured data are well matched by the empirical relation of Chierici (1994), in which the influence of ionic strength, temperature, and pressure are considered. The viscosity of water is significantly influenced by temperature (see Figure 3), but only slightly affected by pressure changes. The density decreases relatively strongly with increasing temperature, but is only slightly affected by pressure due to the low compressibility of water. Therefore, for the experimental determination of the thermodynamic parameters, the influence of pressure on viscosity and density was neglected. However, in the iTOUGH2 simulations discussed below, viscosity and density are accurately calculated as a function of both temperature and pressure.

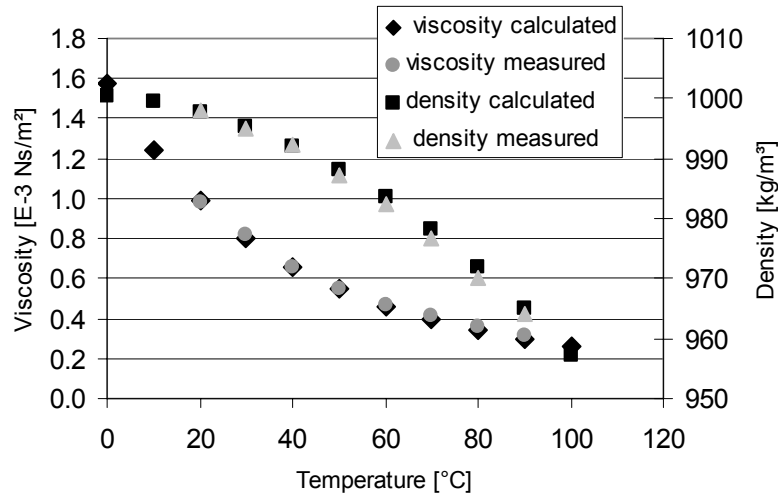


Figure 3. Measured and calculated (according to Chierici [1994]) viscosity and density of Äspö water at atmospheric pressure as function of temperature.

3.2 Hydraulic Conductivity

Multiple hydraulic conductivity experiments were performed at 20°C for the bentonite / crushed rock mixtures. The corresponding values for a temperature of 90°C were then estimated using the experimentally determined correction factors to account for the temperature dependence of viscosity and density. The mean hydraulic conductivity K for SPV Volclay / crushed rock mixtures rises from 1.64×10^{-11} m/s at 20°C to 4.87×10^{-11} m/s at 90°C (see Figure 4). Calcigel / crushed rock mixtures showed a mean hydraulic conductivity at 20°C of 4.93×10^{-9} m/s and 1.46×10^{-8} m/s at 90°C. The relatively large variability in the measured conductivity values over time is attributed to pressure-induced changes in the pore structure, which lead to a decrease in hydraulic conductivity during the first few experiments (see Figure 4). The hydraulic experiments with SPV Volclay / crushed rock mixtures conducted after performing the thermal experiments resulted in lower values for the hydraulic conductivity (see Table 1 and Figure 4). According to Pusch (1998), a silica cementation by a conversion from smectite to illite during heating of the bentonite may have induced microstructural changes, which resulted in a decreased hydraulic conductivity.

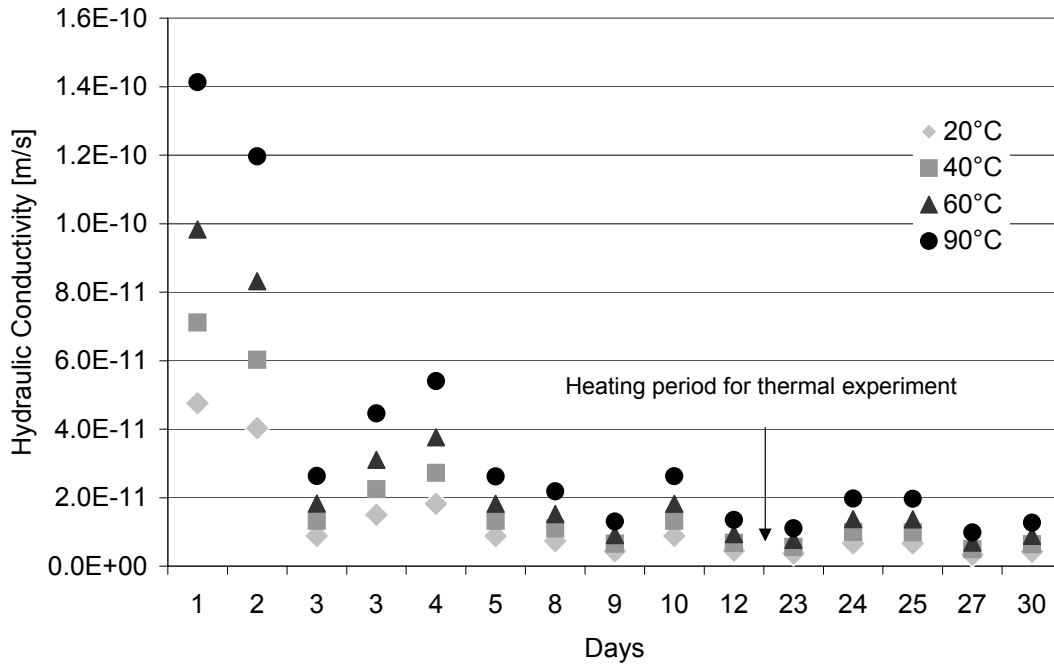


Figure 4. Measured hydraulic conductivity of SPV Volclay / crushed rock mixture as function of time and temperature.

The results from our hydraulic experiments show lower hydraulic conductivities than those previously measured by others (see Table 1). This may be explained by the different grain size distribution for the different bentonite types; for example, we used dispersed SPV Volclay, whereas Johannesson et al. (1999) worked with granulated MX80. In addition, the packing technique is likely to have influenced the degree of homogeneity as well as the pore size distribution of the sample. Furthermore, by our synthetic reproduction of the Äspö water, calcite, dolomite and aragonite precipitated, which could have reduced the porosity of the bentonite / crushed rock mixture, and therefore the hydraulic conductivity.

Table 1. Results from the permeameter test and comparison with other experiments.

	Na-bentonite / crushed rock mixture	Ca-bentonite / crushed rock mixture
<i>Hydraulic conductivity experiments at 20°C before heating the sample</i>		
Mean, measured; 20°C	1.64×10^{-11} m/s	4.93×10^{-9} m/s
Mean, estimated for 90°C	4.87×10^{-11} m/s	1.46×10^{-8} m/s
Number of experiments; 20°C	10	12
Standard deviation σ_L of log K; 20°C	0.34	0.21
<i>Hydraulic conductivity at 20°C measured by other researches</i>		
Mingarro et al. (1991)	-	9.5×10^{-9} m/s
Johannesson et al. (1999)	9.0×10^{-10} m/s	-
<i>Hydraulic conductivity experiments at 20°C after heating the sample</i>		
Mean, measured; 20°C	5.53×10^{-12} m/s	-
Mean, estimated for 90°C	1.64×10^{-11} m/s	-
Number of experiments; 20°	7	-
Standard deviation σ_L of log K; 20°C	0.15	

3.3 Effective Parameter Estimation by Inverse Modeling

A two-dimensional, radial model was developed to capture fluid and heat flow along the axis of the column as well as radial heat losses. The column was discretized along the axial direction into 60 gridblocks with a spacing of 0.5 cm. Analyzing the thermal experiments, radial heat loss as well as heat transfer through the top cap of the column was accounted for by specifying appropriate thermal parameters for the insulation material and constant temperature conditions at the outer boundary. A constant temperature boundary condition was specified at the bottom of the column, representing the heater element. The fully water-saturated column was initialized at a uniform pressure of 13.5 bar and a uniform temperature of 21.5 °C. The influence of ionic strength on viscosity was included by determining viscosity coefficients according to Herbert et al. (1988) to match the measured viscosity of Äspö water.

The iTOUGH2 inverse modeling code (Finsterle, 1999) was used in combination with the EOS7 module of TOUGH2 (Pruess et al., 1999) to simulate the experiment and to estimate the thermal conductivity and heat capacity of the bentonite / crushed rock mixture by matching the observed temperatures at discrete points in space and time (see Figure 5). Sensitivity analyses indicated that any error in the assumed radial heat loss directly affects the estimates of the bentonite / crushed rock mixture thermal properties. Moreover, there is some uncertainty in the prevailing temperature of the heater element. To reduce the risk of introducing a systematic bias in the estimates due to wrong assumptions about heat losses and heater temperature, two additional parameters, the heat conductivity of the insulation material and the boundary temperature at the bottom of the column, were subjected to the inverse modeling procedure.

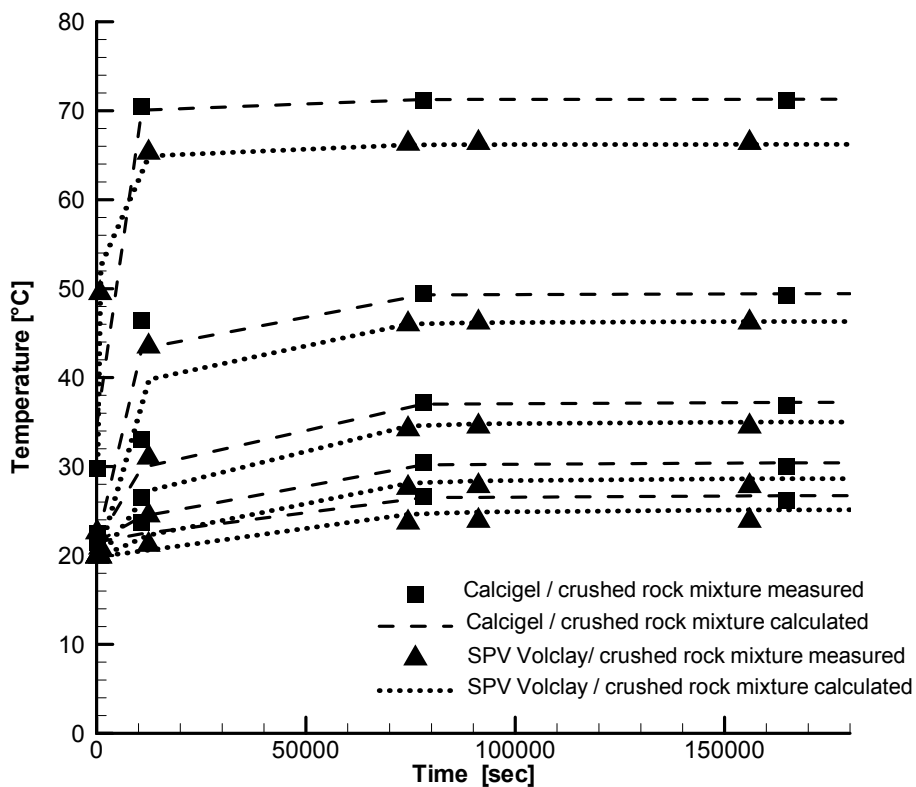


Figure 5. Temperature at different locations along the centerline of the column after calibration (lines) and experimental data (symbols) for the bentonite / crushed rock mixtures.

Starting from an initial parameter set, the parameters to be estimated were automatically adjusted to minimize an objective function, which is a measure of misfit between the calculated and measured temperatures. The uncertainty of the estimated parameter set was then evaluated using linear error analysis, which takes into account the goodness-of-fit, the sensitivity of the temperature to the individual parameters, and the correlations among the parameters. The inverse modeling results are summarized in Table 2. All parameters can be determined with a reasonably low estimation uncertainty. The heat conductivity of the bentonite / crushed rock mixture and the insulation material are relatively strongly correlated, as expected. The total heat flow calculated with the calibrated model indicates that radial heat losses amount to approximately 5% of the heat flow through the column itself.

Table 2: Inverse modeling results and total heat flow calculation

Material	Calcigel		SPV Volclay	
	Estimate	Uncertainty	Estimate	Uncertainty
Specific heat bentonite / crushed rock mixture [J/kgK]	810	90	1010	75
Thermal conductivity bentonite / crushed rock mixture [W/mK]	1.6	0.2	2.2	0.2
Thermal conductivity insulation [W/mK]	0.15	0.02	0.23	0.03
Heater temperature [°C]	71.5	1.0	77.2	0.9
Total Heat Flow				
Heat flow through column [W]	30.1		45.0	
Heat loss through insulation [W]	1.4		2.1	

3.4 Thermal Conductivity

The analysis of the thermal experiments and data inversion indicate that the thermal conductivity of SPV Volclay / crushed rock mixtures is higher than that of Calcigel / crushed rock mixtures. This result is supported by the experimental study of Reno and Winterkorn (1967),

who found that the sodium ion modification favors heat conduction because of the more dispersive structure and higher degree of orientation of the sodium in the mineral structure. In addition, heat conduction is increased by the stronger particle-to-particle contact in flocculated clays (Reno and Winterkorn, 1967).

For specific heat, the experimental and numerical results show a higher value for bentonite with sodium as the exchange ion instead of calcium. The diffuse double layer results in a closer packing of the water molecules than in free water: Dipoles have less freedom of movement and absorb less thermal energy. The type of cation controls the degree of orientation of the water molecules and the thickness of the water layer. As a result of the higher valence of the calcium, more water molecules are bounded in the Stern layer and absorb less thermal energy than in pure water. This implies that adding water of higher ionic strength would lower the specific heat of bentonite / crushed rock mixtures as compared to adding pure water.

The influence of the ballast material on thermal properties of the bentonite / crushed rock mixture is significant, depending on whether rounded sand or longish and squared grains are used. The irregular shape of the crushed rock leads to more contact points and therefore to a better heat transfer than in homogeneous bentonite.

3.5 Comparison between Empirical Relationships and other Experimental Results

Investigations by others have resulted in proposed empirical formulations for calculating thermal conductivity based on empirical data. We have used the results of the two investigations that are concerned with bentonite. The investigation by Kahr and Müller-von Moos (1982) describes the relation between the heat conductivity λ [W/mK], bulk density ρ_b [kg/m³], water content w [%], and temperature T [°C], as follows:

$$\lambda = -0.6 + 0.6 \cdot \rho_b + 0.004 \cdot w \cdot \rho_b^3 + 0.01 \cdot \sqrt{T} \quad (1)$$

Knutsson (1983) developed an empirical relation for the thermal conductivity λ [W/mK] as a function of saturation S [-] and porosity n [-]:

$$\begin{aligned}
\lambda &= \lambda_0 + K_e (\lambda_1 - \lambda_0) \\
\lambda_0 &= 0.034 \cdot n^{-2.1} \\
\lambda_1 &= 0.56^n \cdot 2^{1-n} \\
K_e &= 1 + \log S
\end{aligned}
\tag{2}$$

Using the density and water content data specific for the bentonite / crushed rock mixtures materials examined in this study, the relation of Kahr and Müller-von Moos (1982) yielded thermal conductivity values between 1.7 W/mK (Calcigel / crushed rock mixture) and 2.4 W/mK (SPV Volclay / crushed rock mixture), which agree well with our estimates from inverse modeling. The calculation after Knutsson (1983) resulted in a thermal conductivity of 0.9 W/mK for both bentonite / crushed rock mixtures. This model underestimates the thermal conductivity of bentonite / crushed rock mixtures and does not account for the influence of temperature and exchange ion.

