

Experimentelle
und theoretische
Untersuchung
physikalisch-chemischer
Vorgänge beim
Laugenzutritt in
Einlagerungsstrecken

Experimentelle
und theoretische
Untersuchung
physikalisch-chemischer
Vorgänge beim
Laugenzutritt in
Einlagerungsstrecken

Dirk-Alexander Becker
Nele-Margret Bremer
Klaus-Jürgen Richter
Lutz Schneider
Richard Storck

Januar 2000

Anmerkung:

Die diesem Bericht zugrunde-
liegenden Arbeiten wurden mit
Mitteln des Bundesministeriums
für Wirtschaft und Technologie
(BMWi) unter den Förderkenn-
zeichen 02 E 8956 und 02 E 8966
gefördert. Die Arbeiten wurden von
der Gesellschaft für Anlagen- und
Reaktorsicherheit (GRS) mbH
sowie bei der Stoller Ingenieur-
technik GmbH durchgeführt.
Die Verantwortung für den Inhalt
dieser Veröffentlichung liegt allein
bei den Autoren.

**GRS - 164
SIG - 02/99
ISBN 3-931995-29-1**

Deskriptoren:

Chemische Reaktion, Eigenschaft, Endlagerung, Langzeitsicherheit, Meßauswertung, Physikalische Eigenschaft, Radioaktiver Abfall, Salz

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|---------------------------------|---|-----------|
| Inhaltsverzeichnis | | I |
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Prozeßabläufe beim Laugenzutritt | 3 |
| 2.1 | Anfangszustand | 4 |
| 2.2 | Hohe Zulauftrate, dichter Verschluß (ohne Luftkompression) | 5 |
| 2.3 | Hohe Zulauftrate, dichter Verschluß (mit Luftkompression) | 6 |
| 2.4 | Geringe Zulauftrate, dichter Verschluß | 7 |
| 2.5 | Hohe Zulauftrate, durchlässiger Verschluß | 8 |
| 2.6 | Geringe Zulauftrate, durchlässiger Verschluß | 10 |
| 2.7 | Zusammenfassung | 11 |
| 3 | Einzeleffekte beim Laugenzutritt | 13 |
| 3.1 | Wärmeleitung | 13 |
| 3.2 | Advektion und Konvektion | 14 |
| 3.3 | Verdampfung, Verdunstung und Kondensation | 14 |
| 3.4 | Salzausfällung und -auflösung | 15 |
| 3.5 | Konvergenz | 15 |
| 3.6 | Konzeptionelles Gesamtmodell | 16 |
| 4 | Theoretische Abschätzungen | 19 |
| 4.1 | Temperaturfeld | 19 |
| 4.1.1 | Temperaturfeld einer kugelsymmetrischen Anordnung mit abgestufter Wärmeleitfähigkeit | 19 |
| 4.1.2 | Temperaturfeld einer zylindersymmetrischen Anordnung | 21 |
| 4.2 | Zeitentwicklung des Temperaturfeldes | 22 |
| 4.3 | Zulauftrate | 24 |
| 5 | Experimentelle und modelltheoretische Darstellung von Einzeleffekten | 27 |
| 5.1 | Kristallisation beim Sieden im laugegefüllten Porenraum | 27 |
| 5.1.1 | Motivation und Zielsetzung | 27 |

| | | |
|-------|--|----|
| 5.1.2 | Experimentelle Randbedingungen | 29 |
| 5.1.3 | Versuchsaufbau | 29 |
| 5.1.4 | Versuchsdurchführung und Ablauf | 29 |
| 5.1.5 | Ergebnisse | 31 |
| 5.1.6 | Schlußfolgerung | 32 |
| 5.2 | Umlösungen beim Laugenzufluß in den luftgefüllten Porenraum | 34 |
| 5.2.1 | Motivation und Zielsetzung | 34 |
| 5.2.2 | Experimentelle Randbedingungen | 35 |
| 5.2.3 | Versuchsaufbau | 36 |
| 5.2.4 | Versuchsdurchführung und -ablauf | 37 |
| 5.2.5 | Modellierung | 37 |
| 5.2.6 | Ergebnisse | 38 |
| 5.2.7 | Schlußfolgerungen | 39 |
| 5.3 | Umlösungen beim Zweiphasenfluß im teilgefüllten Porenraum | 42 |
| 5.3.1 | Motivation und Zielsetzung | 42 |
| 5.3.2 | Experimentelle Randbedingungen | 43 |
| 5.3.3 | Versuchsaufbau | 44 |
| 5.3.4 | Versuchsdurchführung und -ablauf | 44 |
| 5.3.5 | Modellierung | 46 |
| 5.3.6 | Ergebnisse | 47 |
| 5.3.7 | Schlußfolgerungen | 53 |
| 5.4 | Umlösungen bei Konvektion im laugegefüllten Porenraum | 54 |
| 5.4.1 | Motivation und Zielsetzung | 54 |
| 5.4.2 | Experimentelle Randbedingungen | 55 |
| 5.4.3 | Versuchsaufbau | 56 |
| 5.4.4 | Versuchsdurchführung und -ablauf | 56 |
| 5.4.5 | Modellierung | 57 |
| 5.4.6 | Ergebnisse | 59 |
| 5.4.7 | Übertragung des Modells auf die Geometrie einer realen Strecke | 63 |
| 5.5 | Umlösungen beim Laugenzufluß in eine große Säule | 65 |
| 5.5.1 | Motivation und Zielsetzung | 65 |
| 5.5.2 | Experimentelle Randbedingungen | 66 |
| 5.5.3 | Versuchsaufbau | 68 |
| 5.5.4 | Versuchsdurchführung und -ablauf | 70 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 5.5.5 | Ergebnisse | 70 |
| 5.6 | Umlösungen und Transport von Fremdmineralien im laugegefüllten Porenraum bei hohen Temperaturen | 72 |
| 5.6.1 | Motivation und Zielsetzung | 72 |
| 5.6.2 | Experimentelle Randbedingungen | 74 |
| 5.6.3 | Versuchsaufbau | 74 |
| 5.6.4 | Versuchsdurchführung | 76 |
| 5.6.5 | Ergebnisse | 76 |
| 5.6.6 | Schlußfolgerungen | 78 |
| 5.7 | Vergleich der Porositäten und Permeabilitäten | 79 |
| 6 | Schlußfolgerungen | 81 |
| 7 | Anhang: Physikalische und chemische Daten | 83 |
| 7.1 | Laugendichte und Löslichkeit | 83 |
| 7.2 | Wärmeleitfähigkeit | 85 |
| 7.2.1 | Steinsalz und trockener Salzgrus | 85 |
| 7.2.2 | Feuchter Salzgrus | 87 |
| 7.2.3 | Lauge | 87 |
| 7.2.4 | Dampf | 88 |
| 7.3 | Viskosität | 89 |
| 7.3.1 | Wasserdampf | 89 |
| 7.3.2 | Lauge | 89 |
| 7.4 | Dampfdruck | 91 |
| 7.5 | Wärmekapazität | 92 |
| 7.5.1 | Steinsalz | 92 |
| 7.5.2 | Dampf | 92 |
| 7.5.3 | Lauge | 93 |
| 7.6 | Permeabilität | 93 |
| | Literaturverzeichnis | 95 |
| | Abbildungsverzeichnis | 99 |
| | Tabellenverzeichnis | 103 |

1 Einleitung

Eine Option für die Endlagerung wärmeerzeugender radioaktiver Abfälle ist die Einbringung von Pollux-Behältern in Einlagerungsstrecken im Steinsalz. Die verbliebenen Hohlräume zwischen den Behältern werden mit Salzgrus versetzt. Bei einem derartigen System wird eine schnelle Versatzkompaktion, insbesondere in den heißen Bereichen, aufgrund der Gebirgskonvergenz erwartet. Dadurch soll es zum dichten Einschluß der Behälter und somit zur sicheren und dauerhaften Abkapselung von der Biosphäre kommen.

Experimentelle Untersuchungen [13] und Modellrechnungen [6] zeigen, daß - bei ungestörter Entwicklung - dieser Zustand innerhalb von mehreren Jahrzehnten nach Ende der Betriebsphase erreicht wird. Für eine belastbare Aussage über die Langzeitsicherheit eines Endlagers müssen jedoch auch Störfallszenarien betrachtet werden. So sind insbesondere die Konsequenzen eines Laugenzutritts in die Einlagerungsbereiche während der frühen Nachbetriebsphase zu untersuchen.

In zahlreichen Modellrechnungen mit dem Programmpaket EMOS [5] wurden derartige Szenarien ausführlich betrachtet [6]. Dabei wurde stets davon ausgegangen, daß die Eigenschaften des Versatzes primär durch die konvergenzbedingte Kompaktion verändert werden, andere Effekte wurden nicht betrachtet. In der Realität ist aber davon auszugehen, daß Veränderungen der Versatzeigenschaften auch durch die zutretende Lauge hervorgerufen werden. So kann es beim Laugenzutritt in heiße Bereiche unter bestimmten Voraussetzungen zu Verdunstungs-/Verdampfungsvorgängen und damit verbunden zur Auskristallisation von Salz kommen.

Auf diese Weise könnte sich eine Art Schutzschicht in der Nähe der Behälter bilden, die die Laugenbewegung behindert. Andererseits kann durch Kondensation Salz aufgelöst werden, so daß Bereiche erhöhter Permeabilität entstehen. Derartige Effekte wurden bislang aber als wenig relevant betrachtet und ihre Vernachlässigung in Langzeitsicherheitsanalysen als konservativ angesehen. Eine nähere Untersuchung der Vorgänge beim Laugenzufluß erscheint jedoch sinnvoll, um die Konservativitätsannahme zu untermauern oder ggf. durch eine verfeinerte Modellierung zum Abbau von Konservativitäten beitragen zu können.

Im einzelnen sind dabei folgende Fragestellungen von Interesse:

- Werden die Temperaturverhältnisse im Nahbereich der Einlagerungsstrecke durch den Laugenzutritt nennenswert verändert?
- Kommt es zu Konvektionsvorgängen und welche Konsequenzen ergeben sich daraus?
- Welche Umlösevorgänge spielen eine Rolle?
- Bildet sich eine Schutzschicht am Behälter durch Ausfällung von Salz?
- Wie beständig ist gegebenenfalls die entstandene Schutzschicht?
- Bei welchen Zulaufraten sind welche Effekte zu erwarten?

Antworten auf die genannten Fragen erfordern ein tiefgehendes Verständnis des Zusammenspiels verschiedener physikalischer und chemischer Effekte wie Wärmeleitung, Sickerströmung, Verdunstung/Verdampfung, Kondensation, Konvektion, Salzauflösung und Kristallisation. Um dieses Verständnis zu erlangen, erscheint es sinnvoll, Einzeleffekte bzw. eng begrenzte Effektbereiche möglichst isoliert experimentell darzustellen und mit Hilfe theoretischer Modelle nachzurechnen. Damit können einerseits diese Modelle validiert werden, andererseits ist von den Ergebnissen der Rechnungen Nutzen bei der Interpretation der Experimente zu erwarten. Auf diesem zweigleisigen Ansatz beruhte das Projekt, das dem vorliegenden Bericht zugrunde liegt.

Zielsetzung war es, die Vorgänge beim Laugenzutritt in wärmebeeinflusste Einlagerungsbereiche anhand einer Reihe von speziell konzipierten Experimenten sowie darauf abgestimmten Modellrechnungen zu verstehen. Aus den so gewonnenen Erkenntnissen waren Aussagen über die in der realen Strecke zu erwartenden Prozeßabläufe und die daraus resultierenden Konsequenzen abzuleiten.

Beim Ziehen von derartigen Schlußfolgerungen war jedoch mit Vorsicht vorzugehen. Zum einen können die Ergebnisse von Kurzzeitexperimenten grundsätzlich nur in beschränktem Umfang auf die Langzeitabläufe in der Realität übertragen werden. Zum anderen wurden bei den Modellrechnungen notwendigerweise stark vereinfachte Modellannahmen zugrunde gelegt, die den komplexen, durch zahlreiche Wechselwirkungsmechanismen gekoppelten realen Systemen nur sehr eingeschränkt gerecht werden können.

2 Prozeßabläufe beim Laugenzutritt

Für den Laugenzutritt in eine Einlagerungsstrecke sind unterschiedliche Szenarien vorstellbar. So kann die Lauge aus dem Deckgebirge kommen, wobei nach bergmännischer Erfahrung Zulaufraten von einigen Kubikmetern pro Tag nicht auszuschließen sind. Andererseits sind konvergenzgetriebene Zuflüsse aus Laugeneinschlüssen im Steinsalz von typischerweise einigen hundert bis tausend Kubikmetern Inhalt möglich. In solchen Fällen beträgt die Zulauftrate (bei einer Konvergenzrate von einigen Prozent pro Jahr) bis zu ca. 0,1 Kubikmeter pro Tag. Abhängig von der Zulauftrate und anderen Nebenbedingungen sind unterschiedliche Prozeßabläufe zu erwarten. Im folgenden wird für fünf verschiedene vereinfachte Szenarien dargelegt, welche physikalisch-chemischen Vorgänge erwartet werden:

- Hohe Zulauftrate, dichter Verschuß (Luftkompression vernachlässigt),
- hohe Zulauftrate, dichter Verschuß (mit Berücksichtigung der Luftkompression),
- geringe Zulauftrate, dichter Verschuß,
- hohe Zulauftrate, durchlässiger Verschuß,
- geringe Zulauftrate, durchlässiger Verschuß.

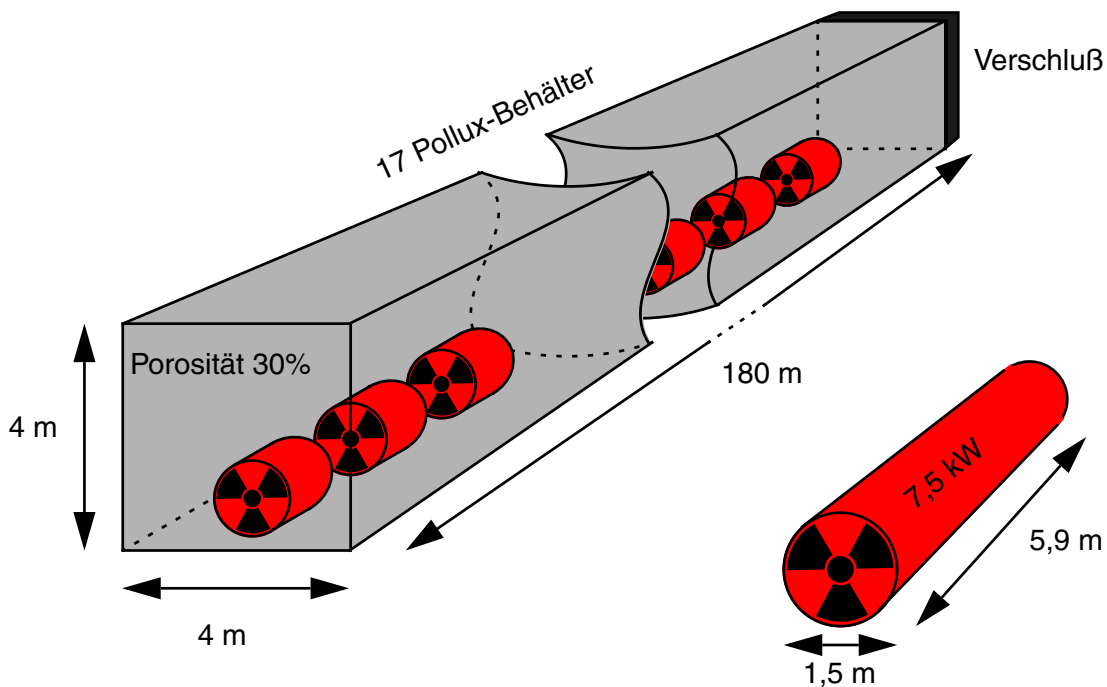


Abb. 2.1: Muster für eine Einlagerungsstrecke

Dabei wird - in Anlehnung an SAM [6] - jeweils eine Einlagerungsstrecke gemäß Abb. 2.1 mit einem Porenvolumen von 800 m^3 angenommen, in der 17 Polluxbehälter mit einer thermischen Leistung von jeweils $7,5 \text{ kW}^1$ eingelagert sind. Diese wird als isolierte Strecke betrachtet, d. h. Wechselwirkungen (insbesondere thermischer Art) mit anderen Einlagerungsstrecken werden nicht berücksichtigt. Weiterhin wird die Gebirgskonvergenz außer acht gelassen, obwohl diese, gerade angesichts der hohen Temperaturen in den Einlagerungsbereichen, tatsächlich bedeutsam sein wird, zumal bei Anwesenheit von Feuchtigkeit deutlich erhöhte Konvergenzraten auftreten. Man kann allgemein feststellen, daß die Konvergenz abdichtende Schichten weiter verdichtet und daher auf die beschriebenen Vorgänge beschleunigenden Einfluß hat.

Die betrachteten Szenarien sind als idealisierte Grenzfälle zu sehen und dienen der Verständnisbildung. In der Realität sind die Prozeßabläufe sicherlich komplizierter.

2.1 Anfangszustand

Vor Zutrittsbeginn befindet sich das System im Gleichgewichtszustand (Abb. 2.2). Aufgrund der Wärmeleitung im trockenen Salz stellt sich an den Behältern eine Oberflächentemperatur von ca. 190 °C ein, die Stoßtemperatur wird zu 100 °C angenommen. Diese Werte sind durch eine theoretische Abschätzung (Kap.4.1) begründet und durch Ergebnisse des TSS-Versuches [13] bestätigt. Ein Polluxbehälter besteht aus ca. 60 t Eisen mit

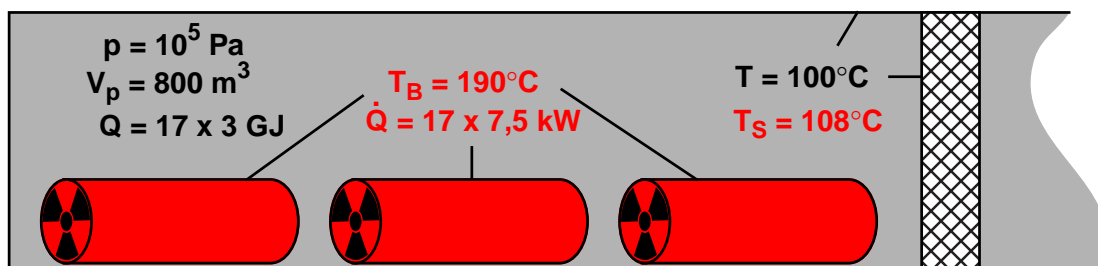


Abb. 2.2: Gleichgewichtszustand der Einlagerungsstrecke vor Zuflußbeginn

einer Wärmekapazität von $460 \text{ J}/(\text{kg K})$. Daraus errechnet sich die Gesamtwärme, die

¹ Dabei wurde bereits eine gewisse Zwischenlagerzeit berücksichtigt. Unmittelbar nach Befüllung kann ein Polluxbehälter bis zu 9 kW entwickeln.

zur Abkühlung des Behälters auf Siedetemperatur (108 °C für NaCl-Lauge) abgeführt werden muß, zu 2 GJ. Weiterhin ist eine gewisse Wärmemenge im Versatz gespeichert. Diese wird mit der Wärmekapazität des Steinsalzes von 860 J/(kg K) zu knapp 1 GJ je Behälter (bezogen auf die Siedetemperatur) abgeschätzt. Die Verdampfungsenthalpie von NaCl-Lauge beträgt $2,36 \cdot 10^6$ J/kg. Daraus folgt, daß zur Verdampfung von 1 m³ Lauge etwa 3 GJ erforderlich sind. Somit kann die gespeicherte Wärme bei Laugenzutritt insgesamt ca. 17 m³ Lauge verdampfen, dadurch fallen ca. 5600 kg Salz aus (1 m³ gesättigte NaCl-Lauge bei 100°C enthält 328,5 kg Salz, s. Datensammlung Kap. 7.1).

2.2 Hohe Zulauftrate, dichter Verschuß (ohne Luftkompression)

Bei diesem Szenario wird angenommen, der Streckenverschluß sei absolut dicht. Die in diesem Fall zu erwartende Kompression der Restluft durch den Anstieg des Laugenspiegels soll jedoch im ersten Schritt vernachlässigt werden. Im Porenraum der Strecke herrscht also ein Luft(partial)druck von $1,0 \cdot 10^5$ Pa. Die Zulauftrate betrage konstant 5 m³/Tag, damit liegt sie deutlich über der Laugenmenge von 3,9 m³/Tag, die verdampft werden könnte, wenn die gesamte Wärmeleistung der 17 Behälter hierfür zur Verfügung stünde.

Zunächst verdampfen die oben abgeschätzten 17 m³ Lauge unter Zurücklassung von 5,6 t Salz. Durch die Verdampfung steigt der Druck in der Strecke an, und zwar soweit, bis der Partialdruck des Dampfes den Dampfdruck der Stoßtemperatur, ca. $0,7 \cdot 10^5$ Pa (s. Dampfdrucktabelle Kap. 7.4), erreicht hat. Aufgrund von Kondensation am Verschuß und an den Wänden bleibt dieser Wert bestehen, der Gesamtdruck stellt sich also auf $1,7 \cdot 10^5$ Pa ein. Damit steigt die Siedetemperatur der Lauge auf 125 °C, so daß die Oberflächentemperatur diesen Wert annimmt. Aufgrund der Feuchtigkeit erhöht sich die Wärmeleitfähigkeit des Versatzes durch Verbesserung des Wärmeübergangs zwischen den Körnern. Die im Rahmen des Projekts durchgeführten Wärmeleitfähigkeitsmessungen (Meßbericht [B-2] auf der Begleit-CD) ergaben für feuchten Salzgrus Werte in der Größenordnung von 2 W/(m K). Daher sei angenommen, die Wärmeleitfähigkeit des Salzgrus steige von 0,75 auf $2,0$ W/(m K)². Zugleich sinkt die Temperaturdifferenz ΔT zwi-

² zum Vergleich: die Wärmeleitfähigkeit von kompaktem Steinsalz liegt bei 5,0, diejenige von trockenem, lockerem Salzgrus ebenso wie die von Lauge bei 0,5 W/(m K)

schen Behälteroberfläche und Streckenwand von 90 auf 25 K. Das Produkt $\lambda\Delta T$ ist ein Maß für den konduktiven Wärmestrom, welcher somit auf $(2,0 \cdot 25)/(0,75 \cdot 90)$ oder ca. 75 % abnimmt. Der Rest der Wärmeleistung steht für die Verdampfung zur Verfügung

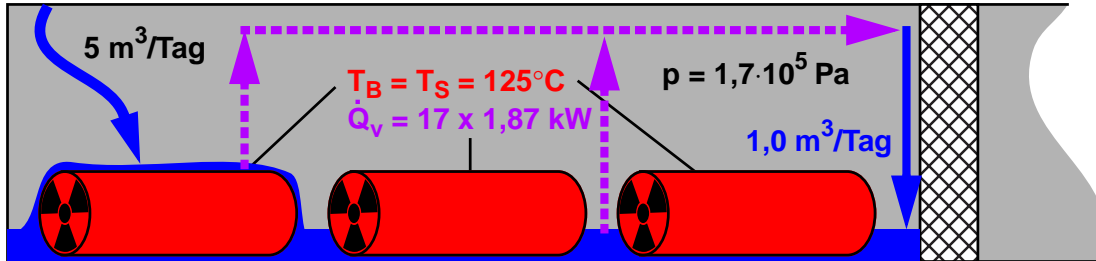


Abb. 2.3: Verdampfungsphase bei hoher Zulauftrate und dichtem Verschluss

(Abb. 2.3). Das sind 2,75 GJ pro Tag, was eine tägliche Verdampfung von knapp 1 m^3 Lauge bedeutet, welche jedoch am Stoß vollständig kondensiert. Bis zur vollständigen Streckenflutung nach 160 Tagen fallen dann noch einmal ca. 50 t, insgesamt also etwa 56 t oder 25 m^3 Salz aus. Das bedeutet (bei 30 % Porosität) die Auffüllung der Versatzporen an der Behälteroberfläche ($17 \times 32 \text{ m}^2$) über eine Schichtdicke von ungefähr 15 cm.

2.3 Hohe Zulauftrate, dichter Verschluss (mit Luftkompression)

Durch die Zunahme der Laugenmenge in der Strecke wird, sofern der Verschluss absolut dicht ist, die Porenluft komprimiert. Dadurch kommt es zu einem Anstieg des Luftdrucks und somit auch der Siedetemperatur. Wenn diese ca. 135°C beträgt, d.h. bei einem Gesamtdruck von etwa $2,4 \cdot 10^5 \text{ Pa}$, kommt die Verdampfung komplett zum Stillstand, weil dann die gesamte von den Behältern produzierte Wärme konduktiv abgeführt wird (diese Abschätzung beruht wiederum auf der Annahme, daß die Wärmeleitfähigkeit des feuchten Salzes $2,0 \text{ W}/(\text{m K})$ beträgt und das Produkt $\lambda\Delta T$ bei $67,5 \text{ W}/\text{m}$ bleibt). Dieser Zustand wird bei ca. 40%-iger Streckenflutung, im Beispiel also nach etwa 65 Tagen erreicht (Abb. 2.4). Die für die Verdampfung verfügbare Wärmeleistung nimmt während dieser Phase stetig ab. Somit sinkt auch die Laugenverdampfung gleichmäßig von $1,0 \text{ m}^3/\text{Tag}$ auf null, so daß in 65 Tagen $32,5 \text{ m}^3$ Lauge verdampfen und gut 10 t Salz ausfallen. Die

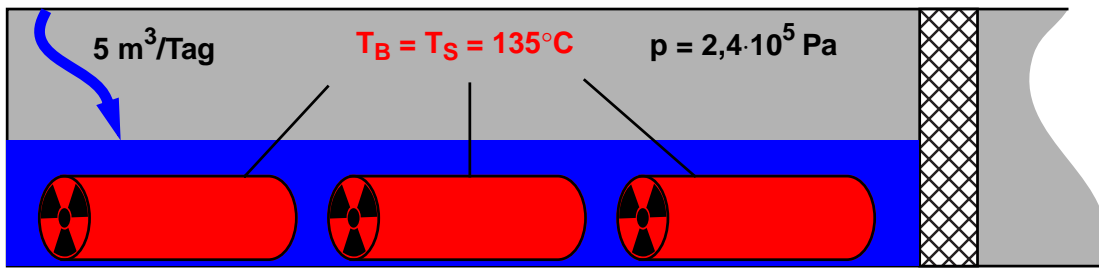


Abb. 2.4: Ende der Verdampfungsphase aufgrund des Druckanstiegs

Salzschicht an der Behälteroberfläche wird dann eine Stärke von ungefähr 3 cm haben. Nach Ende der Verdampfungsphase erfolgt weiterer Laugenzufluß bis zur ca. 90%-igen Streckenflutung, denn dann ist der Luftdruck gleich dem Gebirgsdruck.

2.4 Geringe Zulauftrate, dichter Verschuß

Bei einer geringen Zulauftrate, z. B. aus einem begrenzten Laugeneinschluß, sind z. T. deutlich andere Effekte zu erwarten. Es sei eine Zulauftrate von $0,1 \text{ m}^3/\text{Tag}$ angenommen, dieser Wert ist realistisch und liegt deutlich unter der Menge, die durch die verfügbare Wärmeleistung verdampft werden könnte. Die Zeitdauer bis zur Streckenflutung beträgt dann - bei Vernachlässigung der Konvergenz - 22 Jahre. Bei Zuflußbeginn erfolgt die vollständige Verdampfung der zutretenden Lauge ohne starke Abkühlung, denn für die Verdampfung der geringen Menge wird mit 3,2 kW nur ein sehr kleiner Teil der Gesamtwärmeleistung verbraucht. Die Verdampfung erfolgt an einer Siedelinie im Versatz in einer gewissen Entfernung von der Behälteroberfläche, dort bildet sich eine Kruste von ausgefälltem Salz. Am Streckenstoß und an den Wänden bildet sich Kondensat, dieses läuft unter Salzauflösung zurück in die heißeren Bereiche und kann erneut verdampfen. Da kein Dampf entweichen kann und der Dampfdruck durch die Temperatur an der kühlest Stelle festgelegt ist, sammelt sich jedoch flüssige Lauge in der Strecke an (Abb. 2.5).

Die Siedelinie verschiebt sich mit der Zeit auf die Behälteroberfläche zu. Sofern die Salzschicht hinreichend durchlässig bleibt, kommt es früher oder später zum Kontakt mit den Behältern. Sobald sich Verhältnisse eingestellt haben, die denen aus dem zweiten Szenario vergleichbar sind, wird anfangs insgesamt bis zu 1 m^3 Lauge pro Tag verdampft. Mit zunehmender Gesamtlaugenmenge in der Strecke steigt sowohl der Druck der Porenluft als auch die Wärmeleitfähigkeit des Versatzes an; entsprechend nimmt die Ver-

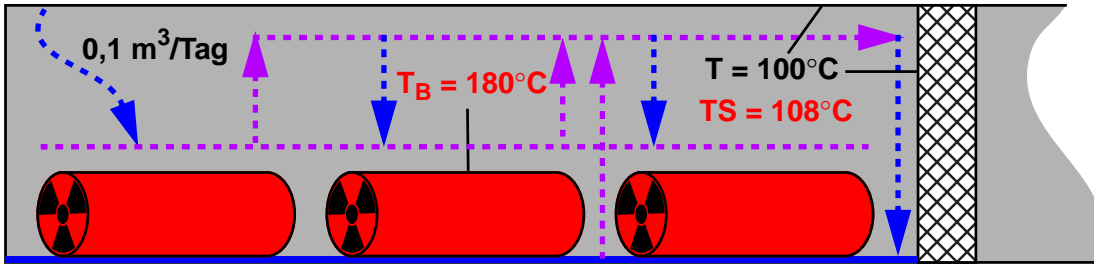


Abb. 2.5: Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate und dichtem Verschluss

dampfungsleistung ab. Bei ca. 40%-iger Streckenflutung, d.h. nach etwa 10 Jahren, kommt der Verdampfungsprozeß zum Erliegen. Bis dahin sind ca. 600 t Salz ausgefallen, das entspricht einer Porenraumauffüllung von 270 m^3 oder ca. 1 m Schichtdicke.

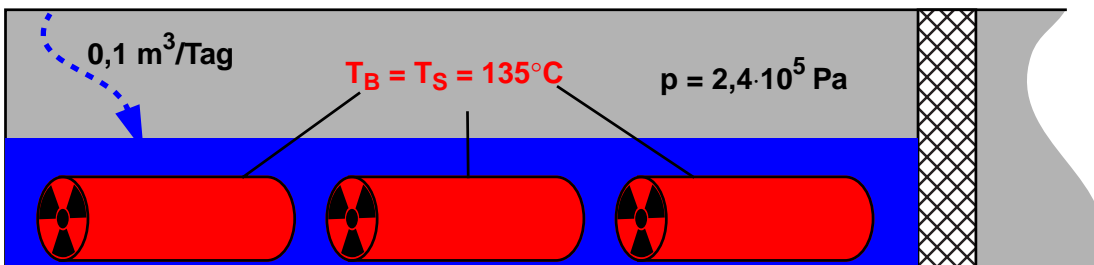


Abb. 2.6: Ende der Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate

Da der langsame Laugenzutritt an einer bestimmten Stelle in der Strecke erfolgt, ist mit lokalen Störungen oder Inhomogenitäten des Prozeßablaufes zu rechnen. Erfolgt der Zufluss an einer Stelle, an der die Temperatur deutlich oberhalb der Siedetemperatur liegt, so verdampft die zutretende Lauge sofort und es kommt zu Salzabscheidung unmittelbar an der Zulaufstelle. Der Dampf kondensiert dann in kühleren Bereichen und läuft als Flüssigkeit zurück, so daß sich auch in diesem Fall eine Siedelinie ausbildet.

2.5 Hohe Zulauftrate, durchlässiger Verschluss

Es sei nun angenommen, der Verschluss sei so stark geschädigt, daß er der Laugen- und Dampfausbreitung keinen wesentlich höheren Widerstand entgegengesetzt als der normale Versatz. Wie dieser wird er im folgenden vernachlässigt, so daß sich der verfügbare Hohlraum um den Porenraum der Richtstrecke, welcher zu 2000 m^3 angenommen wird, erhöht. Als Zulauftrate wird wieder ein Wert von $5 \text{ m}^3/\text{Tag}$ zugrunde gelegt. Der Anfangszu-

stand entspricht - abgesehen vom dort nicht vorhandenen Verschluß - demjenigen aus Kapitel 2.1. Bei Zuflußbeginn erfolgt zunächst die Abkühlung bis zur Siedetemperatur von 108°C. Dabei werden wieder ca. 3 GJ gespeicherter Wärme je Behälter verbraucht. Insgesamt verdampfen dadurch 17 m³ Lauge. Zu einer wesentlichen Druckerhöhung kommt es anfangs weder durch Luftkompression noch durch Verdampfung, weil über den Verschluß ein Druckausgleich mit der Richtstrecke stattfindet. Somit bleibt auch die Siedetemperatur bei 108 °C. Unter der Annahme, daß die Wärmeleitfähigkeit unter dem Einfluß der Feuchtigkeit wieder von 0,75 auf 2,0 W/(m K) steigt, ergibt sich ein konduktiver Anteil am Wärmetransport von 25 %, der Rest steht für die Verdampfung von etwa 2,9 m³ Lauge pro Tag zur Verfügung. Die Lauge sammelt sich in der Einlagerungsstrecke und fließt über den Verschluß auch in die Richtstrecke ab.

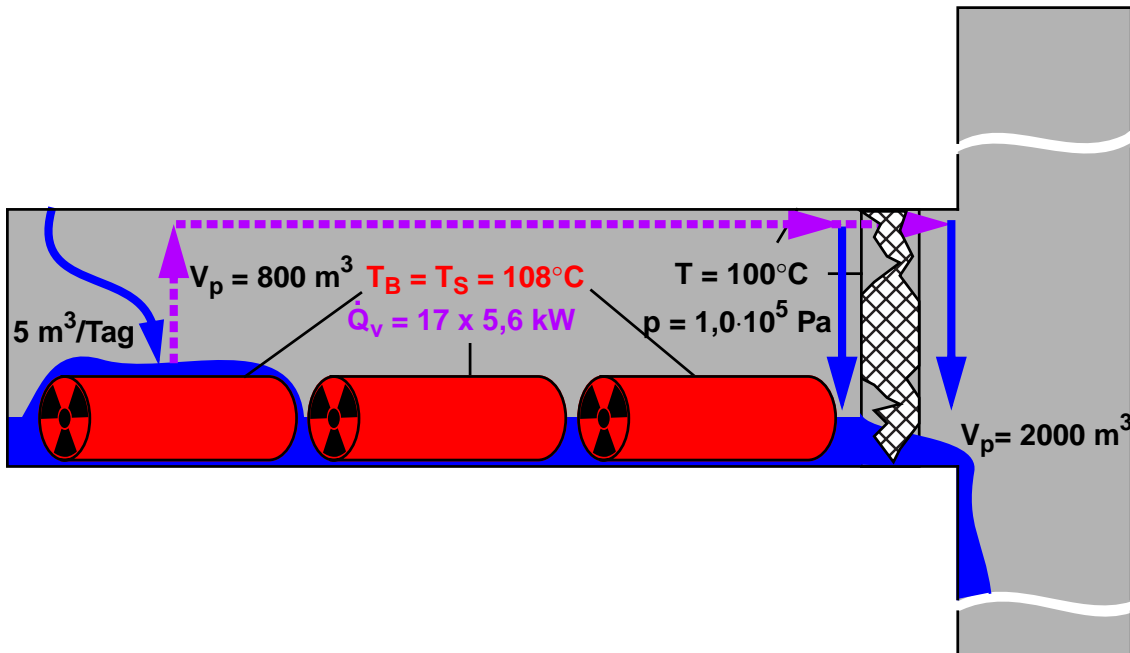


Abb. 2.7: Verdampfungsphase bei durchlässigem Verschluß. Die vertikal eingezeichnete Richtstrecke verläuft in der Realität horizontal

Der Dampf kondensiert zum Teil in der Einlagerungs- und zum Teil in der Richtstrecke. Die Flutung des Gesamtsystems nimmt ca. 560 Tage in Anspruch, während dieser Zeit steigen Druck und Behältertemperatur kontinuierlich an und die Verdampfungsleistung nimmt ab. Die Verdampfungsphase endet wiederum bei etwa 40%-iger Flutung, also nach 220 Tagen. Dann ist von einer Gesamtverdampfung in der Größenordnung von 320 m³ auszugehen, das entspricht einer ausgefallten Salzmenge von 120 t bzw. einer Schichtdicke von etwa 30 cm.