Mingarro et al. (1991) determined a thermal conductivity of 0.6 W/mK for bentonite / crushed rock mixtures containing calcium-bentonite, while Börgesson et al. (1994) found a thermal conductivity of 2.5 W/mK for MX80 / crushed rock mixtures. The very low thermal conductivity measured by Mingarro et al. (1991) can only be explained by assuming that the samples were not fully water saturated. Mingarro et al. (1991) show lower thermal conductivity for bentonite / crushed rock mixtures in comparison to pure bentonite. This was not confirmed in our own study. Kahr and Müller-von Moos (1982) measured a thermal conductivity (depending on saturation and density) for 100 % MX80 between 0.4 W/mK and 1.3 W/mK, and for 100 % Calcigel between 0.4 W/mK and 1.0 W/mK. Börgesson et al. (1994) determined a saturated thermal conductivity for 100 % MX80 of 1.08 W/mK. Thus, in our research, adding ballast material (crushed rock), which has a thermal conductivity of about 2.3 W/mK to 2.6 W/mK, leads to an increase in heat conduction.

4. Discussion and Conclusion

4.1 Effective Parameters

Powder x-ray diffraction shows no significant exchange of sodium in SPV Volclay / crushed rock mixtures by the calcium contained in Äspö water, for temperatures up to 90°C and pressures up to 20 bars. The hydraulic conductivity of SPV Volclay / crushed rock mixtures are two orders of magnitude lower than Calcigel / crushed rock mixtures as a result of decreased porosity and increased swelling pressures. However, this does not increase the hydraulic conductivity of SPV Volclay / crushed rock mixtures under conditions expected at Äspö, as no ion exchange takes place. However, the development of open clusters in SPV Volclay / crushed rock mixtures can produce a secondary path system, where radionuclides and corrosive agents can be transported. The thermal conductivity and specific heat of the bentonite / crushed rock mixtures reaches the highest values for combination of SPV Volclay with crushed rock. Nevertheless, the thermal parameters are strongly influenced by the exchangeable ion of the bentonite and the ionic strength of the pore water. To study the influence of the pore water in more detail, these results should be compared with measurements of hydraulic and thermal parameters using distilled water.

4.2 Recommendations

The estimation of effective parameters is sensitive to the detailed performance of the experimental apparatus. For example, heat loss through the insulation has a potential impact on the estimation of thermal properties. While the process was properly captured in the numerical model and added to the inverse modeling estimation procedure, it is recommended that heat losses be minimized and/or closely monitored. In our study, heat loss was calculated using the calibrated model. To corroborate this result and further reduce estimation uncertainty, we propose to directly measure the heat losses using heat-flux sensors embedded in the insulation material. Moreover, *in situ* experiments are necessary to reduce the influence of the column geometry and boundary effects on heat flow.

5. Acknowledgments

The authors are grateful to Dr. Cor Hofstee for all his ideas and helpful comments. Thanks are due to Dipl.-Ing. Oliver Trötschler for his technical assistance, and to Dr. Sumit Mukhopadhyay and Dr. Tim Kneafsey for their careful reviews of the manuscript. This work was supported by the Federal Institute of Geosciences and Natural Research (BGR), Germany, and, in part, by the U.S. Dept. of Energy under Contract No. DE-AC03-76SF00098.

6. References

- Bucher, F., Jeger, P., Kahr, G., Lehner, J, 1982. Herstellung und Homogenität hochverdichteter Bentonitproben. NAGRA Technischer Bericht 82-05, Baden.
- Birch, F., Clark, H., 1940. The thermal conductivity of rocks and its dependence upon temperature and composition. *American Journal of Science*, 238 (8): 529-558.
- Börgesson, L., Fredrikson, A., Johannesson, L.-E., 1994. Heat conductivity of buffer materials. SKB Technical Report 94-29, Stockholm.
- Chierici, G. L., 1994. Principles of petroleum reservoir engineering. Springer Verlag, Berlin.
- Farouki, O. T., 1986. Thermal properties of soils. Trans Tech Publication, Clausthal-Zellerfeld.
- Finsterle, S., 1999. iTOUGH2 Sample Problems. Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-40042, Berkeley.
- Herbert, A. W., Jackson, C. P., Lever, D. A, 1988. Coupled groundwater flow and solute transport with fluid density strongly dependent upon concentration. *Water Resources Research*, 24 (10): 1781-1795.
- Hillel, D., 1980. Fundamentals in soil physics. Academic Press, London.
- Jasmund, K, Lagaly, G., 1983. Tonminerale und Tone. Steinkopff, Darmstadt.
- Johannesson, L.-E., Börgesson, L. Sandèn, T., 1999. Backfill materials based on crushed rock. Clay Technology AB, Lund.
- Kahr, G., Müll-von Moos, M., 1982. Wärmeleitfähigkeit von Bentonit MX80 und Montigel nach der Heizdrahtmethode. NAGRA Technischer Bericht 82-06, Baden.
- Knutsson, S., 1983. On the thermal conductivity and thermal diffusivity of highly compacted bentonite. SKBF/KBS Technical Report 83-72, Stockholm.

- Koorevaar, P., Menelik, G., Dirksen, C., 1983. Elements of soil physics. Elsevier, Amsterdam.
- Mingarro, E., Rivas, P., del Villar, L. P., de la Cruz, B., Gómez, P. Hernández, A., Turrero, M. J., Villar, M. V., Campos, R., Cozar, J., 1991. Characterization of clay (bentonite)/crushed granite mixtures to build barriers against the migration of radionuclides: diffusion studies and physical properties. Commission of the European Communities, Brussels.
- Müller-von Moos, M., Kahr, G., 1983. Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonit MX80 und Montigel. NAGRA Technischer Bericht 83-12, Baden.
- Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G., 1999. TOUGH2 User's Guide, Version 2.0. Lawrence Berkeley National Laboratory LBNL-43134, Berkeley.
- Pusch, R. (1998). Chemical processes causing cementation in heat-affected smectite - the Kinnekulle bentonite. SKB Technical Report TR-98-25, Stockholm.
- Reno, W. H., Winterkorn, H. F, 1967. Thermal conductivity of kaolinite clay as a function of type of exchange ion, density and moisture content. Highway Research Record, 209: 79-85.
- Yong, R. N., Warkentin, B. P., 1966. Introduction to soil behavior. The Macmillan Company, New York.

Experimental and Numerical Investigation of Flow Phenomena in Nonisothermal, Variably Saturated Bentonite/Crushed Rock Mixtures

by

Irina Engelhardt,^{1} Stefan Finsterle,² and Cor Hofstee³*

Abstract

Mixtures of sodium bentonite and crushed rock are being examined as components of the engineered barrier system in a geologic repository of high-level nuclear waste. Laboratory experiments were performed to determine the thermal and unsaturated hydraulic properties of bentonite/crushed diorite mixtures. Water-retention curves were conventionally obtained from pressure cell and evaporation experiments. In addition, transient data from heating and gas injection experiments on laboratory columns were analyzed using inverse modeling techniques. Measured pressures, temperatures, and drained-water volumes were jointly inverted to estimate absolute permeability, thermal conductivity, specific heat, and capillary strength parameters. Simultaneous matching of all available data—specifically the gas breakthrough at the top of the column—proved difficult, pointing towards aspects of the experimental design and the conceptual model that need to be refined. The analysis of sensitivity coefficients and the correlation structure of the parameters revealed the importance of accurately capturing coupled thermal hydrological processes within the column as well as the details of the experimental apparatus, such as heat losses and storage of water and gas in the measuring burette. The parameters estimated using different experimental and analytical procedures were consistent with one another, providing backfill material properties useful for the simulation of gas- and heat-generating nuclear waste repositories.

¹ Federal Institute of Geosciences and Natural Research (BGR), D-30655, Hannover, Germany, I.Engelhardt@bgr.de, * Corresponding author

² Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), University of California, Berkeley, CA 94720, U.S.A., SAFinsterle@lbl.gov

³ Netherlands Institute of Applied Geosciences (TNO-NITG), 3508 TA Utrecht, Netherlands, c.hofstee@nitg.tno.nl

Nomenclature:

- A = cross-sectional area of column [m^2]
- c = specific heat [$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$]
- g** = vector of gravitational acceleration [m s^{-2}]
- h = relative humidity [-]
- K = saturated hydraulic conductivity [m s^{-1}]
- k = absolute permeability [m^2]
- m, n = van Genuchten model parameters [-], where $m=1-1/n$
- M = molar mass of water [kg mol^{-1}]
- P_c = capillary pressure [Pa]
- $P_{c,20}$ = capillary pressure [Pa] at reference temperature of 20°C
- $P_{c,T}$ = capillary pressure [Pa] at a given temperature T
- P_d = gas entry pressure [Pa]
- P_{nw} = pressure of the nonwetting fluid [Pa]
- P_w = pressure of the wetting fluid [Pa]
- Q** = volumetric flow rate [$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$]
- R = universal gas constant [$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$]
- S_e = effective water saturation [-]
- S_{nwr} = residual saturation of the nonwetting fluid [-]
- S_w = saturation of the wetting fluid [-]
- S_{wr} = residual saturation of the wetting fluid [-]
- T = temperature [°C]

Greek letters:

- α = van Genuchten capillary strength parameter [Pa^{-1}]
- β = factor to correct capillary pressure for nonisothermal effects [-]

- λ = pore-size distribution index of Brooks-Corey model [-]
- λ_T = thermal conductivity [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$]
- μ = dynamic viscosity [$\text{N m}^{-2} \text{s}$]
- ρ = density [kg m^{-3}]
- σ = surface tension [10^{-3}N m^{-1}]
- σ_{20} = surface tension at reference temperature of 20°C [10^{-3}N m^{-1}]
- σ_P = marginal estimation uncertainty
- σ^*_P = conditional estimation uncertainty
- σ_T = surface tension at a given temperature T [10^{-3}N m^{-1}]

1. Introduction

The Äspö Hard Rock Laboratory (HRL) in Sweden is an underground facility designed to develop and test methods related to the permanent disposal of high-level nuclear wastes in consolidated crystalline basement rock. The actual waste would be placed in canisters in vertical deposition holes. These canisters would have an outer, 10-cm thick copper wall and an inner steel lining. They would be separated from the host rock by a buffer consisting of 100% bentonite. A bentonite/crushed rock mixture would be used as backfill material to seal man-made cavities such as drifts, shafts, and boreholes. The bentonite acts as a hydraulic, chemical, and mechanical protection zone around the canisters.

The buffer and backfill materials selected to protect six simulated canisters at the Äspö test site are subjected to various processes, schematically shown for one canister in Figure 1. After the canisters have been emplaced, water imbibes into the partially saturated buffer and backfill from fractures in the surrounding host rock, causing the bentonite to swell, which reduces its hydraulic conductivity. Gas may be

generated in the repository as a result of corrosion, radiolysis, and other processes. The low permeability of the bentonite and its generally high gas entry pressure may prevent gas from escaping, potentially yielding very high gas pressures within the repository. After exceeding the gas entry pressure, the outward moving gas front would displace the water in the bentonite.

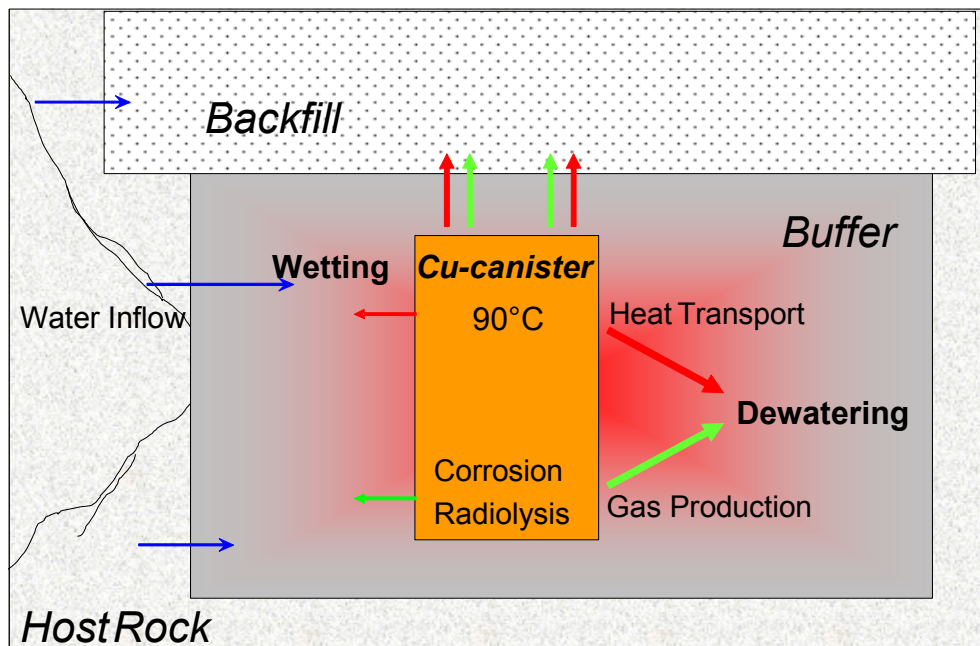


Figure 1. Schematic of coupled thermal hydraulic processes at HRL Äspö

While the mineralogical properties of pure bentonite have been studied extensively (see, e.g., MÜLLER-VONMOOS & KAHR, 1983; PUSCH ET AL., 1990), little information is available on a backfill material consisting of bentonite/crushed rock mixtures. Few experiments on the capillary pressure–saturation relationship of mixtures of bentonite and an aggregate component (such as sand or crushed rock) have been performed (TANG ET AL., 1997; JOHANNESSON ET AL., 1999; JOCKWER ET AL., 2000). The gas entry pressures reported in these studies range from 0.4 bar to 25 bar. Moreover, these experiments were conducted at 20°C, limiting

their applicability to nonisothermal conditions such as those encountered at the Äspö facility or in a heat-generating nuclear waste repository.

Therefore, the first objective of our experimental study is to obtain quantitative data on nonisothermal two-phase flow in a bentonite/crushed rock mixture. The second objective is to identify the constitutive relationship model based on the experimental data. Finally, the third objective is to examine the use of inverse modeling techniques as a means to obtain relevant parameters from transient heating and gas injection experiments.

2. Materials and Methods

2.1. Bentonite, Crushed Rock, and Äspö Water

The properties of the water and backfill materials are listed in Tables 1 and 2. The backfill contains 30 wt.% SPV Volclay, a sodium bentonite from Wyoming, and 70 wt.% crushed diorite. The water solution exhibits a ionic composition similar to that of Äspö formation water (see Table 2).

Table 1. Properties of the backfill material used for the experiments

Material	Parameter					
SPV Volclay [*]	<i>Montmorillonite</i> [%]	<i>Quartz</i> [%]	<i>Feldspar</i> [%]	<i>Specific density</i> [g/cm ³]	<i>Cation exchange capacity</i> [mol/kg]	<i>Gravimetric water content</i> [%]
	75	15.2	5–8	2.76	0.76	8.5
Crushed Diorite [%]	6.3–3.5 mm		3.5–2 mm		< 2 mm	
	66		31		3	

*MÜLLER-VONMOOS & KAHR (1983)

Table 2. Composition of Äspö water

	Parameter						
Äspö Water	Na^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	K^+	S^{2-}	Cl	pH
[mol/L]	1.5×10^{-2}	2.7×10^{-3}	1.8×10^{-3}	3.6×10^{-4}	5.1×10^{-4}	1.9×10^{-2}	7.4

The density and viscosity of the synthetic Äspö water were measured at atmospheric pressure for different temperatures using a pycnometer and an Ubbelohde-viscosimeter, respectively. Measured densities and viscosities were compared with values obtained using the empirical equations of CHIERICI (1994) (see Figure 2).

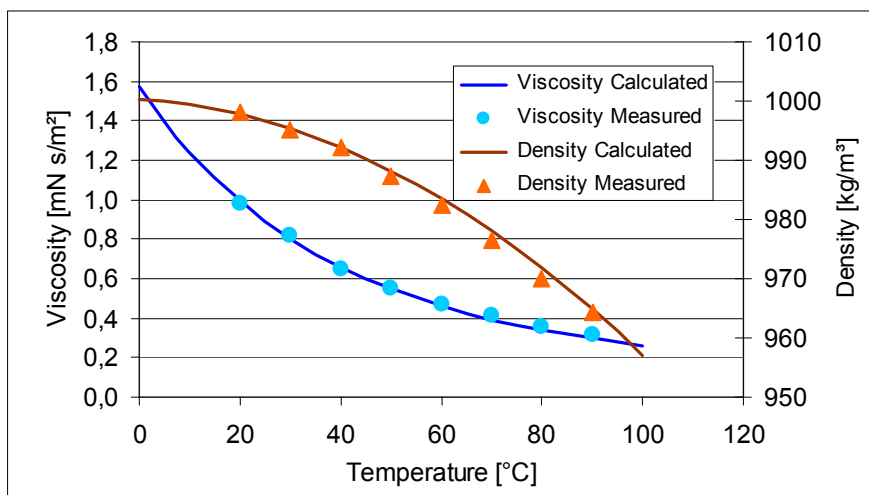


Figure 2. Measured (symbols) and calculated (lines) viscosity and density of Äspö water as a function of temperature

The surface tension of Äspö water was measured at 20 °C using a ring tensiometer. The relationship of POLING ET AL. (2001) is used in this study as it reproduces the surface tension measured for Äspö water (see Figure 3).

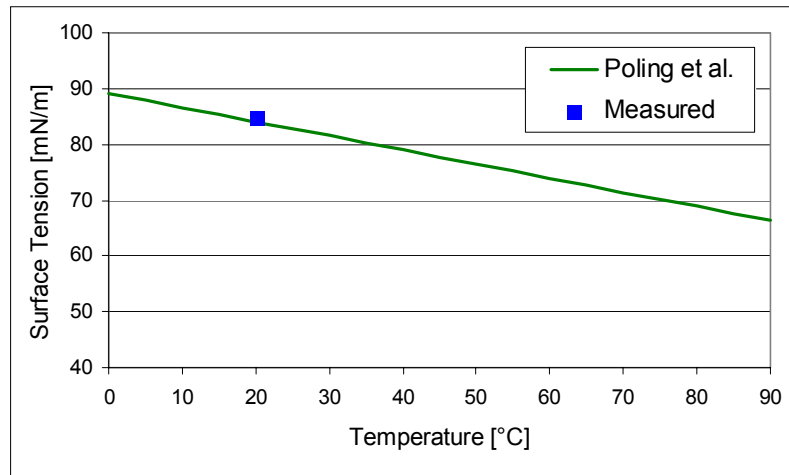


Figure 3. Measured (square) and calculated (line) surface tension of Äspö water as a function of temperature

2.2. Experimental Determination of the Capillary Pressure-Saturation Relation

On a macroscopic scale, capillary pressure can be expressed as an empirical function of liquid saturation. A specially designed pressure cell (see Figure 4) with a height of 3.7 cm, a diameter of 5.4 cm, and a sample volume of 84.3 cm³ was constructed to determine capillary pressures in the range between 0 and 100 bar. The upper limit of 100 bar is given by the entry pressure of the semipermeable cellulose membrane at the bottom of the pressure cell. Before packing the sample material into the pressure cell SPV Volclay and the crushed rock were added to Äspö water, minimizing potential air entrapment. The mixture was packed into the sample chamber to a dry density of 1.6 g/cm³. A stepwise desaturation experiment was performed whereby 4 ml of water were extracted at each step, generating a drainage curve of the capillary pressure–saturation relationship. The entry pressure of the membrane was reached at a water saturation of approximately 40%, requiring the use of a different method to remove the water that is strongly adsorbed as a thin film to the surface of the clay crystals.

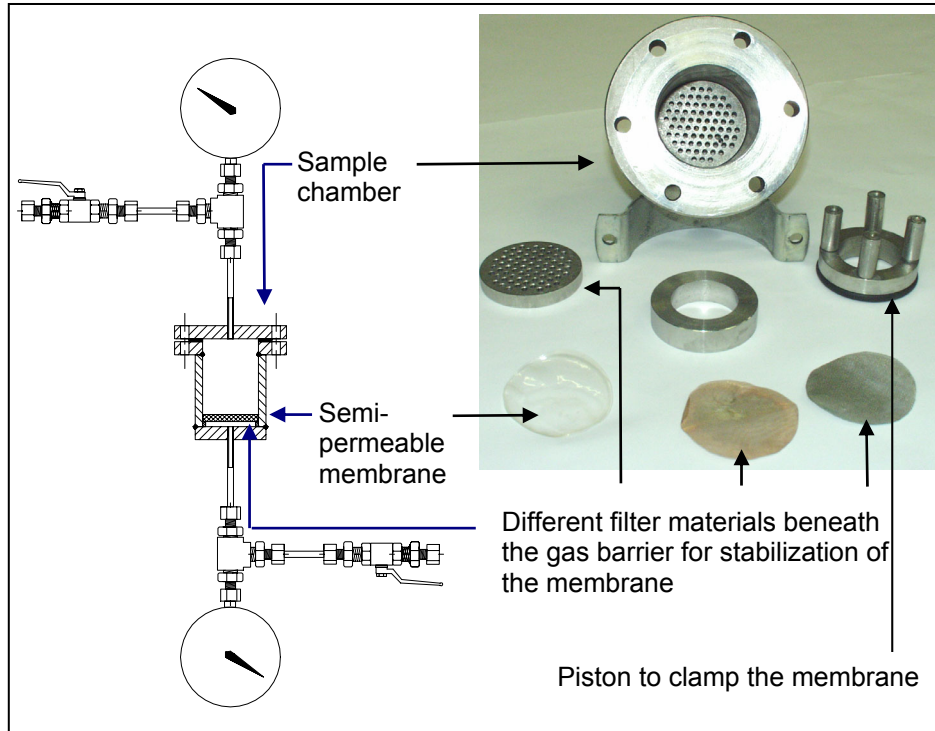


Figure 4. Schematic drawing and parts of pressure cell apparatus

An alternative method involving a thermohygrometer was used to measure the capillary pressure above 100 bar. Techniques involving drying of the sample in an oven to yield the drainage curve in the high suction range did not produce a homogeneous saturation distribution within the bentonite and destroyed many of its mineralogical properties. Synthetic Äspö water was added stepwise to an air-dry sample (thus yielding an imbibition curve) and allowed to equilibrate with the atmosphere inside a closed container (see Figure 5). The relative humidity h in the container was measured and related to an equivalent capillary pressure according to Kelvin's equation:

$$P_{c, equ} = -\frac{RT}{M} \rho_w \ln(h) \quad (1)$$

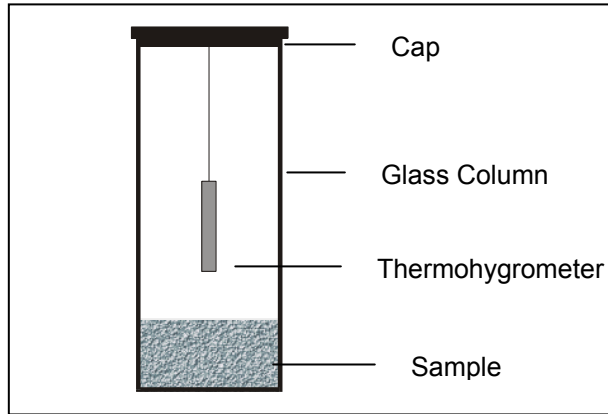


Figure 5. Determination of the capillary pressure–saturation relationship based on vapor-pressure measurements using a thermohygrometer

Combining both pressure cell and thermohygrometer data seems appropriate as they reflect, respectively, the processes of capillary drainage in the wet range and removal of water through phase transition in the dry range.

The Brooks-Corey (BROOKS & COREY, 1964) parameters λ , P_d , S_{wr} , S_{nwr} , and van Genuchten (VAN GENUCHTEN, 1980) parameters n (m), α , S_{wr} , S_{nwr} were determined by fitting these capillary pressure relations to the combined data from the pressure cell and thermohygrometer experiments. The consistency between the Brooks-Corey (BC) and van Genuchten (VG) parameters was examined by applying the following relationships proposed by LENHARD ET AL. (1989):

$$\lambda = \frac{m}{1-m} (1 - S_e^{1/m}) \quad (2a)$$

with

$$S_e = \frac{S_w - S_{wr}}{1 - S_{wr}} \quad (2b)$$

and

$$\alpha = \frac{S_x^{1/\lambda}}{P_d} \left(S_x^{-1/m} - 1 \right)^{1-m} \quad (3a)$$

with
$$S_x = 0.72 - 0.35 \exp(-n^4) \quad (3b)$$

Since surface tension decreases as temperature increases, capillary pressure is expected to be temperature dependent. LENHARD & PARKER (1987) proposed to correct the capillary pressure by a scaling factor β to account for the surface-tension dependence of capillary pressure. Noting the temperature dependence of surface tension, capillary pressures are scaled as follows:

$$P_{c,T} = P_{c,20} \beta \quad (4)$$

where
$$\beta = \frac{\sigma_T}{\sigma_{20}} \quad (5)$$

Here, σ_{20} is the surface tension at the reference temperature of 20°C prevailing during the pressure cell and thermohygrometer experiments.

2.3. Experimental Determination of Saturated Hydraulic Conductivity

The permeability was determined by applying a 20 bar pressure difference over a 30-cm long permeameter. The sample has a cross-sectional area of 19.6 cm². Three screens (metal, textile, and fine sand) at the bottom and top of the sample effect and facilitate one-dimensional flow in the permeameter.

Using the measured viscosity and density of Äspö water at 20°C and the measured volumetric flow rate Q into the burette, Darcy's law was used to calculate the sample's permeability k :

$$k = -\frac{Q}{A} \mu \left(\frac{1}{\nabla P_w - \rho \mathbf{g}} \right) \quad (6)$$

Saturated hydraulic conductivity at elevated temperatures was then calculated using the temperature dependence of viscosity and density (see Figure 2).

$$K = k \frac{\rho g}{\mu} \quad (7)$$

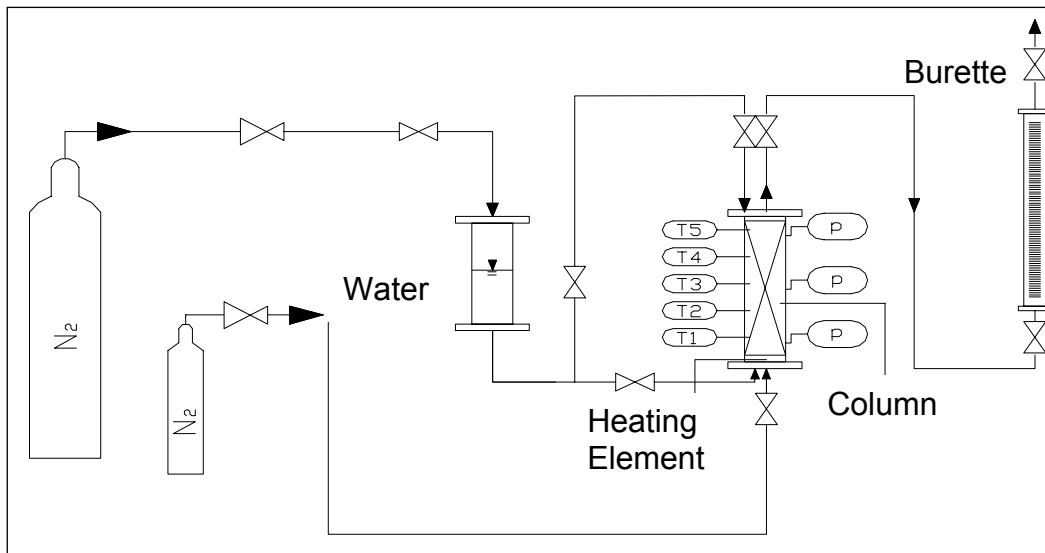


Figure 6. Experimental setup for thermal and gas injection experiments (T1 through T5 indicate temperature sensors, P indicates a manometer)

2.4. Column Experiments: Heating and Gas Injection

The permeameter described above was also used to study heat transfer and gas flow behavior within the backfill. A sample was pressurized to 10 bar and then heated from below by maintaining a boundary temperature of approximately 90°C at the bottom of the column. Temperature was measured at five locations along the axis of the column (see Figure 6). Heating was continued until a time-invariant temperature distribution was reached.

After the heating experiment, the experimental setup was reconfigured for the subsequent nitrogen injection test. This involved replacing the water in the heating chamber with air, connecting the inlet to a pressurized nitrogen source and the top of

the column to a burette for outflow measurements. Reconfiguration of the experimental setup required approximately 10 minutes, during which heat input was interrupted. The sample and the burette were initially pressurized to 10 bar. Nitrogen injection started with an applied pressure of 11.5 bar, resulting in an inlet capillary pressure of 1.5 bar. Subsequently, the injection pressure was increased stepwise to 15 bar and 20 bar, displacing water from the sample into the burette. The gas in the burette was compressed, causing the pressure to increase, as displaced water and eventually nitrogen gas entered the burette. Water discharge rate, gas pressure in the burette, and temperatures along the column were measured as a function of time and used as calibration data for inverse modeling, i.e., thermal and hydraulic parameters were determined by automatically matching the calculated to the measured system behavior.

2.5. Model Development and Inverse Modeling Procedure

The TOUGH2 multiphase flow simulator (PRUESS ET AL., 1999) was used to simulate the thermal and gas injection experiments. A one-dimensional, radially symmetric model was developed to simulate the experiment. The column was discretized in vertical direction into sixty 0.5-cm thick elements. Radial heat loss through the insulation was facilitated by adding a heat-conducting, hydraulically impermeable boundary element. A similar grid element was attached at the top of the column to account for heat storage in and heat losses through the end cap. Because the sensor measuring the heater temperature failed, the temperature of the lowest sensor (T1) was prescribed as a time-dependent Dirichlet boundary condition. This approach is also preferred because accurately capturing the heat transfer from the heater to the fluid, through the end cap, and into the sample would have introduced

systematic errors and thus a bias in the estimation of thermal properties of the bentonite/crushed rock mixture. For the simulation of the nitrogen injection experiment, the top element was connected to an element representing the burette. This element had the correct volume and initial gas saturation so that incoming liquid or nitrogen would lead to an appropriate increase in pressure. The sample column itself was initialized as fully water saturated with a pressure of 10 bar and a temperature of 19.4°C.

The thermal and gas-injection experiments were simulated in a single model run. The thermal experiment was started at a time $-285,466$ seconds (approximately -3.3 days) and continued to time zero. Next, a 600-second phase with no heat input was simulated, representing the approximate time needed to reconfigure the setup for the subsequent gas injection experiment. Heating was resumed, and gas was injected at prescribed pressures for approximately 16.9 days. Both the Brooks- Corey and van Genuchten models were used to describe the two-phase relative permeability and capillary pressure functions. The material parameters used for the bentonite/crushed rock mixture are given in Table 3.

The iTOUGH2 code (FINSTERLE, 1999) was used to analyze the experimental data and to estimate the thermal and hydraulic parameter values. iTOUGH2 provides inverse modeling capabilities for the TOUGH2 simulator. Thermal and hydraulic parameters for the backfill material were estimated by automatically fitting the numerical model described above to measured temperature, pressure, and water flow rate data.