2.6 Geringe Zulauftrate, durchlässiger Verschluss

Bereits in Kapitel 2.4 wurde deutlich, daß bei einer geringen Zulauftrate mit erheblich mehr Salzausfällung zu rechnen ist als bei massivem Laugenzutritt. Dieser Effekt tritt noch stärker hervor, wenn der Verschluss keine Dichtwirkung besitzt und somit der Porenraum der Richtstrecke den Druckaufbau verlangsamt. Das Szenario verläuft ähnlich wie beim dichten Verschluss (Kap. 2.4), allerdings steht ein wesentlich höheres Gesamtvolumen für die Auffüllung mit Dampf und Lauge zur Verfügung. Es bildet sich eine Siedelinie im Versatz aus, an der die Kristallisation erfolgt. Die Verdampfung kann in der Anfangsphase bis zu $2,9 \text{ m}^3/\text{Tag}$ betragen, soweit diese Laugenmenge in flüssiger Form verfügbar ist. Kondensation erfolgt am Streckenstoß und in der Richtstrecke. Mit vollständiger Flutung des Gesamtsystems ist nach ca. 75 Jahren zu rechnen. Die Verdampfungsphase endet bei 40%-iger Flutung, also nach ungefähr 30 Jahren; da mit dem Druckanstieg die Verdunstungsleistung abnimmt, sind bis dahin knapp 16000 m^3 Lauge verdampft, was einer Ausfällung von ca. 5000 t oder 2200 m^3 Salz entspricht. Das genügt theoretisch zum dreifachen Auffüllen des gesamten anfänglich in der Einlagerungsstrecke vorhandenen Porenraums. Dieses Salz wird allerdings bei der Kondensation, z. B. an den Streckenwänden, aufgelöst.

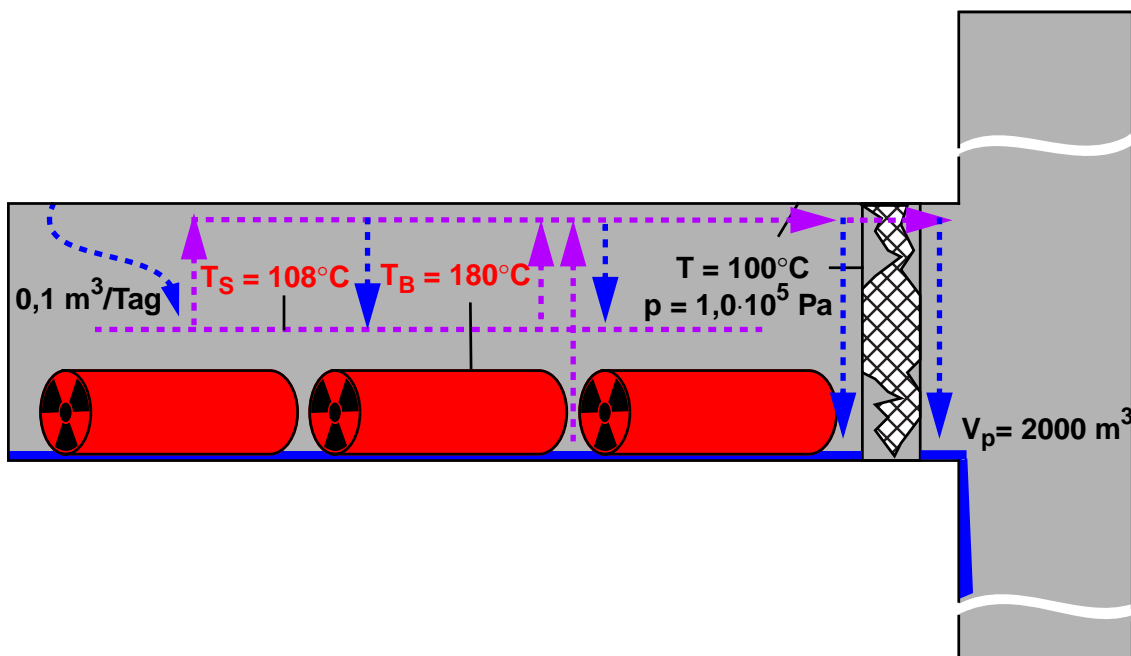


Abb. 2.8: Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate und durchlässigem Verschluss

2.7 Zusammenfassung

Die dargestellten Szenarien geben einen ersten Eindruck von den sich überlagernden Vorgängen, die beim Laugenzutritt in eine Einlagerungsstrecke zu erwarten sind. Tabelle 2.1 enthält einen vergleichenden Überblick über die wichtigsten Erkenntnisse. In der Rea-

Tabelle 2.1: Vergleichende Gegenüberstellung der Zulaufszszenarien

| Zulauftrate | Verschlul3 | Verdampfungsphase | Salzabscheidung |
|-------------|-------------|-------------------|-------------------------------|
| hoch | dicht | 65 Tage | 10 t (3 cm Schichtdicke) |
| gering | dicht | 10 Jahre | 600 t (270 m ³) |
| hoch | durchl3ssig | 160 Tage | 120 t (30 cm Schichtdicke) |
| gering | durchl3ssig | 30 Jahre | 5000 t (2200 m ³) |

lit3t k3nnen durchaus erhebliche Abweichungen von den hier abgesch3tzten Zahlenwerten auftreten, da diese Absch3tzungen in zum Teil empfindlicher Weise von Daten abh3ngen, die entweder gro3en Schwankungen unterliegen k3nnen (wie z. B. die Zulauftrate) oder mit einiger Unsicherheit behaftet sind (wie die Feuchteabh3ngigkeit der W3rmeleitf3higkeit). Insgesamt l33t sich aber feststellen, da3 mit Salzabscheidung in nennenswertem Ausma3 nur dann zu rechnen ist, wenn die Zulauftrate gering ist, d. h. vornehmlich bei Laugenzutritten aus Einschl3ssen im Steinsalz. Weiterhin laufen die salzabscheidenden Prozesse umso l3nger, je langsamer sich der Druck aufbaut, je durchl3ssiger also der Streckenverschlul3 und das gesamte Grubengeb3ude sind. Die hier angestellten Betrachtungen beruhen allerdings auf stark vereinfachten Modellvorstellungen. Anzunehmende konvektionsbedingte Uml3sevorg3nge bleiben z. B. v3llig unber3cksichtigt, au3erdem sei noch einmal erw3hnt, da3 die Gebirgskonvergenz v3llst3ndig au3er acht gelassen wurde.

3 Einzeleffekte beim Laugenzutritt

Der Vorgang eines Laugenzutritts in eine Einlagerungsstrecke mit wärmeerzeugenden Abfällen wird bestimmt durch das Zusammenspiel einer Vielzahl von physikalischen und chemischen Effekten. Unter dem Aspekt einer möglichen Selbsteinkapselung der heißen Behälter erscheinen vornehmlich diejenigen Effekte bedeutsam, die unmittelbar mit Auflösung oder Ausfällung von Salz verbunden sind. In diesem Kapitel soll ein Überblick über die wichtigsten Effekte und Einflußparameter gegeben und versucht werden, ihr Zusammenwirken in Form eines konzeptionellen Gesamtmodells darzustellen.

3.1 Wärmeleitung

Wärmeleitung ist ausgleichsbedingter Transport von thermischer Energie, der nicht von Materieströmen getragen wird. Die lokale Wärmestromdichte ist negativ proportional zum jeweiligen Wert des Temperaturgradienten, der materialabhängige Proportionalitätsfaktor λ heißt Wärmeleitfähigkeit. Im allgemeinen Fall ist λ eine tensorielle Größe, für isotrope Medien wie Steinsalz oder Salzgrus jedoch ein Skalar. In diesem Fall gilt für das Temperaturfeld T die Wärmeleitungsgleichung

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} - \operatorname{div}(\lambda \operatorname{grad} T) = 0. \quad (1)$$

Die Wärmeleitfähigkeit ist eine wichtige Größe bei der Beschreibung von Vorgängen, wie sie hier untersucht werden sollen, weil sie darüber entscheidet, welcher Anteil der thermischen Leistung einer Wärmequelle bereits allein durch Leitung abgeführt wird und wieviel für andere Effekte zur Verfügung steht. Beim Salzgrus hängt ihr Wert in starkem Maß vom Kompaktionsgrad und von der Feuchtigkeit ab. Neben der Wärmeleitfähigkeit spielen auch die Materialdichte ρ und die Wärmekapazität c_p eine Rolle.

3.2 Advektion und Konvektion

Druckgetriebene Fluidströmungen werden als Advektion bezeichnet, wenn der Druckgradient durch äußere Gegebenheiten bestimmt ist, und als Konvektion, wenn er allein auf temperaturbedingten Dichtedifferenzen im Gravitationsfeld beruht. Im fluidgesättigten porösen Medium wird zur Beschreibung der Strömung üblicherweise das Darcy-Gesetz angenommen, bei dem die vektorielle Laugenstromdichte s negativ proportional zum Druckgradienten ist:

$$s = -\frac{k}{\eta} \text{grad } p \quad (2)$$

Der Proportionalitätsfaktor k ist die Permeabilität, η bedeutet die dynamische Viskosität des Fluids. Bei Salzgrus hängt die Permeabilität in starkem Maß von der effektiven Porosität, aber auch von der Korngrößenverteilung und der Kompaktierungsart ab [12].

Im teilgesättigten porösen Medium sind die Verhältnisse komplizierter. Hier müssen im allgemeinen Zweiphasen-Strömungsprobleme behandelt werden, wobei eine von der Fluidsättigung abhängige relative Permeabilität verwendet wird.

Advektions- und Konvektionsvorgänge sind immer auch mit Wärmetransport verbunden.

3.3 Verdampfung, Verdunstung und Kondensation

Die massive Dampfproduktion beim Sieden wird als Verdampfung bezeichnet, Phasenübergangsprozesse unterhalb der Siedetemperatur als Verdunstung bzw. Kondensation. Im Gasraum über einer Flüssigkeit stellt sich als Gleichgewicht der temperaturabhängige Sättigungsdampfdruck als Partialdruck des Dampfes ein. Wird dieser Wert durch laufenden Dampftransport unterschritten, verdunstet die Flüssigkeit, bei Dampfzustrom kommt es zu Kondensation. Diejenige Temperatur, bei der der Sättigungsdampfdruck dem Umgebungsdruck entspricht, ist die Siedetemperatur. Diese steigt daher mit dem Druck an.

Der Sättigungsdampfdruck über einer wäßrigen Lösung ist aufgrund der Bindungskräfte zwischen den Wassermolekülen und den gelösten Teilchen etwas geringer als bei gleicher Temperatur über reinem Wasser. Dadurch erhöht sich die Siedetemperatur. So liegt sie für gesättigte NaCl-Lösung unter Normaldruck bei ca. 108 °C.

3.4 Salzausfällung und -auflösung

Wenn eine Lösung verdunstet oder verdampft, bleiben die gelösten Stoffe in fester Form zurück. Umgekehrt entsteht bei Kondensation zunächst Süßwasser, welches eine gewisse Menge Salz auflösen kann. Daher sind alle Phasenübergangsprozesse im löslichen porösen Medium mit erheblichen lokalen Veränderungen desselben verbunden. Aber auch ohne Phasenübergänge kann es zu Ausfällung oder Auflösung kommen, wenn die Lösung sich zwischen Bereichen unterschiedlicher Temperatur bewegt. Im Fall von Natriumchlorid und Wasser steigt die Löslichkeit mit der Temperatur an. Daher löst sich dort, wo die Strömung in Richtung des Temperaturgradienten erfolgt (also von niedrigeren zu höheren Temperaturen) Salz auf, wo die Lauge gegen den Temperaturgradienten strömt, fällt Salz aus. Porositätsänderungen durch Salzulagerung wirken auf die Wärmeleitung sowie die Advektion/Konvektion zurück.

3.5 Konvergenz

Aufgrund der Kriechfähigkeit von Steinsalz verschließen sich Hohlräume mit der Zeit unter äußerem Druck. Das gilt auch für die Versatzporen, so daß sich die Porosität des Versatzes in einer Einlagerungsstrecke unter dem Gebirgsdruck ständig verringert. Eine mathematische Beschreibung solcher Vorgänge ist aufgrund der komplizierten Kriechigenschaften von Steinsalz nicht einfach. Vereinfachend kann man eine Konvergenzrate K annehmen, die die relative Verkleinerung eines Hohlraumes V pro Jahr angibt:

$$\frac{dV}{dt} = -KV. \quad (3)$$

Die Konvergenzrate hängt außer von den lokalen geologischen Gegebenheiten am Endlagerort stark von der Temperatur ab, Hohlräume in heißen Bereichen verschließen sich meist schon innerhalb einiger Jahre. Mit dem Verschwinden der Porosität kommen schließlich alle Strömungsprozesse zum Stillstand, daher bedeutet die Vernachlässigung der Konvergenz bei den hier untersuchten Vorgängen Konservativität.

3.6 Konzeptionelles Gesamtmodell

Abbildung 3.1 soll das Zusammenwirken der wichtigsten Modellgrößen (dunkle runde Kästen), Effekte (eckige Kästen) und Parameter (helle runde Kästen) beim Laugenzutritt in eine Einlagerungsstrecke grafisch veranschaulichen. Eine zentrale Rolle spielt das Temperaturfeld, welches einerseits von nahezu allen Effekten beeinflusst wird und andererseits über verschiedene Parameter auf diese zurückwirkt. Die letztlich entscheidende Feldgröße ist die Porosität, welche direkt oder indirekt durch alle Effekte beeinflusst wird.

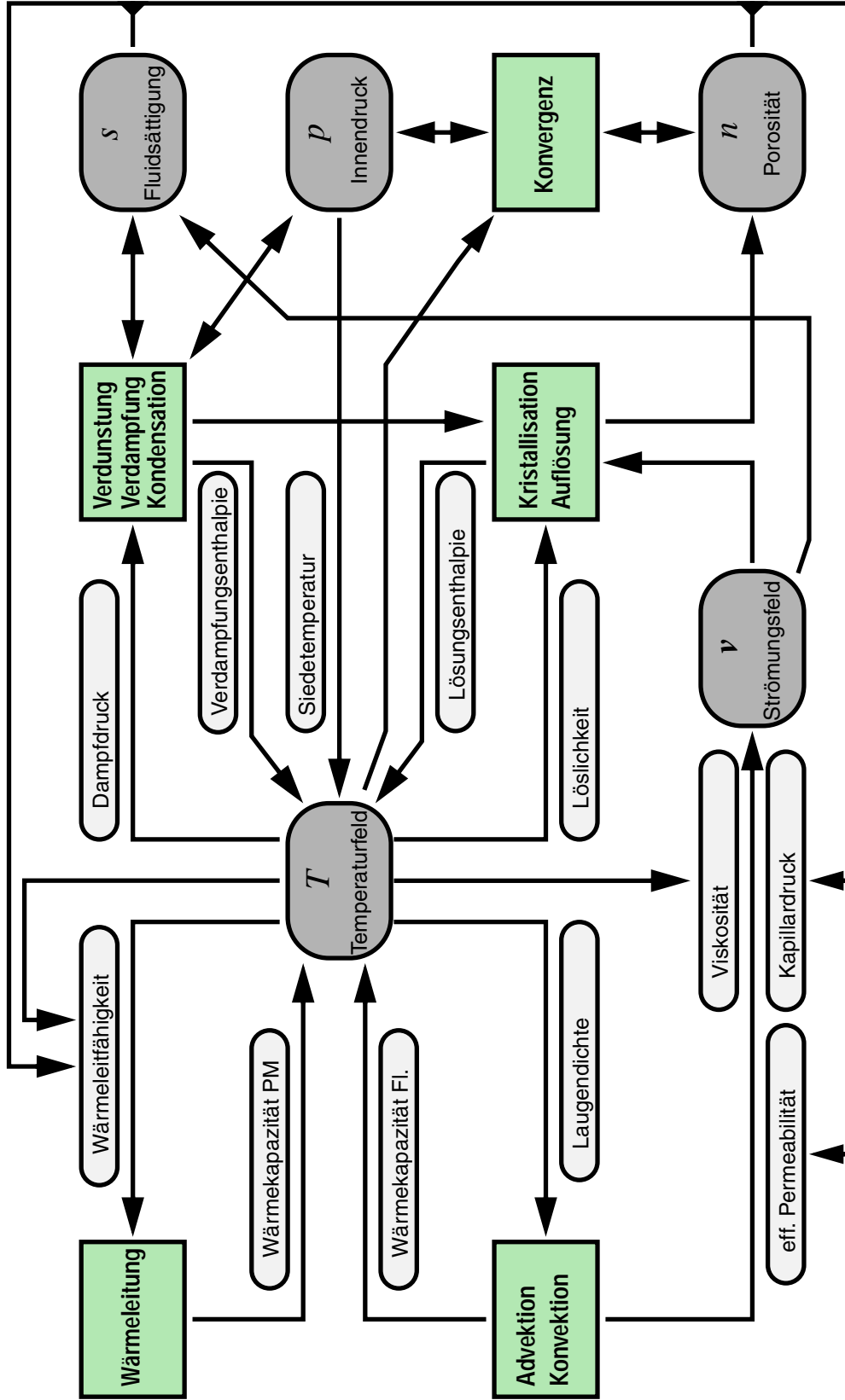


Abb. 3.1: Kopplung der Modellgrößen, Parameter und Effekte beim Laugenzutritt in Einlagerungsstrecken

4 Theoretische Abschätzungen

Zur ersten Orientierung und als Grundlage für die Konzeption von Experimenten ist es sinnvoll, zunächst einige einfache Abschätzungen durchzuführen, die Aufschluß über die Größenordnungen der zu erwartenden Effekte liefern sollen.

4.1 Temperaturfeld

Das Temperaturfeld einer Wärmequelle von gegebener Heizleistung ist von der Wärmeleitfähigkeit der Umgebung abhängig. Da die Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus eine starke Abhängigkeit von den unzureichend bekannten Größen Porosität und Feuchtegehalt zeigt, ist die Frage von Interesse, inwieweit sich Variationen in der Wärmeleitfähigkeit des Versatzes auf das Temperaturfeld auswirken.

4.1.1 Temperaturfeld einer kugelsymmetrischen Anordnung mit abgestufter Wärmeleitfähigkeit

Im folgenden wird zunächst das stationäre Temperaturfeld einer kugelförmigen Wärmequelle mit dem Radius R unter der Annahme radialsymmetrischer Versatzeigenschaften berechnet. Die Wärmeleitungsgleichung für diesen Fall lautet

$$\frac{\partial \lambda}{\partial r} \frac{\partial T}{\partial r} + \lambda \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) = 0 \quad (4)$$

mit der allgemeinen Lösung

$$T(r) = \int \frac{C_1}{r^2 \cdot \lambda(r)} dr + C_2. \quad (5)$$

Um die Verhältnisse in einer Einlagerungsstrecke zu simulieren, sei angenommen, λ habe bis zum Abstand r_S einen für Salzgrus typischen Wert und darüber den Wert von Steinsalz:

$$\lambda(r) = \begin{cases} \lambda_1 & \text{für } r \leq r_S \\ \lambda_2 & \text{für } r > r_S \end{cases} \quad (6)$$

Durch Einsetzen in (5) unter Berücksichtigung der Randbedingungen $T(R) = T_H$ (Heiztemperatur) und $T(\infty) = T_G$ (Gebirgstemperatur) ergibt sich

$$T(r) = T_H + \frac{T_G - T_H}{\frac{1}{\lambda_1} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{r_S} \right) + \frac{1}{\lambda_2} \frac{1}{r_S}} \cdot \begin{cases} \frac{1}{\lambda_1} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{r} \right) \\ \frac{1}{\lambda_1} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{r_S} \right) + \frac{1}{\lambda_2} \left(\frac{1}{r_S} - \frac{1}{r} \right) \end{cases} \quad (7)$$

Die Wärmeleistung P_W entspricht dem gesamten Wärmestrom durch eine beliebige Kugelschale:

$$P_W = 4\pi r^2 \left(-\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) = 4\pi \frac{T_H - T_G}{\frac{1}{\lambda_1} \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{r_S} \right) + \frac{1}{\lambda_2} \frac{1}{r_S}} \quad (8)$$

Wenn die Heizleistung vorgegeben ist, läßt sich umgekehrt aus dieser Gleichung die Oberflächentemperatur T_H bestimmen. Dazu ein Zahlenbeispiel mit Werten, die einem Polluxbehälter in einer Einlagerungsstrecke entsprechen: $P_W = 7,5$ kW, $R = 1,6$ m (dies ergibt für eine Kugel die Oberfläche eines realen Pollux), $r_S = 2,5$ m, $T_G = 35^\circ\text{C}$, $\lambda_1 = 2$ W/mK, $\lambda_2 = 5$ W/mK. Damit errechnet sich als Oberflächentemperatur $T_H = 150^\circ\text{C}$. Dieser Wert hängt allerdings empfindlich von λ_1 , d.h. der Wärmeleitfähigkeit des Salzgrus ab, die ihrerseits von der Porosität und der Feuchte beeinflusst wird (Abb. 4.1). Eine sichere Aussage über die Temperatur an der Oberfläche eines eingelagerten Polluxbehälters ist daher nicht möglich.

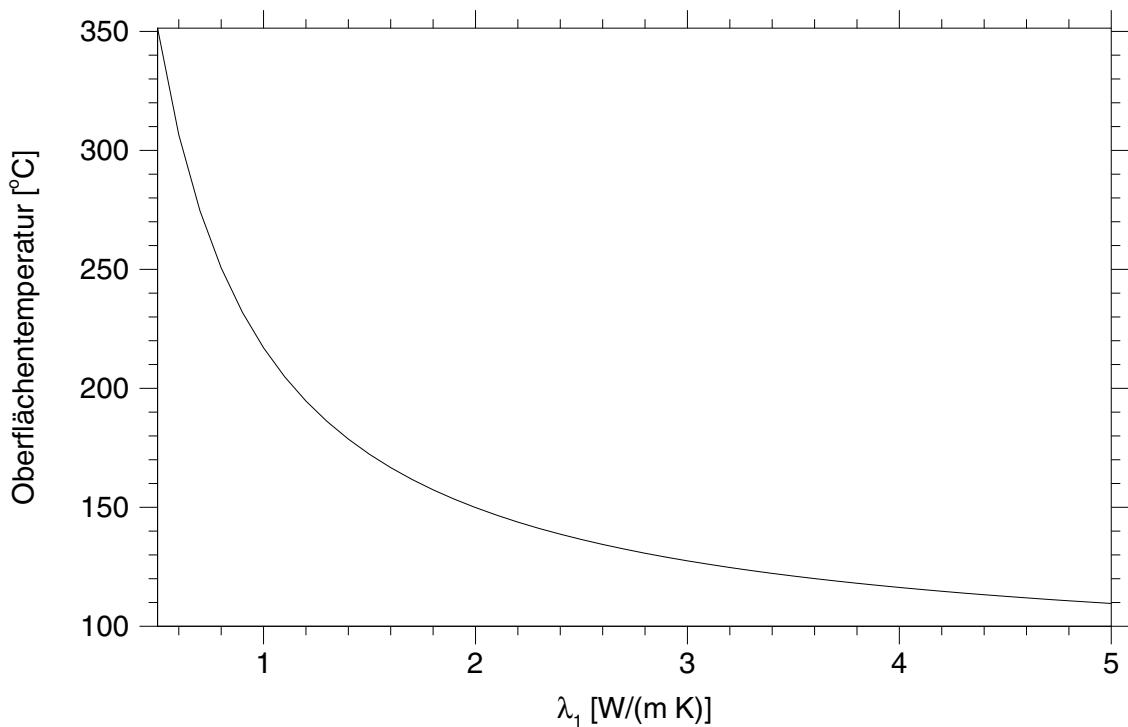


Abb. 4.1: Abhängigkeit der Oberflächentemperatur einer kugelförmigen Wärmequelle von der Wärmeleitfähigkeit des Salzgruses

4.1.2 Temperaturfeld einer zylindersymmetrischen Anordnung

Das Temperaturfeld einer linienförmigen Wärmequelle erhält man durch Überlagerung einer Reihe von infinitesimalen Punktquellen (s. modelltheoretischer Bericht [B-1] auf der Begleit-CD). Betrachtet man eine Quelle der Länge $2a$, deren Mitte im Ursprung eines zylindrischen Koordinatensystems liegt, und nimmt die Wärmeleitfähigkeit λ sowie die Umgebungstemperatur T_U als konstant an, so ist die Temperatur im Abstand r von der Zentralachse bei der axialen Koordinate z

$$T(z, r) = \frac{P_W}{8\pi\lambda a} \ln \left(\frac{\sqrt{r^2 + (x - a)^2} - (x - a)}{\sqrt{r^2 + (x + a)^2} - (x + a)} \right) + T_U. \quad (9)$$

Unter der Annahme, daß 17 Behälter von 6 m Länge mit jeweils 5 m Abstand eingelagert werden, errechnet sich eine Quellenlänge von 182 m. Für Wärmeleitfähigkeiten zwischen 3,0 und 4,5 W/(m K), einer Gesamtleistung von 127,5 kW und der Gebirgstemperatur 40°C ergibt sich der Temperaturverlauf nach Abb. 4.2 im Abstand von 0,75 m von der Zentralachse (d. h. an der Polluxoberfläche).

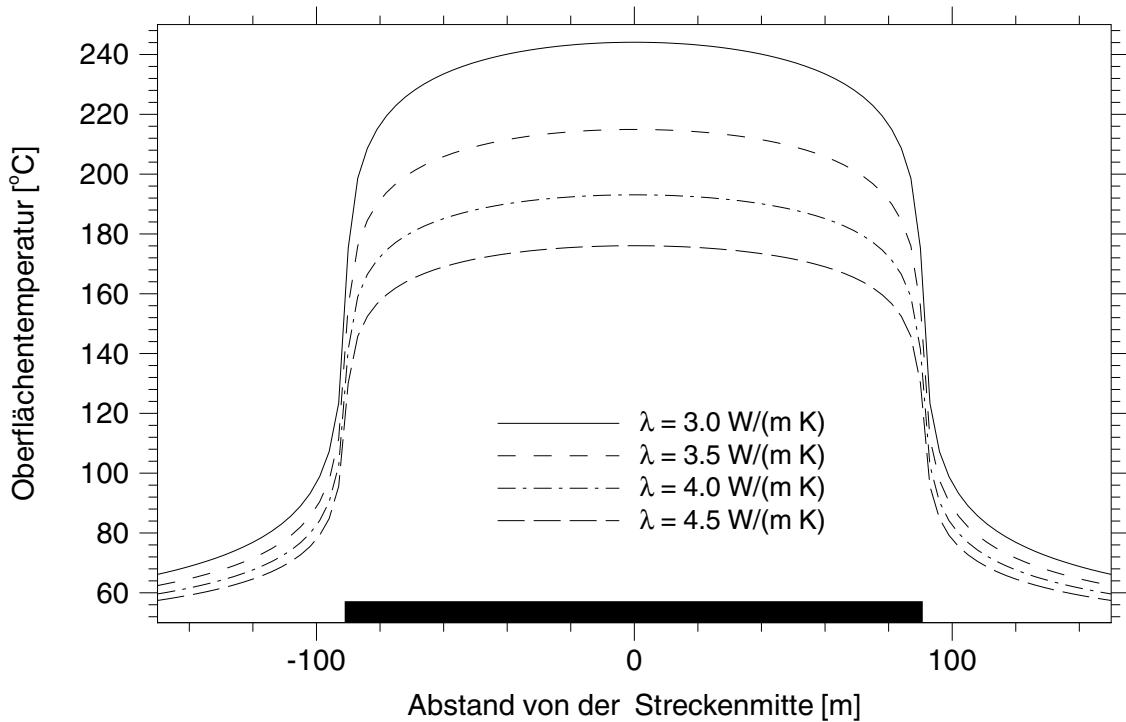


Abb. 4.2: Theoretischer Temperaturverlauf an der Oberfläche einer zylindrischen Wärmequelle (schwarzer Bereich)

Am Streckenstoß 5 m hinter dem letzten Behälter beträgt die Temperatur knapp 100 °C. Der Temperaturverlauf in radialer Richtung in der Mitte der Strecke ist in Abb. 4.3 dargestellt.

4.2 Zeitentwicklung des Temperaturfeldes

Die obigen Abschätzungen beziehen sich auf das stationäre Temperaturfeld. Dieses stellt sich jedoch erst nach einer gewissen Zeit ein. Die Verhältnisse komplizieren sich, wenn die Strecke dem Konvergenzprozeß unterliegt. Die Konvergenzrate hängt von der

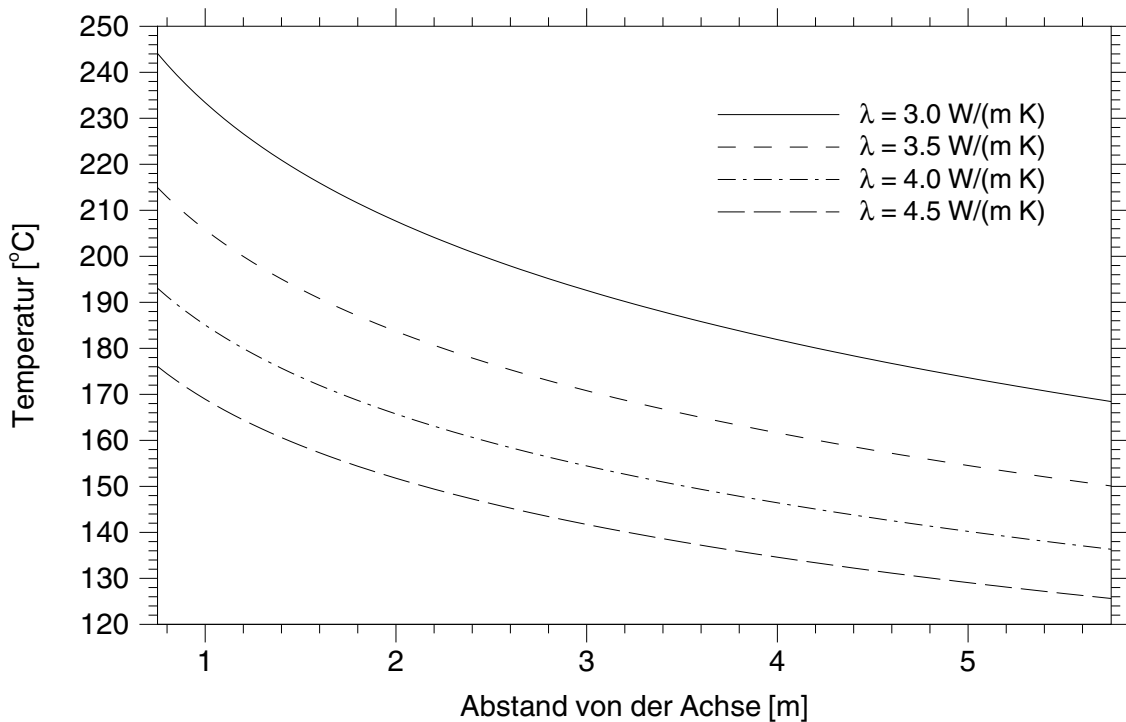


Abb. 4.3: Theoretischer radialer Temperaturverlauf in der Streckenmitte

Temperatur, die Wärmeleitfähigkeit von der Porosität und damit vom erreichten Kompaktionsgrad ab. Die Wärmeleitungsgleichung und die Konvergenzgleichung sind somit nichtlinear verkoppelt.

Berechnungen zu diesem Problem wurden von Breidenich [4] durchgeführt. Die Ergebnisse werden im folgenden kurz dargestellt.

Das Problem wurde zweidimensional modelliert und mit der FE-Methode behandelt. Es wurde ein zylindrischer Bereich von 400 m Radius in 800 m Teufe betrachtet. In der Mitte dieses Bereiches befindet sich eine quadratische Einlagerungsstrecke mit Salzgrusversatz von 30 x 30 m, in deren Mitte der runde Pollux-Behälter (Radius 0,8 m) liegt. Als Randbedingung wurde die Temperatur am Außenrand des Zylinders, also in 400 m Abstand von der Zentralachse, auf den Wert des ungestörten Temperaturfeldes gesetzt¹. Dabei wurde für den geothermischen Gradienten ein Wert von 0,0192 K/m angenommen. Weiterhin wurde der geostatische Druck am Zylinderrand vorgegeben.

Die Wärmeproduktion des Pollux-Behälters wurde durch vier Pseudonuklide mit unterschiedlichen Wärmeleistungen und Halbwertszeiten dargestellt. Für die benötigten physikalischen Konstanten wurden gängige Literaturwerte verwendet. Zur Darstellung der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von Temperatur und Porosität wurde der Ansatz von Breidenich (s. Kap. 7.2) benutzt.

An den Ergebnissen dieser Berechnungen erkennt man, daß die Porosität in der Anfangsphase schnell abnimmt und dementsprechend auch die Temperatur nach einer kurzen Aufbauphase - das Maximum wird nach etwa 12,5 Jahren erreicht - sinkt. Nach ca. 200 Jahren haben sich Verhältnisse eingestellt, die sich nur noch wenig von denen im ungestörten Steinsalzgebirge unterscheiden und sich in der Folgezeit auch nur noch geringfügig ändern.

4.3 Zulauftrate

Ein Laugenzutritt kann auf verschiedenen Wegen und über verschiedene Mechanismen erfolgen. Dementsprechend ist mit stark unterschiedlichen Zulauftraten zu rechnen. So wird die Zulauftrate beim Zutritt aus einer Laugentasche von ca. tausend m³ Inhalt und einer Konvergenzrate von einigen Prozent pro Jahr in der Größenordnung von 0,1 m³ pro Tag liegen. Bei einem Laugenzufluß über den Streckenschluß ist mit einer vergleichbaren Zulauftrate zu rechnen, jedoch ist der Zulauf in diesem Fall prinzipiell unbegrenzt. Im Fall eines - ebenfalls unbegrenzten - direkten Laugenzutritts aus dem Deckgebirge ist dagegen nach bergmännischen Erfahrungen eine deutlich höhere Zulauftrate von mehreren m³ pro Tag zu erwarten. Damit es zu einer Abscheidung von Salz in Behälternähe und damit zu einer Art Selbstabdichtung kommen kann, müssen Verdunstungs- und/oder Verdampfungsvorgänge über einen längeren Zeitraum ablaufen können. Zu große Zulauftraten können dies jedoch verhindern. Im folgenden werden verschiedene Effekte abgeschätzt, die über die Zulauftrate Einfluß auf den Kristallisationsvorgang haben.