Table 3. Material parameters and initial conditions of all model domains

Parameter	Material				
	<i>Backfill</i>	<i>Top</i>	<i>Bottom</i>	<i>Insulation</i>	<i>Burette</i>
Porosity [%]	48	1	95	0.1	95
Density [kg m ⁻³]	2700	7800	7800	20	20
Permeability [m ²]	8.6×10 ⁻¹⁹	0.0	1.0×10 ⁻¹⁰	0.0	1.0×10 ⁻¹⁰
Heat cond. [W m ⁻¹ K ⁻¹]	2.14	14.00	14.00	0.25	0.01
Spec. heat [J kg ⁻¹ K ⁻¹]	1020	460	460	2000	10
<i>Relative Permeability and Capillary Pressure Functions</i>					
<i>van Genuchten Model</i>		<i>Constant</i>			
S_{wr} [-]	0.07	$k_{rl} = 0$	$k_{rl} = 1$	$k_{rl} = 0$	$k_{rl} = 0$
S_{nwr} [-]	0.01				
n [-]	1.44				
$1/\alpha$ [Pa]	1.89×10 ⁵				
<i>Brooks-Corey Model</i>		$k_{rg} = 0$	$k_{rg} = 1$	$k_{rg} = 0$	$k_{rg} = 0$
S_{wr} [-]	0.07				
S_{nwr} [-]	0.01				
λ [-]	0.40				
P_d [Pa]	1.1×10 ⁵	$P_c = 0$	$P_c = 0$	$P_c = 0$	$P_c = 0$

To avoid overparameterization, the pore size distribution indices λ and n as well as the residual saturations S_{wr} and S_{nwr} were fixed at the values determined from the pressure cell and thermohygrometer data, and only four parameters were estimated by inverse modeling: absolute permeability, gas entry pressure P_d (or capillary strength parameter $1/\alpha$), thermal conductivity, and the specific heat of the backfill material. Since both hydraulic parameters are expected to vary over many orders of magnitude, we estimated their logarithms. Adding more parameters yielded ill-posed inverse problems with non-unique solutions and high estimation uncertainties as a

result of strong parameter correlations. The four selected parameters are those with the highest overall sensitivity that could be estimated relatively independently.

Since heat and fluid flow are coupled processes, any error in the hydraulic properties would lead to a bias in the thermal property estimates. To avoid this potential bias, thermal and hydrologic properties were determined simultaneously despite the fact the permeability and capillary strength parameters were available from the experiments described in Sections 2.2 and 2.3.

3. Results

3.1. Capillary Pressure Curve

The capillary pressure–saturation curve was determined over a wide range of saturations. Parameter values of the Brooks-Corey model ($\lambda = 0.4$, $P_d = 1.1$ bar, $S_{wr} = 0.07$) and van Genuchten model ($n = 1.44$, $1/\alpha = 1.89$ bar, $S_{wr} = 0.07$) were estimated by matching the pressure cell and thermohygrometer data. As shown in Figure 7, both the Brooks-Corey and van Genuchten models represent the measured capillary pressure curves for intermediate saturations reasonably well. However, potentially significant deviations exist near full saturation and complete dryness. Equations (2) and (3) were used to convert the fitted Brooks-Corey parameters to equivalent van Genuchten parameters. This conversion was based on an average water saturation S_w of 0.5, as recommended by LENHARD ET AL. (1989). The resulting van Genuchten parameters are nearly identical to the parameter values estimated when matching the experimental data.

The relatively small value of the pore-size distribution index indicates a wide range of pore sizes. This wide range of pore sizes may be attributed to a combination of features comprising the pore space. These include the roughness of the crushed

rock, the development of clusters formed by coagulation, and possibly the bi-modal nature of the mixture, resulting from pores between the bentonite and the crushed rock, pores between the clay aggregates, and pores between the montmorillonite crystals.

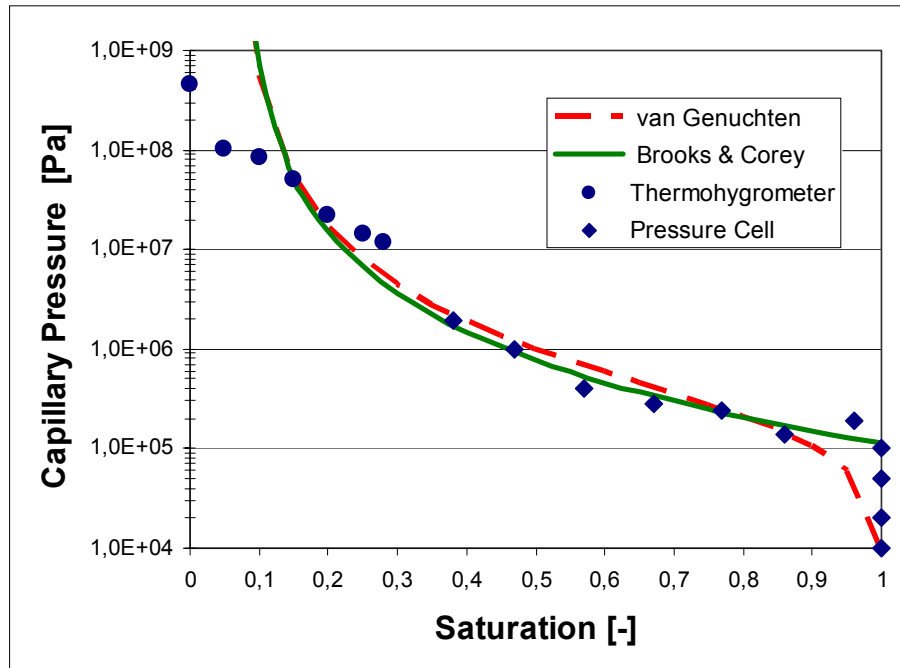


Figure 7. Experimental capillary pressure-saturation data (symbols) and fitted Brooks-Corey and van Genuchten models (lines)

Employing Equations (4) and (5), capillary pressures are reduced by about 20% as temperature increases from 20° to 90°C. The measured densities and viscosities of the Äspö formation water are used to account for the influence of temperature on the saturated hydraulic conductivity, which increases from $1.64 \times 10^{-11} \text{ m s}^{-1}$ at 20°C to $4.87 \times 10^{-11} \text{ m s}^{-1}$ at 90°C.

3.2. Estimation of Thermal and Hydraulic Parameter Values Using Inverse Modeling

Matching the simulated temperature, flow rate, and pressure data to the corresponding data from the column experiments yields adequate estimates of

thermal and hydraulic parameters. We first discuss the fit between the simulated and measured data.

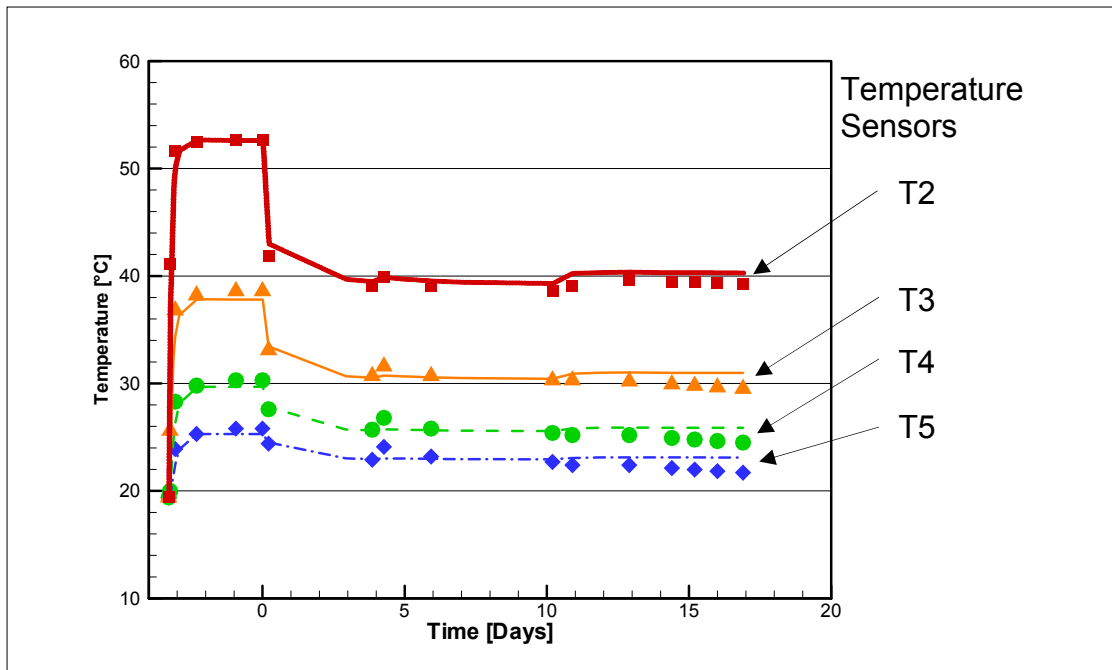


Figure 8. Comparison between the measured (symbols) and calculated (lines) temperatures

Temperatures are well matched throughout the 3-week experiment (see Figure 8). During the heating phase, the temperature along the column is affected by heat conduction only; during the gas injection period, heat is transferred by both conduction and convection. The drop in temperature at time zero is a result of the 10-minute interruption of heating during reconfiguration of the experimental setup. The temperature distribution simulated with the Brooks-Corey and van Genuchten models fit the measured profile equally well.

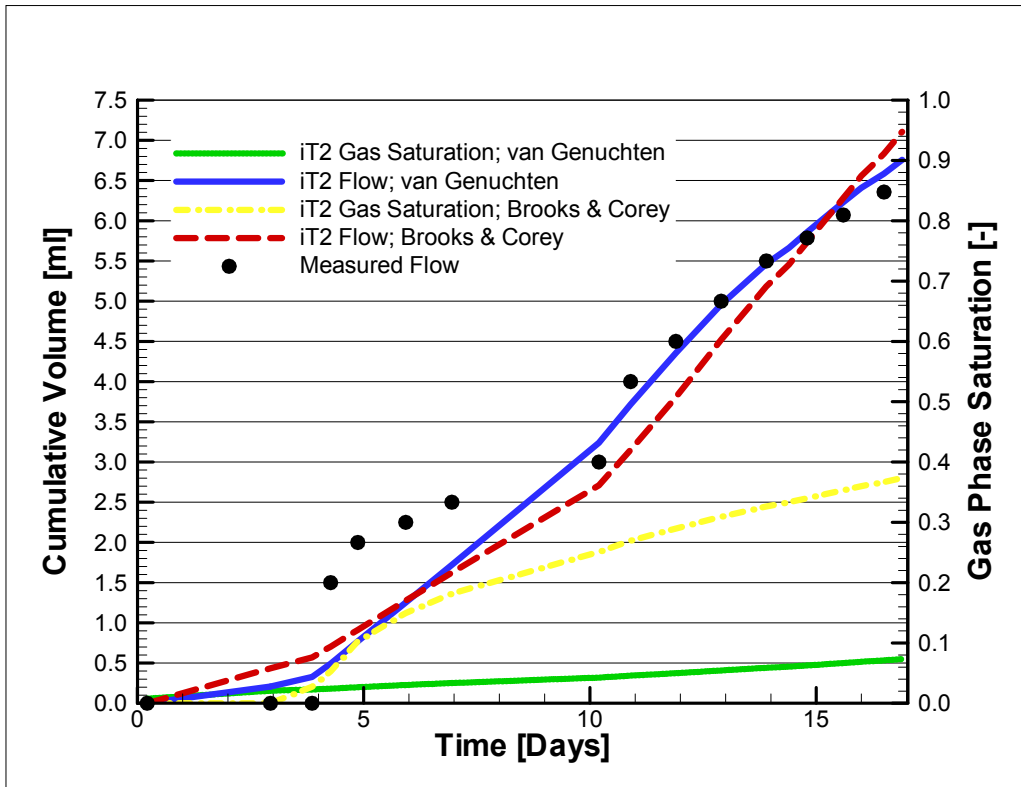


Figure 9. Comparison of measured (circles) and calculated water flow (blue and red lines); calculated gas saturation 3 cm above the injection

Figure 9 shows that the calibrated nonisothermal two-phase flow model with the van Genuchten functions provide a reasonably good fit to the measured amount of water collected in the burette during the gas injection experiment, especially at later times. However, during the first part of the gas injection experiment, both the van Genuchten and Brooks-Corey models significantly underestimate the displaced amount of water. The initial fast displacement of water seen in the data may be attributed to the possible presence of macropores, other fast-flow paths through the system, or short-circuits in the packing of the permeameter. The macropores may arise from the card-house structure of flocculated sodium bentonite, with open pore space between clusters of randomly orientated individual particles (see Figure 10).

After the entry pressure of the macropores is exceeded, a significant part of the pore space is drained almost immediately, as seen after 4 days in the gas injection experiment (see Figure 11). Micropores with a higher entry pressure are subsequently drained at a slower rate. Neither the standard van Genuchten nor Brooks-Corey model exhibit a bi-modal structure, and therefore an average curve is obtained as a result of the fitting process.

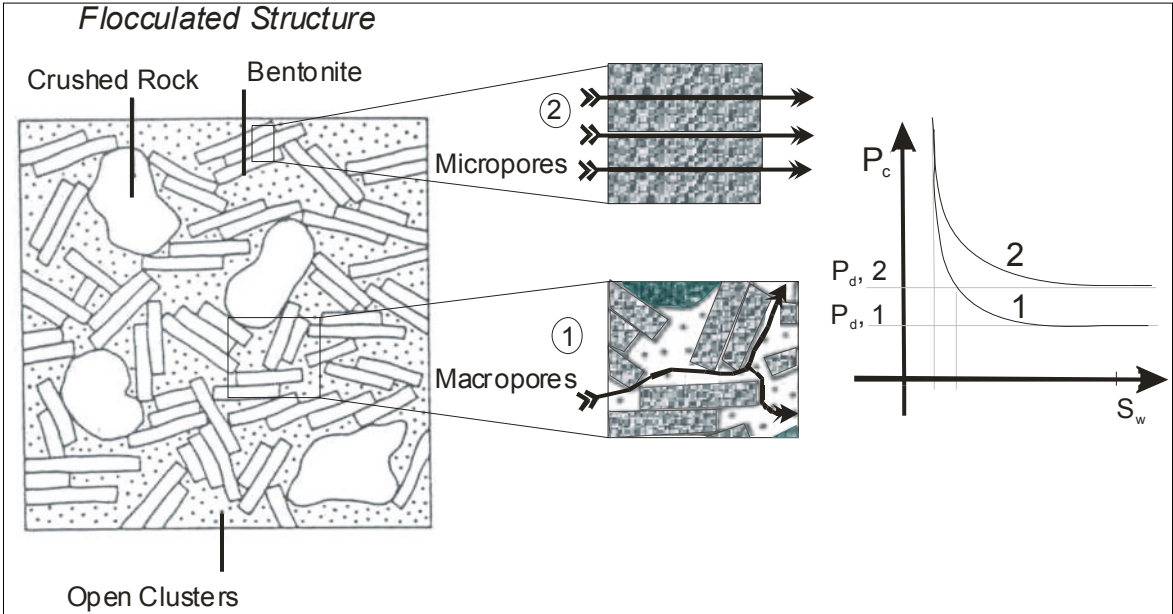


Figure 10. Flocculated structure and flow paths in a bi-modal medium: water moving through micropores and macropores

The distinct entry pressure of the Brooks-Corey model has a profound impact on the simulated system behavior. The Brooks-Corey model predicts that the nitrogen front penetrates the column to a distance of only 7.5 cm, with an almost piston-like displacement resulting in high gas saturations in the injection zone. The van Genuchten model, on the other hand, yields a dispersed gas distribution that reaches the top of the column after 10.8 days, with a relatively low maximum gas saturation of

28% near the injection point. The gas saturation 3 cm above the inlet is shown in Figure 9.

Figure 11 shows the comparison between the pressure measured in the burette and the corresponding simulation result obtained with iTOUGH2 (iT2). The initial, minor pressure increase results from displaced water entering the measuring device, thus slightly compressing the gas in the burette. The pressure increases much more rapidly as soon as the injected nitrogen gas reaches the top of the column. The van Genuchten model results in an early gas breakthrough at about 10.8 days, overestimating the late-time pressure in the burette. On the other hand, the Brooks-Corey model predicts a relatively sharp gas–liquid front within the column, preventing gas breakthrough. This yields a relatively good match to the observed pressures. No gas breakthrough was evident from the experimental data. The stepwise increase in the observed pressures is a result of the low manometer resolution of 0.1 bar.

As discussed above, it appears that a secondary pore system with larger pore sizes affects flow near saturation. This behavior can be partially mimicked by a reduced Brooks-Corey entry pressure or by using the van Genuchten model, which allows water displacement for any non-zero capillary pressure. However, both models fail to reproduce early-time data, obtained soon after the start of the experiment. This suggests that constitutive relations derived from a bi- or multi-modal pore-size distribution such as those proposed by DURNER ET AL. (1999) may yield better results, provided that the additional parameters required by these more sophisticated models can be identified and determined with acceptable estimation uncertainty.

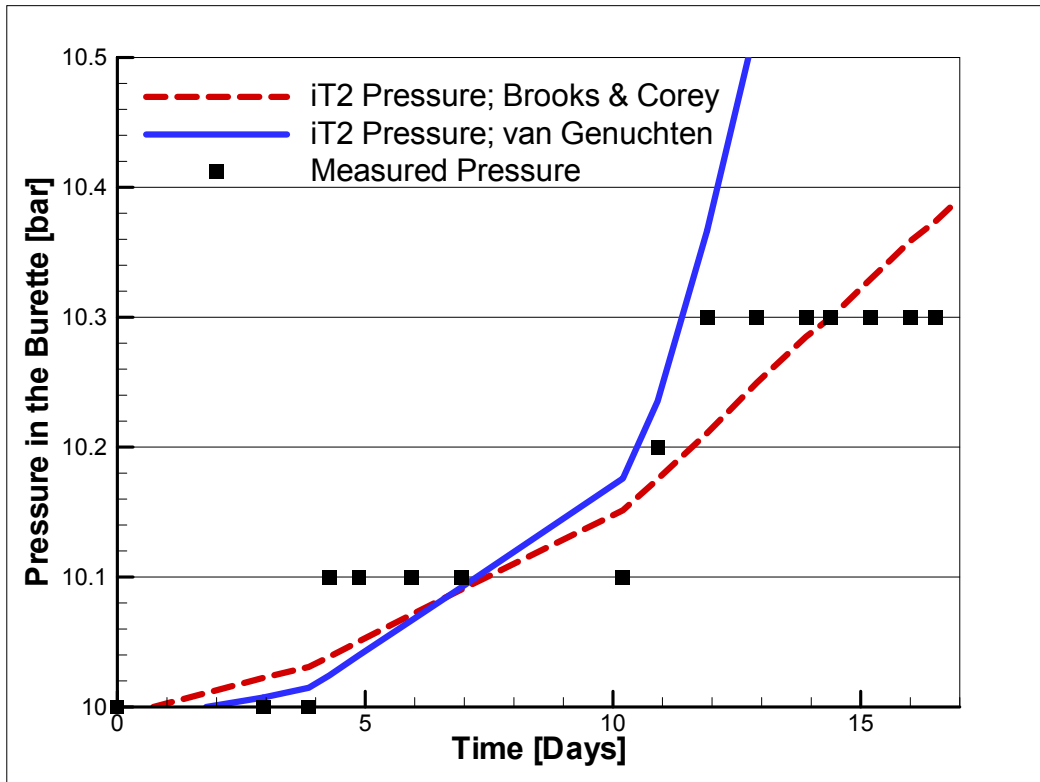


Figure 11. Comparison of the measured (squares) and calculated pressure (lines) in the burette

Table 4 summarizes the best-estimate parameter sets obtained from the inversion. The absolute permeability corresponds well with the permeability determined by the standard permeameter method. Estimated thermal parameters (heat conductivity and specific heat) are in the range given by KAHR & MÜLLER-VONMOOS (1982). The inversion of the data based on the van Genuchten model results in a $1/\alpha$ value of 1.4 bar at 90°C. The Brooks-Corey model yields an entry pressure P_d of 0.4 bar at 90°C. Even when corrected for temperature effects, this value is significantly lower than the 1.1 bar obtained at 20°C using the pressure-cell and thermohygrometer data.

Table 4. Summary of the inverse modeling results

Parameter	Model	Initial Guess	Best Estimate	σ_P	σ^*_P/σ_P
log (k [m ²])	<i>van Genuchten</i>	-18.07	-17.89	0.02	0.40
	<i>Brooks-Corey</i>		-18.08	0.02	0.24
log ($1/\alpha$ [Pa])	<i>van Genuchten</i>	5.28	5.15	0.14	0.40
log (P_d [Pa])	<i>Brooks-Corey</i>	5.04	4.60	0.14	0.24
λ_T [W m ⁻¹ K ⁻¹]	<i>van Genuchten</i>	2.14	2.28	0.07	0.97
	<i>Brooks-Corey</i>		2.35	0.09	0.98
c [J kg ⁻¹ K ⁻¹]	<i>van Genuchten</i>	1020	900	86.2	1.00
	<i>Brooks-Corey</i>		900	99.6	1.00

3.3. Sensitivity Analyses and Estimation Statistics

The statistical correlation coefficients of the estimated parameters were evaluated. In our inversion, permeability and the capillary strength parameter are highly correlated. The correlations among the parameters result in a conjoint impact of a parameter change on the system behavior. For the hydraulic parameters, this correlation means that the lower flux obtained by decreasing permeability can be partly compensated by decreasing the entry pressure P_d or capillary strength parameter $1/\alpha$. Since the thermal parameters are less correlated, the response of a change in thermal conductivity will not result in a significant variation of specific heat.

iTOUGH2 also calculates the ratio of the conditional estimation uncertainty σ^*_P and the marginal estimation uncertainty σ_P , which can be interpreted as an overall measure of how independently a parameter can be estimated (FINSTERLE, 1999). This ratio is small for the permeability and gas entry pressure, especially in the Brooks-Corey model, indicating that these parameters are generally highly correlated

(see Table 4). Nevertheless, their high sensitivity yields reasonably low estimation uncertainties.

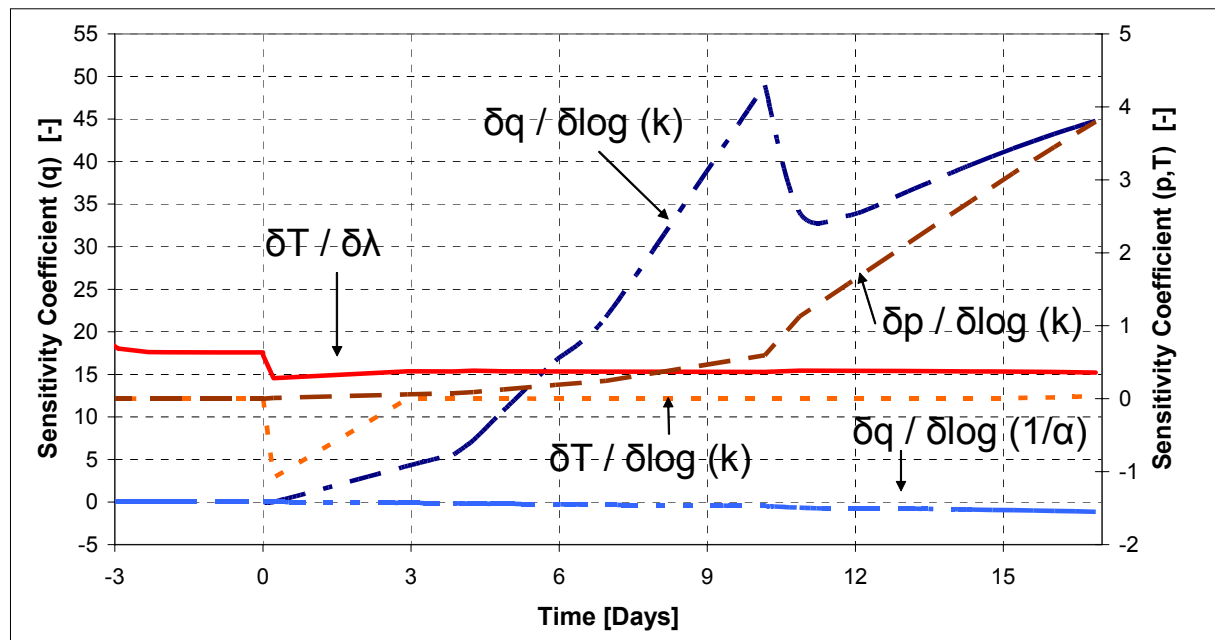


Figure 12. Sensitivity of water flow, temperature at sensor T2, and gas pressure in the burette for the van Genuchten model

Figure 12 shows the sensitivity coefficients of temperature T at sensor T2, flow rate q , and pressure p in the burette with respect to permeability $\log(k)$, the capillary strength parameter $\log(1/\alpha)$, and heat conductivity λ_T . The sensitivity analysis shows that the longer the experiment lasts, the more information about permeability and capillary strength can be drawn from the flow-rate data, as the sensitivity of both parameters continuous to increase. At the time of gas breakthrough, the sensitivity of the water flow rate is at its maximum. Likewise, the sensitivity of the gas pressure in the burette increases rapidly after gas breakthrough. The sensitivity of temperature with respect to permeability is relatively small and approaches zero as the test continues, indicating that the convective heat flow is less significant than the conductive heat transfer. However, the temperature data provide information about

heat conductivity, particularly during the heating phase, as shown by the corresponding sensitivity curve.

4. Summary and Conclusions

The main objective of this study was to obtain experimental data that allow determination of thermal and two-phase flow parameters of bentonite/crushed rock mixtures under conditions representative of those at the Äspö Hard Rock Laboratory. In addition, we examined constitutive relationships suitable for predicting gas leakage from a gas-generating repository.

Flow-rate data and outlet pressure data in the compressed burette were difficult to match. This is most likely a result of the complex pore structure of the backfill material, which has a significant effect on gas flow behavior near full water saturation. The conventional Brooks-Corey and van Genuchten models are based on a uni-modal pore-size distribution and therefore cannot account for the effect of macropores on multiphase flow in unsaturated backfill. Constitutive relationships derived from bi-modal pore-size distributions (e.g., DURNER ET AL., 1999) are expected to better capture the water displacement process in backfill materials near gas-generating nuclear waste canisters.

Inversion of the data from the gas injection experiment employing the van Genuchten function yields a capillary strength parameter $1/\alpha$ of 1.4 bar at 90°C. This is consistent with the value of 1.9 bar determined using a pressure cell and thermohygrometer experiments at 20°C.

Moreover, the relatively low entry pressure of the backfill material, determined with two different experimental techniques (conventional pressure cell measurements and the joint inversion of various transient data from column experiments) indicates that

corrosion gas may penetrate the backfill material relatively easily, avoiding excessive pressure buildups in the repository, but increasing the risk of displacing contaminated pore water or radioactive gases.

We suggest performing sensitivity analyses and synthetic inversions to support the design of nonisothermal two-phase flow experiments by identifying data type, duration of experiments, measurement locations, and the accuracy required to extract the information necessary for estimating the parameters of interest.

5. Acknowledgments

This work was supported by the Federal Institute of Geosciences and Natural Research (BGR), Hannover, Germany, the University of Tübingen, Center for Applied Geosciences (ZAG), Tübingen, Germany, and in part by the U.S. Department of Energy under Contract No. DE-AC03-76SF00098. Thanks are due to O. Trötschler, K. Emmerich and O. Kolditz for their scientific and technical support. We are very grateful for the suggestions and comments of the anonymous reviewers.

6. References

Brooks, R. H., and A.T. Corey. 1964. *Hydraulic Properties of Porous Media*.

Hydrology Papers No. 3. Colorado State Univ., Fort Collins.

Chierici, G.L. 1994. *Principles of Petroleum Reservoir Engineering*. Springer, Berlin, Germany, ISBN 3-540-56037-8.

- Durner, W., E. Priesack, H.-J. Vogel, and T. Zurmühl. 1999. *Determination Of Parameters for Flexible Hydraulic Functions by Inverse Modeling*, In: M. T. van Genuchten, F.J. Leij, and L. Wu (ed.), *Characterization and Measurement of the Hydraulic Properties of Unsaturated Porous Media. 2*: 817–829, University of California, Riverside, CA.
- Finsterle, S. 1999. *iTOUGH2 User's Guide*. Report LBNL-40040. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Jockwer, N., R. Miehe, and I. Müller-Lyda. 2000. *Untersuchung zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen*. (In German with English abstract). GRS-167. Braunschweig, Germany.
- Johannesson, L.-E., L. Börgesson, and T. Sandèn. 1999. *Backfill Materials based on Crushed Rock*. Clay Technology AB. Lund, Sweden.
- Kahr, G., and M. Müller-von Moos. 1982. *Wärmeleitfähigkeit von Bentonit MX80 und Montigel nach der Heizdrahtmethode*. (In German with English abstract). NAGRA NTB 82-06. Wettingen, Switzerland.
- Lenhard, R.J., and J.C. Parker. 1987. *Measurement and Predictions of Saturation-Pressure Relationships in Three-Phase Porous Media Systems*. J. Contam. Hydrol. 1: 407-424.
- Lenhard, R.J., J.C. Parker, and S. Mishra. 1989. *On the Correspondence between Brooks-Corey and Van Genuchten Models*. J. Irrig. Drain. Eng. 115: 744-751.
- Müller-Vonmoos, M., and G. Kahr. 1983. *Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonit MX80 und Montigel*. (In German with English abstract). NAGRA NTB 83-12. Wettingen, Switzerland.

- Poling, B.E., J.M. Prausnitz, and J.P. O' Connel. 2001. *The Properties of Gases and Liquids*. Fifth Edition. NY (McGraw-Hill), ISBN 0-07-011682-2.
- Pruess, K., C. Oldenburg, and G. Moridis. 1999. *TOUGH2 User's Guide, Version 2.0*. Report LBNL-43134. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA.
- Pusch, R., O. Karnland, and H. Hökmark. 1990. *GMM-A General Microstructure Model for Qualitative and Quantitative Studies of Smectite Clay*. SKB TR 90-43. Lund, Sweden.
- Tang, X., J. Graham, and A.W. Wan. 1997. *Measuring Total Suctions by Psychrometers in Triaxial Tests*. p. 213-216. In: A.A. Balkema (ed). *Proceedings of the 14th International Conference on Soil Mechanics and Foundations Engineering*. Vol. 1. 6-12 Sep. 1997, Hamburg, Germany.
- van Genuchten, M. 1980. *A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils*. Soil Sci. Soc. Am. J. 44: 892-898.

Benchmarking Non-Isothermal Multi-Phase Numerical Simulations

Joëlle De Jonge¹, Irina Engelhardt², Olaf Kolditz¹

¹Center for Applied Geoscience Section Geohydrology/Hydroinformatics
University of Tübingen, Germany

²Federal Institute for Geosciences and Natural Resources
Hannover, Germany

Abstract

Non-isothermal multi-componental problems describe the interaction of thermal, hydraulic, and mechanical processes (THM Processes). Various computer codes have been developed to simulate that kind of problem. However, few benchmarks have been developed specifically for the coupling of thermal and hydraulic processes (TH Processes). This paper proposes an experiment and its treatment as a benchmark. The experiment is a column setup, where a water saturated bentonite sample is first heated, then nitrogen is injected into sample, thus creating a TH process setup. The experiment was simulated with the code iTOUGH2, an inverse modelling tool, and with RF/RM a forward modelling tool. The simulation approaches of both simulators are described, then the approaches and their implications on the results are compared and discussed.

Introduction

In the last years, a number of codes for solving non-isothermal multi-componental problems have been developed. Non-isothermal multi-componental problems describe the interaction of thermal, hydraulic and mechanical processes (THM). The codes vary in the choice of primary variables, the approach used, the degree of coupling, and the numerical method utilized.