¹ Anmerkung: Ein solches Randwertproblem ist physikalisch bedenklich, da der willkürlich festgelegte Außenradius explizit in die Lösung einfließt. Bei dem vereinfachten Problem einer unendlich langen zylindrischen Wärmequelle in einer Umgebung von konstanter Wärmeleitfähigkeit würde sich als stationäre Lösung eine logarithmische Temperaturverteilung einstellen. Diese nimmt „im Unendlichen“ keinen Grenzwert an, sie ist nur durch eine aufgeprägte Randtemperatur an einer definierten Stelle zu verwirklichen. Zur Darstellung zeitabhängiger Effekte in der Anfangsphase dürfte das Modell jedoch geeignet sein.

Zunächst soll untersucht werden, wieviel Lauge kontinuierlich verdampft werden kann, d.h., wieviel Flüssigkeit zutreten kann, ohne sich in der Einlagerungsstrecke zu sammeln. Dazu werden isotrope Verhältnisse angenommen. Die Energie, die zur Erwärmung und Verdampfung von 1 kg Salzlauge erforderlich ist, beträgt ca. $2,7 \cdot 10^6$ J = 0,75 kWh. Bei einer Wärmeleistung von 7,5 kW bedeutet das eine Verdampfung von 10 kg Lauge pro Stunde. Diese kann aber nur dann wirksam werden, wenn die Lauge gleichmäßig aus allen Richtungen zutritt. Tatsächlich wird sie aber lokal sehr begrenzt zutreten, ohne daß sich dadurch der gesamte Wärmestrom auf diese Stelle konzentriert. 10 kg gesättigte Lauge entsprechen etwa 8,3 Liter. Die Oberfläche einer Kugel von 1,6 m Radius beträgt $32,2 \text{ m}^2$ und entspricht damit derjenigen eines Pollux-Behälters, die Wärmeleistungsdichte ist also $0,23 \text{ kW/m}^2$. Daraus errechnet sich die maximal verdampfbare Laugenmenge an der Polluxoberfläche zu $0,26 \text{ l/(m}^2\text{h)}$ oder ca. 6,24 Liter Lauge pro Tag und Quadratmeter oder 200 Liter pro Tag und Pollux, sofern dieser vollständig von Lauge umgeben ist. Tatsächlich ist die Verdampfungsleistung aber noch wesentlich geringer, weil ein erheblicher Teil durch Wärmeleitung abgeführt wird. Kommt es an der Behälteroberfläche zum Siedeprozess, so kühlt sich diese auf die Siedetemperatur T_S ab. Für den Fall eines kugelförmigen Heizkörpers vom Radius R in homogener Umgebung (Temperatur im Unendlichen T_U) ergibt sich aus (5) die radiale Temperaturverteilung

$$T(r) = T_U + \frac{R(T_S - T_U)}{r}. \quad (10)$$

Durch eine Kugelfläche im Radialabstand r fließt dann der konduktive Wärmestrom

$$P = 4\pi r^2 \cdot \left(-\lambda \frac{dT}{dr}\right) = 4\pi\lambda R(T_S - T_U). \quad (11)$$

Für $R = 1,6 \text{ m}$, $\lambda = 2 \text{ W/(m K)}$, $T_S = 108 \text{ °C}$ und $T_U = 35 \text{ °C}$ ist $P = 2936 \text{ W}$, also ca. 40 % der Gesamtwärmeleistung. Steigt die Siedetemperatur aufgrund eines erhöhten Druckes, nimmt dieser Anteil weiter zu. Lediglich der Rest steht für Verdampfungsvorgänge zur Verfügung. Diese einfachen Abschätzungen zeigen bereits, daß nur bei sehr geringen

Zulaufströmen Verdampfungs- und Kristallisationsprozesse auftreten können. Für eine Einlagerungsstrecke mit 17 Polluxgebunden, die vollständig umflutet sind, liegt die Obergrenze der Verdampfung bei ca. 1,6 m³ pro Tag.

5 Experimentelle und modelltheoretische Darstellung von Einzeleffekten

Die Vorgänge in einer realen Einlagerungsstrecke während der Zulaufphase entziehen sich aufgrund der räumlichen und zeitlichen Dimensionen einer direkten experimentellen Untersuchung im Maßstab 1:1. Eine umfassende theoretische Modellierung dieser komplizierten gekoppelten Vorgänge ist aber ebenso wenig oder noch weniger möglich. Ein erweitertes Verständnis für das Zusammenspiel der in einer Strecke während der Zuflußphase unter Wärmeeinfluß ablaufenden Prozesse kann vielmehr nur entwickelt werden, indem die wichtigsten Einzeleffekte identifiziert und durch gezielt konzipierte Experimente möglichst isoliert erfaßt werden. Nur für solche Einzeleffekte oder aber sehr eng begrenzte Effektgruppen lassen sich theoretische Modelle formulieren, deren Ergebnisse dann über die Experimente zu validieren sind. Auf diese Weise kann ein Verständnisgrad erreicht werden, der Aussagen zu einzelnen, genau umrissenen Fragestellungen über die realen Abläufe erlaubt.

Im Rahmen des hier beschriebenen Projektes wurden unter diesen Gesichtspunkten insgesamt sechs Experimenttypen konzipiert. Diese wurden zumeist, zum Teil um deutlich gewordene Unzulänglichkeiten zu korrigieren, zum Teil um verschiedene Parameterbereiche zu berücksichtigen, in mehreren Varianten durchgeführt. Parallel dazu wurden im Rahmen der jeweiligen Möglichkeiten Modellrechnungen durchgeführt. Im folgenden wird jeder Experimenttyp mit seinen Ergebnissen und den Modellvorstellungen ausführlich beschrieben und ausgewertet.

5.1 Kristallisation beim Sieden im laugegefüllten Porenraum

5.1.1 Motivation und Zielsetzung

Wenn laugegesättigter Salzgrus über die Siedetemperatur erhitzt wird, scheidet sich im Siedebereich Salz ab. Dadurch entsteht eine Verdichtungszone, welche zum einen das Temperaturfeld beeinflusst und zum anderen das Eindringen von weiterer Lauge behindert. Für die Einlagerungsstrecke erhofft man von diesem Effekt eine Art Selbstabkap-

selung der heißen Abfallbehälter gegen die korrosionsfördernde Lauge. Dabei ist die Frage von Bedeutung, inwieweit eine solche Abkapselung tatsächlich stattfindet, ob sich also in kurzer Zeit eine Schicht entwickelt, die den direkten Kontakt von Lauge mit dem Behälter dauerhaft unterbindet, und zwar auch dann noch, wenn die Behältertemperatur unter den Siedepunkt abfällt.

Diese Frage, welche Eigenschaften eine derartige Schicht gegebenenfalls besitzt, soll durch ein Experiment geklärt werden, bei dem ein Siedeprozess im gesättigten Salzgrus über einen gewissen Zeitraum aufrechterhalten wird; der dabei entstehende Salzkern wird anschließend auf seine hydraulischen Eigenschaften untersucht. Im einzelnen wird

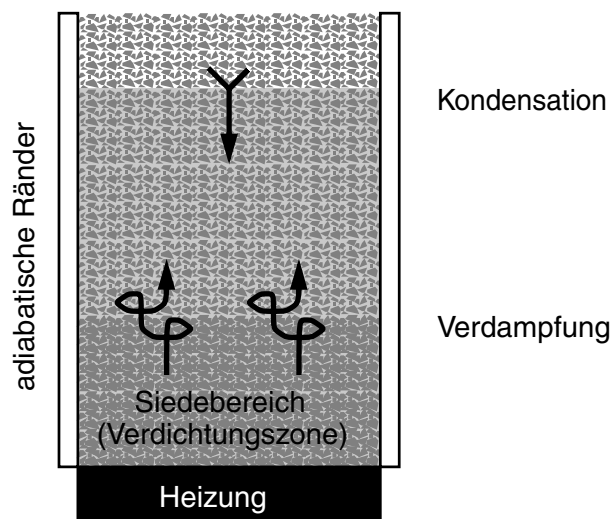


Abb. 5.1: Physikalische Effekte und Randbedingungen beim Experiment I

Aufschluß über folgende Punkte erwartet:

- Zeitliche Entwicklung des Temperaturfeldes, Verschiebung der Siedelinie,
- Dichteverteilung nach Versuchsende,
- Permeabilität und Porosität der dichtesten Schicht.

5.1.2 Experimentelle Randbedingungen

Das Experiment wurde so konzipiert, daß es die Prozesse in einer teilgefluteten Strecke mit Siedevorgängen ohne Druckaufbau darstellt. Die Eigenschaften des Salzkörpers nach dem Eindampfen der Lauge entsprechen dann weitgehend denjenigen des Versatzes in den verdichteten Bereichen der Strecke.

5.1.3 Versuchsaufbau

Das Experiment wurde in einer mit einem offenen Deckel versehenen zylindrischen Säule von 8 cm Durchmesser und 12 cm Höhe durchgeführt, welche mit einer regelbaren Laborheizplatte von unten beheizt wurde (Abb. 5.2). Um Randeffekte weitestgehend zu vermeiden, wurde die Säule in ein größeres Außenrohr gestellt, das ebenfalls mit Salzgrus gefüllt war. Dadurch sollte ein weitgehend homogenes Temperaturfeld im Innenrohr erzeugt werden. An der Außenseite des Innenrohrs waren auf fünf Ebenen Thermoelemente angebracht, deren Daten automatisch aufgezeichnet wurden. Um über die gesamte Versuchsdauer eine vollständige Flüssigkeitssättigung zu gewährleisten, wurde ein Reservoir zur Nachführung von Lauge vorgesehen.

5.1.4 Versuchsdurchführung und Ablauf

Für das Experiment I-1 wurde trockener Steinsalzgrus bis 1 cm unter der Säulenoberkante eingefüllt und der Porenraum bis zur gleichen Höhe mit gesättigter NaCl-Lauge aufgefüllt. Die Heiztemperatur wurde auf 150 °C eingestellt. Bereits nach 35 Minuten Heizzeit wurde ein Ansteigen des Laugenspiegels über die Oberkante des Versatzes beobachtet. An der Laugenoberfläche bildete sich eine Kristallhaut. Nach 161 Minuten Versuchszeit mußten 30 cm³ Lauge entnommen werden, um ein Überlaufen zu verhindern. Im weiteren Versuchsverlauf wuchs die Salzschrift weiter nach oben, der Laugenspiegel sank dagegen ab. Nach 13 Stunden wurden langsam 30 cm³ Lauge zugefügt, die sofort versickerte. Nach 24 Stunden Versuchsdauer wurden nochmals 9,5 cm³ Lauge zugege-

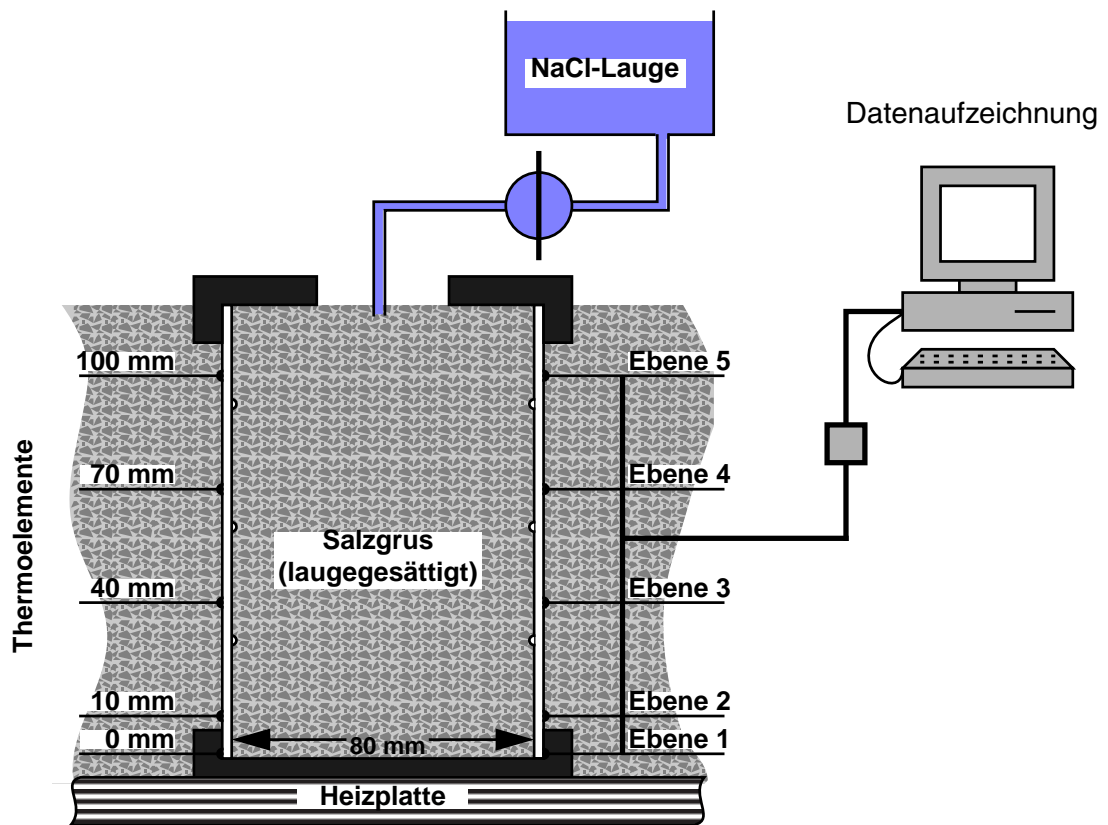


Abb. 5.2: Schema des Versuchsaufbaus für Experiment I

ben, das Salz hatte zu diesem Zeitpunkt bereits die Deckelunterkante erreicht. Eine weitere Laugenzugabe erfolgte daher nicht. Nach 167 Stunden wurde die Heizung ausgeschaltet und der Versuch beendet.

Mit den Erfahrungen des ersten Versuchs wurde das Experiment ein zweites Mal durchgeführt (I-2). Um das Überlaufen der Lauge beim Erhitzen zu verhindern, wurde die Säule nur bis zur Höhe von 8 cm, d. h. 4 cm unter Säulenoberkante, mit Salzgrus und gesättigter NaCl-Lauge aufgefüllt. Im übrigen entsprachen die experimentellen Randbedingungen denen vom Experiment I-1. Es wurde beobachtet, daß das Laugenniveau während der ersten drei Stunden gleichmäßig anstieg und dann wieder abfiel. Das ist dadurch zu begründen, daß der massiv entstehende Dampf Lauge verdrängt und nach oben drückt, mit der Zeit nimmt die Gesamtlaugenmenge jedoch aufgrund der Verdampfungsverluste ab. Nach 17 Stunden begann die oberste Salzsicht auszutrocknen, ab diesem Zeitpunkt wurden tagsüber alle zwei Stunden 10 ml Lauge zugefügt. Nach insgesamt 137 Stunden (entsprechend 670 ml Lauge) wurde die Laugenzugabe beendet, die Heizung blieb noch weitere 98 Stunden eingeschaltet.

5.1.5 Ergebnisse

Da im Experiment I-1 die Laugenzugabe vorzeitig abgebrochen werden mußte, kann davon ausgegangen werden, daß ein Endzustand, wenn überhaupt, höchstens im Experiment I-2 erreicht wurde. Die Probe aus diesem Versuch wird daher als repräsentativ betrachtet, diejenige aus I-1 wird lediglich für Vergleichszwecke herangezogen. Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf das Experiment I-2.

Das Temperaturfeld (Abb. 5.3) blieb nach einer kurzen Einstellungsphase über die Versuchslaufzeit, abgesehen von durch die Laugenzugabe verursachten kurzfristigen Schwankungen, nahezu unverändert.

Gegen Versuchsende waren die unteren Bereiche trocken, in den heißen Porenraum dringt offenbar keine Lauge mehr ein. Es wird angenommen, daß damit das Ende des Verdichtungsprozesses erreicht war. Die computertomographisch ermittelten Dichteverteilungen (Abb 5.4 und 5.5)¹ zeigen eine nach oben hin abnehmende Verdichtung beiderseits der Siedelinie (bei 45 mm). Oberhalb von ca. 70 mm geht die Verdichtung in eine Auflockerung über. Diese Befunde werden folgendermaßen interpretiert:

- Im untersten Bereich der Probe liegen die Temperaturen oberhalb der Siedetemperatur. Diese Region ist durch schnelle Dampfbildung gegen Eindringen von Lauge geschützt, so daß nur eine mäßige Verdichtung beobachtet wird.
- Im oberen Bereich liegen die Temperaturen unter der Siedetemperatur. Diese Zone ist durch Dampfkondensation und damit verbundene Salzauflösung aufgelockert.
- Im Bereich knapp unterhalb der Siedelinie ist die Verdichtung am stärksten. Hier finden die Siedevorgänge und damit die Salzausfällung statt.

Permeabilitätsbestimmungen wurden nach Versuchsende jeweils nur für die unteren bzw. mittleren Bereiche durchgeführt, da die dichtesten Zonen die Gesamtdurchlässigkeit festlegen. In Tabelle 5.1 sind für die Probenkörper der beiden Telexperimente die

¹ Alle Computertomogramme in diesem Bericht sind als Positive dargestellt, d. h. helle Graustufen bedeuten eine geringe, dunkle eine höhere Dichte

aus der jeweiligen Laugenzugabe und der beobachteten Zunahme des Versatzvolumens theoretisch resultierenden Verdichtungen (1 l gesättigte NaCl-Lauge von 25 °C enthält ca. 144 cm³ Salz) sowie die experimentell ermittelten Porositäten und Permeabilitäten aufgelistet. Vom Salzkörper des Experiments I-1 wurde der untere (0 bis 40 mm, Probe 1b) und der mittlere Teil (40 bis 70 mm, Probe 1a) ausgemessen, von dem aus I-2 nur der untere Bereich (8 bis 53 mm, Probe 2). Es erfolgt danach jeweils eine Permeabilitäts-

Tabelle 5.1: Untersuchungsergebnisse der Probenkörper vom Experiment I

| | | Probe 1a | Probe 1b | Probe 2 |
|---------------------------------|--------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| Höhe | [mm] | 110 | | 80 |
| Durchmesser | [mm] | 80 | | 80 |
| Versatzvolumen | [cm ³] | 550 | | 402 |
| Porenvolumen | [cm ³] | 187 | | 136 |
| Gesamt-Laugenzugabe | [ml] | 212 | | 670 |
| zugegebene Salzmenge | [cm ³] | 30 | | 95 |
| Volumenzunahme | [cm ³] | 50 | | 120 |
| theoretische mittlere Porosität | [%] | 34 | | 31 |
| Höhenbereich | [mm] | 40-70 | 0-40 | 8-53 |
| Porosität | [%] | 20 | 25 | 16 |
| Permeabilität | [m ²] | 3,3·10 ⁻¹³ | 1,8·10 ⁻¹¹ | 1,0·10 ⁻¹³ |

abnahme bis in die Größenordnung von 10⁻¹³ m². Eine Einstellung noch geringerer Permeabilitäten kann durch diese Experimente nicht belegt werden, daher muß davon ausgegangen werden, daß dieser Wert auch bei vergleichbaren Vorgängen in der Strecke nicht wesentlich unterschritten wird.

5.1.6 Schlußfolgerung

Durch Verdampfungsvorgänge im laugegesättigten Salzgrus ist mit einer lokalen Verdichtung auf Permeabilitäten bis in die Größenordnung von 10⁻¹³ m² und Porositäten von 16 bis 20 % zu rechnen. Dadurch wird die Konvektion der Lauge deutlich behindert, aber

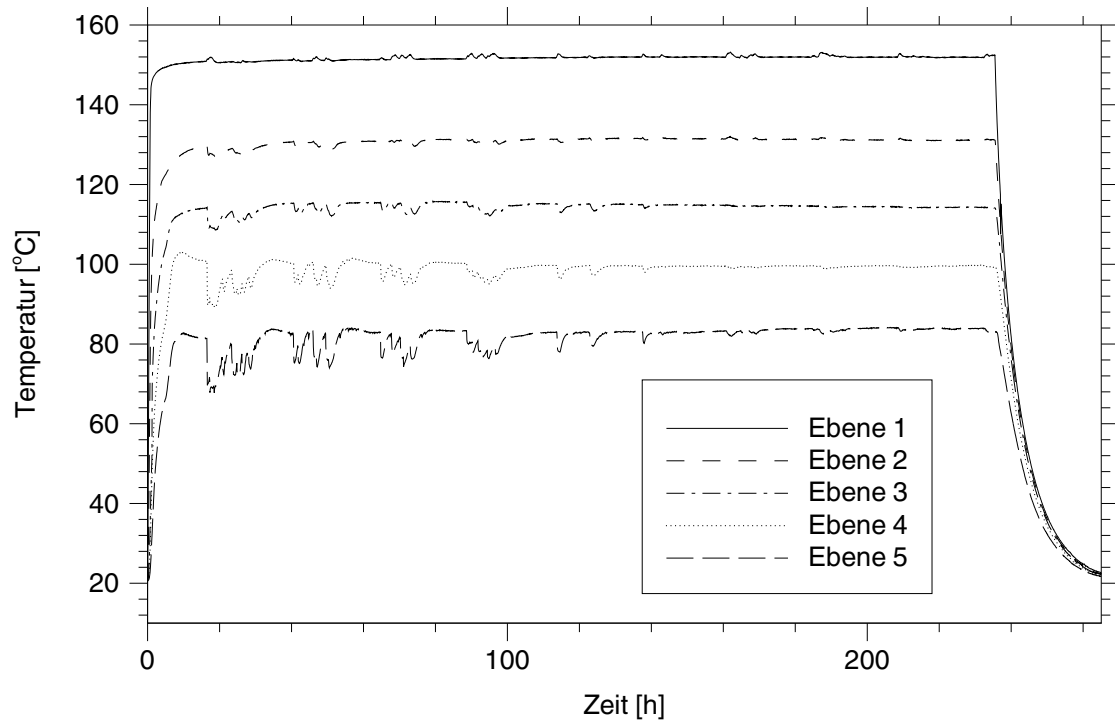


Abb. 5.3: Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment I-2

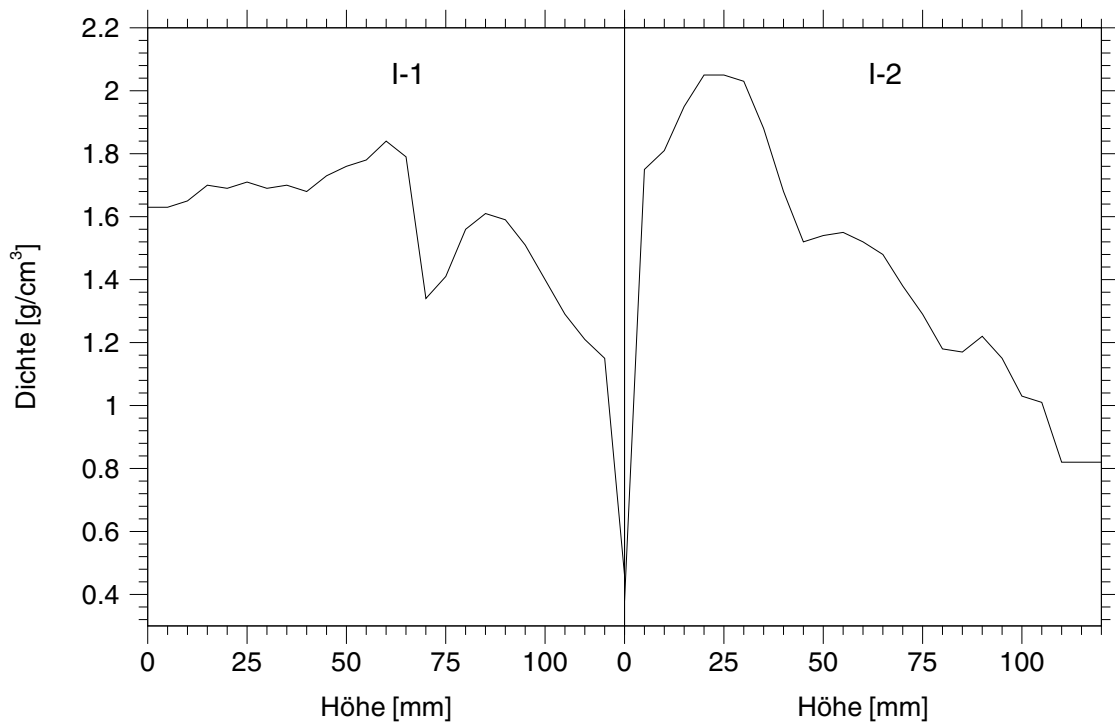


Abb. 5.4: Vertikale Dichteverteilung der Salzkörper beider Teilerperimente

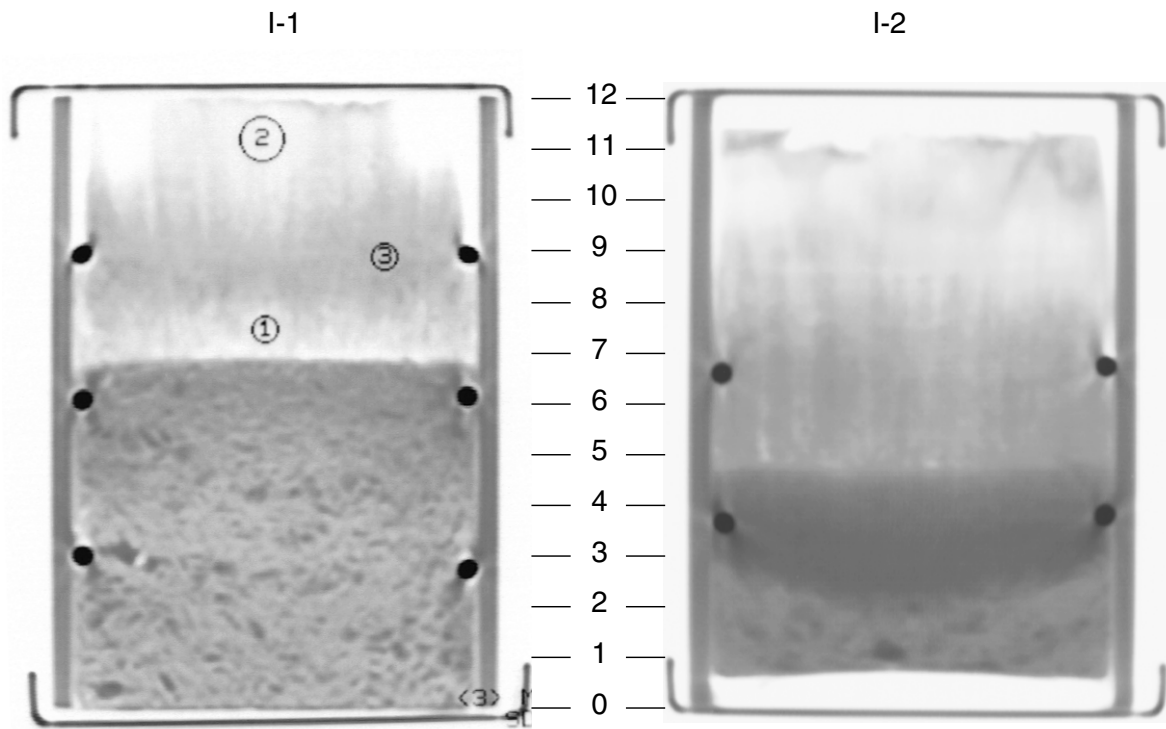


Abb. 5.5: Vertikalschnitte der Probenkörper beider Teilerperimente vom Typ I

nicht vollständig ausgeschlossen. Diffusive Transportvorgänge werden durch die Porositätsabnahme geringfügig reduziert. Ein nennenswerter Einfluß der Verdichtung auf das Temperaturfeld ist nicht zu erwarten.

5.2 Umlösungen beim Laugenzufluß in den luftgefüllten Porenraum

5.2.1 Motivation und Zielsetzung

Wenn es zu einem massiven Laugeneinbruch in eine Einlagerungsstrecke kommt, wird diese in kurzer Zeit ganz oder teilweise geflutet, und die Behälter geraten unweigerlich in Kontakt mit der Lauge [14]. Die dabei auftretenden Siedeprozesse wurden im Experiment I untersucht. Völlig andere Abläufe sind jedoch zu erwarten, wenn die Lauge so langsam zuläuft, daß sie durch die verfügbare Wärmestromdichte schon während der Zulaufphase ganz oder zu einem wesentlichen Teil in die Dampfphase überführt werden kann, das entspricht einer Zulauftrate von einige Kubikmetern pro Jahr. In solchen Fällen

ist mit Salzulagerungen aufgrund von thermisch induzierter Konvektion der feuchten Luft zu rechnen. Diese Vorgänge werden bei einer sehr geringen Zulauftrate durch Verdunstung, bei einer etwas höheren durch Verdampfung dominiert. Zur Simulation derartiger Vorgänge wurde das Experiment II konzipiert. Die erwarteten physikalischen Abläufe und Randbedingungen sind in Abb. 5.6 schematisch dargestellt. Von der Auswertung des Versuchs werden Erkenntnisse über Größe, Form und Lage der Verdichtungsgebiete sowie über die erreichten Porositäten und Permeabilitäten erwartet.

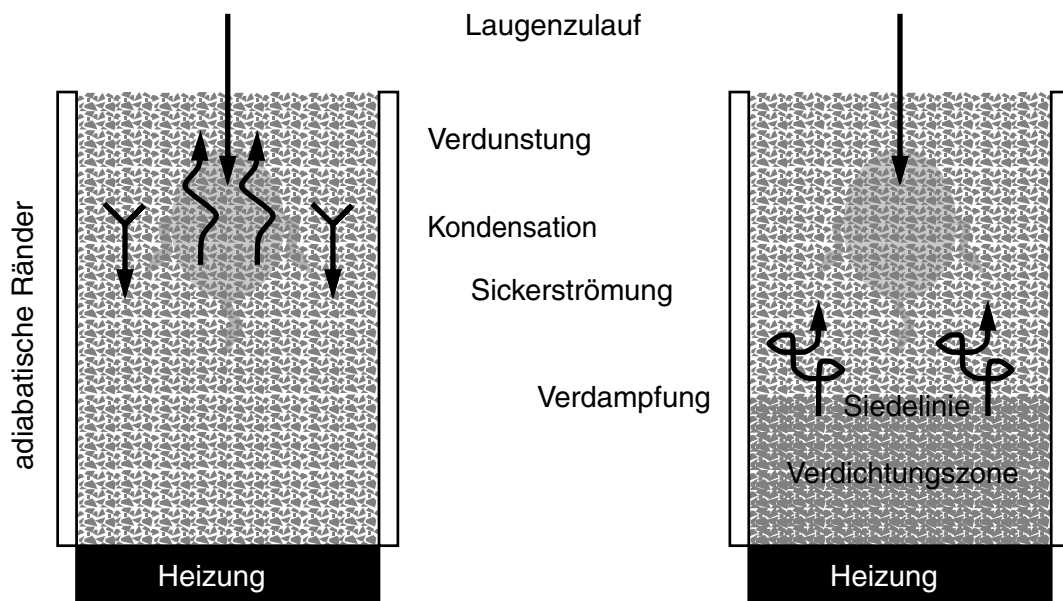


Abb. 5.6: Physikalische Effekte und Randbedingungen beim Experiment II

5.2.2 Experimentelle Randbedingungen

Das Experiment wurde mit den Zulauftraten 4 ml/d und 24 ml/d durchgeführt. Diese Werte wurden nach einer Abschätzungsrechnung zur Einstellung von Verdunstungs- bzw. Verdampfungsbedingungen gewählt [B-1]. Bei diesen Zutrittsraten kann eine merkliche Störung des Temperaturfeldes durch den Laugenzufluß ausgeschlossen werden. Die höhere Zulauftrate repräsentiert einen Laugenzufluß in der Größenordnung von einigen Kubikmetern pro Jahr in der Strecke. Der Temperaturgradient ist im Experiment etwa um einen

Faktor 30 größer als in der Strecke, weshalb zum einen ein beschleunigter Ablauf der Prozesse im Experiment zu erwarten ist; andererseits folgt, daß die Grenze zwischen verdunstungs- und verdampfungsdominierten Verhältnissen in der Realität bei noch geringeren Zulaufstraten liegen wird.

5.2.3 Versuchsaufbau

Der Aufbau (Abb. 5.7) entspricht weitgehend demjenigen vom Experiment I, für die Laugezugabe wurde jedoch eine Dosierpumpe benutzt. Die Spitze der Zulaufbürette lag 1 bzw. 2,5 cm unterhalb der Salzoberfläche. Der Salzgrus war bei Versuchsbeginn trocken.

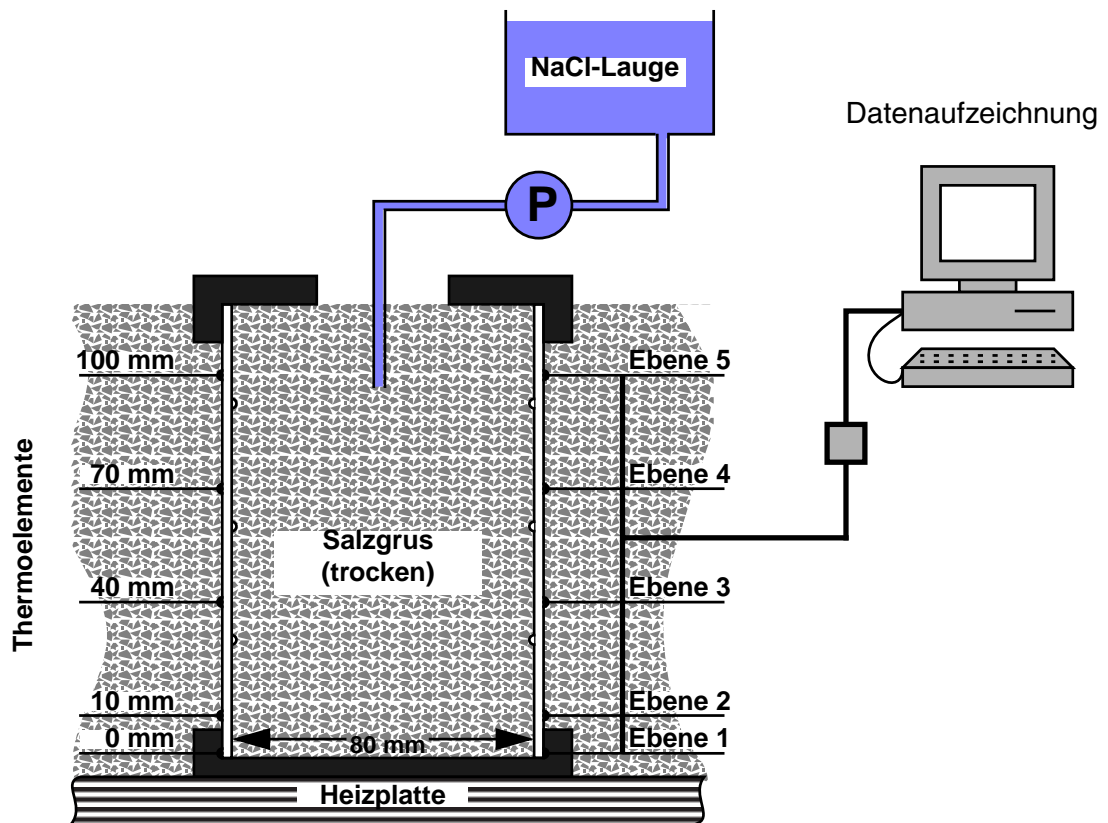


Abb. 5.7: Schema des Versuchsaufbaus für Experiment II

5.2.4 Versuchsdurchführung und -ablauf

Im ersten Teilexperiment (II-1) wurde die Zulauftrate auf 4 ml/d eingestellt. Es wurde bei 25 °C gesättigte NaCl-Lauge zugefügt. Die Laugenzugabe erfolgte dabei diskontinuierlich einmal pro Tag. Nach 28 Tagen führte ein Stromausfall zu einer kurzzeitigen Abkühlung des Systems, da hierdurch jedoch kein nennenswerter störender Einfluß auf das Experiment erwartet wurde, wurde es bis zur Gesamtversuchsdauer von 56 Tagen fortgesetzt.