CODE_BRIGHT, RockFlow/RockMech (RF/RM), THAMES, and TOUGH2 are examples of codes that are utilized in the field of multiphase simulations. CODE_BRIGHT is a 3-D THM simulator developed in Barcelona, Spain (Technical University of Catalonia (UPC)). The code is a finite element code, that solves any partial set of the five following equations: stress equilibrium, water mass balance, air mass balance, energy balance, and balance of conservative solute. Its applications lie in the field of nuclear waste disposal and soil remediation (Olivella et al. [1996]). RF/RM is a finite element simulator, developed in Germany (University of Tübingen and University of Hannover). RF/RM is a finite element code, written in C-objective/C++, using object oriented programming techniques. This allows RF/RM to be applied to a variety of THM problem situations (geothermal engineering, soil remediation, and nuclear waste storage), using application specific models and kernels within the simulator. For TH modelling, which is the object of this paper a 1-D and 2-D code has been developed within the RF/RM simulator. The TH code takes phase transitions into account and works with a non-constant gas phase pressure. The code is documented in a variety of publications, for example Kolditz [2002], Kolditz et al. [2003] and Thorenz [2001]. The program THAMES is developed in Japan, originally it was developed by Ohnishi et al. (Ohnishi et al. [1985]). It is a 3-D finite element THM code that has been developed in the context of nuclear waste disposal in the subsurface. The unknown variables are total pressure,

displacement vector and temperature (Chijimatsu et al. [2000]). The program TOUGH2 is developed at the Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), USA, for geothermal reservoir applications. Time and space are discretized using the finite difference method. The program TOUGH2 is valid for one-, two-, and three-dimensional numerical models to simulate the coupled transport of water, vapor, air, and heat in porous and fractured media (Pruess [1987]). TOUGH2 has further been applied for studies of high-level nuclear waste isolation in partially saturated porous media. The TOUGH2 simulator takes account of fluid flow in the liquid and gas phase under pressure, viscous, and gravity forces according to DARCY's law with interferences between the phases represented by the relative permeability functions.

Other areas of numerical simulations have classical benchmark problems, such as the Theis or Buckley problems, which can be calculated analytically. This is not the case for THM simulations. There are, however, some benchmarks, that, even if complex help verify and calibrate codes. The DECOVALEX (International co-operative project for the DEvelopment of COupled models and their VALidation against EXperiments in nuclear waste isolation) program and BENCHPAR program include a benchmark test for THM processes in the near-field applied to nuclear waste storage problems. The FEBEX problem is also within the frame of the DECOVALEX and BENCHPAR and deals with a large scale heater test for the same application. Another large scale heater test was performed in Japan, named the BIG-BEN (Big Bentonite facility) test. (Chijimatsu et al. [2000]). However, all these benchmark tests are extremely complex.

We were interested in a direct comparison of how a less complex laboratory experiment was handled by two different codes, RF/RM and iTOUGH2. The aim is to provide an adequate benchmarking example for TH processes and to analyze how two numerically very different codes handle the simulation. The simulation of the experiment also partially serves as a code validation for RF/RM.

1 RF/RM Governing Equations

The formulation adopted is a componental formulation. This means, that rather than expressing the governing equations for the phases, the governing equations are expressed for the components (here these are air and water). Equation (1) shows the mass balance equation for the air and water components ($k = a, w$).

$$\frac{\partial}{\partial t}(nS^l\rho_k^l + nS^g\rho_k^g) + \nabla \cdot (\mathbf{J}_k^{ls} + \mathbf{J}_k^{gs}) + \nabla \cdot (\mathbf{J}_k^g + \mathbf{J}_k^l) = Q_k \quad (1)$$

$n [-]$ is porosity, $S [-]$ is saturation, $\rho [\frac{kg}{m^3}]$ is density, $\mathbf{J} [\frac{kg}{m \cdot s}]$ is flux, and $Q [\frac{m^3}{s}]$ is a source-sink term. The superscripts l , g , and s denote the liquid phase, gas phase, and solid phase. The subscript k denotes the component, which is air (a) or water (w) in our examples. Taking material parameters and equations of state into account, equation (1) can be rewritten as shown in equation (2).

$$\begin{aligned} & nX_k^g \left(S^g \frac{\partial \rho^g}{\partial p^g} + S^l \frac{\partial \rho^l}{\partial p^l} \right) \frac{\partial p^g}{\partial t} \\ & - \nabla \cdot \left(\rho^g X_k^g \frac{k_{rel}^g \mathbf{k}}{\mu^g} \nabla p^g \right) - \nabla \cdot \left(\rho^l X_k^l \frac{k_{rel}^l \mathbf{k}}{\mu^l} \nabla p^g \right) \\ & + n(-\rho^g X_k^g + \rho^l X_k^l) \frac{\partial S^l}{\partial t} \\ & = Q_k \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + (nS^l X_k^l \frac{\partial \rho^l}{\partial p^l}) \frac{\partial p_c}{\partial t} - \nabla \cdot \left(\rho^l X_k^l \frac{k_{\text{rel}}^l \mathbf{k}}{\mu^l} \nabla p_c \right) \\
& - \nabla \cdot \left(\rho^g X_k^g \frac{k_{\text{rel}}^g \mathbf{k}}{\mu^g} \rho^g \mathbf{g} \right) + \nabla \cdot \left(\rho^l X_k^l \frac{k_{\text{rel}}^l \mathbf{k}}{\mu^l} \rho^l \mathbf{g} \right) \\
& + \nabla \cdot (nS^g \rho^g D_k^g \nabla X_k^g)
\end{aligned} \tag{2}$$

$X [-]$ is the mass fraction, $p [Pa]$ is pressure, $k_{\text{rel}} [-]$ is the relative permeability, $\mathbf{k} [m^2]$ is the reference permeability, $\mu [Pa \cdot s]$ is viscosity, $p_c [Pa]$ is capillary pressure, $\mathbf{g} [\frac{m}{s^2}]$ is the gravity vector, and $D [\frac{m^2}{s}]$ is the diffusion coefficient.

The energy balance equation (equation 3) completes the set of equations.

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial}{\partial t} ((1-n)\rho^s u^s + nS^g \rho^g u^g + nS^l \rho^l u^l) \\
& + (\nabla \cdot \mathbf{J}_h^s + \nabla \cdot \mathbf{J}_h^g + \nabla \cdot \mathbf{J}_h^l) = Q_h
\end{aligned} \tag{3}$$

$u [\frac{J}{kg}]$ is the internal energy and $\mathbf{J}_h [\frac{J}{m \cdot s}]$ is heat flux. Equation (4) shows the governing equation for the energy equation.

$$\begin{aligned}
& ((1-n)\rho^s c^s + nS^g \rho^g c^g + nS^l \rho^l c^l) \frac{\partial T}{\partial t} \\
& + \left(\rho^g c^g \frac{k_{\text{rel}}^g \mathbf{k}}{\mu^g} (\nabla p^g - \rho^g \mathbf{g}) \right. \\
& \quad \left. + \rho^l c^l \frac{k_{\text{rel}}^l \mathbf{k}}{\mu^l} (\nabla p^l - \rho^l \mathbf{g}) \right) \nabla T \\
& - \nabla \cdot ((1-n)\lambda^s + nS^g \lambda^g + nS^l \lambda^l) \nabla T \\
& - \nabla \cdot (nS^g \rho^g D_a^g h^g \nabla X_a^g) \\
& - \nabla \cdot (nS^g \rho^g D_w^g h^g \nabla X_w^g) \\
& = \rho Q_T
\end{aligned} \tag{4}$$

$c [\frac{J}{kg \cdot K}]$ is heat capacity, $\lambda [\frac{J}{K \cdot m \cdot s}]$ is thermal conductivity, and $h [\frac{J}{kg}]$ is enthalpy.

2 RF/RM Numerical Methods

RF/RM is a finite element code. To get from the governing equation to the weak formulation of the algebraic equation, the method of weighted residuals is used. The order of spatial derivatives is reduced by the Gauss-Ostrogradsky method. The time derivatives are approximated by the first-order finite difference method. This leads to the algebraic equation (5) for the air and water components and equation (6) for the energy equation.

Fluid component equations ($k = a, w$), where $\theta \in [0, 1]$

$$\begin{aligned}
& \left[\frac{1}{\Delta t} (\mathbf{C}_{P_k}^g + \mathbf{C}_{P_k}^l) + \theta (\mathbf{K}_{P_k}^g + \mathbf{K}_{P_k}^l) \right] [\hat{\mathbf{p}}^g]^{n+1} \\
& + \left[\frac{1}{\Delta t} (\mathbf{C}_{S_k}^l - \mathbf{C}_{S_k}^g) \right] [\hat{\mathbf{S}}^l]^{n+1} \\
& = \left[\frac{1}{\Delta t} (\mathbf{C}_{P_k}^g + \mathbf{C}_{P_k}^l) - (1 - \theta) (\mathbf{K}_{P_k}^g + \mathbf{K}_{P_k}^l) \right] [\hat{\mathbf{p}}^g]^n \\
& + \left[\frac{1}{\Delta t} (\mathbf{C}_{S_k}^l - \mathbf{C}_{S_k}^g) \right] [\hat{\mathbf{S}}^l]^n \\
& + \left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_{P_k}^l \right] ([\hat{\mathbf{p}}_c]^{n+1} - [\hat{\mathbf{p}}_c]^n) \\
& + [\mathbf{K}_k^{ls}] (\theta [\hat{\mathbf{p}}_c]^{n+1} + (1 - \theta) [\hat{\mathbf{p}}_c]^n) \\
& - [\mathbf{K}_k^g] (\theta [\hat{\mathbf{X}}_k^g]^{n+1} + (1 - \theta) [\hat{\mathbf{X}}_k^g]^n) \\
& + (\mathbf{K}_k^{gs} + \mathbf{K}_k^{ls}) \mathbf{g}
\end{aligned} \tag{5}$$

Heat energy equation

$$\begin{aligned}
& \left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_T + \theta \mathbf{A}_T + \theta \mathbf{K}_T \right] [\hat{\mathbf{T}}]^{n+1} \\
& = \theta [Q_T]_T^{n+1} + (1 - \theta) [Q_T]_T^n \\
& + \left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_T - (1 - \theta) \mathbf{A}_T - (1 - \theta) \mathbf{K}_T \right] [\hat{\mathbf{T}}]^n
\end{aligned} \tag{6}$$

The equations above can be written more compactly as

$$\begin{aligned}
\left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_{Pa} + \mathbf{K}_{Pa} \right] [\hat{\mathbf{p}}^g]^{n+1} + \left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_{Sa} \right] [\hat{\mathbf{S}}^l]^{n+1} &= \text{RHS}_a \\
\left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_{Pw} + \mathbf{K}_{Pw} \right] [\hat{\mathbf{p}}^g]^{n+1} + \left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_{Sw} \right] [\hat{\mathbf{S}}^l]^{n+1} &= \text{RHS}_w \\
\left[\frac{1}{\Delta t} \mathbf{C}_T + \mathbf{K}_T + \mathbf{A}_T \right] [\hat{\mathbf{T}}]^{n+1} &= \text{RHS}_T
\end{aligned} \tag{7}$$

There are different ways to solve the three equations. So far, two possibilities have been implemented for multiphase, multi-componental problems in RF/RM. The equations can either be solved one after another, iterating between them, or the equations for gas pressure and liquid saturation can be solved simultaneously, then iterating with the temperature equation. Details of the numerical procedure can be found in Kolditz and Jonge [2003].

3 Experimental Data

3.1 Studied Material

Lab experiments were designed to determine material parameters of potential backfill material that is suggested as engineered barrier for a high-level nuclear waste repository at Äspö test site in Sweden. We performed experiments with a specially constructed permeameter to estimate the thermal and unsaturated hydraulic parameters of the backfill under conditions that occur in a deep repository. The analyzed backfill material consists of 30%*wgt.* sodium-bentonite and 70%*wgt.* crushed rock. The sodium-bentonite is used as fine powder, product name SPV Volclay, and contains 75% montmorillonite with 85.5% exchangeable sodium (Müller-Vonmoos and Kahr [1983]). The crushed rock consists of granite with a maximum grain size of 5 *mm*. The used synthetic water has a similar ionic content to the groundwater that prevails at Äspö HRL (Äspö water) (see Table 1).

Table 1: Composition of the synthetic Äspö water

	Parameter						
Äspö Water [<i>mol/L</i>]	Na ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	K ⁺	S ²⁻	Cl ⁻	pH
	$1.5 \cdot 10^{-2}$	$2.7 \cdot 10^{-3}$	$1.8 \cdot 10^{-3}$	$3.6 \cdot 10^{-4}$	$5.1 \cdot 10^{-4}$	$1.9 \cdot 10^{-2}$	7.4

3.2 Laboratory Equipment

The permeameter we used to study heat and gas flow in the backfill is shown in Figure 1. The permeameter consists of a 30 *cm*-long steel sample column (2) with a diameter of 5 *cm*. Inside the bottom of the sample column a heating element is fixed in a steel chamber. We maintained a constant pressure or a constant pressure gradient along the sample column by use of the water container (1) that can be connected to the bottom and/or to the top of the sample column. The water in the container can be pressurized up to 20 *bar*. A burette (3) is plugged to the top of the sample column. We could connect or disconnect the burette to the sample column. The pressure in the burette can be held at atmospheric pressure or increased up to 10 *bar*.

Inside the sample column of the permeameter, we added backfill to Äspö water, and compacted the mixture with a piston to avoid air entrapment. With this procedure we reached a dry density of 1.6 *g/cm*³ and a porosity of 48%. At the top and bottom of the sample, we inserted fine sand, geotextile, and a metal filter to assure one-dimensional flow and to prevent the bentonite from being washed out of the sample. The outside of the sample column, we wrapped with insulating wool to minimize heat loss through the boundary.

3.3 Saturated Hydraulic Experiments

We started the experimental procedure with measurements to specify the water saturated hydraulic conductivity. The water flow through the sample due to a pressure gradient of 20 *bar* was measured in the connected burette. After adjusting a pressure gradient along the sample column, and by measuring the water volume entering the burette, the viscosity, and the density of Äspö water, knowing the cross-sectional area of the sample, we could calculate the hydraulic conductivity up to 90°C. Results for these calculations are described in Engelhardt et al. [2003].

3.4 Thermal Experiments

Using the water container, the sample was pressurized to 10 *bar* at the top and bottom so that we maintained a stationary flow field across the sample. During the thermal experiment we disconnected the

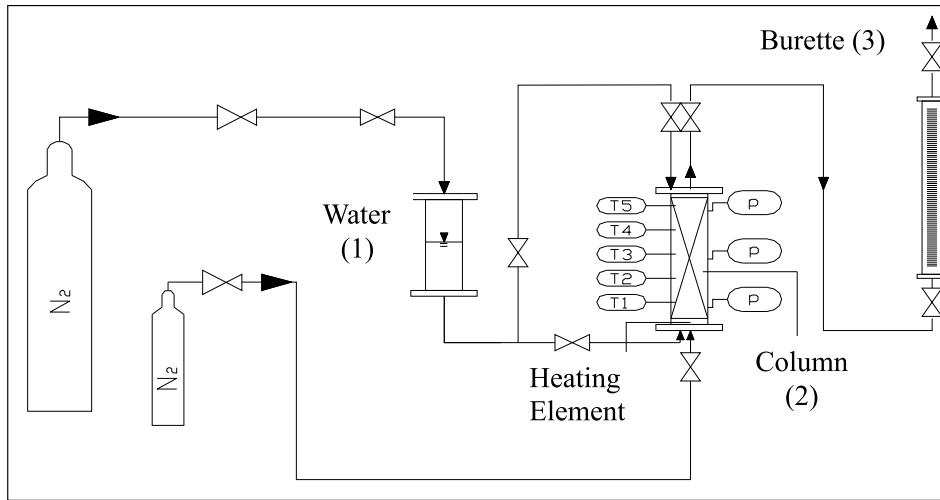


Figure 1: Experimental setup

burette from the column. The heating was submerged in water, and switched on to 90°C . Five temperature sensors recorded the initial temperature increase, and the time-invariant temperature distribution along the axis of the sample during the three week experiment (see Figure 2).

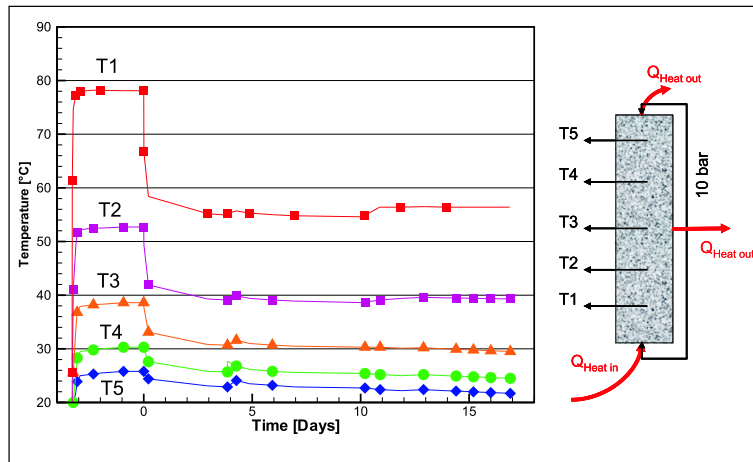


Figure 2: Thermal experiment and measured temperature distribution

3.5 Non-isothermal Drainage Experiment

Four days after starting the thermal experiment we replaced the water surrounding the heating element by air. This replacement from water to air caused the temperature drop as can be seen in Figure 2 at time zero. Then nitrogen was injected from below into the already heated and pressurized sample for 17 days. The nitrogen injection pressure was increased stepwise. We started to inject nitrogen with 11.5 bar to remain below the entry pressure of the backfill material. After 4 days we increased the injection pressure to 15 bar, and after 10 days to 20 bar. During the drainage experiment we connected the burette to the sample column, and pressurized it at the beginning to 10 bar. The pressure in the burette increased due to water, and eventually gas entering the burette (see Figure 3). We poured 51 ml Äspö water into the

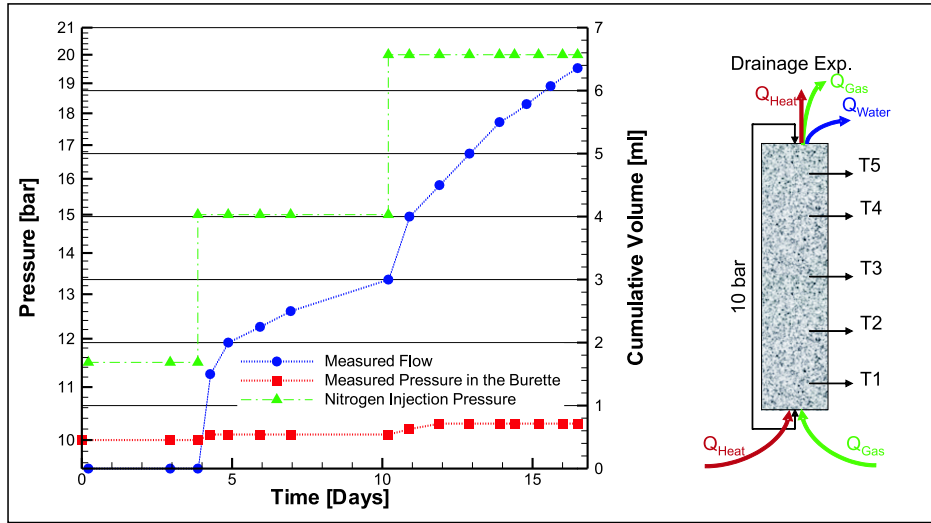


Figure 3: Non-isothermal drainage experiment and measured data

burette, corresponding to 41% of its maximum water capacity. The volume of Äspö water in the burette increased to 57.5 ml after 17 days of drainage. Figure 3 shows the measured drained water volume that entered the burette, the recorded gas pressure increase by the water inflow, and the nitrogen injection pressure at the bottom of the sample.

4 Numerical Analysis

4.1 Parameter Estimation using iTOUGH2

Methodology

We used the measured water discharge rate, gas pressure in the burette, and temperature as calibration data for inverse modeling with the program iTOUGH2 (Finsterle [1999]). By automatically matching the calculated with the measured system behavior we determined the thermal and hydraulic parameters of the backfill material. The inverse modeling procedure used to obtain thermal and unsaturated hydraulic parameters is discussed in detail in Engelhardt et al. [2003].

In the iTOUGH2 simulation a two-dimensional, radial model was developed to capture fluid and heat flow along the axis of the column as well as radial heat losses through the boundary. The column was discretized along the axial direction into 60 *gridblocks* with a spacing of 0.5 cm. The thermal and gas-injection experiment was simulated in a single model run. The sample column itself was initially fully water saturated with a pressure of 10 bar, and a temperature of 19.4°C. Analyzing the thermal experiment, radial heat loss as well as heat transfer through the top cap of the column was accounted for, by specifying appropriate thermal parameters for the insulation material. We fixed the temperature of the lowest temperature sensor (T1) as a time-dependent temperature boundary condition. The initial and boundary conditions of the simulation with iTOUGH2 are shown in Figure 4.

When simulating the nitrogen injection experiment, the top element was connected to a further element representing the burette. This element had the correct experimental volume and initial gas saturation. This allowed us a correct modeling of the observed increase in pressure due to incoming liquid or nitrogen.

Both, the BROOKS- COREY (Brooks and Corey [1964]) and VAN GENUCHTEN (Van Genuchten [1980]) model, were used to describe the two-phase relative permeability and capillary pressure functions

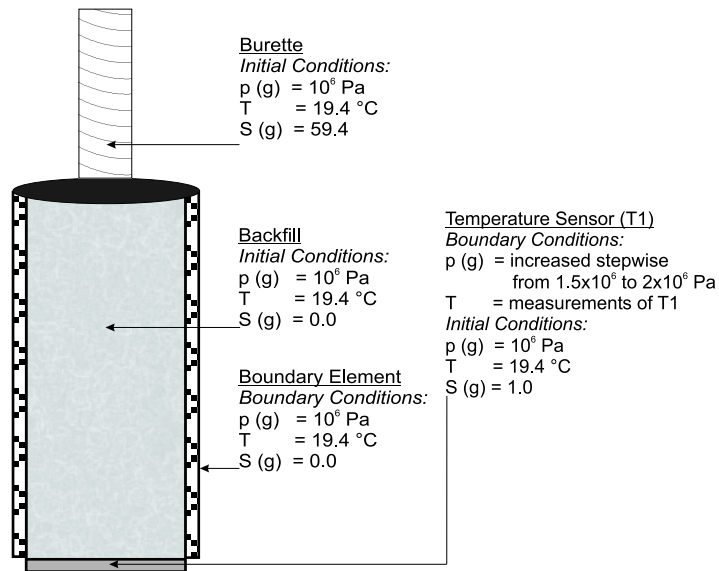


Figure 4: Initial and boundary conditions used for the iTOUGH2 simulation

of the backfill material during the drainage experiment. To avoid overparameterization, the pore size distribution indices λ and n , as well as the residual saturations S_{wr} and S_{nwr} were fixed in the inversion. Only four parameters were estimated by inverse modelling: absolute permeability, gas entry pressure P_d (or capillary strength parameter $1/a$), thermal conductivity, and the specific heat. Since both hydraulic parameters are expected to vary over many orders of magnitude, we estimated their logarithms. The material parameters resulting from the inverse modelling are summarized in Table 2.

Results

Using the program iTOUGH2 the temperatures are well matched throughout the 3-week experiment. The match is independent of the choice between the Brooks-Corey or van Genuchten model. The total heat flow through the column we calculated with the calibrated forward model was about 45.0 W , while the heat loss through the boundary was about 2.1 W . The calibrated non-isothermal two-phase flow model with the van Genuchten functions provides a reasonably good fit with the measured volume of water collected in the burette during the gas injection experiment, especially of the last 7 days. However, during the first part of the gas injection experiment, both the van Genuchten and Brooks-Corey models significantly underestimate the displaced amount of water. The van Genuchten model yields a dispersed gas distribution that reaches the top of the column after 10.8 days, with a relatively low maximum gas saturation of 28% near the injection point. The Brooks-Corey model predicts that the nitrogen front penetrates the column to a distance of only 7.5 cm, with an almost piston-like displacement resulting in high gas saturations in the injection zone (see Figure 5). The Brooks-Corey model predicts a relatively sharp gas-liquid front within the column, preventing gas breakthrough. However, no gas breakthrough during the three-week experiment was evident from the experimental data. Figure 5 shows a comparison of the predicted gas phase distribution after 16 days for both models calculated with the calibrated model using TOUGH2 (Pruess et al. [1999]).

Table 2: Summary of the inverse modelling results for the backfill

Material Parameter	Model	FixedValue	Best Estimate
Porosity [%]	van Genuchten	48	
	Brooks-Corey	48	
Density [kgm^{-3}]	van Genuchten	2700	
	Brooks-Corey	2700	
Pore size Distribution Index			
n [-]	van Genuchten	1.44	
λ [-]	Brooks-Corey	0.4	
Residual Water/Gas Saturation [-]	van Genuchten	0.07/0.01	
	Brooks-Corey	0.07/0.01	
$\log(k[m^2])$	van Genuchten		-17.89
	Brooks-Corey		-18.08
$\log(1/a[Pa])\log(Pd[Pa])$	van Genuchten		5.15
	Brooks-Corey		4.60
$\lambda_T[Wm^{-1}K^{-1}]$	van Genuchten		2.28
	Brooks-Corey		2.35
$c[Jkg^{-1}K^{-1}]$	van Genuchten		900
	Brooks-Corey		900

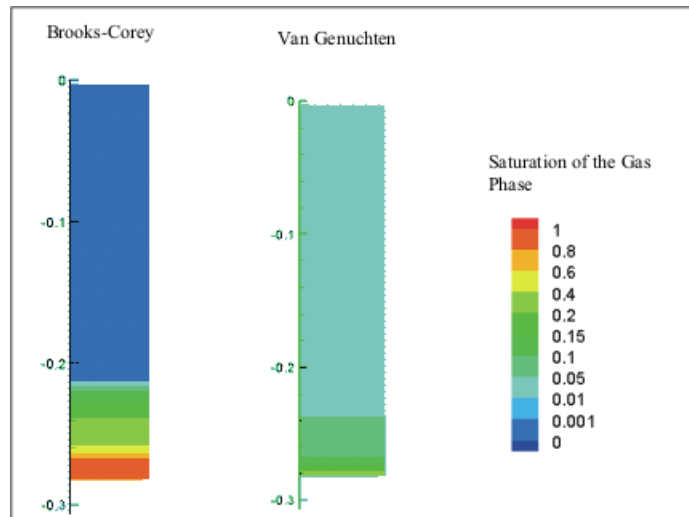


Figure 5: Gas phase distribution calculated with iTOUGH2

4.2 RF/RM Simulation

4.2.1 Thermal Experiment

Methodology

The temperatures recorded in the laboratory experiment described in Section 3 were modelled with RF/RM. The mesh used was a 1-dimensional vertical cut of the laboratory setup. The heating element and the top plate were modelled as separate material groups from the backfill material. The parameters for the model input are summarized in Table 3. The simulation time was 3.3 *days*. This is the time up to the start of the gas injection, equivalent to time 0 in Figure 2. The initial conditions and boundary conditions for the simulation are summarized in Table 4.

Table 3: RF/RM input parameters

Parameter	Unit	Value	Parameter	Unit	Value
Top plate			Backfill		
Cross-sectional area	m^2	0.001964	Cross-sectional area	m^2	0.001964
Porosity	-	0.01	Porosity	-	0.48
Tortuosity	-	1	Tortuosity	-	1
Permeability	m^2	0	Permeability	m^2	$8.6 \cdot 10^{-19}$
Density	$\frac{kg}{m^3}$	7800	Density	$\frac{kg}{m^3}$	2720
Heat capacity	$\frac{kg \cdot K}{J}$	460	Heat capacity	$\frac{kg \cdot K}{J}$	900
Heat conductivity	$\frac{J}{K \cdot m \cdot s}$	14	Heat conductivity	$\frac{J}{K \cdot m \cdot s}$	2.35

Parameter	Unit	Value
Heating element		
Cross-sectional area	m^2	0.001964
Porosity	-	0.95
Tortuosity	-	1
Permeability	m^2	$1.0 \cdot 10^{-10}$
Density	$\frac{kg}{m^3}$	7800
Heat capacity	$\frac{kg \cdot K}{J}$	460
Heat conductivity	$\frac{J}{K \cdot m \cdot s}$	14

For the thermal experiment, no capillary pressure - saturation or relative permeability - saturation curves were prescribed, as the backfill remains saturated due to the experimental setup. The model only calculated the temperature distribution.

Table 4: Initial and Boundary Conditions for the Thermal Experiment

Condition	Unit	Value
<i>Initial conditions</i>		
Gas Pressure, whole domain	Pa	1013250
Gas Saturation, whole domain, except at top plate	%	0.0
Gas Saturation, top plate	%	0.99
Temperature, whole domain	K	292.65
<i>Boundary conditions</i>		
Pressure at heating element	Pa	1013250
Gas saturation at heating element	%	0.0
Temperature at heating element	K	Figure 1, curve T5

As the model is based on a laboratory test, the backfill steel column has to be taken into consideration. Hence there is a heat flux through the steel column. This is modelled by introducing sinks at nodes (taken to correspond to temperature measurement locations for convenience), as shown in Figure 6. The sinks are highly time dependent. Initially, more heat is lost through the sample enclosing material, than when the temperature is stationary.

Results

Figure 7 shows the simulation results. One can see that there is a good fit with the experimental measurements.

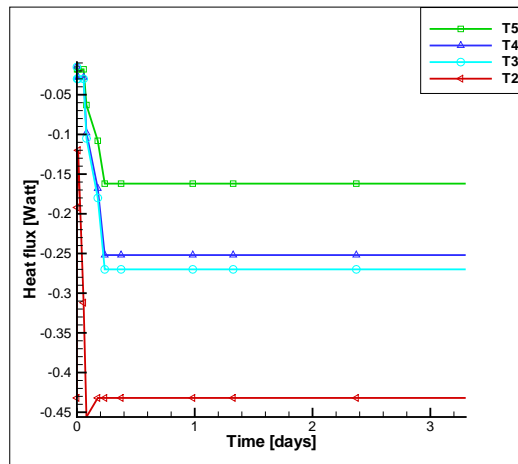


Figure 6: Heat sinks at temperature measurement points

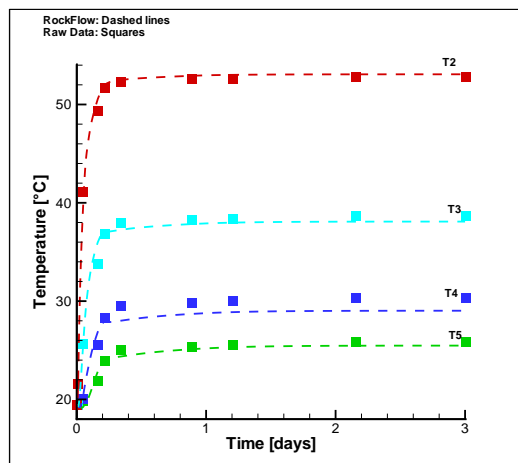


Figure 7: RF/RM simulation results for the thermal experiments

4.2.2 Drainage Experiment

Methodology

The drainage experiment described in Section 3 was also modelled in RF/RM. The aim in modelling the experiment with RF/RM was to simulate the saturation evolution in the sample. For this, a 1-D model was established. The initial and boundary conditions are as illustrated in Figure 8. The injection gas

pressure, the measured pressure in the burette and the flow into the burette were used as time-dependent boundary conditions.