Im Experiment II-2 wurde die Zulauftrate bei ansonsten unverändertem Versuchsaufbau auf 24 ml/d (kontinuierlich) eingestellt. Nach 14 Tagen bzw. einer Gesamtzugabe von 312 ml Lauge wurde der Versuch beendet.

5.2.5 Modellierung

Zu den physikalischen Vorgängen im verdunstungsdominierten Fall wurde ein numerisches Modell entwickelt. Die Flüssigkeitsbewegung wird darin durch die sogenannte Richards-Gleichung, also eine Zweiphasen-Strömungsgleichung, in der die Gasphase vernachlässigt wird, dargestellt [11]. Diese Gleichung wird häufig zur Beschreibung von Sikkervorgängen verwendet. Die Dampfbewegung wird als molekulare Diffusion von Dampf in Luft beschrieben; der antreibende Konzentrationsgradient ist dabei durch den temperaturabhängigen Sättigungsdampfdruck bestimmt. Diese Technik bedeutet die Vernachlässigung der Verdunstungs- und Kondensationskinetik sowie der druckgetriebenen Gasströmung, die Dampferzeugungsrate ist allein durch die Diffusionsgeschwindigkeit festgelegt. Die Dampfquellrate impliziert zugleich eine ortsabhängige Kristallisationsrate, welche die Salzumlagerung beschreibt. Das Modell ist im modelltheoretischen Bericht [B-1] genauer beschrieben.

Zur Modellierung der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung sowie der Abhängigkeit der relativen Permeabilität von der Sättigung wurden Standard-Funktionen nach Corey verwendet. Eine bessere Anpassung an die tatsächlichen Verhältnisse dürfte mit denjeni-

gen Funktionen möglich werden, die von Nitsche speziell für Salzgrus bestimmt wurden [B-3]. Diese Ergebnisse lagen bei Durchführung der Rechnungen noch nicht vor und konnten daher nicht mehr berücksichtigt werden.

5.2.6 Ergebnisse

Bezüglich des Versuchsergebnisses gibt es erhebliche Unterschiede zwischen dem verdampfungs- und dem verdunstungsdominierten Experiment. Bei geringer Zulauftrate verdunstet die Flüssigkeit bereits im Umfeld der Zutrittsstelle. Dort bildet sich eine kegelförmige Verdichtungszone aus, in der die Porosität bis auf Werte um 17% reduziert ist. Etwas unterhalb dieses Kegels ist eine scheibenförmige, weniger stark ausgeprägte Verdichtungszone zu beobachten (Abb. 5.12). Beide Bereiche werden durch die Modellrechnungen qualitativ bestätigt. Letztere zeigen, daß sich die obere Verdichtungszone im Zeitverlauf vergrößert, die untere dagegen mit fast gleichbleibender Dicke allmählich nach unten wandert (vgl. die MPEG-Animationen auf der Begleit-CD). Das bedeutet, daß es in bestimmten Bereichen zunächst zu einer Verdichtung kommt, die sich später wieder auflockert. Dieser Effekt kann durch Kondensation von sich abkühlendem, aufwärts strömendem Wasserdampf erklärt werden. Die quantitativen Unterschiede zwischen Modell und Experiment werden auf die nur unzureichend genau bekannten Stoffgesetze sowie die vereinfachte Modellierung zurückgeführt.

Bei der höheren Zulauftrate findet Verdunstung nur in der Anfangsphase des Experiments statt. Bereits nach kurzer Zeit erreicht die Laugenfront die Siedelinie und es kommt zu Verdampfungsvorgängen. Der dabei massiv entstehende Dampf wird durch den Druckgradienten nach oben getrieben und führt dort zu einer Dampfübersättigung des Porenraumes, wodurch jegliche Verdunstung unterbunden wird. Demzufolge ist das oben beschriebene Modell hier nicht anwendbar. Im Experiment wird erwartungsgemäß eine starke Verdichtung im Siedebereich beobachtet, die allerdings durch einige Kanäle und Randläufigkeiten unterbrochen ist. Weiterhin ist um die Zutrittsstelle herum ein offener Hohlraum entstanden. Dies kann als Nachlösung durch die sich beim Eintritt in den Salzgrus erwärmende Lauge interpretiert werden, jedoch erklärt dieser Effekt nur ca. ein Viertel des Hohlraumvolumens (Abschätzung dazu in [B-1]). Daher ist davon auszugehen,

daß an dessen Wänden Dampf kondensiert und weiteres Salz auflöst. Die Abläufe bei der Verdampfung sind schwer modellierbar und daher nicht durch Modellrechnungen nachvollzogen.

Die Temperaturverläufe aus den beiden Teilexperimenten sind in den Abbildungen 5.8 bis 5.10 dargestellt. Bei II-2 erfolgt die Einstellung eines quasistationären Zustandes in der relativ kurzen Zeit von ca. 5 Tagen, danach hat offenbar die Laugenfront die Siedelinie erreicht und Laugenzulauf und Verdampfung halten sich die Waage. Bei II-1 dagegen entwickelt sich das Temperaturfeld gleichmäßig über die gesamte Versuchslaufzeit, was im Einklang mit der theoretischen Vorhersage eines stetigen Vordringens der Laugenfront steht. Insgesamt ist die Gradientenänderung hier auch weniger ausgeprägt als bei II-2.

Computertomographische Aufnahmen sind in den Abbildungen 5.11 bis 5.12 dargestellt. Abbildung 5.11 zeigt eine Gegenüberstellung der Computertomographie von II-1 mit der modelltheoretisch ermittelten Dichteverteilung. Man erkennt in beiden Bildern die obere kegelförmige und die untere scheibenförmige Verdichtungszone. Die quantitativen Unterschiede bezüglich der Ausbildung der beiden Zonen sowie des Zeitmaßstabs (das Experiment lief 60 Tage, während die Modellzeit lediglich 16 Tage betrug) sind auf die Unsicherheit der Stoffgesetze sowie der oberen Randbedingung zurückzuführen. Qualitativ kann von einer guten Übereinstimmung gesprochen werden, was belegt, daß die vorherrschenden Prozesse verstanden sind.

5.2.7 Schlußfolgerungen

Während der Zuflußphase ist im Versatz mit Verdichtungen und Auflockerungen zu rechnen. Bei hinreichend geringen Zulaufraten sind die Prozesse verdunstungsdominiert und die Verdichtungen finden in Bereichen mit Temperaturen unterhalb der Siedetemperatur statt. Bei höheren Zulaufraten kommt es zu Verdampfungsprozessen; Verdichtungszone sind dann in Bereichen mit Temperaturen um die und oberhalb der Siedetemperatur zu erwarten. In diesem Fall führen die Auflockerungen zu stark heterogenen Zonen mit lokal hoher Durchlässigkeit, deren Anordnung nicht prognostizierbar ist.

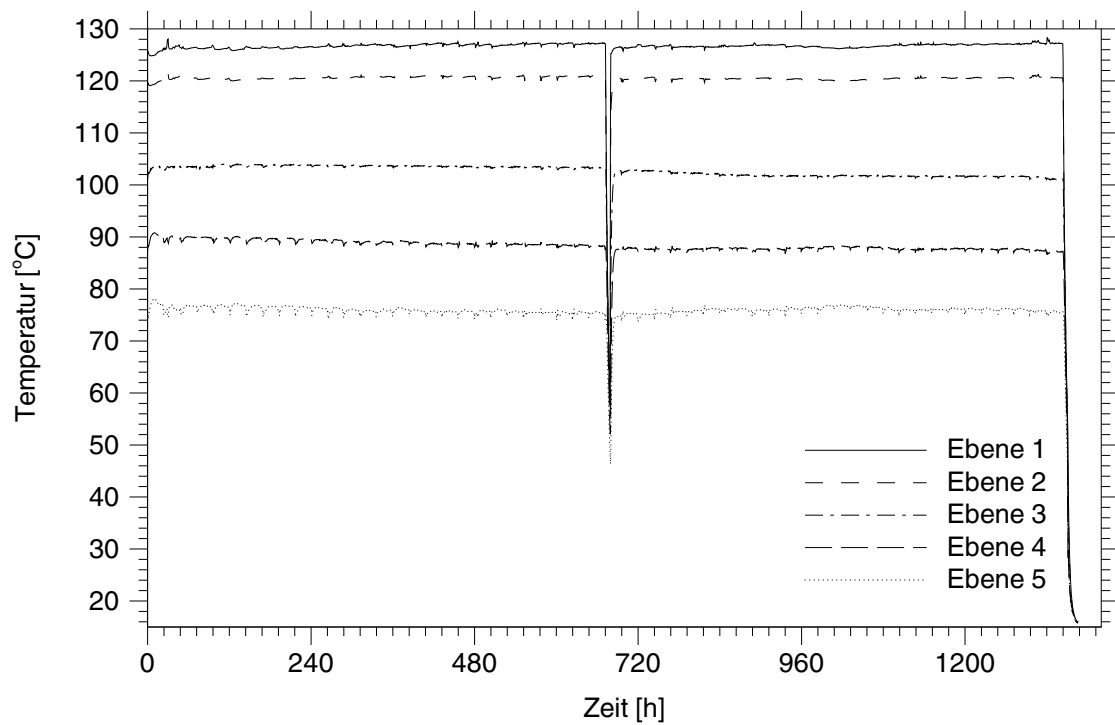


Abb. 5.8: Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment II-1. Der Einbruch in der Mitte ist auf einen kurzzeitigen Stromausfall zurückzuführen

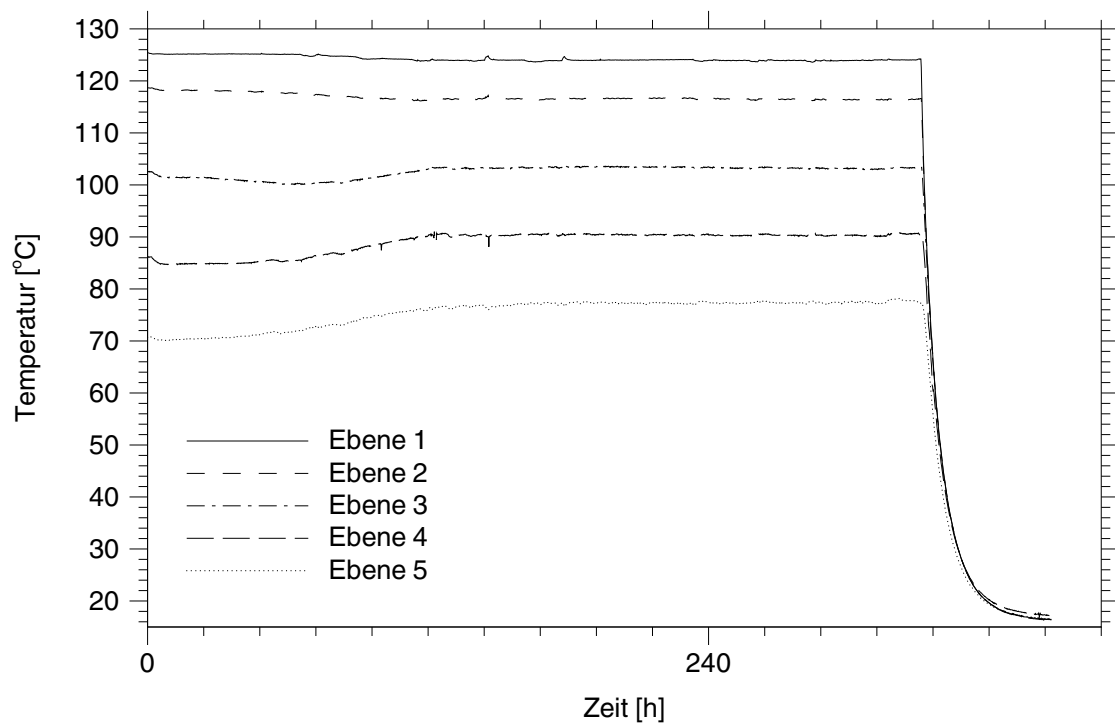


Abb. 5.9: Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment II-2

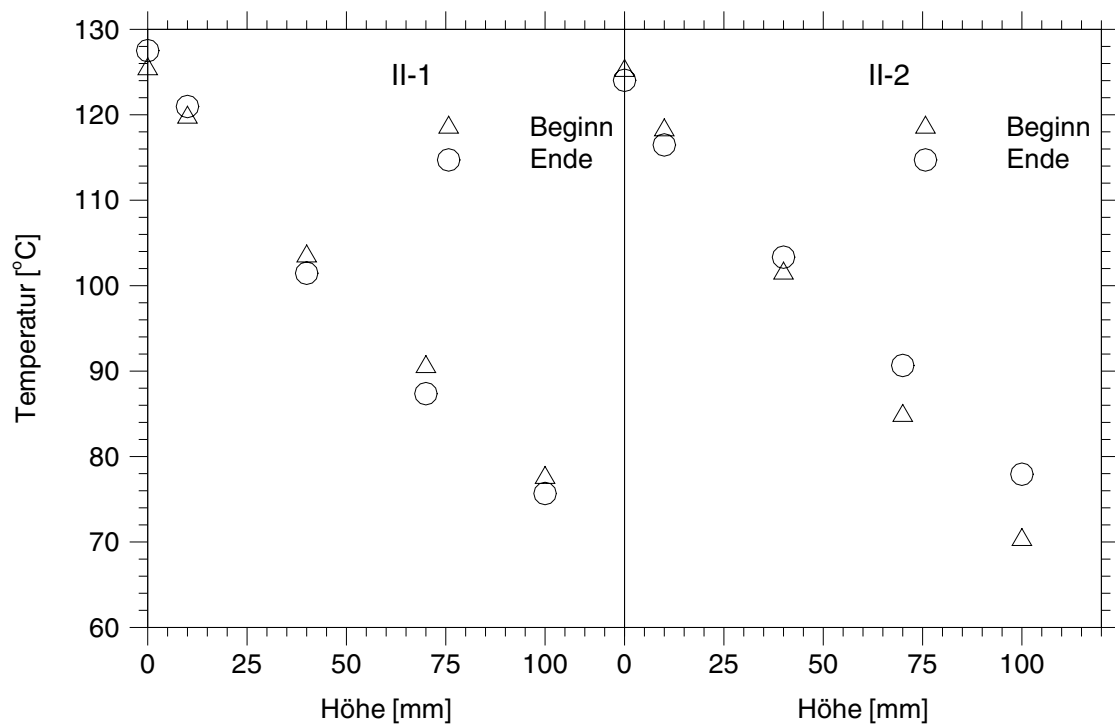


Abb. 5.10: Vertikale Temperaturverteilung in beiden Teilexperimenten

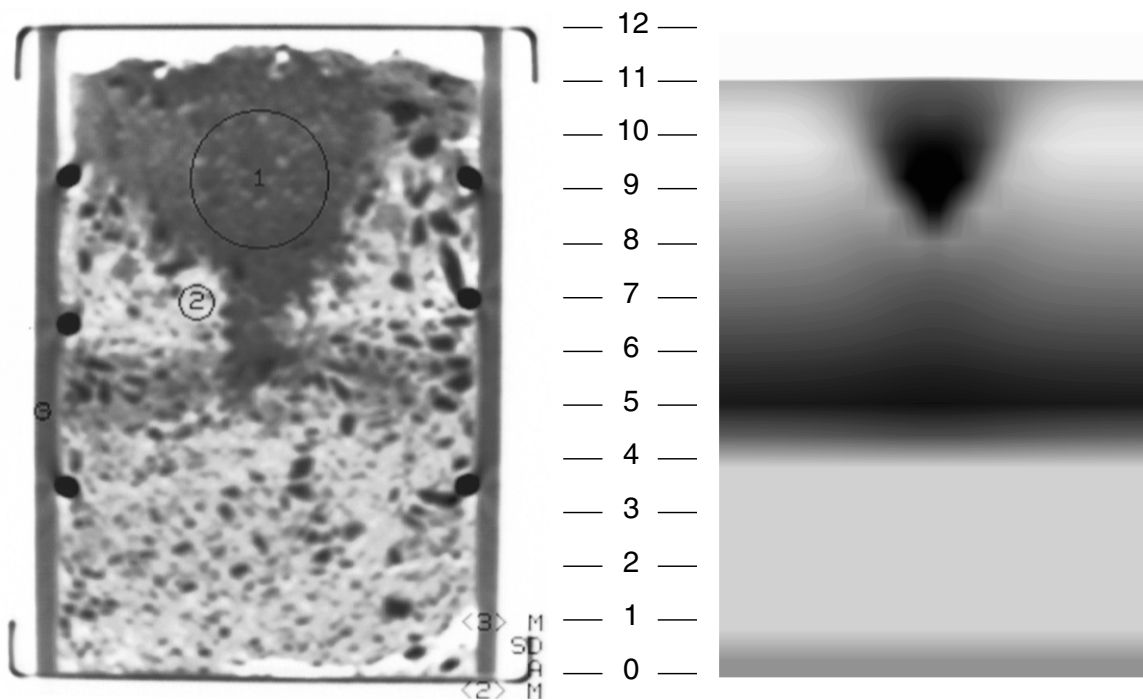


Abb. 5.11: Computertomographischer Vertikalschnitt der Probe II-1 (links) und modelltheoretisch ermittelte Dichteverteilung (rechts)

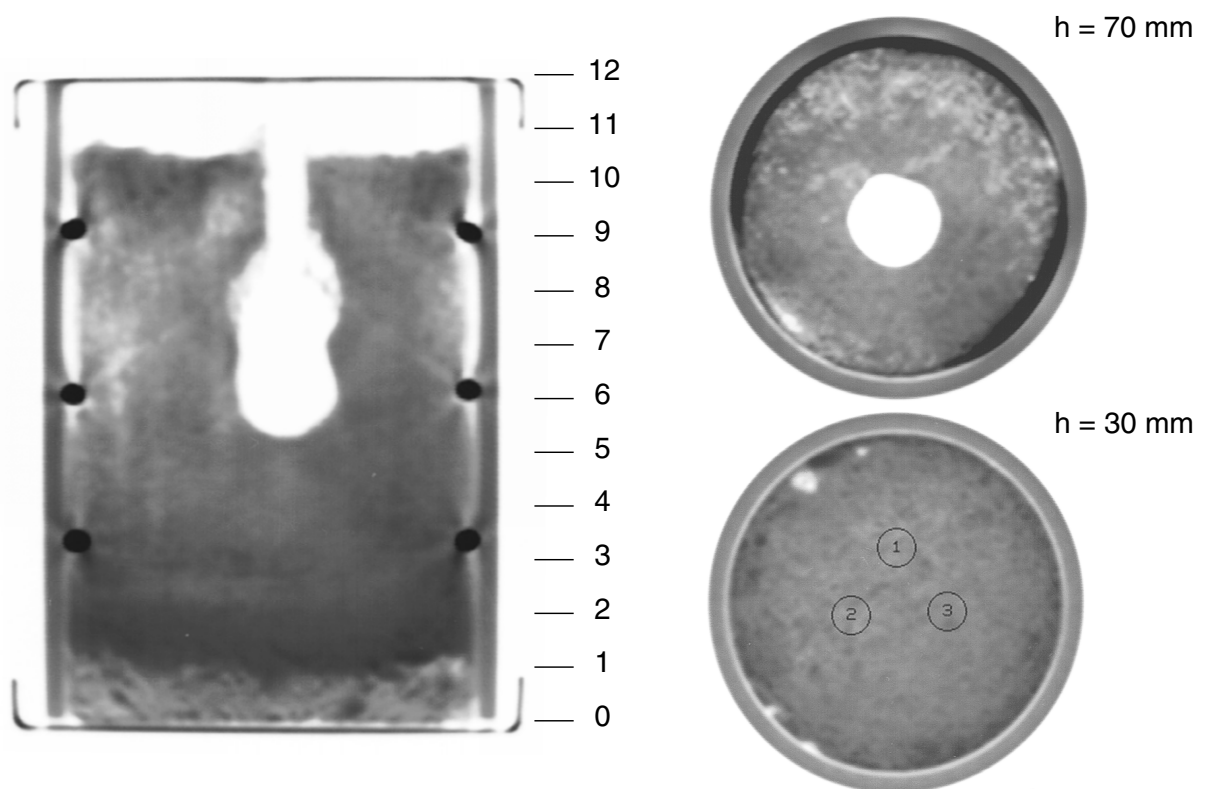


Abb. 5.12: Computertomographische Schnittbilder der Probe II-2

5.3 Umlösungen beim Zweiphasenfluß im teilgefüllten Porenraum

5.3.1 Motivation und Zielsetzung

Wenn die Gesamtmenge der in die Einlagerungsstrecke zugetretenen Lauge nicht ausreicht, um den Porenraum vollständig aufzufüllen, stellt sich aufgrund der Kapillarkräfte im Versatz ein teilgesättigter Zustand ein, in dem es zu thermisch induzierten Zweiphasen-Strömungsvorgängen kommen kann. Im Salzgrus sind alle Phasenübergänge mit Salzauflösungs- bzw. -abscheidungsprozessen verbunden, so daß mit deutlichen Umlagerungen zu rechnen ist. Die Bildung von abdichtenden Schutzschichten könnte dadurch unterstützt oder behindert werden. Zur Klärung derartiger Vorgänge wurde das Experiment III konzipiert. Sofern im Experiment die Siedetemperatur überschritten wird, ist ähnlich wie im Experiment II-2 mit massiver Dampfproduktion zu rechnen, wodurch es wie

dort zu kaum vorhersagbaren Salzulagerungen kommen würde. Zur Verständnisbildung wurde der Versuch daher in einem Temperaturbereich unterhalb der Siedetemperatur durchgeführt.

Abbildung 5.13 gibt einen Überblick über die Randbedingungen und die erwarteten Effekte. Von dem Experiment wird neben einer Bestätigung der Modellvorstellungen in erster Linie Aufschluß über die durch Zweiphasenprozesse unterhalb der Siedetemperatur erreichbare Versatzverdichtung erwartet.

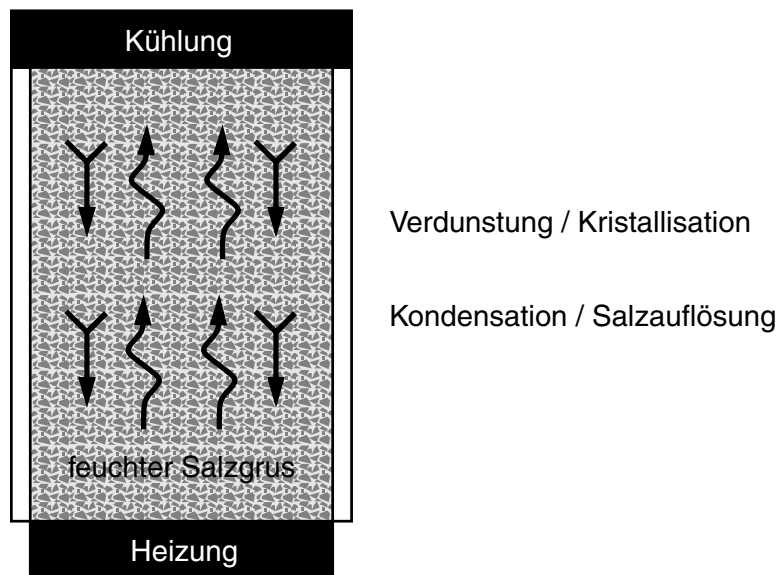


Abb. 5.13: Randbedingungen und physikalische Effekte beim Experiment III

5.3.2 Experimentelle Randbedingungen

Das Experiment stellt die Vorgänge in einer Einlagerungsstrecke mit feuchtem, aber nicht laugegesättigtem Versatz ohne Siedeprozesse dar, wie sie in der Realität z. B. auftreten könnten, wenn sich bereits eine Schutzschicht gebildet hat, die das Vordringen von Lauge in die heißesten Bereiche soweit verhindert, daß es nicht zu nennenswerten Siede-

prozessen kommt. In diesem Fall wäre mit Wärmestromdichten zu rechnen, die um einen Faktor in der Größenordnung von 10 unterhalb des im Experiment erwarteten Wertes von ca. 700 W/m^2 liegen.

5.3.3 Versuchsaufbau

Das Experiment wurde zunächst zweimal mit einem Aufbau durchgeführt, der demjenigen der Experimente I und II sehr ähnlich war. Es wurde lediglich der offene Deckel durch einen Temperieraufsatz ersetzt, um einerseits ein materiell abgeschlossenes System zu erhalten und andererseits eine definierte Temperaturreandbedingung an der Oberseite zu erreichen. Die Innensäule wurde mit befeuchtetem Salzgrus (Feuchtegehalt 15 Gewichts-%, entsprechend einer Porenraumsättigung von ca. 53 %) gefüllt. Es stellte sich jedoch heraus, daß der Versuch durch am Temperieraufsatz anfallendes und mittig herabtropfendes Süßwasserkondensat so stark gestört wurde, daß aufgrund von Kanalbildung eine sinnvolle Auswertung nicht möglich schien. Daher wurde ein weiteres Experiment (III-3) mit modifiziertem Aufbau (Abb. 5.14) durchgeführt, bei dem sich im oberen Bereich der Säule ein massiver Steinsalzblock befand. Dadurch sollte das Kondensat zur sofortigen Nachlösung von Salz gebracht und somit das lokale Abtropfen von Süßwasser verhindert werden. Aufgrund der größeren Säulenhöhe wurde die Zahl der Temperaturmeßebenen auf acht erhöht, ein zusätzliches Thermoelement wurde direkt mittig in den Salzblock eingebracht. Die Heiztemperatur wurde auf $105 \text{ }^\circ\text{C}$, die Kühltemperatur auf $25 \text{ }^\circ\text{C}$ eingestellt.

5.3.4 Versuchsdurchführung und -ablauf

Die Experimente III-1 und III-2 wurden nach 36 bzw. 45 Tagen Versuchslaufzeit beendet. Die Salzkörper wiesen nach diesen Zeiten große röhrenförmige Hohlräume im Bereich der Mittelachse auf, die sich offenbar durch herabtropfendes Süßwasserkondensat gebildet hatten. Beim Experiment III-3 war dieser Effekt dagegen durch den im Deckelbereich angebrachten Salzblock unterbunden, dementsprechend ergab sich auch ein völlig anderes Bild. Das Experiment lief 2077 Stunden, also ca. 87 Tage. Bereits nach drei Tagen wurde Kondensat im Spalt zwischen dem Salzblock und der Glaswand beobachtet.

Ab ca. 500 Stunden nach Versuchsbeginn wurde ein Temperaturanstieg auf allen Ebenen beobachtet, der zunächst als systembedingter Effekt gedeutet wurde. Tatsächlich lag die Ursache jedoch in einem Verstopfen der Kühlwasserpumpe. Nach Behebung des Problems wurde der Versuch normal fortgesetzt, weil kein signifikanter Einfluß auf das Versuchsergebnis von dieser Störung zu erwarten war.

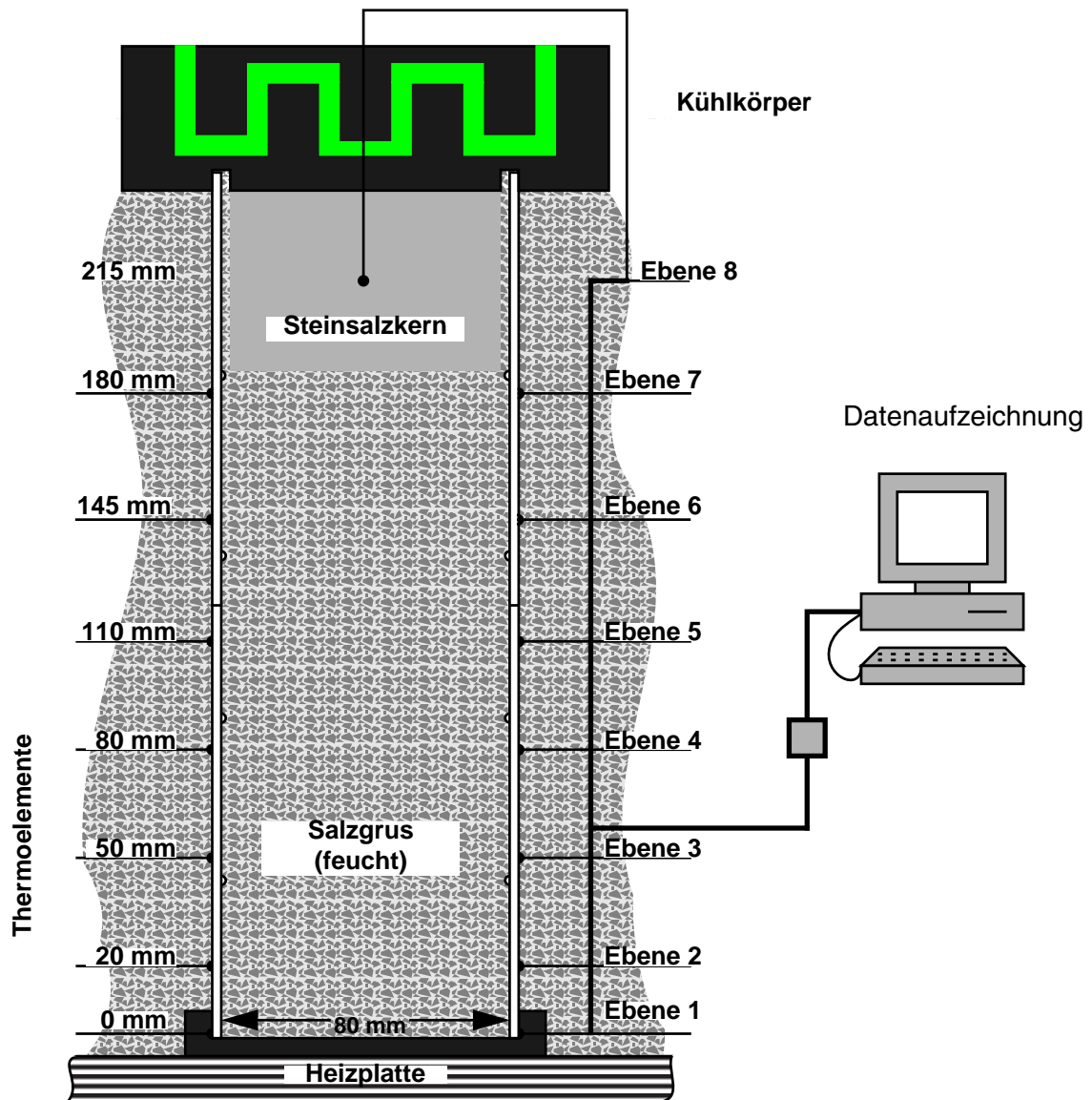


Abb. 5.14: Versuchsaufbau Experiment III-3

5.3.5 Modellierung

Das Experiment III wird von Mehrphaseneffekten beherrscht. Das System Salzgrus - Lauge - Wasserdampf - Luft ist ein Dreiphasen-Dreikomponenten-System, in dem Phasenübergänge nicht nur zwischen der flüssigen und der Gasphase möglich sind, sondern aufgrund von Auflösungs- und Ausfällungseffekten auch zwischen der festen und der flüssigen Phase. Ein derartiges System ist modelltheoretisch zwar beschreibbar, numerisch aber wegen seiner Komplexität kaum zu handhaben. Für die Modellierung wurde daher ein vereinfachtes System mit einer chemisch inaktiven und unbeweglichen festen Phase gewählt. Selbstverständlich kann ein solches Modell nur die Anfangsphase des Experiments darstellen, in der noch keine wesentlichen Salzulagerungen erfolgt sind.

Da die stabile numerische Modellierung von Mehrphasenströmungen nicht einfach ist, wurde von einer Eigenentwicklung abgesehen und stattdessen auf das existierende, validierte Programm MUFTE [8] zurückgegriffen, welches Wasser-Dampf-Systeme berechnet. Weil ohnehin nur eine Tendenzaussage zu erwarten war, wurde anstelle des im Experiment untersuchten Salzgruses ein Mittelsand und anstelle der Lauge Wasser angenommen. Dementsprechend wurde die Heiztemperatur auf 98 °C reduziert, um Siedevorgänge auszuschließen. Das System wurde sowohl eindimensional als auch plattenförmig-zweidimensional mit einer aufgeprägten horizontalen Inhomogenität modelliert (Abb 5.15). Die Rechnungen wurden jeweils bis zur Einstellung eines stationären Zustandes ausgeführt, der nach Modellzeiten von einigen Stunden bis zu etwa einem Tag erreicht wurde. Aus den vom Programm berechneten Massenströmen wurden im Nachhinein Phasenübergangsraten und daraus wiederum hypothetische Salzauflösungs-/kristallisationsraten bestimmt. Diese Raten dürfen jedoch nur als Schätzwerte in der Anfangsphase verstanden werden. Das Modell ist nur eingeschränkt auf die Verhältnisse des Experiments übertragbar. Insbesondere von der zweidimensionalen Modellierung war lediglich eine qualitative Aussage darüber zu erwarten, ob die experimentellen Beobachtungen grundsätzlich allein durch Zweiphasenprozesse erklärbar sind.

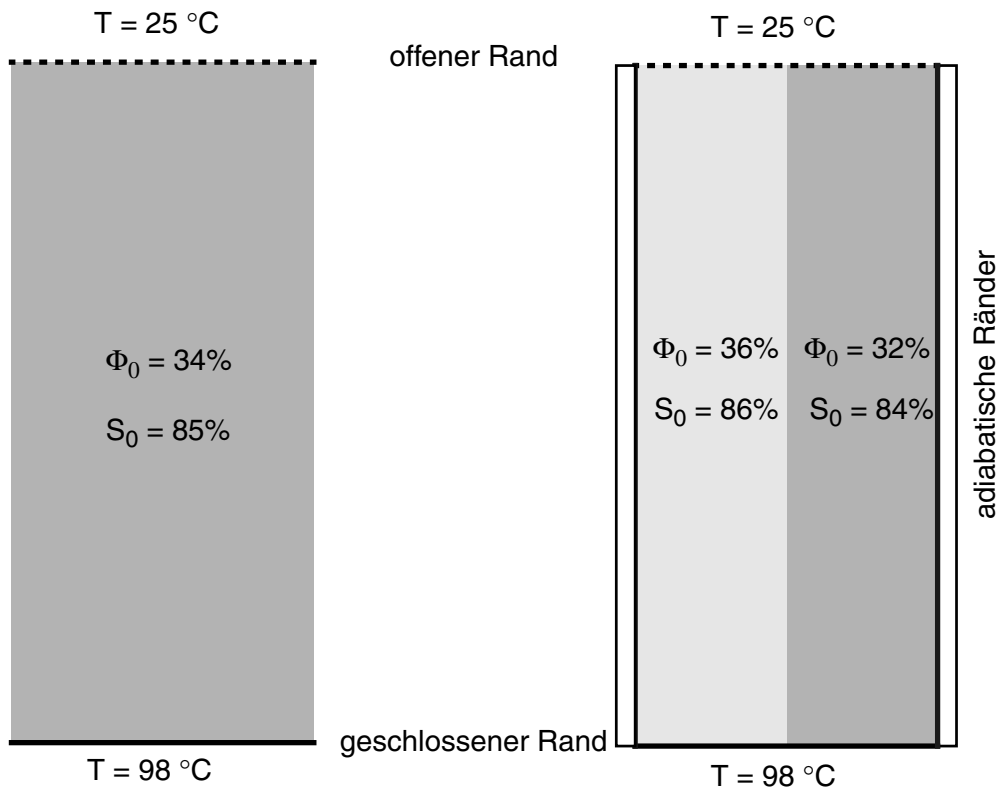


Abb. 5.15: Anfangs- und Randbedingungen für die eindimensionale (links) und zwei-dimensionale (rechts) Modellierung für Experiment III

5.3.6 Ergebnisse

Im Experiment wurde im unteren Bereich eine Verdichtung aufgrund von Verdunstung und im oberen kühleren Bereich eine Auflockerung durch Dampfkondensation und damit verbundene Auflösungen festgestellt. Der Steinsalz Kern war nach Versuchsende bereits zu einem erheblichen Teil aufgelöst. Diese Beobachtungen werden in ihrer Tendenz durch die Modellrechnungen bestätigt.

Die Porosität des verdichteten Bereiches wurde zu 14 % ermittelt, für die Permeabilität wurde ein Wert von $2,4 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ gemessen. Dieser ist geringer als im Experiment I, was darauf zurückgeführt wird, daß die langsamere Verdunstung bei insgesamt längerer Versuchsdauer eine vollständigere Porenraumfüllung durch Salz bewirkt.

Die computertomographische Untersuchung der Probe (Abb. 5.19) zeigt, daß im Experiment offenbar asymmetrische Vorgänge zu einem Salztransport in horizontaler Richtung geführt haben. Um derartige Prozesse modelltheoretisch zu erfassen, wurde die zweidimensionale Modellierung durchgeführt, wobei aus technischen Gründen eine flache Quadergeometrie angenommen wurde. Diese Modellrechnungen ergaben jedoch keinen Hinweis auf nennenswerte horizontal gerichtete Massenströme.

In Abb. 5.16 ist der zeitliche Temperaturverlauf dargestellt. Abgesehen von der erwähnten Störung zwischen 500 und 750 Stunden sind kaum Schwankungen erkennbar. Lediglich die Temperatur im Steinsalzdeckel nimmt gleichmäßig ab, was auf eine Verringerung der Wärmeleitfähigkeit unterhalb des Deckels durch Hohlraumbildung bei gleichbleibend gutem Wärmekontakt mit dem Kühlkörper hindeutet. Der vertikale Temperatur-

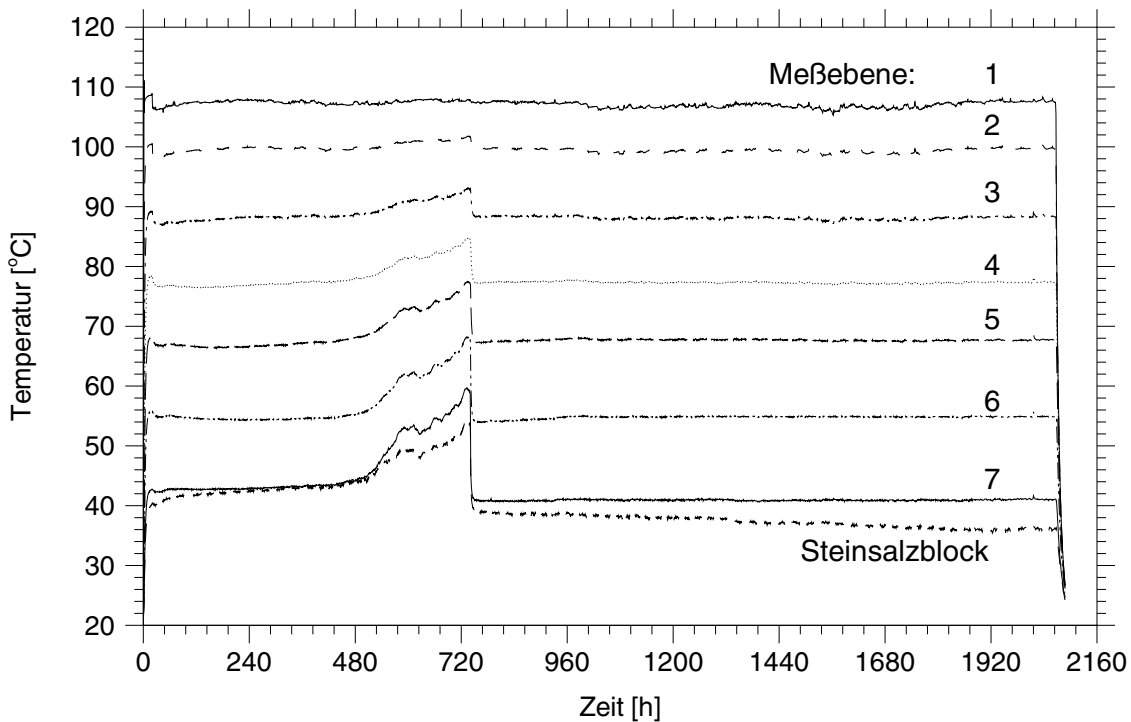


Abb. 5.16: Zeitlicher Temperaturverlauf im Experiment III-3

verlauf (Abb. 5.17) zeigt einen räumlich und zeitlich praktisch konstanten Gradienten im gesamten Salzgrusbereich. Dies bestätigt zum einen die gute experimentelle Realisierung adiabatischer Wände (andernfalls würde sich ein gekrümmter Temperaturverlauf einstellen) und zeigt zum anderen, daß Porositätsänderungen im feuchten Salzgrus

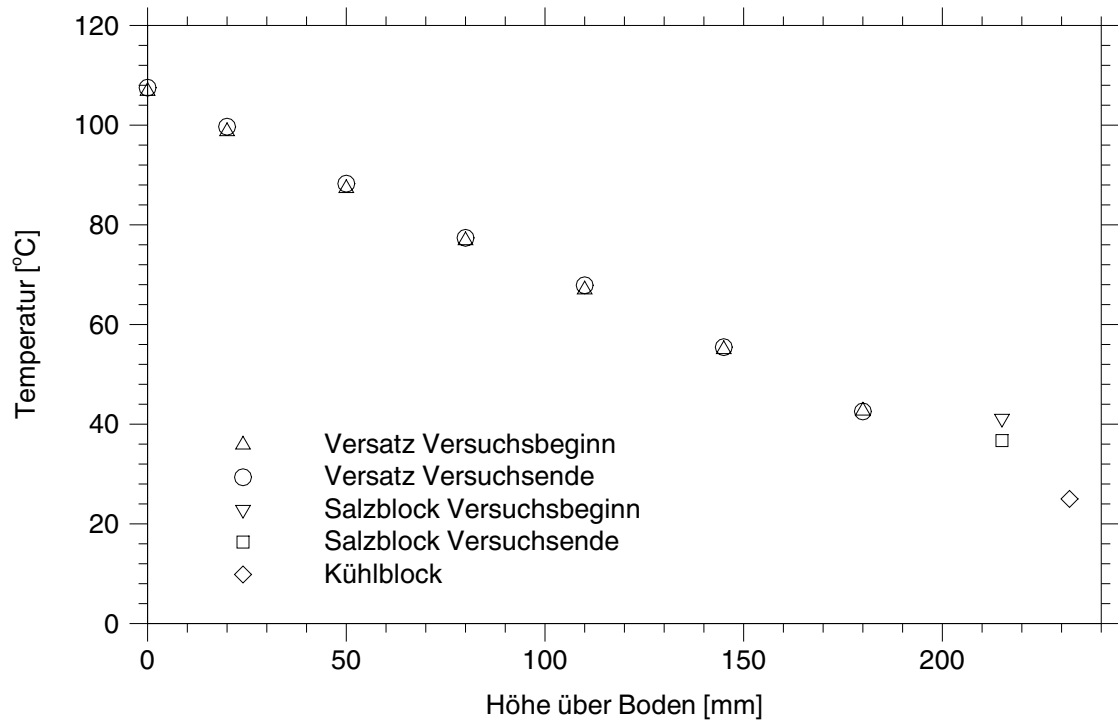


Abb. 5.17: Vertikale Temperaturverteilung im Experiment III-3

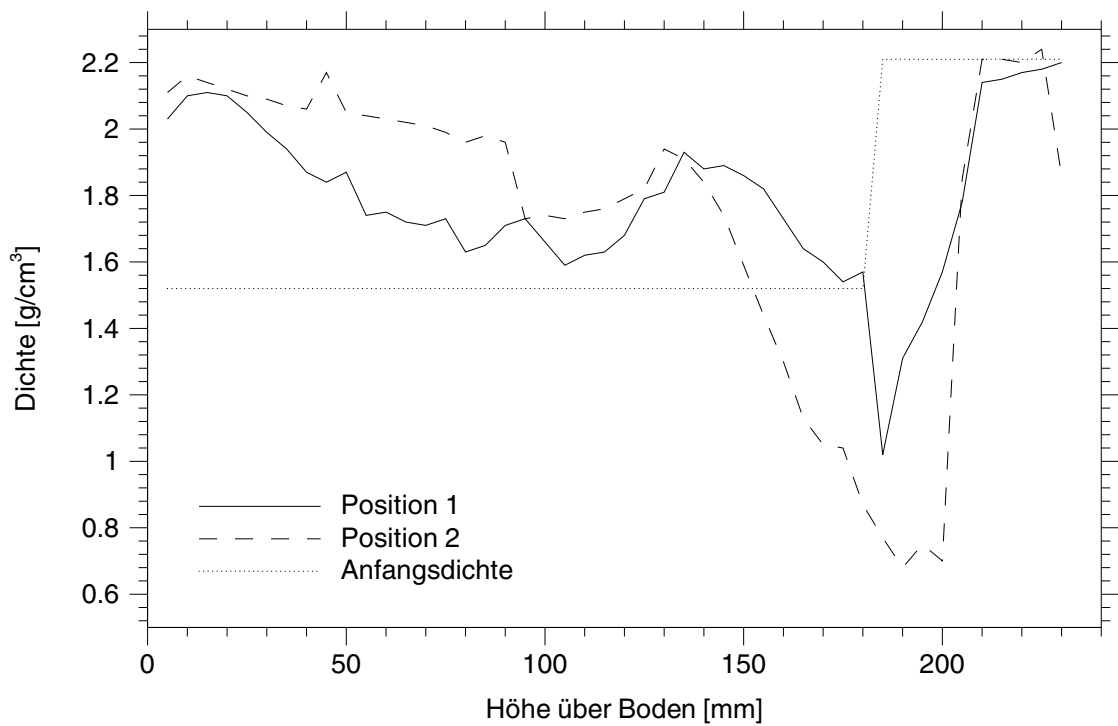


Abb. 5.18: Vertikale Dichteverteilung im Experiment III-3

kaum Einfluß auf die Wärmeleitfähigkeit haben (allerdings ist zu beachten, daß räumliche und zeitliche Temperaturschwankungen durch die Messung am Außenrand des Glaszylinders geglättet werden).

In Abb. 5.18 ist die vertikale Dichteverteilung dargestellt, wie sie aus der Computertomographie ermittelt wurde. Dabei sind die Messungen von zwei gegenüberliegenden Meßpositionen (s. Abb. 5.20) im Probenquerschnitt gegenübergestellt. Die Anfangsdichte ist zum Vergleich ebenfalls eingetragen. Man erkennt die Tendenz einer Dichteabnahme nach oben sowie die Auflösung des Steinsalzblocks von unten her. Die Tatsache, daß die beiden Meßkurven sich schneiden, deutet auf eine asymmetrische Verteilung von verdichteten und aufgelockerten Zonen hin. Dies wird auch durch die optische Ansicht der Computertomogramme (Abb. 5.19 und 5.20) bestätigt.

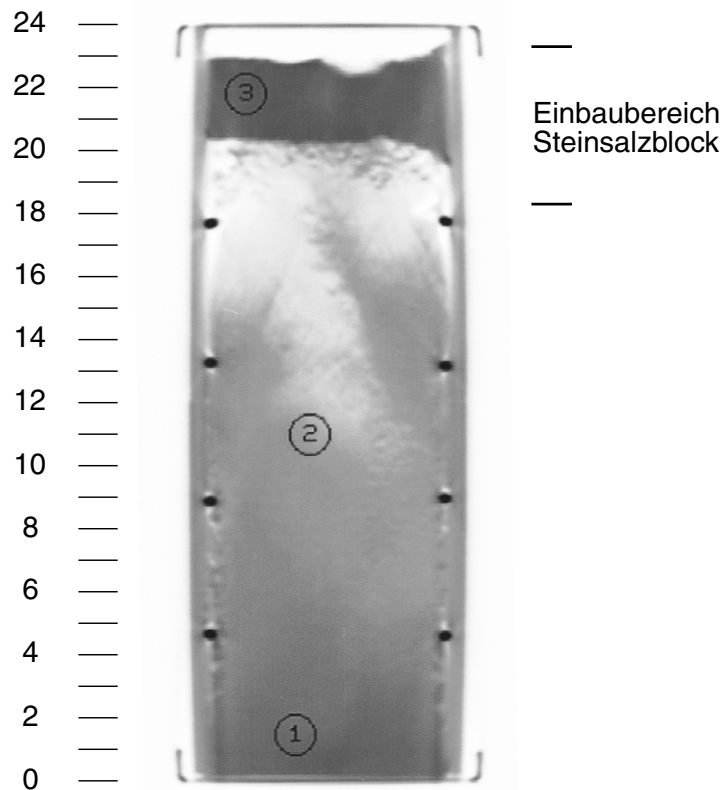


Abb. 5.19: Computertomographischer Vertikalschnitt der Probe III-3

Durch den optischen Eindruck motivierte mikroskopische Untersuchungen des Probenkörpers vom Experiment III-3 zeigen, daß es im Versuchsverlauf zu einem Wachstum der Kristallite, vornehmlich im unteren heißen Bereich, gekommen ist. Dies wird vornehmlich auf den Effekt der Ostwald-Reifung zurückgeführt, d. h. große Kristalle wachsen auf Ko-

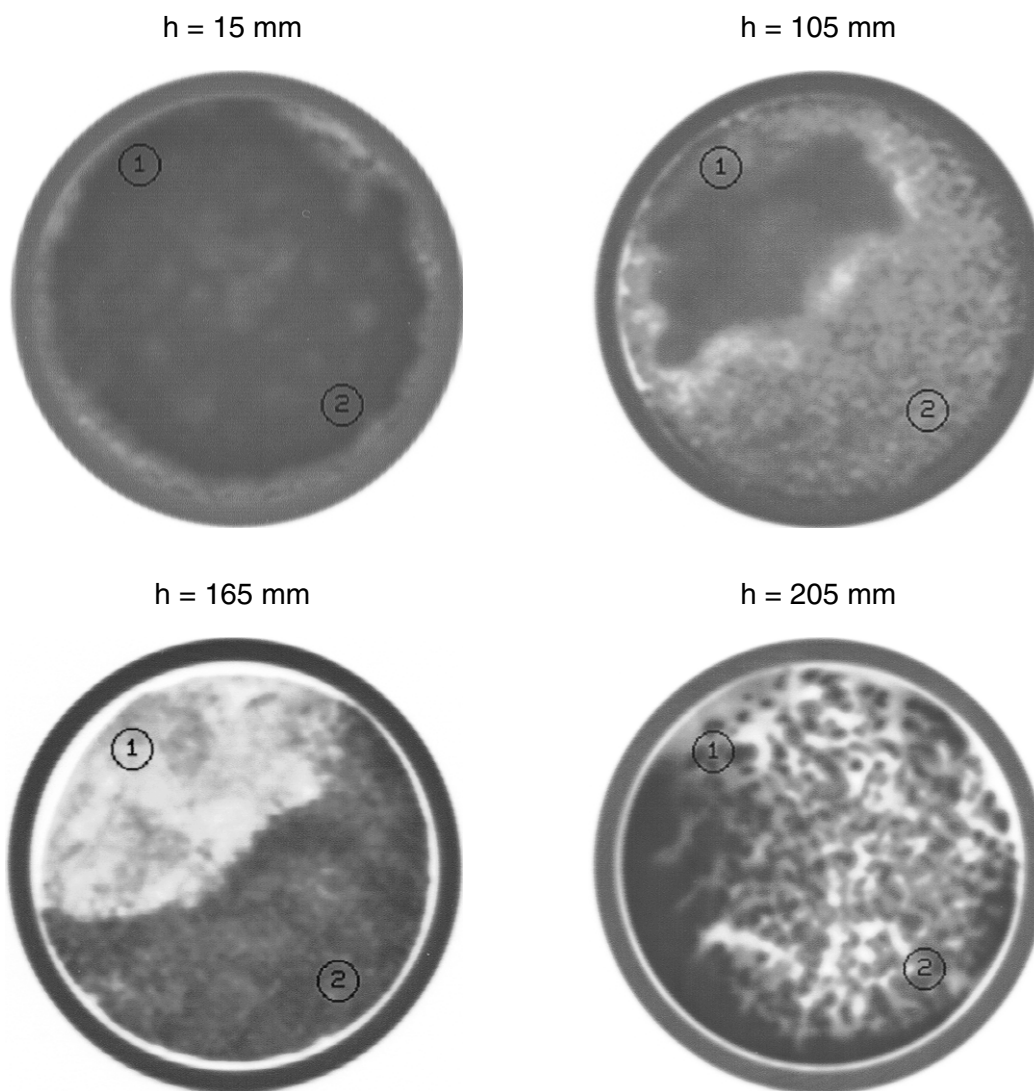


Abb. 5.20: Computertomographische Horizontalschnitte der Probe III-3

sten kleinerer. Dieser Prozeß wird angetrieben durch die energetisch bedingte Tendenz des Systems, die Gesamtoberfläche der Kristalle zu minimieren. Derartige Vorgänge bewirken lokale Salzulagerungen. Sie beeinflussen damit zwar nicht direkt die Porosität, können aber über die Korngrößenverteilung die Permeabilität verändern. Nähere Ausführungen und Abbildungen zu diesen Untersuchungen sind im experimentellen Bericht [B-5] enthalten.

Durch die eindimensionalen Modellrechnungen wurde die vertikale Salzschiebung im wesentlichen bestätigt. Abhängig von der Laugenmobilität (diese hängt von der Versatzpermeabilität sowie der Anfangssättigung ab) wurden zwei unterschiedliche Abläufe ermittelt:

- Bei hoher Mobilität erreicht die Flüssigkeit schnell den unteren Modellrand, bei Nichtberücksichtigung der Umlösungsprozesse stellt sich ein stationärer Zustand bezüglich der Zweiphasenströmung ein. Die Verdunstung findet dabei in einem sehr schmalen Bereich direkt am Boden statt, darüber gibt es nur noch Kondensation.
- Bei geringerer Laugenmobilität bildet sich dagegen im unteren Modellbereich eine Austrocknungszone, die sich mit der Zeit nach oben hin ausbreitet. Der abwärts gerichtete Laugenstrom reicht in diesem Fall nicht aus, die Verdunstung zu kompensieren.

Betrachtet man die aus den Phasenübergangsraten berechneten hypothetischen Salzauflösungs-/abscheidungsrate, so ergibt sich im ersten Fall eine rasche Porositätsabnahme am Boden, verbunden mit einer Auflockerung im gesamten übrigen Bereich. Im zweiten Fall wandert der Verdichtungsbereich mit der Grenze der Austrocknungszone nach oben; je langsamer dies geschieht, desto stärker ist die Verdichtung. Es stellt sich ein Endzustand ein, in dem die Verdichtung etwas oberhalb des Bodens ein Maximum annimmt. Diese Aussagen sind allerdings lineare Extrapolationen der Umlöseraten im Anfangszustand und können somit nur die Anfangstendenz beschreiben. Für weitergehende Aussagen wäre eine gekoppelte Berechnung erforderlich, die das verfügbare Modell nicht zu leisten vermag.

Mit Anfangsbedingungen, die in bestmöglicher Weise denen des Experiments entsprechen, stellt sich die Dynamik entsprechend einer hohen Mobilität ein. Dies ändert sich jedoch bereits bei einer Verringerung der Anfangssättigung um 6 % oder der Versatzpermeabilität um eine Größenordnung. Angesichts der Unsicherheiten, insbesondere bei den für Zweiphasenströmungen relevanten Stoffgesetzen für Salzgrus, kann hierzu keine eindeutige Aussage getroffen werden.

Die zweidimensionalen Rechnungen ergaben keine Hinweise auf nennenswerte Strömungs- und Salzumlagerungsprozesse in horizontaler Richtung. Vielmehr stellen sich in den beiden Bereichen weitgehend unabhängig voneinander ähnliche Verhältnisse wie im eindimensionalen Fall ein. Es kommt lediglich zu einem allmählichen horizontalen Ausgleich der Feuchte, so daß die vorgegebene horizontale Schichtung in eine vertikale übergeht.

Abbildung 5.21 zeigt die höhenabhängige Verteilung der vom Modell berechneten Wassermassenströme in der gasförmigen und der flüssigen Phase nach einem Tag. Erwartungsgemäß verlaufen die Kurven im Gleichgewicht spiegelbildlich bezüglich der x-Achse, der abwärts gerichtete Wasserstrom wird also an jeder Stelle durch den aufwärts gerichteten Dampfstrom kompensiert. Man erkennt, daß sich die Zweiphasenprozesse im wesentlichen im Bereich der unteren 5 cm des Modellgebiets abspielen. Darüber sind nur noch geringe Massenströme zu verzeichnen. Die kleine Abweichung zwischen Auf- und Abstrom am oberen Modellrand ist auf die Tatsache zurückzuführen, daß dieser aus technischen Gründen offen modelliert wurde, d. h. ein Dampfaustritt möglich ist. Die Größe desselben ist jedoch offensichtlich vernachlässigbar, wodurch diese Art der Modellierung nachträglich gerechtfertigt erscheint.

5.3.7 Schlußfolgerungen

Zweiphasenvorgänge bewirken einen Salztransport von den kühleren in die wärmeren Bereiche. Dort kommt es zur Verdichtung des Versatzes bis zu Permeabilitäten in der Größenordnung von 10^{-15} m^2 . Horizontale Salzumlagerungen, d. h. Transportprozesse quer zur Hauptströmungsrichtung, sind offenbar möglich, aber theoretisch nicht zu erfassen. Eventuell sind die im Versuch beobachteten Umlagerungen auch reine Laboreffekte.

Im Experiment wurde eine teilweise Auflösung des Salzdeckels durch kondensierendes Wasser beobachtet. Übertragen auf die Realität bedeutet dies, daß Vorgänge der hier untersuchten Art zu Salzauflösungen von erheblichem Umfang an der Streckenfirste führen können.

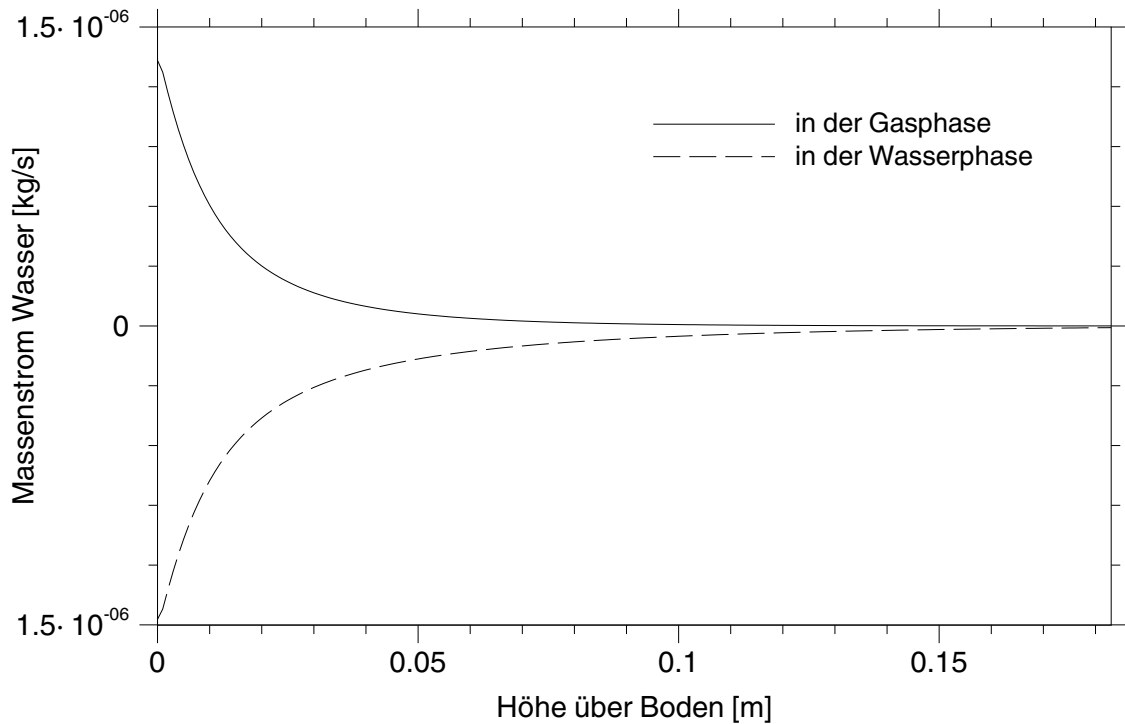


Abb. 5.21: Berechnete Wassermassenströme im Experiment III-3

Veränderungen der Kornstruktur, wie sie im Experiment beobachtet wurden, können in einer realen Einlagerungsstrecke z. B. Auswirkungen auf die Permeabilität haben und damit die Prozeßabläufe beeinflussen. Derartige Konsequenzen wurden jedoch nicht weiter untersucht.

5.4 Umlösungen bei Konvektion im laugegefüllten Porenraum

5.4.1 Motivation und Zielsetzung

Wenn die Zulauftrate hinreichend hoch ist, wird der gesamte Porenraum mit Lauge aufgefüllt. Die Restluft wird durch den Druck, der in einem solchen Fall ansteht, so stark komprimiert, daß sie keine Rolle mehr spielt. Aufgrund der durch den Temperaturgradienten bedingten Ortsabhängigkeit der Laugendichte kann es dann zu Konvektionsbewegungen kommen. Da die Salzlöslichkeit ebenfalls von der Temperatur abhängt, bewirken solche

Konvektionswalzen Salzumlagerungen, durch die eine evtl. bestehende verdichtete Salzschicht weiter verstärkt oder aber auch abgebaut werden könnte. Diese Effekte zu untersuchen, war die Zielsetzung des Experiments IV. Darin wurde eine laugegesättigte Salzgrusschüttung einem inhomogenen Temperaturfeld unterhalb der Siedetemperatur ausgesetzt, um eine thermische Konvektionsbewegung zu erzwingen. Von dem Versuch werden Erkenntnisse über Lage und Größe der sich bildenden Verdichtungs- und Auflockerungsbereiche sowie über deren Porosität und Permeabilität erwartet. Abbildung 5.22 zeigt ein Schema der Randbedingungen und physikalischen Effekte.

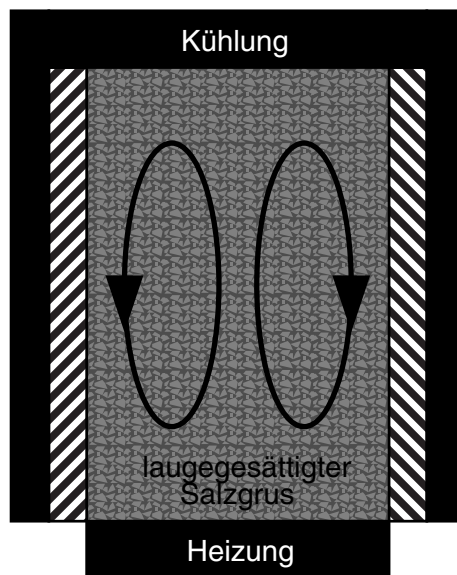


Abb. 5.22: Randbedingungen und physikalische Effekte beim Experiment IV

5.4.2 Experimentelle Randbedingungen

Eine Abschätzung über die Raleigh-Zahl [B-1] ergab, daß der vertikale Temperaturgradient allein nicht zu einer Konvektionsbewegung führt. Daher wurde im Experiment, analog den Verhältnissen, die in einer realen Einlagerungsstrecke erwartet werden, zusätzlich ein horizontaler Gradient aufgeprägt, der um einen Faktor 2 - 3 geringer als der vertikale Gradient war. Die daraus resultierende Wärmestromdichte im Experiment ist um einen

Faktor in der Größenordnung von 10 größer, als sie in einer realen Strecke zu erwarten ist. Demzufolge ist dort mit einem entsprechend langsameren Ablauf der Konvektions- und Umlagerungsvorgänge zu rechnen.

5.4.3 Versuchsaufbau

Das Experiment wurde in einer Apparatur durchgeführt, die sich vom Versuchsaufbau der Experimente I bis III in einem wesentlichen Punkt unterschied. Während dort jeweils eine möglichst adiabatische Säulenwandung angestrebt wurde, war hier ein definierter Wärmeabfluß nach außen zur Einstellung des horizontalen Temperaturgradienten erforderlich. Zur Realisierung desselben wurde die Säule mit einem Mantel aus einer Kunststoff-Vergußmasse von bekannter Wärmeleitfähigkeit ($0,4 \text{ W}/(\text{m K})$) umgeben, welcher von außen auf 25 °C gekühlt wurde. Die Heiztemperatur wurde analog zu Experiment III auf 105 °C eingestellt.

Da es sich in vorausgegangenen Versuchen als problematisch erwiesen hatte, den inneren Salzkörper gegen den Einbruch von Kühlwasser zu schützen, wurde im Experiment III-3 schließlich eine Schlauchkühlung realisiert. Der Aufbau ist schematisch in Abb. 5.23 dargestellt.

5.4.4 Versuchsdurchführung und -ablauf

Im ersten Versuch war der Außenraum mit auf 25 °C temperiertem Kühlwasser gefüllt. Aufgrund der hohen Temperaturdifferenzen im unteren Bereich konnte jedoch nicht verhindert werden, daß es nach einer Versuchslaufzeit von 420 Stunden zu einem Durchbrechen des Kühlwassers in den Probenraum und damit zu massiver Salzauflösung von außen her kam. Dieser Versuch war daher nicht sinnvoll auszuwerten. Auch beim Experiment IV-2 kam es zu Störungen. Erst im dritten Versuch wurde ein störungsfreier Ablauf erreicht. Dabei wurde zur Kühlung eine Schlauchwicklung verwendet. Kurzzeitige, lokal begrenzte Temperaturerhöhungen während des Versuchs ließen darauf schließen, daß es zeitweilig zu einseitigen Meßstörungen gekommen war. Der Versuch wurde nach ca. 18 Tagen beendet.

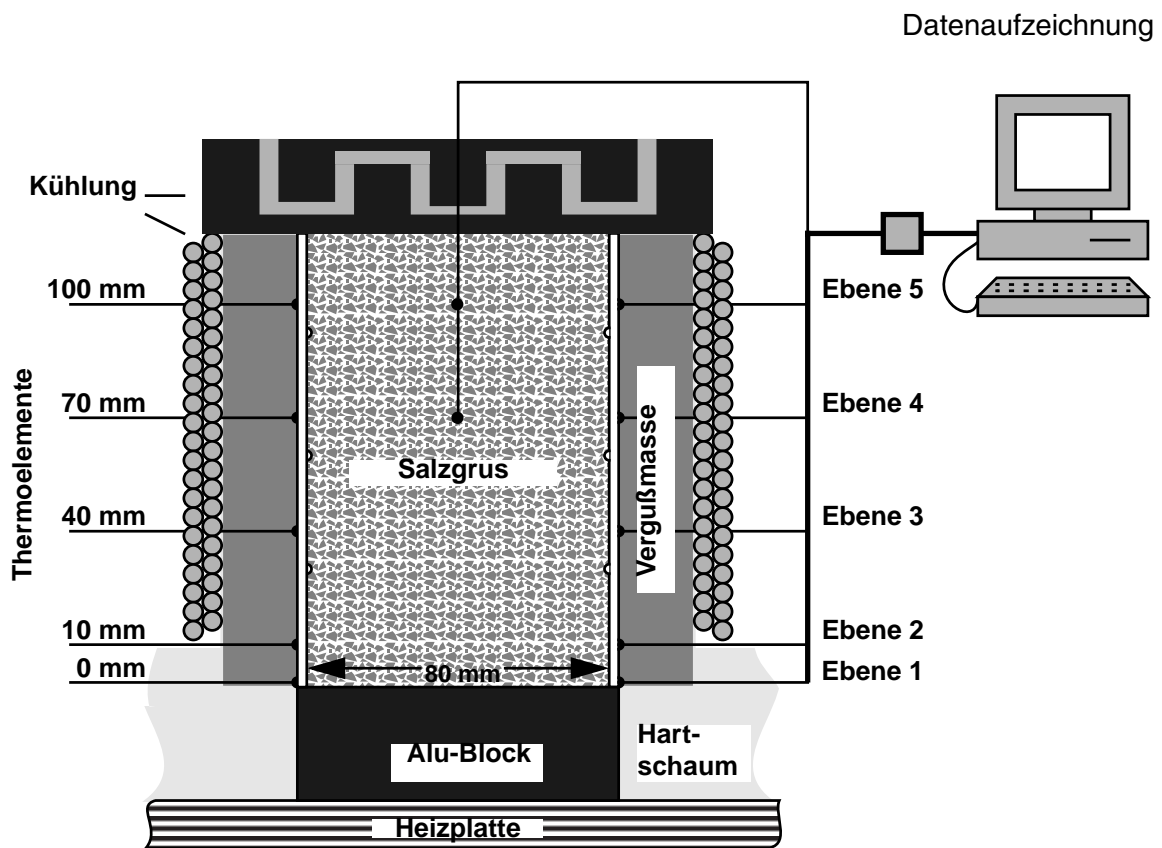


Abb. 5.23: Versuchsaufbau für Experiment IV-3

5.4.5 Modellierung

Thermische Einphasenkonvektion von Flüssigkeiten in gesättigten porösen Medien ist ein gut verstandenes, theoretisch faßbares Phänomen [11, 9, 15]. Hierzu existieren verifizierte und validierte numerische Codes, so daß für die Modellierung des Experimentes IV eine spezielle Eigenentwicklung nicht erforderlich war. Stattdessen wurde auf das in dieser Beziehung bewährte Programm SWIFT (Simulator for Waste Injection, Flow and Transport) [9, 3] in der Version GSF-2 zurückgegriffen, das ab 1975 von der amerikanischen Firma INTERA, später an der TU Berlin und schließlich am Institut für Tief Lagerung der GSF in Braunschweig, dem Vorläufer des heutigen Fachbereichs Endlagersicherheit der GRS, entwickelt und gepflegt wurde. Die im vorliegenden Fall bedeutsamen Effekte der Salzulagerung aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Löslichkeit gehören allerdings nicht zum Leistungsumfang des Programms. Weil es sich dabei aber um gegen-

über der Konvektion langsam ablaufende Vorgänge handelt, war es möglich, sie um den bestehenden Code sozusagen herumzuprogrammieren, ohne diesen zu verändern. Dazu wurde ein Steuercode erstellt, der periodisch das Programm SWIFT aufruft und anschließend unter Annahme konstanter Konvektionsverhältnisse für eine gewisse Zeit die Umlagerungen berechnet, die dann in den folgenden SWIFT-Lauf Eingang finden. Auf diese Weise konnten die Zeitentwicklungen von Temperatur- und Strömungsfeld sowie der Porositätsverteilung bestimmt werden [B-1].

Die Wärmeleitfähigkeit im Modellgebiet wurde konstant mit $2,0 \text{ W}/(\text{m K})$ angesetzt. Dieser Wert ist durch die Wärmeleitfähigkeitsmessungen an feuchtem Salzgrus [B-2] begründet. Die Variabilität der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Porosität wurde aus programmtechnischen Gründen nicht berücksichtigt, sie dürfte jedoch bei feuchtem Salzgrus hinreichend gering ausfallen, um ihre Vernachlässigung zu rechtfertigen. Um

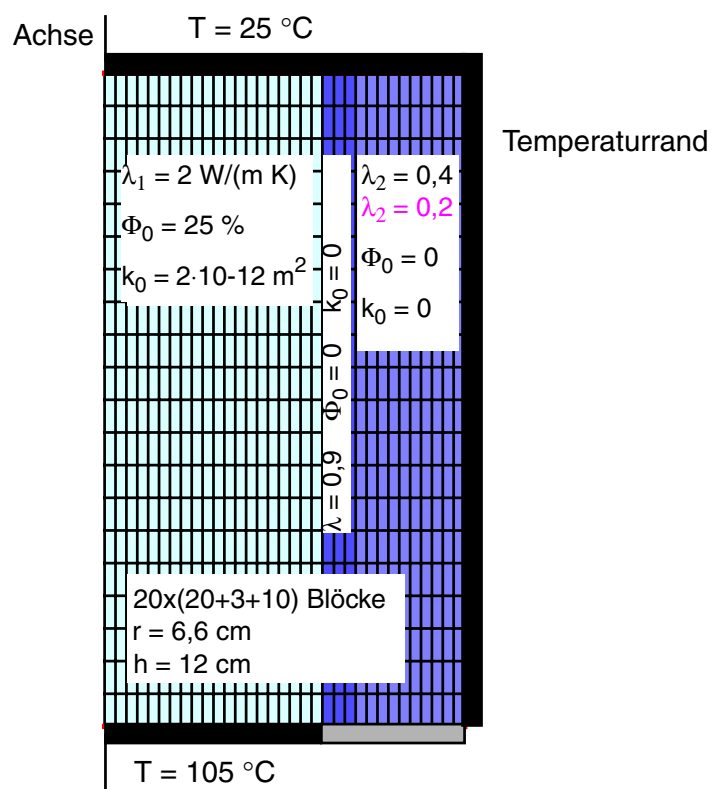


Abb. 5.24: Modellierung von Experiment IV-3

der Temperaturmessung an der Außenwand des Glaszylinders Rechnung zu tragen, wurde dieser mitmodelliert, wobei die Wärmeleitfähigkeit gemäß der Herstellerangabe mit $0,9 \text{ W}/(\text{m K})$ eingesetzt wurde. Die Vergußmasse wurde entsprechend der Herstelleran-

gabe mit einer Wärmeleitfähigkeit von $0,4 \text{ W/(m K)}$ modelliert. Zur besseren Anpassung an die experimentellen Ergebnisse wurde dieser Wert als Variation auf die Hälfte reduziert. Die Konzeption der Modellierung ist in Abb. 5.24 dargestellt. Die Rotationssymmetrie wurde durch eine zylindrische Modellierung berücksichtigt.

5.4.6 Ergebnisse

Sowohl die Experimente als auch die Modellrechnungen zeigen, daß sich das Temperaturfeld nach einer kurzen Einstellungsphase zeitlich kaum verändert. Es ist somit davon auszugehen, daß dieses praktisch allein durch die Wärmeleitung bestimmt wird und durch andere Prozesse nicht wesentlich beeinflusst wird. Die Temperaturmessungen im Experiment IV-3 (Abb. 5.25) zeigen zeitweilige, lokal begrenzte Abweichungen vom kontinuierlichen Verlauf, die offenbar auf unbeabsichtigte Nebeneffekte zurückzuführen sind. Es ist anzunehmen, daß hierfür eine zeitweilige Störung des Wärmekontakts zwischen den Thermoelementen und der Glaswand (z.B. aufgrund thermischer Spannungen) verantwortlich ist. In Abbildung 5.26 sind die am Außenrand des Glaszylinders sowie an zwei Meßstellen entlang der Zentralachse im Modellgebiet gemessenen Temperaturen den berechneten Temperaturkurven gegenübergestellt. Die Übereinstimmung am Außenrand ist zufriedenstellend, wenn eine verringerte Wärmeableitung durch den Kunststoffmantel unterstellt wird. Die Temperaturen im Innern sind dagegen - insbesondere im oberen Bereich - etwas höher, als die Modellrechnungen erwarten lassen. Eine zufriedenstellende Erklärung für diese Abweichungen kann derzeit nicht gegeben werden.

Die Modellrechnungen zeigen in der unteren Hälfte der Probe einen Salztransport vom Rand in die Mitte, d. h. am äußersten Rand kommt es zu Auflockerungen bis hin zu offenen Hohlräumen (nach längerer Modellzeit), wogegen in einem größeren Bereich im Zentrum eine Verdichtungszone prognostiziert wird. Diese Prozesse sind so zu verstehen, daß dort, wo die thermische Konvektion eine Strömung in Richtung des Temperaturgradienten erzeugt, Salzauflösung erfolgt, während dort, wo die Strömung dem Gradienten entgegengesetzt ist, Abscheidung stattfindet. Aufgrund der dort abnehmenden Permeabilität wird die Strömung mit der Zeit aus dem verdichteten Bereich herausgedrängt, so daß dieser sich nach außen hin ausdehnt. Abb. 5.27 zeigt die Porositätsverteilung und das Strömungsfeld nach einer dem Experiment entsprechenden Modellzeit von 20 Ta-

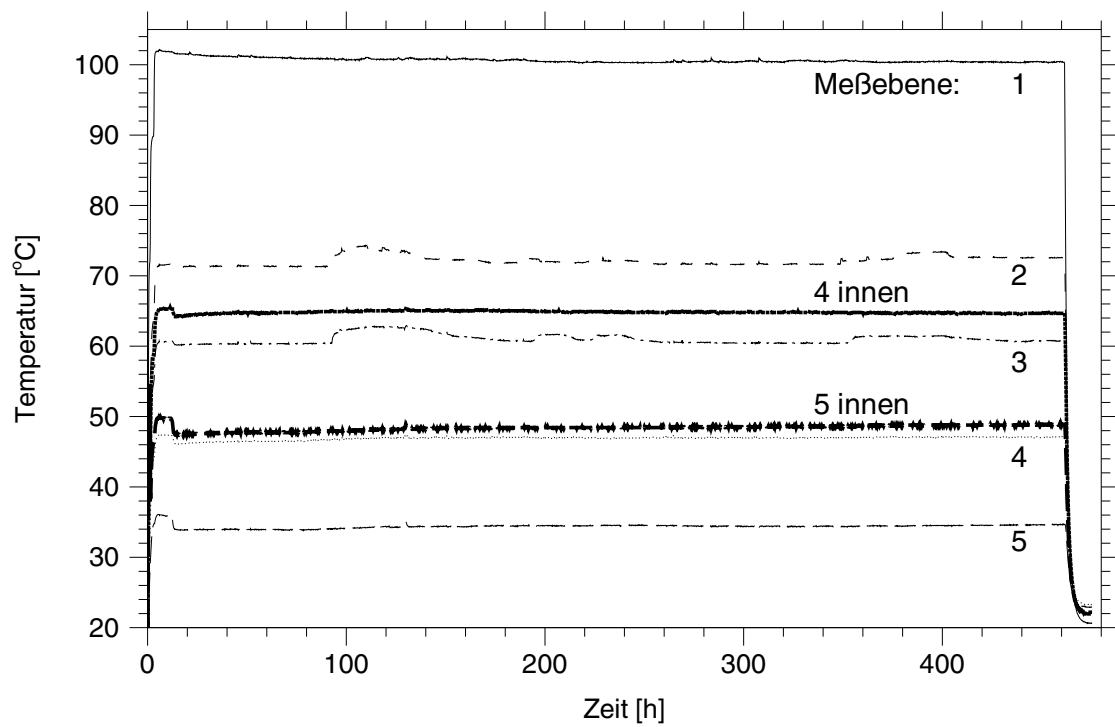


Abb. 5.25: Zeitlicher Temperaturverlauf beim Experiment IV-3

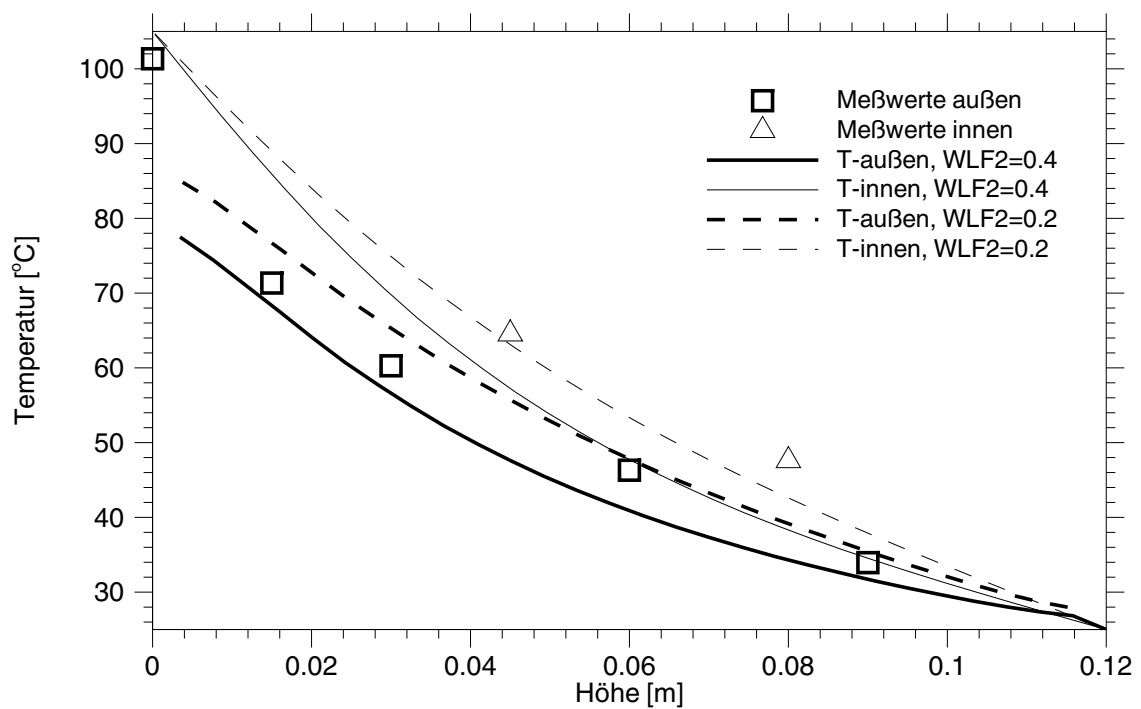


Abb. 5.26: Vergleich der gemessenen und der berechneten Temperaturen im Experiment IV-3

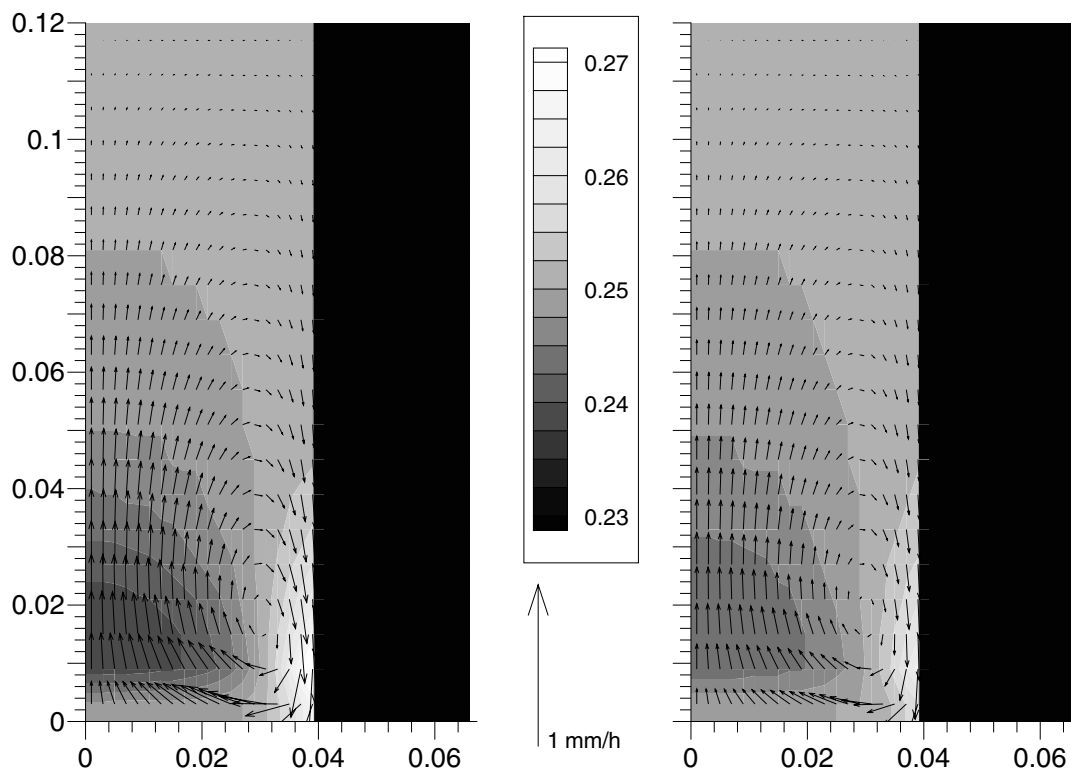


Abb. 5.27: Berechnetes Strömungsfeld und Porositätsverteilung im Experiment IV nach 20 Tagen für $\lambda_{\text{Mantel}} = 0,4 \text{ W}/(\text{m K})$ (links) und $0,2 \text{ W}/(\text{m K})$ (rechts)

gen, wobei im rechten Teilbild die Annahme einer um den Faktor 2 reduzierten Wärmeleitfähigkeit im Vergußmantel berücksichtigt wurde. Die verdichteten und aufgelockerten Bereiche sind dann schwächer ausgeprägt.

Die vorhergesagten Umlöseprozesse konnten im Experiment nicht nachgewiesen werden. Stattdessen wurde eine radial nahezu homogene Verdichtung in der unteren Probenhälfte und eine Auflockerung in der oberen sowie eine schmale Verdichtungszone am oberen Rand beobachtet (Abb. 5.28 bis 5.30)². Für den Probenabschnitt von 0-50 mm wurde eine Porosität von 22 % und eine Permeabilität von $2,3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$ ermittelt.

Für diese experimentellen Ergebnisse konnte keine plausible physikalische Interpretation gefunden werden.

² Die Computertomogramme sind kontrastverstärkt dargestellt, damit die relativ geringen Dichteunterschiede besser sichtbar werden. Die im Vertikalschnitt erkennbare helle kreuzförmige Struktur kann nicht als reale Dichteveriation interpretiert werden, da sie in den horizontalen Aufnahmen nicht erkennbar ist. Sie wird als Reflexionsstörung durch den Alublock gedeutet.

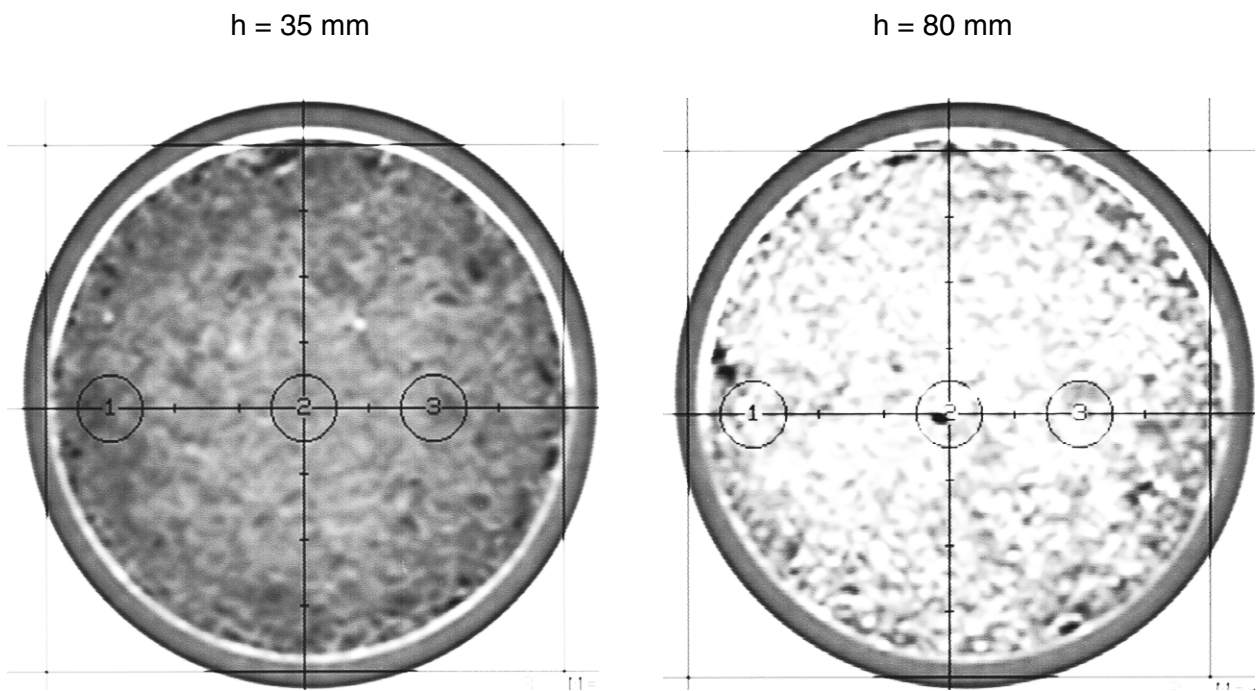


Abb. 5.28: Computertomographische Horizontalschnitte des Probenkörpers IV-3

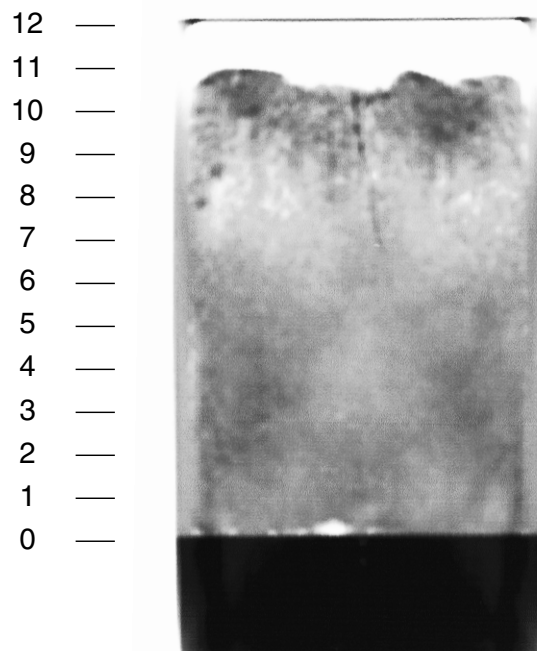


Abb. 5.29: Computertomographischer Vertikalschnitt des Probenkörpers IV-3

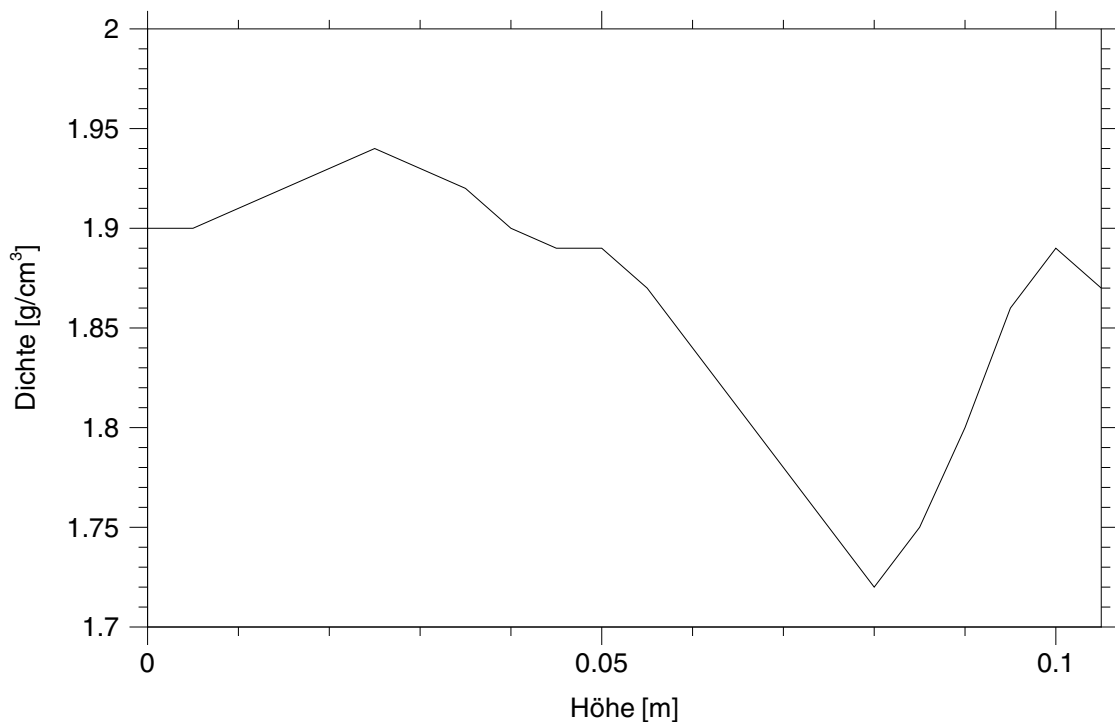


Abb. 5.30: Computertomographisch ermittelte Dichteverteilung des Probenkörpers vom Experimentl V-3

5.4.7 Übertragung des Modells auf die Geometrie einer realen Strecke

Da konvektionsbedingte Umlöseprozesse mit dem für das Experiment IV entwickelten gekoppelten Rechenmodell sehr gut zweidimensional bestimmt werden können, lag der Gedanke nahe, derartige Rechnungen auch für eine der realen Strecke näherkommende Modellgeometrie, die sich dem Laborexperiment entzieht, durchzuführen. Dies wurde gemäß Abbildung 5.31 unter Ausnutzung der Symmetrie des Streckenquerschnitts realisiert. Der Polluxbehälter wurde dabei durch eine treppenartige Struktur angenähert, weil das Programm SWIFT nur Rechteckgitter zuläßt. Zur Darstellung der Randbedingung wurde ein weiter Bereich des umgebenden Steinsalzes mitmodelliert.

Die Anfangsporosität wurde mit 34 % angenommen. Um eine realistische Anfangstemperaturverteilung zu erhalten, wurde über einen Modellzeitraum von drei Jahren nur die Wärmeleitung berechnet und angenommen, daß es danach zu einer instantanen vollständigen Laugenflutung der Strecke kommt.

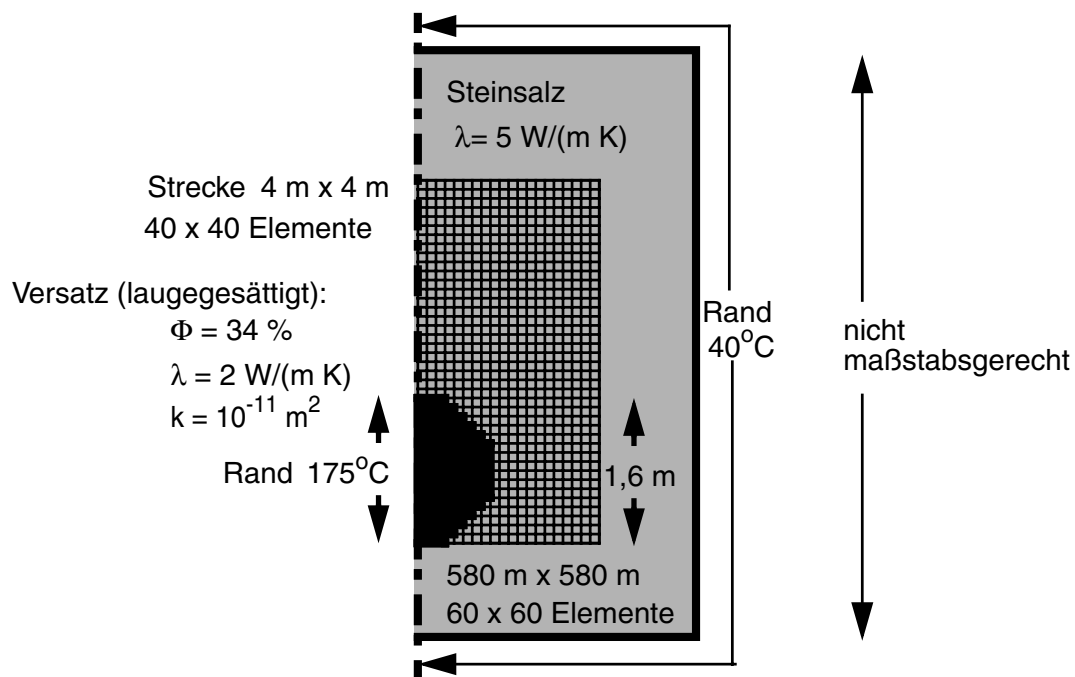


Abb. 5.31: Modellgeometrie zur Darstellung einer realen Strecke

In Abbildung 5.32 sind die resultierenden Porositätsverteilungen und Strömungsfelder für 50 bzw. 250 Tage nach diesem Zeitpunkt gegenübergestellt. Man sieht, daß es an den Streckenwänden, vornehmlich im unteren Bereich, bis an den Polluxbehälter heran zu Versatzauflösung kommt, während sich an der Oberseite des Behälters eine Verdichtungszone ausbildet. Diese erscheint durch einen schmalen Kanal unterbrochen, es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, daß es sich dabei um ein numerisches Artefakt handelt.

Aus diesen Rechnungen kann geschlossen werden, daß es unter realen Bedingungen konvektionsbedingt zwar zu verdichteten Schichten in Behälternähe kommen kann; das hierfür benötigte Salz wird aber in anderen Bereichen aufgelöst, so daß die Strömung in diese abgedrängt wird. Der Kontakt von Lauge mit dem Behälter kann durch diese Vorgänge nicht unterbunden werden.

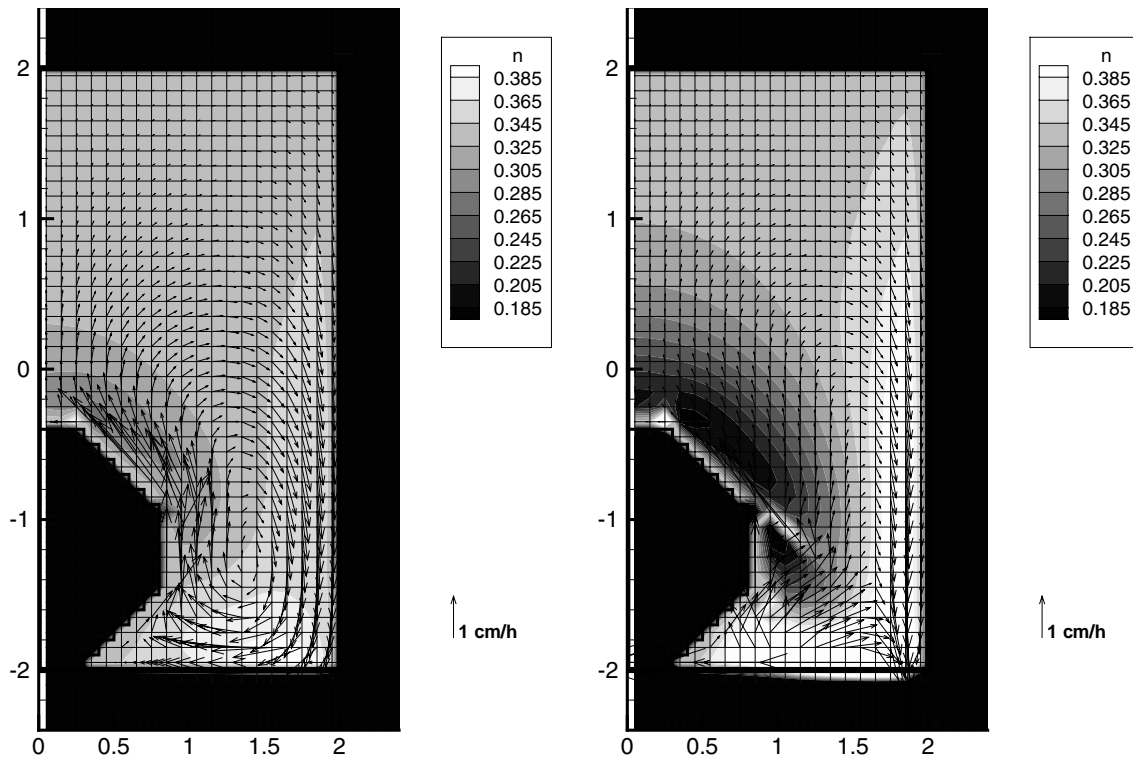


Abb. 5.32: Berechnete Porositätsverteilung und Strömungsfeld im realen Streckenquerschnitt nach 50 (links) bzw. 250 (rechts) Tagen

5.5 Umlösungen beim Laugenzufluß in eine große Säule

5.5.1 Motivation und Zielsetzung

Das Experiment II hat bereits einen Eindruck von den Vorgängen geliefert, die im unmittelbaren Zusammenhang mit dem Laugenzufluß in den thermisch beeinflussten Versatz stehen. Diese Vorgänge sollten in einem weiteren Experiment in größerer Geometrie und unter Einsatz erweiterter Meßtechnik noch eingehender untersucht werden. Dabei sollten auch die zeitlichen Abläufe der Transportprozesse von Dampf und Lauge sowie der Dichteveränderung registriert werden. Hierfür wurde das Experiment V konzipiert, wobei eine noch vom Vorläuferprojekt vorhandene Säule verwendet werden konnte. Da das

Experiment von vornherein auf verdampfungsdominierte Verhältnisse ausgelegt war und sich beim Experiment II bereits gezeigt hatte, daß dieser Fall modelltheoretisch kaum zu erfassen ist, wurde auf eine Modellierung des Experimentes V ganz verzichtet.

Von dem Experiment wurden folgende Erkenntnisse erwartet:

- eine prinzipielle Bestätigung der Abläufe des Experiments II-2,
- detailliertere Einsicht in die Vorgänge,
- Aussagen über mögliche maßstabsbedingte Unterschiede zum Experiment II-2,
- Aussagen über die zeitliche Entwicklung der Dichte- und Feuchteverteilung,
- Aussagen über die Porosität und Permeabilität der dichtesten Schichten.

5.5.2 Experimentelle Randbedingungen

Das Experiment wurde mit seitlicher Beheizung durchgeführt, so daß das Temperaturfeld praktisch unveränderlich aufgeprägt war. Der Temperaturgradient wurde dabei auf ca. 100 K/m eingestellt, was die Verhältnisse in einer realen Einlagerungsstrecke oberhalb des Behälters ungefähr um einen Faktor 5 übertrifft. Die räumlichen und zeitlichen Temperaturverläufe sind in den Abbildungen 5.33 und 5.34 dargestellt. Um die Versuchslaufzeit in einem akzeptablen Rahmen zu halten, wurde eine Zulauftrate von 24 ml/d gewählt, was auf die Querschnittsfläche bezogen einem Laugenzutritt von ca. $4,8 \text{ l}/(\text{d m}^2)$ entspricht. Verglichen mit tatsächlich zu erwartenden Zulaufraten ist dieser Wert gering, er liegt jedoch bereits deutlich oberhalb der Grenze zwischen verdunstungs- und verdampfungsdominierten Verhältnissen. Die Zulauftrate war identisch mit derjenigen vom Experiment II-2, die gesamte Versuchslaufzeit jedoch etwa um einen Faktor 10 höher und der Temperaturgradient etwa um die Hälfte kleiner.

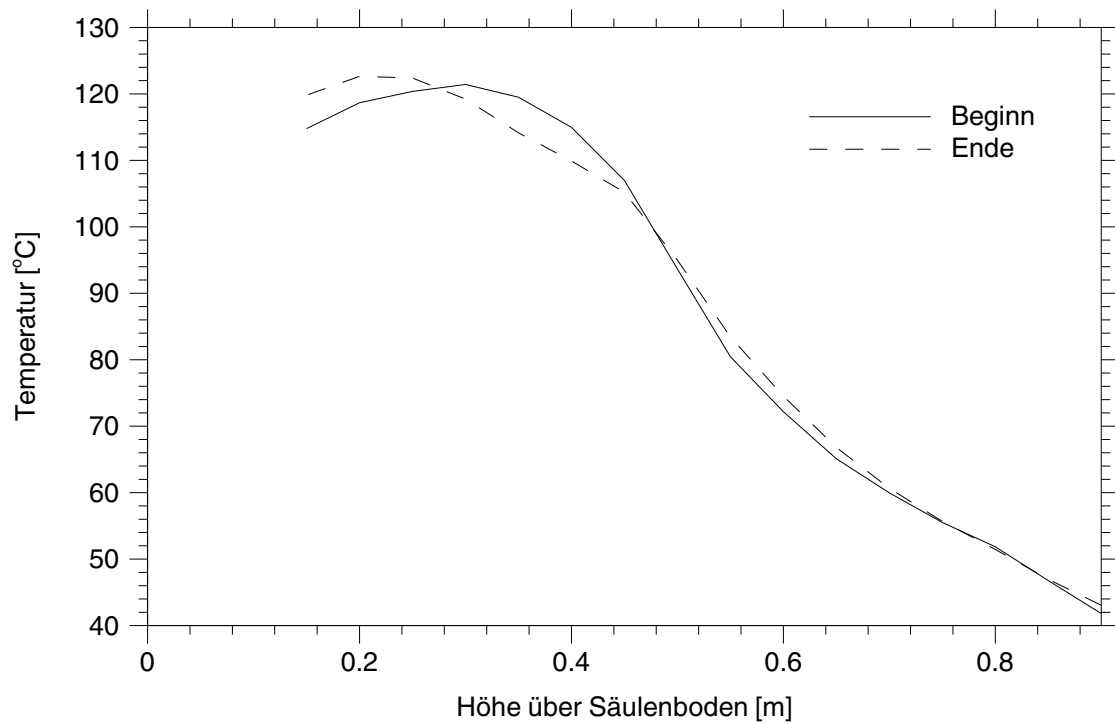


Abb. 5.33: Räumliche Temperaturverteilung im Experiment V

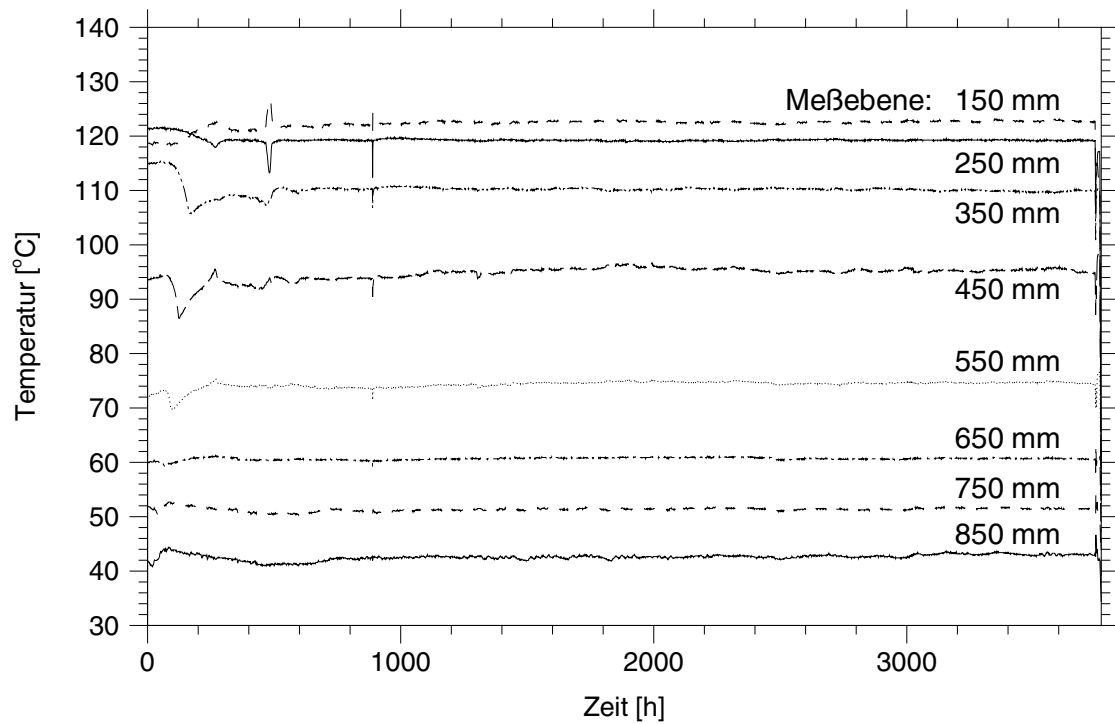


Abb. 5.34: Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment V

5.5.3 Versuchsaufbau

Das Experiment wurde in einer salzgrusgefüllten Glassäule von 1 m Höhe und einem Durchmesser von 8 cm durchgeführt. Die Beheizung erfolgte von der Seite durch zwei Heizmanschetten, dadurch wurde ein weitgehend konstanter Temperaturgradient über die Versuchslaufzeit erreicht (Abb. 5.33). Die Säule besaß auf 16 Ebenen Durchführungen für Meßvorrichtungen. Es kamen vier Meßverfahren zum Einsatz:

- **Temperaturmessung:**
Mittels auf allen Meßebenen angebrachter Thermoelemente konnte die Temperatur entlang der Zentralachse orts- und zeitabhängig registriert werden.
- **Elektrische Leitfähigkeitsmessung:**
Durch jeweils zwei Paare von gegenüberliegenden Elektroden auf jeder Meßebene wurde orts- und zeitabhängig die elektrische Leitfähigkeit bestimmt. Aus diesen Meßwerten kann auf den Feuchtigkeitsgehalt geschlossen werden. Technisch bedingt handelt es sich dabei um Mittelwerte über jeweils einen zylindrischen Bereich von 8 cm Durchmesser und 2-3 cm Höhe. Das Verfahren liefert nur oberhalb ca. 15 % Porenraumsättigung verlässliche Feuchtwerte.
- **Time-Domain-Reflektometrie (TDR):**
Dieses Meßverfahren nutzt die Abhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit elektromagnetischer Wellen von der Dielektrizitätskonstante aus. Da diese stark vom Wassergehalt des Versatzes abhängt, kann ebenfalls auf die Feuchtigkeit geschlossen werden. Als Meßsonden dienen dreifach gegabelte Wellenleiter, die im Experiment auf jeder zweiten Meßebene angebracht waren. Jede dieser Sonden erfaßte einen zylindrischen Bereich von ca. 5 cm Durchmesser mit horizontaler Achse. Mit der TDR sind Wassergehalte zwischen 0 und ca. 77 % des Porenraumes meßbar.
- **Gamma-Absorptionsmessung:**
Die Absorption von Gammastrahlen ist proportional zur Dichte des durchstrahlten Mediums. Dieser Effekt erlaubt eine Messung der Gesamtdichte (Salz und Lauge) während des Versuchs. Die eingesetzte Meßanlage erfaßt Dichteschwankungen zwischen ca. 1,2 und 2,2 g/cm³ bei einer Empfindlichkeit von 0,04 g/cm³, gemittelt über einen räumlichen Meßbereich von 40 mm Breite und 4 mm Höhe. Mittels einer computergesteuerten Vorrichtung wurde die Meßeinrichtung im Lauf von 4,5 Stunden an der Säule entlangefahren und damit der gesamte salzgrusgefüllte Bereich erfaßt.

Beide Säulenenden wurden dampfdurchlässig ausgelegt, der austretende Dampf wurde kondensiert und gesammelt. Abbildung 5.35 zeigt ein Schema des Meßaufbaus. Dieser und die eingesetzten Meßverfahren sind im experimentellen Bericht [B-5] ausführlich beschrieben.

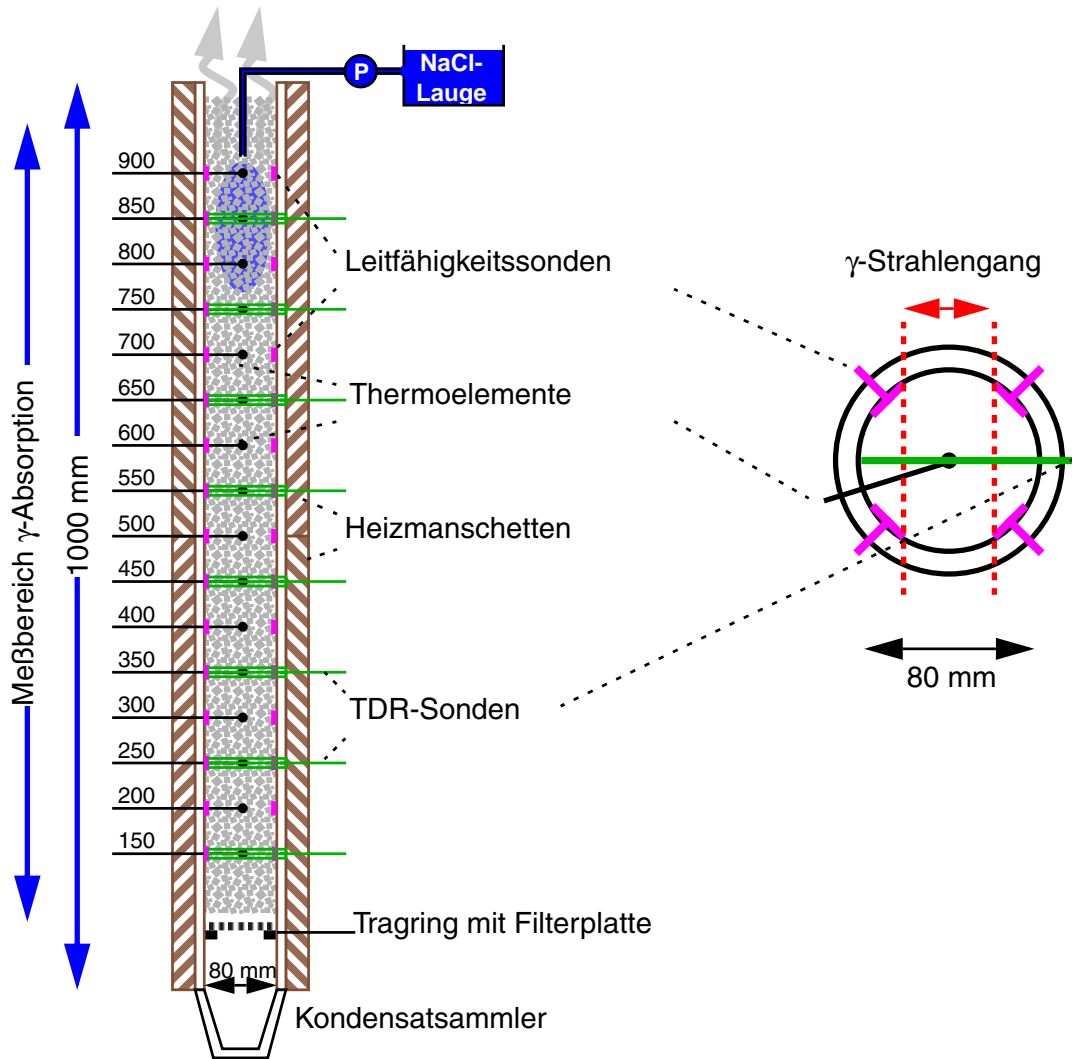


Abb. 5.35: Versuchsaufbau Experiment V

5.5.4 Versuchsdurchführung und -ablauf

Die Laugenzugabe erfolgte mit einer Zulauftrate von 24 ml/Tag über einen Zeitraum von insgesamt 908 Stunden. Zu diesem Zeitpunkt war der Porenraum gefüllt, weitere Laugenzugabe hätte zum Überlaufen geführt. Der Versuch wurde jedoch ohne Zulauf noch bis zum Zeitpunkt $t = 3740$ h fortgesetzt. Zwischen der 200. und der 460. Versuchsstunde wurde am unteren Säulenende eine Gesamtmenge von 65 ml Flüssigkeit aufgefangen, in den folgenden 46 Stunden fielen 97 ml an. Die Flüssigkeit wurde durch ihren extrem geringen Salzgehalt als kondensierter Dampf identifiziert. Danach war nur noch geringfügiger Dampfaustritt nachweisbar, bis zum Versuchsende wurden weitere 15 ml Kondensat aufgefangen.

Unmittelbar nach dem Entfernen der Heizmanschetten wurde im mittleren Säulenbereich ein laugegefüllter Hohlraum sichtbar, der etwa ein Viertel des Säulenquerschnitts einnahm. Die dort befindliche Lauge befand sich noch im Siedeprozess. Dieser Hohlraum befand sich genau in dem Bereich, in dem mit 108 °C die Siedetemperatur herrschte.

5.5.5 Ergebnisse

Die Gesamtsäule wurde nach Versuchsende computertomographisch untersucht. Aufgrund der Abmessungen waren dabei jedoch nur Horizontalschnitte möglich, abgesehen von einer vertikalen Gesamtdurchleuchtung (Abb. 5.36, links). Dort ist zu erkennen, daß es im Zutrittsbereich zur Bildung eines Lösungskanal aufgrund der Nachlösung durch die sich erwärmende Lauge gekommen ist. Ähnliches war schon im Experiment II-2 beobachtet worden.

Abbildung 5.37 zeigt die vertikale Dichteverteilung nach Versuchsende als Gegenüberstellung der Meßwerte des Computertomographen mit denen der Gamma-Absorptionsmessung. Die Einbaudichte lag bei $1,44\text{ g/cm}^3$. Die lokalen Abweichungen zwischen beiden Kurven sind auf die unterschiedlich großen Bereiche zurückzuführen, die mit den beiden Verfahren jeweils für einen Meßwert erfaßt werden. In der Nähe der Siedelinie (bei 400 mm Höhe) ist diese Abweichung besonders augenfällig: hier befindet sich eine stark verdichtete Zone (Porosität ca. 8 %) unmittelbar neben dem schon optisch beob-

achteten offenen Hohlraum; letzterer dominiert die Gamma-Messung, während der CT-Meßwert aus dem Verdichtungsbereich stammt. Aus den gleichen Gründen ist die „Lauenzulaufkaverne“ bei ca. 775 mm an der Gamma-Meßkurve deutlich erkennbar, während sie bei der CT-Messung nicht ins Gewicht fällt. Beide Meßverfahren zeigen aber übereinstimmend eine Verdichtung unterhalb der Siedelinie (d. h. oberhalb der Siedetemperatur) auf ca. $1,85 \text{ g/cm}^3$, entsprechend etwa 20 % Porosität. Die erhöhte Dichte unterhalb von 200 mm ist auf Restlauge zurückzuführen, die sich nach dem Abschalten der Heizung dort angesammelt hat.

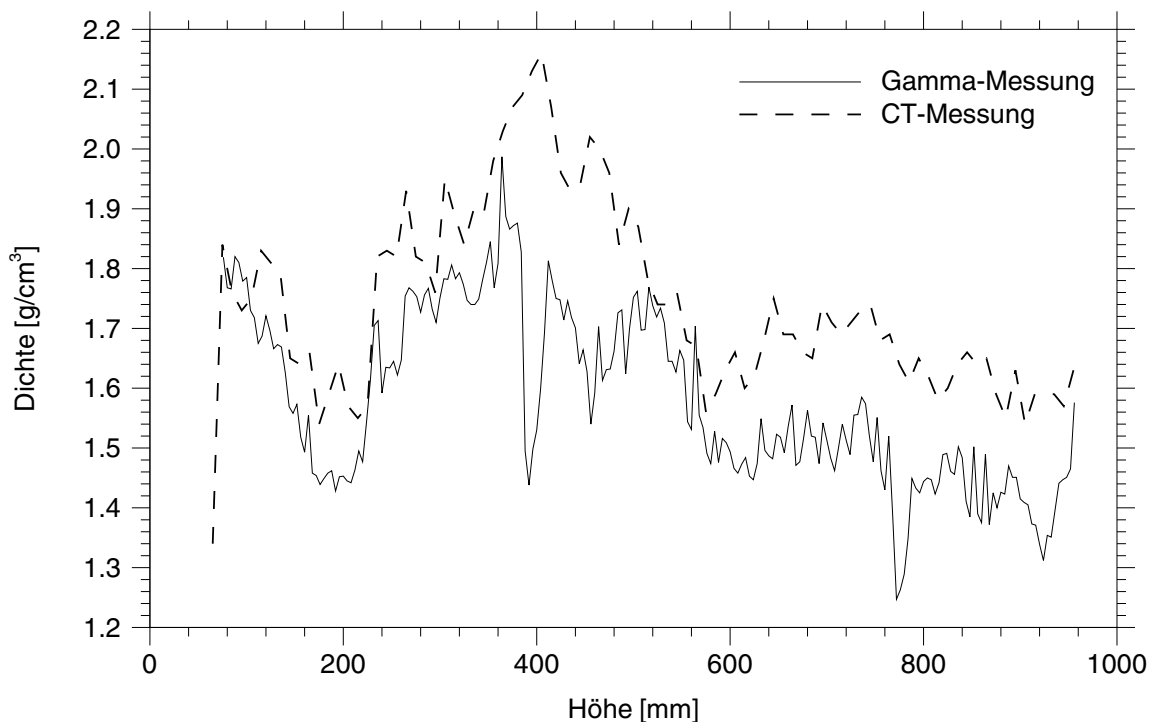


Abb. 5.37: Dichteverteilung beim Experiment V nach Versuchsende

In Abbildung 5.38 ist die Zeitentwicklung der Feuchteverteilung nach den Leitfähigkeitsmeßdaten dargestellt. Dabei wurde aus Gründen der besseren Auflösung in der Anfangsphase ein logarithmischer Zeitmaßstab gewählt. Zur besseren Übersichtlichkeit wurden die Kurven numerisch geglättet. Man erkennt ein von Meßebene zu Meßebene verzögertes Ansteigen der Feuchte bis jeweils ein annähernd konstanter Wert angenommen wird. Lediglich knapp über dem Siedebereich (500 mm) steigt der Feuchtegehalt weiterhin gleichmäßig an. An der Siedelinie selbst (400 mm) zeigen die Meßwerte erwartungsgemäß einen extrem unregelmäßigen Verlauf (die scheinbare Schwingung ist ein Effekt der

numerischen Glättung, tatsächlich registrierte Meßwerte über 1 lassen auf ein Versagen des Meßverfahrens unter Siedebedingungen schließen). Unterhalb der Siedelinie ist nur sehr geringe Feuchtigkeit nachweisbar, die auf kondensierenden Dampf zurückzuführen ist. Nach Ende der Zulaufphase (900 h) nimmt der Feuchtegehalt in allen Bereichen oberhalb der Siedelinie überall ungefähr denselben gleichbleibenden Wert (ca. 0,24) an. Dies deutet auf die Einstellung eines Zweiphasen-Gleichgewichts hin.

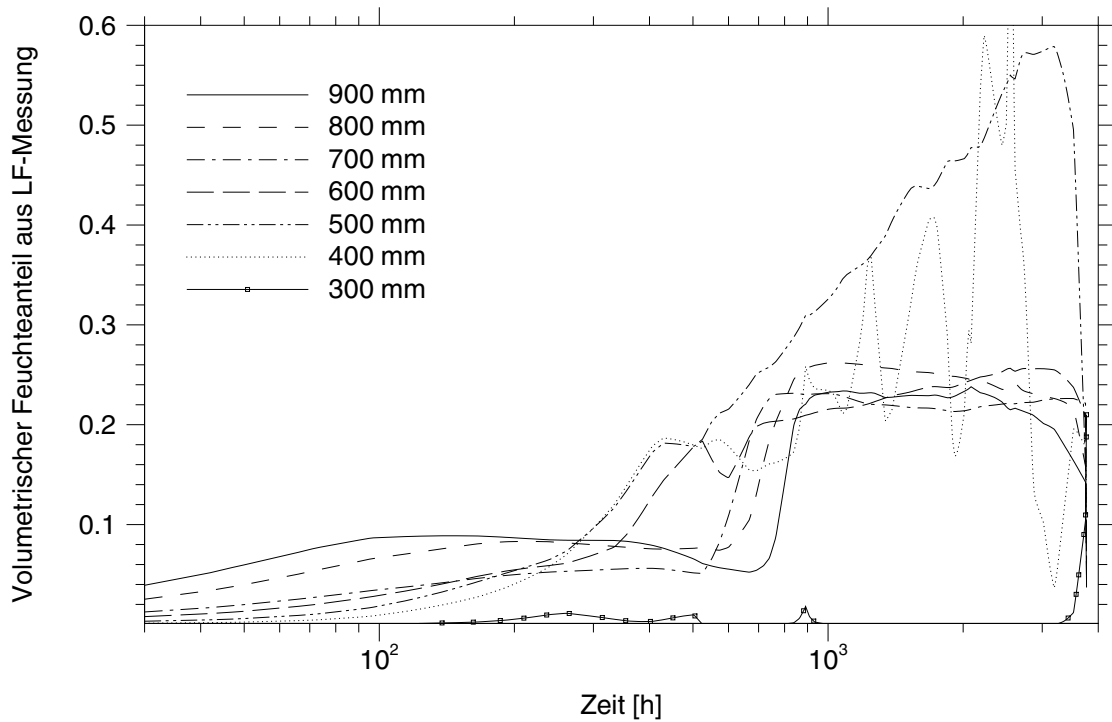


Abb. 5.38: Zeitentwicklung der Feuchteverteilung im Experiment V (aus Leitfähigkeitsmessung)

5.6 Umlösungen und Transport von Fremdmineralien im laugegefüllten Porenraum bei hohen Temperaturen

5.6.1 Motivation und Zielsetzung

Im Salzversatz einer realen Einlagerungsstrecke ist ein gewisser Anteil von Fremdmineralien, insbesondere Sulfaten enthalten. Prinzipiell erscheint es möglich, daß derartige Bestandteile aufgrund ihrer von denen des NaCl-Salzes verschiedenen Lösungs-

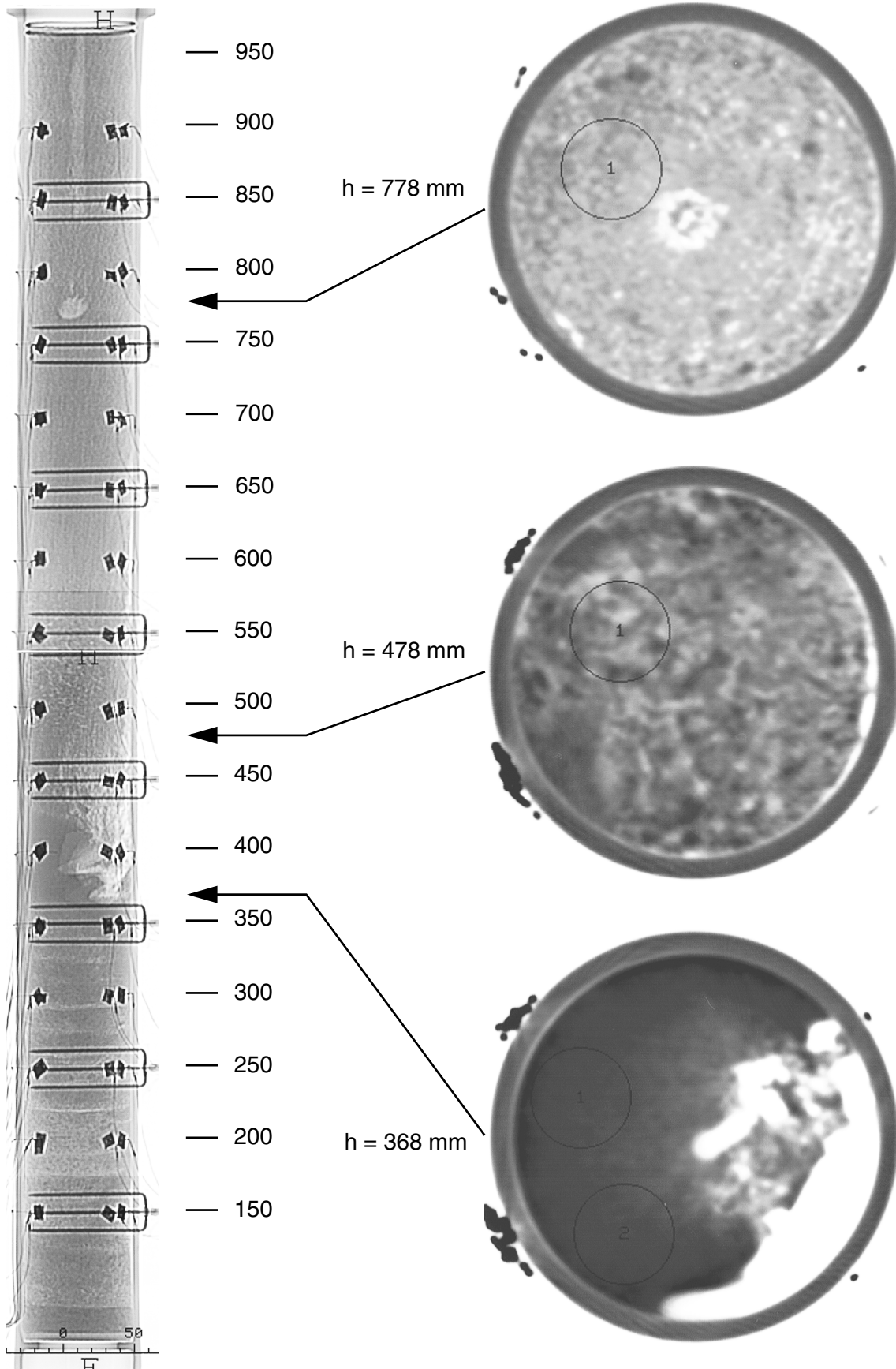


Abb. 5.36: Computertomogramme vom Experiment V

schaften die Transport- und Umlöseprozesse im thermisch beeinflussten Salzversatz in signifikanter Weise beeinflussen. Um dies zu untersuchen, wurde ein spezielles Experiment geplant, bei dem in mehreren Teilversuchen neben gezielten Salzverunreinigungen auch höhere Temperaturen zu betrachten waren. Das Experiment wurde in Form eines Unterauftrages durchgeführt und gesondert dokumentiert [B-4]. Eine Modellierung war für diese Prozesse nicht vorgesehen und aufgrund der schwer darstellbaren Randbedingungen im Experiment auch nicht möglich.

Das Experiment sollte neben einer Aussage über den Einfluß von Fremdmineralien auf die Prozesse auch Erkenntnisse über diffusive Salzumlagerungen liefern. Derartige Vorgänge werden einerseits durch die hohen Temperaturgradienten begünstigt, andererseits war Konvektion im Experiment aufgrund der geringen Ampullendurchmesser ausgeschlossen, so daß für die beobachtbaren Transportprozesse nur der Diffusionseffekt verantwortlich sein kann.

5.6.2 Experimentelle Randbedingungen

Die verwendeten Salzmischungen mit 2 % Anhydrit (CaSO_4) bzw. Kieserit (MgSO_4) stellen realitätsnahe Mischungsverhältnisse dar. Die Prozesse wurden durch die Vorgabe äußerst geringer Querschnitte (ca. 1 cm^2) bei einer Länge von ca. 60 cm gewissermaßen in eine Dimension gezwungen, woraus einerseits eindeutigere Ergebnisse resultierten, andererseits aber auch eine eingeschränkte Übertragbarkeit auf mehrdimensionale und großräumige Streckengeometrien folgt.

5.6.3 Versuchsaufbau

Es wurde eine Reihe von Teilerperimenten mit jeweils etwas unterschiedlichen Versuchsbedingungen durchgeführt. Die laugegesättigten Salzgrusproben mit jeweils etwas unterschiedlichen Kornspektren sowie verschiedenen Sulfatbeigaben (2 % Anhydrit oder Kieserit homogen verteilt bzw. in Form einer Schicht) wurden weitgehend restluftfrei in dünne Glasampullen mit Innendurchmessern zwischen 3,5 und 17 mm und Längen bis zu 60 cm eingeschmolzen. Diese wurden in speziell konstruierten Öfen jeweils einem

Temperaturgradienten zwischen ca. 100 und 200 °C ausgesetzt, wobei zwei verschiedene Ofentypen zum Einsatz kamen. Für die meisten Teilerperimente wurde ein vertikal oder horizontal orientierter Zweizonenofen verwendet, der jedoch keine Beobachtung während des Versuchs zuließ. Zwei Teilveruche wurden in einem vertikalen Glasofen durchgeführt, bei dem eine visuelle Versuchsverfolgung möglich war. Da die Ergebnisse der einzelnen Teilveruche sich nur in Details unterschieden, soll an dieser Stelle lediglich auf die Glasofenexperimente überblickartig eingegangen werden, für weitere Details sei auf den auf der Begleit-CD enthaltenen Meßbericht [B-4] verwiesen.

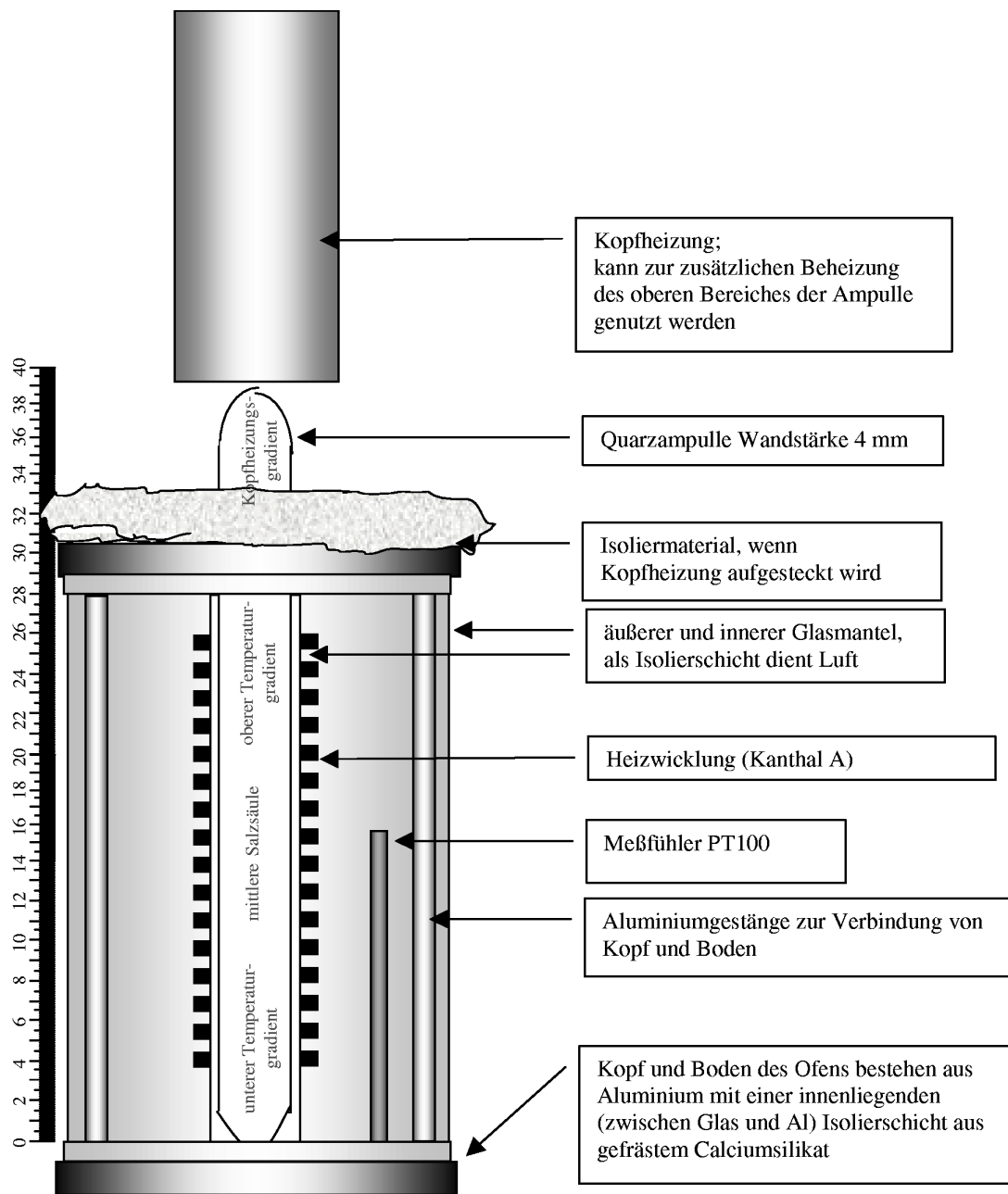


Abb. 5.39: Aufbau des Glasofens

Abbildung 5.39 zeigt die Konstruktion des Glasofens. Um im oberen Bereich der Ampulle Siedevorgänge zu unterbinden, wurde in einem Teilversuch eine Kopfheizung verwendet, die für den Aufbau eines hinreichend hohen Druckes im Kopfbereich sorgte.

5.6.4 Versuchsdurchführung

Das Glasofenexperiment wurde zunächst ohne Kopfheizung durchgeführt, wobei eine 9-mm-Ampulle mit Salzgrus und homogener Anhydritbeimischung von 2 % verwendet wurde. Zur besseren Sichtbarkeit war der Lauge ein chemisch inerte Farbstoff zugesetzt. Während des Versuchs wurden deutliche Siedeerscheinungen im oberen Bereich beobachtet. Da von diesem Effekt erhebliche Einflüsse auf das Experiment zu erwarten waren, wurde der Versuch nach einer Laufzeit von 3 1/2 Wochen abgebrochen und die Ampulle entnommen. Beim Wiederholungsversuch wurde das Sieden durch Einsatz der Kopfheizung verhindert, außerdem wurde anstelle von Anhydrit Kieserit eingesetzt. Dieser Teilversuch lief über einen Zeitraum von 3 Monaten. Für einen Zeitraum von 6 Tagen wurde zwischendurch die Kopfheizung abgeschaltet, um den Einfluß dieser Maßnahme zu beurteilen.

Nach der Entnahme wurden die Ampullen zunächst auf Raumtemperatur abgekühlt und anschließend bei -20 °C eingefroren. Auf diese Weise konnten die Proben in ca. 2 cm lange Stücke zerschnitten werden. Nach dem Auftauen wurde die Flüssigkeit vorsichtig abgesaugt und die Restfeuchte im Exsikkator entfernt. Die Probenstücke wurden einer röntgenographischen halbquantitativen Bestimmung des Sulfatgehalts unterzogen.

5.6.5 Ergebnisse

Abbildung 5.40 zeigt den Verlauf der Temperatur und der damit korrelierten Dichte der gesättigten NaCl-Lösung im Experiment VI-G14, d. h. in dem Teilversuch mit Kopfheizung. Im oberen und unteren Bereich der Ampulle gibt es jeweils einen starken Temperaturgradienten. Im Zeitverlauf wurde in diesen beiden Zonen jeweils zunächst eine Salzauflösung beobachtet. Später kristallisiert der untere Bereich wieder zu. Im mittleren

Bereich, über den die Temperatur während des Versuchs ungefähr konstant war, wurde eine deutliche Kornvergrößerung beobachtet, welche auf den Effekt der Ostwald-Reifung (große Kristalle wachsen auf Kosten kleinerer) zurückzuführen ist.

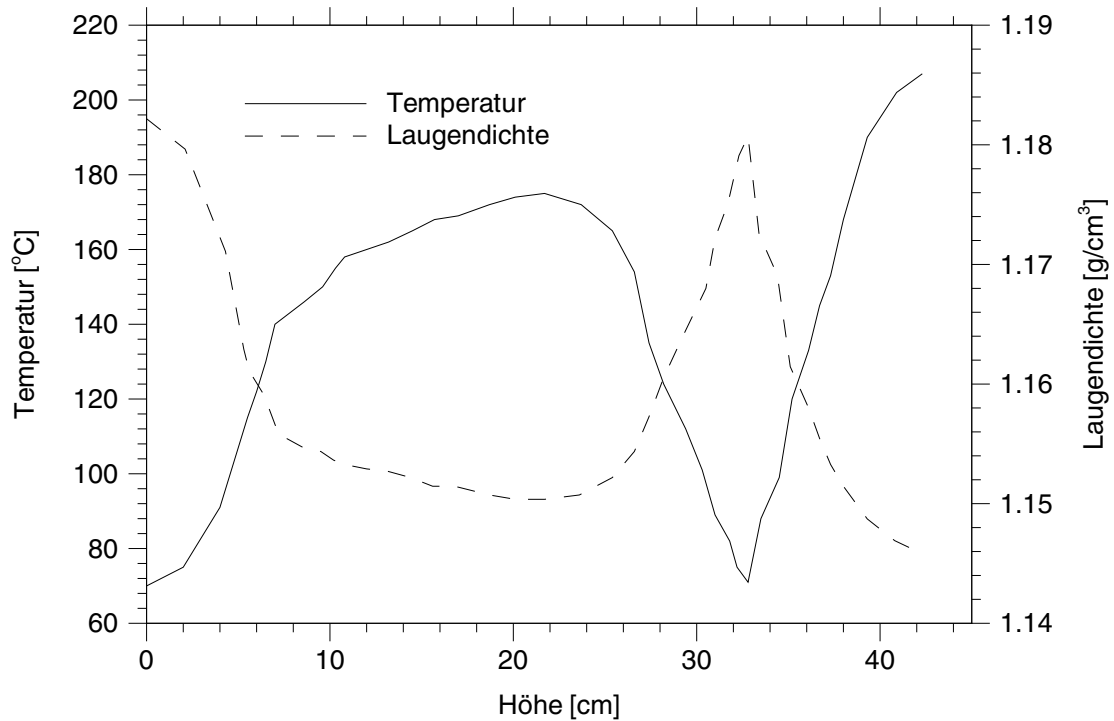


Abb. 5.40: Temperatur- und Laugendichte im Glasofenexperiment mit Kopfheizung

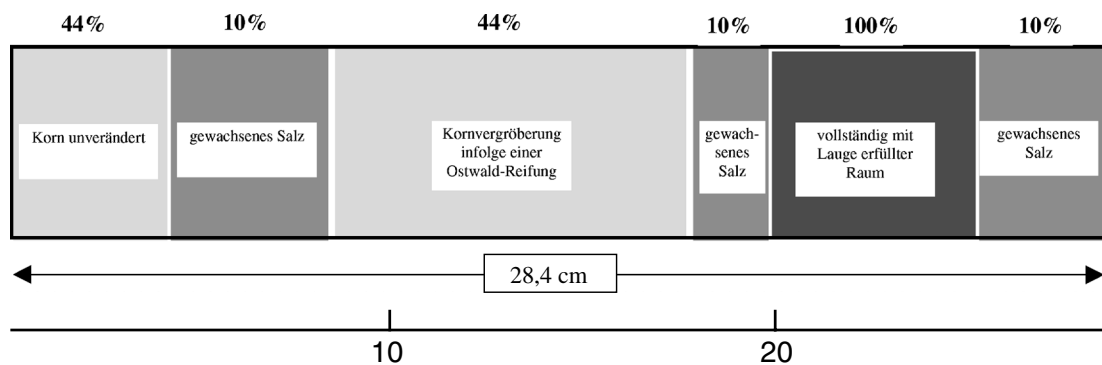


Abb. 5.41: Schematische Darstellung der Salzlagerungen nach Versuchsende beim Glasofenexperiment mit Kopfheizung

In Abbildung 5.41 ist schematisch die Porositätsverteilung im mittleren Ampullenbereich nach Versuchsende dargestellt. In einem gewissen Bereich unmittelbar unterhalb der Kopfheizung wurde die vollständige Auflösung des Salzes festgestellt, beiderseits davon wurde gewachsenes Salz festgestellt, dessen Porosität zu 10 % abgeschätzt wurde. Diese Beobachtung bestätigt den Effekt der Salzauflösung bei Laugenbewegung in heißere Bereiche und der Ausfällung bei Bewegung in kühlere Bereiche. Diffusionsvorgänge führen zu einer Wanderung des Salzes von heißeren in kältere Zonen. Da die Experimente im Horizontalofen ohne Gravitationseinfluß vergleichbare Ergebnisse geliefert haben, ist davon auszugehen, daß dieser Effekt vorrangig für die Salzumlagerungen verantwortlich ist.

Sulfatverkrustungen konnten visuell nicht festgestellt werden. Lediglich am Boden des vollständig ausgelösten Bereiches wurde eine lockere Sulfatschicht beobachtet, die offenbar durch Sedimentierung aus der darüberliegenden Lauge entstanden ist. Allgemein kann - auch aufgrund der Ergebnisse der anderen Teilexperimente - festgestellt werden, daß die Sulfatanteile keinen wesentlichen Einfluß auf die Umlöseerscheinungen haben.

5.6.6 Schlußfolgerungen

Die Experimentgruppe VI wurde so konzipiert, daß bestimmte Einzeleffekte unter extremen Temperaturgradienten besonders stark hervortreten, die Prozeßabläufe wurden dabei durch den Einsatz von Ampullen mit sehr geringen Durchmessern gewissermaßen in eine Dimension gezwungen. Die Ergebnisse sind daher auf die Verhältnisse in einer realen Einlagerungsstrecke nicht direkt übertragbar. Es kann jedoch gefolgert werden, daß Sulfatverunreinigungen im Versatz auch dort keine Rolle spielen werden und bei der Prognose und Bewertung der Vorgänge während und nach einem Laugenzutritt nicht berücksichtigt werden müssen. Weiterhin wird bestätigt, daß sich das Salz im Temperaturgradienten durch Diffusion in kühlere Bereiche bewegt und dort abscheidet.

5.7 Vergleich der Porositäten und Permeabilitäten

An den Probenkörpern der Experimente I bis IV wurden Porositäts- und Permeabilitätsmessungen durchgeführt [B-5, B-3]. In Abbildung 5.42 sind diese Meßwerte in doppellogarithmischer Darstellung zwei Regressionskurven gegenübergestellt, die aus einer großen Zahl von Porositäts-Permeabilitäts-Messungen an Salzgrusproben als beste Beschreibungen des Zusammenhanges abgeleitet wurden. Dabei ist zwischen trocken und feucht kompaktiertem Salzgrus unterschieden worden, weil die Funktionsparameter für diese beiden Fälle signifikant voneinander abweichen [12].

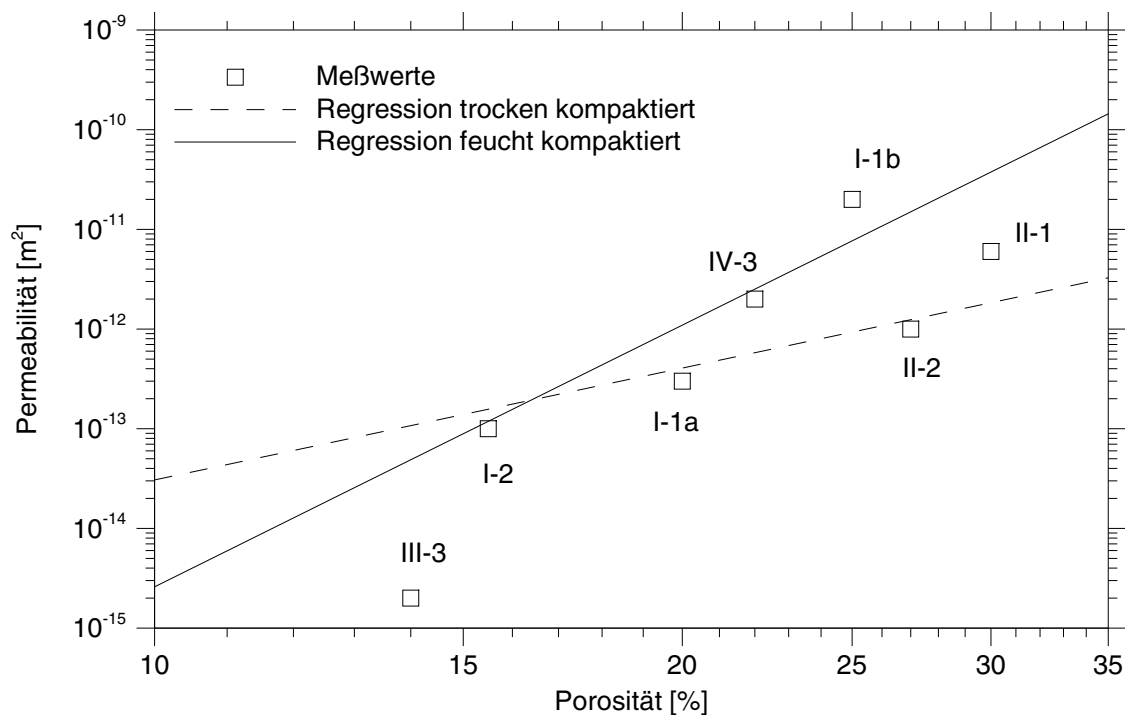


Abb. 5.42: Gegenüberstellung der Porositäts-Permeabilitäts-Meßwerte aus den Experimenten I bis IV mit statistischen Bestwerten.

Die Meßwerte, die einer dritten Kompaktionsart „Kompaktion durch Kristallisation“ zuzuordnen wären, fügen sich recht gut in dieses Bild ein. Sie scheinen um eine Gerade zu streuen, deren Steilheit diejenige für feuchte Kompaktion noch etwas übertrifft, jedoch ist ihre Gesamtzahl zu gering, um hierzu eine definitive Aussage zu machen.

6 Schlußfolgerungen

Zum Abschluß sollen die Ergebnisse der Experimente und Modellrechnungen hinsichtlich der Bildung isolierender Schutzschichten zusammenfassend beurteilt werden. Dabei ist, wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde, mit Zurückhaltung vorzugehen, da die Übertragbarkeit der Ergebnisse von kurzzeitigen Experimenten im Labormaßstab sowie von stark vereinfachten Modellrechnungen auf die Realität eingeschränkt ist.

Es wurde festgestellt, daß sich unter spezifischen Bedingungen Verdichtungen des Versatzes ausbilden können, die zu einer zusätzlichen Barrierenwirkung führen. Die dafür verantwortlichen Vorgänge hängen empfindlich von den Rand- und Nebenbedingungen ab. Am Experiment II wurde deutlich, daß z. B. die Größe der Zulauftrate einen erheblichen Einfluß auf die Prozeßabläufe und die Ausbildung von Verdichtungsbereichen hat.

Aufgrund der Komplexität der Zusammenhänge ist es nicht möglich, diejenigen Bedingungen, unter denen ausgedehnte Verdichtungsbereiche mit Barrierenwirkung entstehen können, genau zu spezifizieren. Im Experiment III wurden Salzumlagerungen beobachtet, die mit validierten physikalischen Theorien nicht zu erfassen und damit auch nicht auf reale Verhältnisse übertragbar sind.

Einmal entstandene Verdichtungen sind nicht notwendigerweise stabil. Die Modellierung zum Experiment IV sowie das Experiment VI haben gezeigt, daß sowohl konvektive als auch diffusive Effekte, sofern sie über längere Zeiträume laufen, zu erheblichen Umlagerungen führen. Konvektive Effekte bewirken vorrangig einen Salztransport zur Wärmequelle hin, diffusive in die entgegengesetzte Richtung. Somit ist nicht auszuschließen, daß auch einmal entstandene Verdichtungen im laugegesättigten Versatz wieder abgebaut werden können.

Die experimentellen und theoretischen Untersuchungen haben keine Hinweise darauf ergeben, daß von den verdichteten Bereichen eine starke Barrierenwirkung zu erwarten ist. Abgesehen von lokalen Effekten wurde die stärkste großräumigere Verdichtung im Experiment III gemessen. Dort betrug die Porosität ca. 14 % und die Permeabilität $2 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$. Derartige Werte lassen nur eine eingeschränkte zusätzliche Barrierenwirkung erwarten. Hierbei ist allerdings zu beachten, daß ausschließlich Kurzzeitexperimen-

te durchgeführt wurden. Es besteht die Möglichkeit, daß die in der Realität langsamer und wesentlich länger laufenden Prozesse dort stärkere Verdichtungen bewirken; eine eindeutige Aussage hierzu kann aus den Projektergebnissen jedoch nicht abgeleitet werden. In einigen Experimenten wurden in der Nähe der Wärmequelle erhebliche lokale Versatzauflockerungen bis hin zur Ausbildung offener Hohlräume beobachtet. Solche Hohlräume könnten in der Realität sogar zur Beschleunigung der Schadstofffreisetzung führen.

Die durchgeführten Experimente haben in Wechselwirkung mit der theoretischen Modellierung das Verständnis für die Vorgänge, die beim Laugenzutritt in eine thermisch beeinflusste Einlagerungsstrecke ablaufen, vertieft und erweitert. Es bleibt allerdings festzustellen, daß viele Einzeleffekte noch nicht ausreichend verstanden sind.

In bisherigen Langzeitsicherheitsanalysen wurden zusätzliche Barrierenwirkungen durch Auf- und Umlösungseffekte in der Zuflußphase nicht berücksichtigt. Dies bedeutet die Annahme eines sofortigen Kontakts zutretender Lauge mit den Abfallbehältern sowie der instantanen Ausbreitung mobilisierter Nuklide im gesamten Einlagerungsbereich. Insofern ist diese Vorgehensweise als konservativ einzustufen. Aus den hier dargelegten Projektergebnissen können keine Erkenntnisse gefolgert werden, die diese Konservativität als übertrieben erscheinen lassen. Die Vernachlässigung der Bildung zusätzlicher Barrieren im Versatz ist als konservative Annahme daher auch weiterhin vertretbar.

7 Anhang: Physikalische und chemische Daten

Für die Abschätzungen und Modellrechnungen war eine dokumentierte Basis von relevanten Daten erforderlich. Ein Großteil dieser Daten konnte aus der Literatur entnommen werden. Zur Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus, insbesondere unter Feuchteeinfluß, sind in der Literatur jedoch kaum Meßdaten zu finden. Für den trockenen Fall konnte auf eine Meßreihe der GSF aus dem Jahr 1990 zurückgegriffen werden. Zur Untersuchung der Wärmeleitfähigkeit von feuchtem Salzgrus wurde eine spezielle Meßreihe konzipiert, die an der TU Dresden ausgeführt wurde [B-2].

Die für die einzelnen Untersuchungen wichtigen Daten sind im folgenden übersichtsartig zusammengestellt.

7.1 Laugendichte und Löslichkeit

Die Laugendichte hängt von der Temperatur ab. Da die Salzlöslichkeit ebenfalls temperaturabhängig ist, ergibt sich für gesättigte NaCl-Lösung eine andere Funktion $\rho_L(T)$ als für eine Lösung mit fester Konzentration. Messungen aus verschiedenen Quellen zur Konzentration und Dichte gesättigter Lösungen wurden von D'Ans [1] zusammengestellt. Diese Daten sind in Abbildung 7.1 dargestellt. Sie wurden unter uneinheitlichen Laborbedingungen bestimmt. Unter diesem Aspekt erscheint es wenig sinnvoll, eine formale Interpolationskurve nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate zu bestimmen und dabei offensichtliche „Ausreißer“ genau so zu werten wie andere Messungen. Ebenso wenig kann aus den Daten ein signifikantes quadratisches Glied abgelesen werden. Die Genauigkeit der bei D'Ans angegebenen Interpolationsformel erscheint daher nicht angebracht. Stattdessen sollte die subjektiv bestimmte Gerade

$$\rho_L / [\text{kg/l}] = 1,209 - 4,29 \cdot 10^{-4} T / [^\circ\text{C}] \quad (12)$$

genügen. Sie ist in Abbildung 7.1 eingezeichnet.

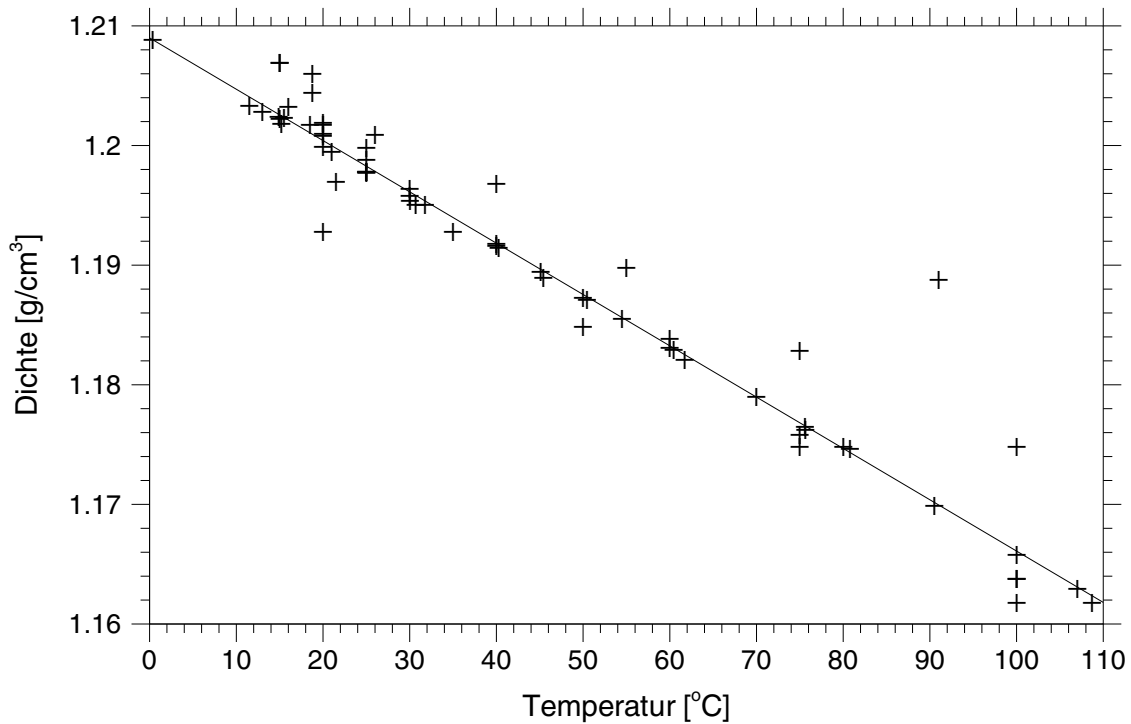


Abb. 7.1: Dichte gesättigter NaCl-Lösungen. Die Kreuze sind die Daten aus der Zusammenstellung von D'Ans, die durchgezogene Linie ist eine subjektive Regressionsgerade.

Die Temperaturabhängigkeit der Löslichkeit von NaCl ist ebenfalls in der Datensammlung von D'Ans enthalten. Dort wird folgende Interpolationsformel angegeben, die über einen weiten Temperaturbereich Gültigkeit besitzen soll:

$$L / [\text{mol Na}_2\text{Cl}_2 / 1000 \text{ mol H}_2\text{O}] = 54,95 + 0,0012 T / [^\circ\text{C}] + 0,00195 (T / [^\circ\text{C}])^{1,72} \quad (13)$$

Bei der Umrechnung der Löslichkeit auf die Einheit mol/l muß die temperaturabhängige Dichte ρ berücksichtigt werden. Weiter ist zu beachten, daß 1 mol Na_2Cl_2 2 mol NaCl, also 0,11692 kg und 1000 mol H_2O 18,015 kg entsprechen:

$$L / [\text{mol/l}] = \frac{2\rho / \left[\frac{\text{kg}}{\text{l}}\right]}{0,11692 + \frac{18,015}{L / \left[\frac{\text{mol Na}_2\text{Cl}_2}{1000 \text{mol H}_2\text{O}}\right]}} \quad (14)$$

7.2 Wärmeleitfähigkeit

7.2.1 Steinsalz und trockener Salzgrus

Zur Wärmeleitfähigkeit von Steinsalz steht eine Reihe von Literaturwerten zur Verfügung. Zur Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus bei verschiedenen Porositäten und Temperaturen ist nur eine bisher unveröffentlichte Meßreihe von Walter, GSF aus dem Jahr 1990 bekannt (Tabelle 7.1) [16]. Weitere Werte wurden im Rahmen des hier beschriebenen Projekts an der TU Dresden im Temperaturbereich zwischen ca. 20 und 70 °C und für Porositäten zwischen 26 und 43 % gemessen [B-2]. Diese liegen in der Größenordnung von 0,5 W/(m K) und damit im Überschneidungsbereich etwa um einen Faktor 3 unter denen von Walter. Dies dürfte darauf zurückzuführen sein, daß bei den Dresdener Messungen Salzgrus von gröberer Körnung verwendet wurde. Schon diese Abweichungen zeigen, daß die Porosität allein kein ausreichendes Charakteristikum für die Beschreibung der Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus ist.

Ein phänomenologisch-theoretischer Ansatz zur Beschreibung der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus wurde von Breidenich [4] entwickelt. Danach gilt

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_S \frac{(1 - \phi)}{h_0(1 - (1 - \phi)^b) + (1 - \phi)^b} \quad (15)$$

mit

Tabelle 7.1: Wärmeleitfähigkeit in W / (m K) nach Walter, 1990

| Temp. °C | $\phi = 31,2\%$ | $\phi = 20,0\%$ | $\phi = 16,2\%$ | $\phi = 14,3\%$ | $\phi = 6,3\%$ | $\phi = 0,0\%$ |
|----------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|----------------|----------------|
| 55,70 | 1,5931 | | | | | |
| 56,76 | | 2,7523 | | | | |
| 57,50 | | 2,7090 | | | | 5,2572 |
| 57,68 | | | 3,2120 | | | |
| 57,86 | | | | | 4,0332 | |
| 57,92 | | | | 3,3197 | | |
| 93,10 | 1,4183 | | | | | |
| 94,23 | | 2,4335 | | | | |
| 95,00 | | | | | | 4,5807 |
| 96,00 | | 2,3992 | | | | |
| 97,29 | | | | 2,9200 | | |
| 97,35 | | | | | 3,6507 | |
| 100,48 | | | 2,8848 | | | |
| 133,10 | 1,2311 | | | | | |
| 135,40 | | 2,1194 | | | | |
| 138,00 | | | | | | 4,1886 |
| 138,50 | | 2,0718 | | | | |
| 140,30 | | | 2,4565 | | | |
| 141,39 | | | | 2,4656 | | |
| 141,87 | | | | | 3,1563 | |
| 156,62 | 1,1645 | | | | | |
| 158,12 | | 1,9414 | | | | |
| 162,00 | | | | | | 4,0189 |
| 164,61 | | | 2,3101 | | | |
| 165,67 | | | | 2,3295 | | |
| 166,63 | | | | | 2,9807 | |
| 168,18 | | 1,9534 | | | | |
| 187,80 | 1,0787 | | | | | |
| 189,89 | | 1,8212 | | | | |
| 197,00 | | | | | | 3,7271 |
| 198,54 | | | 2,0847 | | | |
| 200,12 | | | | 2,0574 | | |
| 201,93 | | | | | 2,6950 | |
| 203,50 | | 1,7551 | | | | |

$$b = \frac{\ln \frac{2}{3}}{\ln(1 - \phi_0)}, \phi_0 = \text{Anfangsporosität},$$

h_0 = Materialkonstante,

λ_S = Wärmeleitfähigkeit von Steinsalz,

λ_{eff} = effektive Wärmeleitfähigkeit von Salzgrus.

Zur Eichung des Modells wurden die Meßwerte von Walter verwendet. Dabei wurden zur Darstellung von $\lambda_S(T)$ die Werte für $\phi = 0$ durch ein Polynom interpoliert. Als Anfangsporosität wurde 38% angenommen. Die Konstante h_0 wurde nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate zu 4,56 bestimmt.

7.2.2 Feuchter Salzgrus

Zur Wärmeleitfähigkeit von feuchtem Salzgrus gibt es offenbar keine Literaturwerte. Aus diesem Grund wurden Messungen an der TU Dresden durchgeführt, deren Ergebnisse auf der Begleit-CD enthalten sind [B-2]. In Abbildung 7.2 sind die Meßwerte zusammengestellt, für Details sei auf den erwähnten Bericht verwiesen. Aufgrund dieser Messungen kann man davon ausgehen, daß annähernd laugegesättigter Salzgrus mit einer Wärmeleitfähigkeit von 2,0 W/(m K) einigermaßen korrekt beschrieben wird.

7.2.3 Lauge

Zur Wärmeleitfähigkeit von NaCl-Lösungen verschiedener Konzentrationen bei verschiedenen Temperaturen finden sich Daten bei D'Ans-Lax¹ [2]:

Diese Werte variieren nur wenig und liegen um eine Größenordnung unter denen von Steinsalz. Daraus ist zu folgern, daß die Wärmeleitung in der Lauge gegenüber der im Salz keinen wesentlichen Einfluß hat. Diese Daten sind daher von geringerer Wichtigkeit.

¹ Bei der dort angegebenen Einheit $\mu\text{W}/(\text{m K})$ dürfte es sich um einen Fehler handeln. Ein Vergleich mit ähnlichen Daten aus anderen Quellen (auch aus demselben Tabellenwerk) legt nahe, daß $\text{mW}/(\text{m K})$ gemeint ist. Dies wurde in Tabelle 7.2 berücksichtigt.

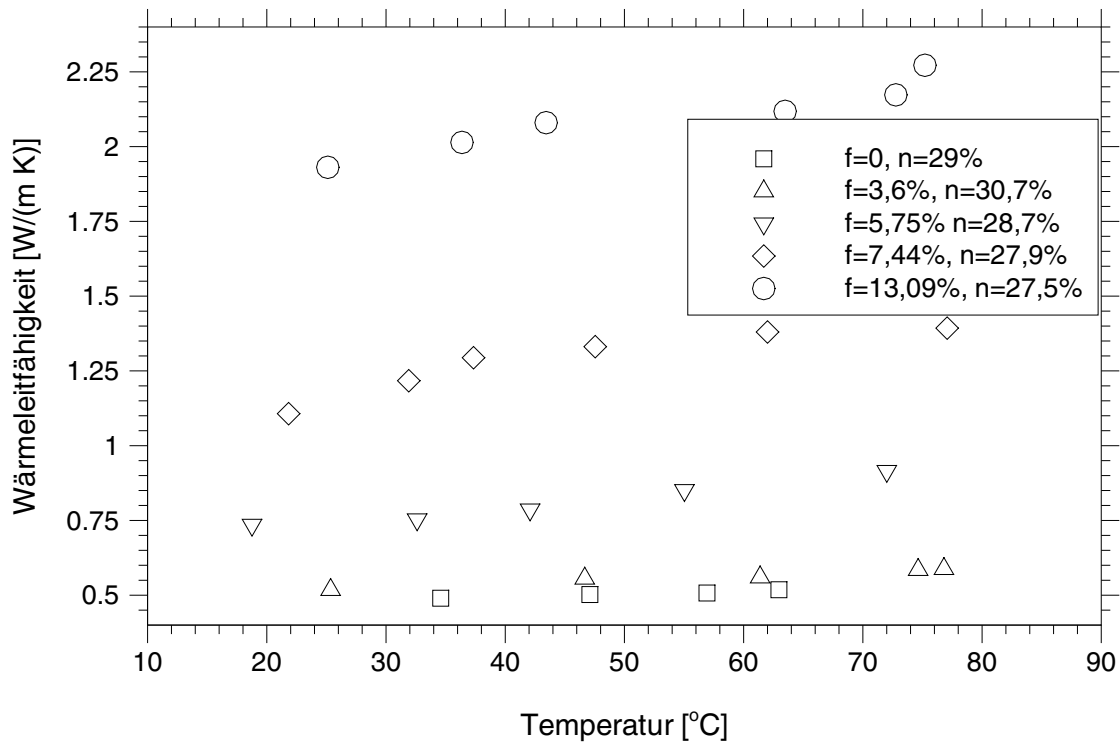


Abb. 7.2: Wärmeleitfähigkeit von Salzgrusproben unterschiedlicher Feuchte. (Feuchteangaben in Gewichts-%)

Tabelle 7.2: Wärmeleitfähigkeit von NaCl-Lösung in W / (m K)

| Temp. °C | Konzentration in Massen-% | | | | | |
|----------|---------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 0 | 5 | 10 | 15 | 20 | 25 |
| 1,5 | 0.563 | 0.559 | 0.556 | 0.552 | 0.549 | 0.545 |
| 20 | 0.599 | 0.595 | 0.590 | 0.585 | 0.579 | 0.572 |
| 25 | 0.608 | 0.605 | 0.600 | 0.594 | 0.588 | 0.582 |
| 30 | 0.618 | 0.611 | 0.604 | 0.597 | 0.590 | 0.583 |

7.2.4 Dampf

Wasserdampf hat wie alle Gase eine sehr geringe Wärmeleitfähigkeit. Sie hängt von der Temperatur und vom Druck ab, die Werte (nach D'Ans-Lax) liegen noch einmal um einen Faktor 20 - 30 unter denen von Wasser. Dies rechtfertigt die komplette Vernachlässigung konduktiver Effekte im Dampf.

7.3 Viskosität

7.3.1 Wasserdampf

Die dynamische Viskosität des Dampfes hängt von der Temperatur und in geringem Maß vom Druck ab. Bei D'Ans-Lax finden sich folgende Werte für Normaldruck (10^5 Pa):

Tabelle 7.3: Dampfviskosität in 10^{-6} kg/(m s)

| | | | | | | |
|------------|------|------|------|------|------|------|
| Temp. °C | 100 | 125 | 150 | 175 | 200 | 225 |
| Viskosität | 12,3 | 13,2 | 14,2 | 15,2 | 16,2 | 17,2 |

Die Temperaturabhängigkeit ist in diesem Bereich offensichtlich annähernd linear:

$$\eta/[10^{-6} \text{ kg/(m s)}] = 12,2 + 0,04 (T/[\text{°C}] - 100). \quad (16)$$

Die Druckabhängigkeit der Dampfviskosität braucht nicht berücksichtigt zu werden.

7.3.2 Lauge

Die dynamische Viskosität von Lauge hängt ebenso wie die von Wasser in starkem Maß von der Temperatur ab. Detaillierte Werte sind bei D'Ans-Lax nur für Wasser zu finden, in der folgenden Tabelle sind zum Vergleich Werte aus dem Handbook of Electrolyte Solutions [10], S.1603, sowie aus dem Handbook of Chemistry and Physics [17], S.F-37, angegeben.

Tabelle 7.4: Dynamische Viskosität von Wasser in 10^{-6} kg/(m s)

| | | | | | | | |
|----------------|------|------|------|------|------|-------|-------|
| $T/ \text{°C}$ | 0 | 10 | 15 | 18 | 20 | 30 | 40 |
| D'Ans-Lax | 1792 | 1308 | | | 1003 | 797,7 | 653,1 |
| HES | 1794 | 1309 | 1143 | 1060 | 1009 | 802 | 657 |
| HCP | 1787 | 1307 | 1139 | 1053 | 1002 | 797,5 | 652,9 |

Tabelle 7.4: Dynamische Viskosität von Wasser in 10^{-6} kg/(m s)

| $T/^\circ\text{C}$ | 50 | 60 | 70 | 80 | 90 | 100 | |
|--------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--|
| D'Ans-Lax | 547,1 | 466,8 | 404,5 | 355,0 | 315,0 | | |
| HES | 553 | 472 | 407 | 358 | 316 | 285 | |
| HCP | 546,8 | 466,5 | 404,2 | 354,7 | 314,7 | 281,8 | |

Diese Werte sind in Abbildung 7.3 als $\ln \eta/[10^{-6} \text{ kg}/(\text{m s})]$ über $[K]/T$ aufgetragen. Die dort eingezeichnete Regressionskurve ist ein quadratisches Polynom, welches nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate für die arithmetischen Mittelwerte der drei Meßreihen bestimmt wurde:

$$\ln \eta/[10^{-6} \text{ kg}/(\text{m s})] = 5,81 - 1,459 \cdot 10^3 \frac{[K]}{T} + 5,227 \cdot 10^5 \left(\frac{[K]}{T} \right)^2. \quad (17)$$

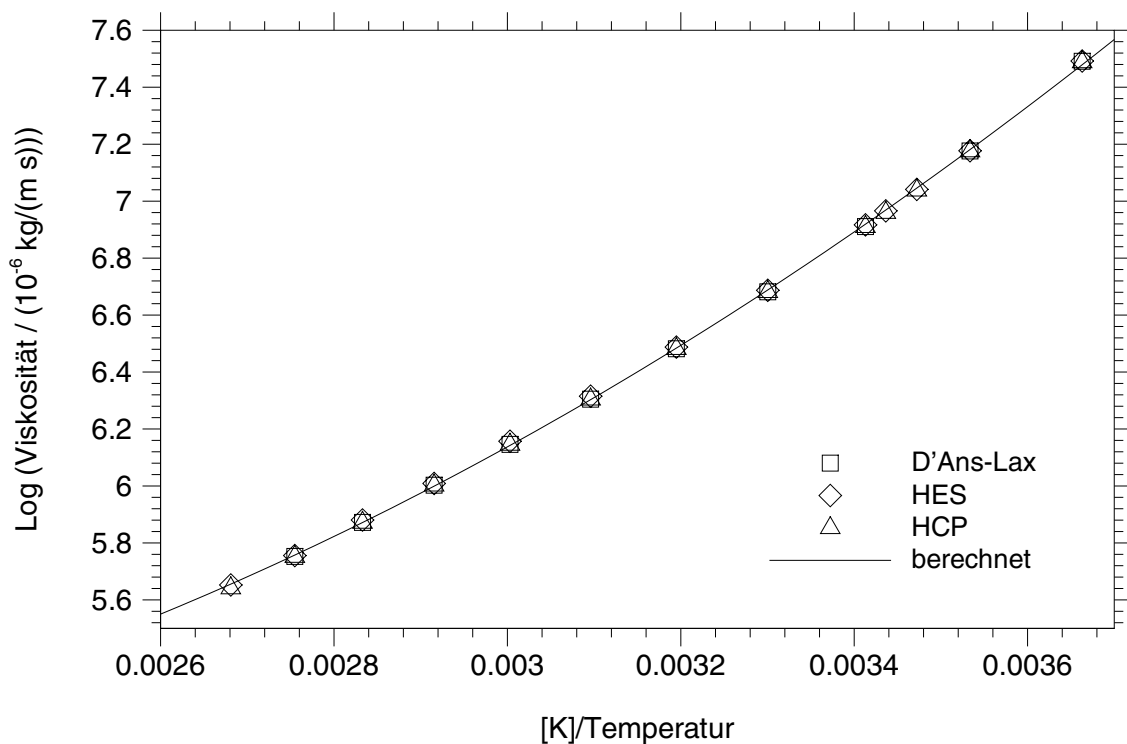


Abb. 7.3: Viskosität von Wasser

Im HES, S. 1622, finden sich Meßwerte für die relative, d. h. auf Wasser bezogene Viskosität η_r von gesättigter NaCl-Lösung bei verschiedenen Temperaturen:

Tabelle 7.5: Relative Viskosität von gesättigter Kochsalzlösung

| | | | | | | | |
|--------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| $T/^\circ\text{C}$ | 10 | 20 | 25 | 30 | 40 | 50 | 60 |
| η_r | 1,979 | 1,982 | 1,984 | 1,985 | 1,989 | 1,991 | 1,993 |

Die Viskosität der Lauge ist damit über den ganzen Temperaturbereich etwa doppelt so groß wie die von Wasser. Es ist schwierig, diese Daten zu extrapolieren, da nicht klar ist, ob die Abflachung der Kurve bei höheren Temperaturen real ist.

Im Rahmen des hier beschriebenen Projekts wurden von Nitsche Messungen der dynamischen Viskosität von gesättigter NaCl-Lauge für die Permeabilitätsbestimmung von Salzproben durchgeführt [3]. Die Meßwerte sind in Tabelle 7.6 aufgelistet.

Tabelle 7.6: Dynamische Viskosität gesättigter NaCl-Lauge nach Nitsche

| | | | | |
|--|-------------|------|------|-----|
| $T/^\circ\text{C}$ | 20 | 40 | 60 | 80 |
| $\eta/10^{-6} \text{ kg}/(\text{m s})$ | 2150 / 2120 | 1430 | 1120 | 870 |

7.4 Dampfdruck

Die Dampfdruckkurve von Flüssigkeiten, deren Verdampfungsenthalpie Λ nur wenig von der Temperatur abhängt, wird durch ein Gesetz der Form

$$p = a \cdot e^{-\frac{\Lambda}{RT}} \quad (18)$$

beschrieben [7]. Für gesättigte NaCl-Lösung gelten folgende Werte [2]:

Tabelle 7.7: Dampfdruck-Temperatur-Werte für gesättigte NaCl-Lösung

| $T/^\circ\text{C}$ | $p/[\text{Pa}]$ | $[\text{K}]/T$ | $\ln(p/p_{\text{norm}})$ |
|--------------------|-----------------|----------------------|--------------------------|
| 26,82 | 2666,45 | $3,33 \cdot 10^{-3}$ | -3,64 |
| 34,2 | 3999,67 | $3,25 \cdot 10^{-3}$ | -3,23 |
| 43,71 | 6666,12 | $3,16 \cdot 10^{-3}$ | -2,72 |

Tabelle 7.7: Dampfdruck-Temperatur-Werte für gesättigte NaCl-Lösung

| $T/[^{\circ}\text{C}]$ | $p/[\text{Pa}]$ | $[\text{K}]/T$ | $\ln(p/p_{\text{norm}})$ |
|------------------------|-----------------|----------------------|--------------------------|
| 57,49 | 13332,24 | $3,02 \cdot 10^{-3}$ | -2,03 |
| 96,8 | 66661,20 | $2,70 \cdot 10^{-3}$ | -0,418 |
| 108,8 | 101325,0 | $2,62 \cdot 10^{-3}$ | 0 |

Die Werte in den beiden letzten Spalten liegen in guter Näherung auf einer Geraden, wodurch (18) bestätigt ist. Anhand der Ausgleichsgeraden können folgende Werte ermittelt werden:

$$a = 6,523 \cdot 10^{10} \text{