Two constitutive equations describe the material behaviour of partially saturated porous media. The capillary pressure - saturation relationship and the relative permeability - saturation relationship. The choice of model for the capillary pressure - saturation relationship has a particular importance for the measured water flow in the burette. The measured data was represented well in the simulation with iTOUGH2 (Engelhardt et al. [2003]), hence the capillary pressure - saturation curve determined in the iTOUGH simulation using the van Genuchten model was used in the RF/RM simulation.

The measurement of the gas pressure in the burette is closely related to the propagation of the gas phase distribution in the sample. The relative permeability - saturation relationship has a determining effect on those data. Nor the van Genuchten, or the Brooks Corey model take the influence of swelling processes on relative permeability into account. To be able to simulate the propagation of the gas phase distribution in a porous medium capable of swelling, the function after Olivella and Gens [2000] was implemented into RF/RM and used. According to this model, separate permeabilities have to be used for the gas and liquid phases when modelling bentonite. This is because of the swelling effects that occur in bentonite as water imbibes the bentonite. Therefore, in the unsaturated state, permeability is much higher than in the saturated state. Olivella and Gens have determined that the difference between the two permeabilities is of the order of 10^5 . The curve for liquid phase and gas phase permeability used in this simulation is shown in Figure 9. The curve is not smooth, as the relative permeability - saturation values determined experimentally by Olivella and Gens have been multiplied with the measured intrinsic permeability for the bentonite sample considered in this experiment. Using such a model makes a great difference to the vapour flow, which gets enhanced.

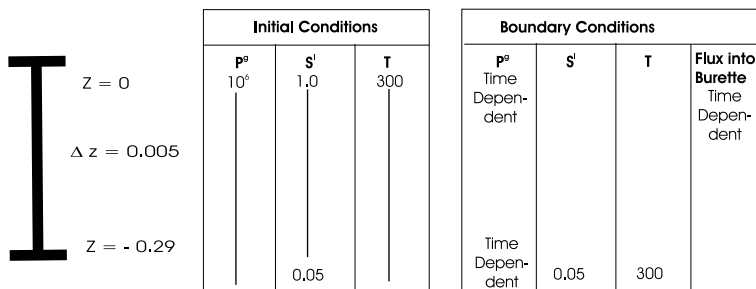


Figure 8: RF/RM simulation setup for the drainage experiment

Results

During the experiment, the nitrogen injection pressure is increased in steps. Numerically these steps present a challenge, as the time stepping scheme has to change. Figure 10 shows the modelling results for the saturation evolution as a profile. Figure 11 shows the time evolution of saturation 3 cm above the nitrogen injection point. Both figures show that the gas travels through the sample, displacing the liquid, but no gas breakthrough is estimated, as was observed in the experiment.

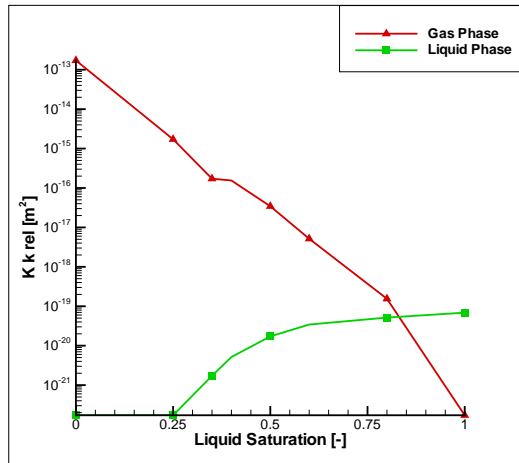


Figure 9: Total Permeability versus Liquid Saturation

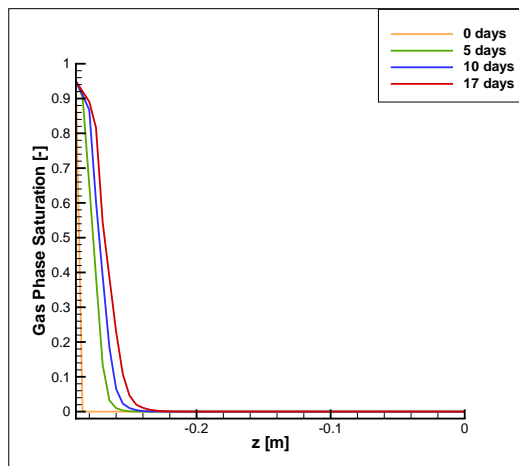


Figure 10: RF/RM simulation results for the drainage experiment - profile

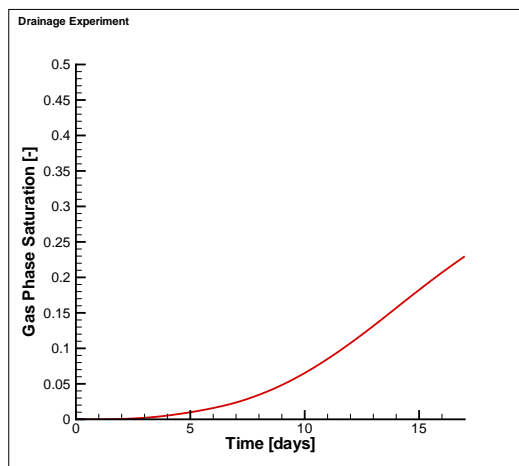


Figure 11: RF/RM simulation results for the drainage experiment - time evolution at 3 cm above the injection point

5 Discussion of Results

Thermal Experiment

Figure 12 shows that both models fitted the temperature evolution well. While separate thermal properties were specified for the insulation material in iTOUGH2 to account for heat loss, sink terms were used in RF/RM.

The influence of different numerical models and methodology (i.e. boundary element versus heat sink terms) can nearly only be seen during the temperature increase. The decisive parameter for the inverse simulation is the thermal conductivity of the sample and of the chosen boundary element. Because of the assumption of a constant thermal conductivity for the boundary element in the iTOUGH2 simulation, the temperature increase at the start is underestimated. From Figure 12 one can extrapolate that for the temperature increase phase the heat loss occurs faster than modelled with iTOUGH2. For the simulation of the heating of the sample a time-dependent thermal conductivity as a function of heat loss would therefore be a better choice for the boundary element. The change of thermal properties of the boundary in dependence of temperature increase was well represented in RF/RM due to the choice in heat sinks.

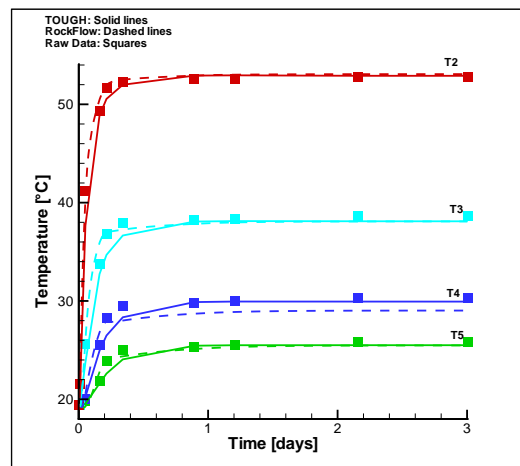


Figure 12: Comparison of results for the thermal experiments

Drainage Experiment

Figure 13 shows the comparison between the simulations made with iTOUGH2 and RF/RM. For simulations made with iTOUGH2, the capillary pressure - saturation relationship and relative permeability - saturation relationship were given according to either the van Genuchten model or the Brooks Corey model. The flow out of the sample into the burette was the calculated parameter. In simulations with RF/RM, only the capillary pressure - saturation relationship was given according to the van Genuchten method. For the relative permeability - saturation relationship a model described in Olivella and Gens [2000] was used. The flow out of the sample into the burette was set as a time dependent boundary condition for the model. Gas phase saturation was the calculated parameter.

One can see in Figure 13 that the calculations of the gas phase distribution made with RF/RM lie in between the calculations performed with iTOUGH2. The relative permeability - saturation relationship used in RF/RM enhances vapour flow. However, as the flow into the burette was used as a boundary condition, the model was prevented from predicting a gas phase breakthrough. The Brooks Corey model

did not predict such a breakthrough either. The van Genuchten model used in iTOUGH2 predicted the breakthrough, which, however was not observed in the experiment.

The gradient of the curve that describes the gas penetration using the the Olivella and Gens [2000] relative permeability - saturation model corresponds somewhat to the gradient of Brooks Corey model curve. The gas penetration using the method by Olivella and Gens [2000] also has a clearly defined plume, but not with the fast increase in gas saturation to 40% predicted by the Books Corey model, but only to 25%.

Using the Olivella and Gens [2000] relative permeability - saturation model results in a gas penetration that lies between the diffusive gas distribution achieved by the van Genuchten model and the piston like displacement resulting from the Brooks Corey model.

Because the water flow into the burette and the pressure in the burette were fixed as time-dependent boundary conditions in the RF/RM simulation, the RF/RM calculated saturation may best represents the measured system behavior.

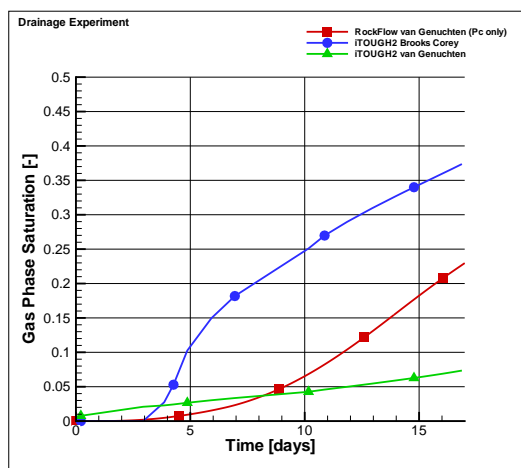


Figure 13: Comparison of results for the drainage experiments

6 Conclusions

To study thermal-hydraulic processes that occur in permanent repositories for the disposal of nuclear waste it is necessary to have numerical codes that are able to calculate the system behavior. The simulated results should be independent of the numerical method used. Therefore, two laboratory experiments were modelled with two different numerical simulation codes, namely iTOUGH2 and RF/RM. While iTOUGH2 is an inverse model, using the finite difference method, RF/RM is a forward model using the finite element method. The approaches to modelling the experiments were thus different. In iTOUGH2, the two experiments were modelled as one, continuous experiment. We could demonstrate that the two codes provided comparable results for the numerical simulation of the laboratory experiment.

For the long term study of disposal sites the simulation of temperature increases is crucial, as a higher temperature influences capillary pressure and the hydraulic properties. For this part of the long term study the choice of heat sinks would be more appropriate than the choice of a boundary element. Both models however concur on the stationary temperature results. The calculation of the extension of the gas phase is important for the simulation of the drainage of a geotechnical barrier in the case of a damage of the radioactive waste container. To model the behavior of clay minerals with swelling properties in the buffer and backfill correctly with respect to gas phase propagation, the assumption of the relative

permeability - saturation after Olivella and Gens (Olivella and Gens [2000]) seems the most appropriate. The choice of the relative permeability-saturation function is more sensitive for predicting the gas phase distribution than the numerical method employed. Measurements within the sample column would have been useful to decide which model estimates the system behavior of swelling clay best.

References

- R. N. Brooks and A. T. Corey. Hydraulic properties of porous media. *Hydrology Papers, Colorado State University, Fort Collins*, 3, 1964.
- M. Chijimatsu, T. Fujita, A. Kobayashi, and M. Nakano. Experiment and validation of numerical simulation of coupled thermal, hydraulic and mechanical behaviour in the engineered buffer materials. *Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech.*, 24:403–424, 2000.
- I. Engelhardt, S. Finsterle, and C. Hofstee. Experimental and numerical investigation of flow phenomena in non-isothermal, variably saturated bentonite/crushed rock mixtures. *Vadose Zone Journal*, 2, 2003. available at <http://www.vadosezonejournal.org>.
- S. Finsterle. iTOUGH2 user’s guide. Report LBNL-40040, Lawrence Berkeley National Laboratory, CA, 1999.
- O. Kolditz. *Computational Methods in Environmental Fluid Mechanics*. Springer, 2002.
- O. Kolditz, S. Bauer, M. Beinhorn, J. de Jonge, T. Kalbacher, C. McDermott, W. Wang, M. Xie, R. Kaiser, and M. Kohlmeier. ROCKFLOW - Theory and users manual, release 3.9. Groundwater modeling group, Center for Applied Geosciences, University of Tuebingen, Institute of Fluid Mechanics, University of Hannover, 2003.
- O. Kolditz and J. De Jonge. Non-isothermal two-phase flow in porous media. *Prepared for Computational Mechanics*, 2003.
- K. Müller-Vonmoos and G. Kahr. Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonit MX80 und Montigel. NTB 83-12, NAGRA, Wettingen, Switzerland, 1983. In German with English Abstract.
- Y. Ohnisi, H. Shibata, and A. Kobayasi. Development of finite element code for the analysis of coupled thermo-hydro-mechanical behaviours of saturated - unsaturated medium. Proceedings of the International Symposium on Coupled Processes Affecting the Performance of a Nuclear Waste Repository, 1985. 263-268.
- S. Olivella and A. Gens. Vapour transport in low permeability unsaturated soil with capillary effects. *Transport in Porous Media*, 40:219–241, 2000.
- S. Olivella, A. Gens, J. Carrera, and E. E. Alonso. Numerical formulation for a simulator (CODE_BRIGTH) for the coupled analysis of saline media. *Engng Comput.*, 13(7):87–112, 1996.
- K. Pruess. Tough user’s guide. Report LBNL-20700, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA, 1987.
- K. Pruess, C. Oldenburg, and G. Modidis. Tough2 user’s guide, version 2.0. Report LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA, 1999.
- C. Thorenz. *Model adaptive simulation of multiphase and density driven flow in fractured and porous media*. PhD thesis, Universität Hannover, 2001.
- M. T. Van Genuchten. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 44:892–898, 1980.

Bildungsgang

28.04.1971	Geburtsdatum
05/1990	Allgemeine Hochschulreife am Ratsgymnasium in Hannover
09/1990 - 06/1992	Berufsausbildung zur Bauzeichnerin (Hochbau) bei der Bauplanungsgesellschaft mbH in Hannover
10/1992 - 04/1993	Studium der Geologie an der Universität Braunschweig
04/1993 - 10/1997	Studium der Geologie an der Universität Hannover
10/1997 - 03/1998	Diplomarbeit am Institut für Umweltgeologie der Universität Halle-Wittenberg
03/1998 – 03/1999	Studium der Geologie an der Universität Hannover
03/1999	Diplomprüfung in Geologie an der Universität mit der Gesamtnote „sehr gut“
08/1999-06/2003	Wissenschaftliche Mitarbeiterin bei der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover
04/2000	Auszeichnung der Diplomarbeit mit dem ersten Platz des Forschungspreises über 5000€ durch die Stiftung Steine-Erden-Bergbau und Umwelt in Dresden
07/2000 - 12/2001	Externe Doktorandin am Institut für Strömungsmechanik der Universität Hannover: Beginn und Konzeption der Dissertation unter Anleitung von Prof. Dr.-Ing. O. Kolditz
01/2002 - 04/2003	Externe Doktorandin am Zentrum für Angewandte Geowissenschaften der Universität Tübingen: Fertigstellung der Dissertation unter Anleitung von Prof. Dr.-Ing. O. Kolditz
Seit 06/2003	Mitarbeiterin bei der Firma Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz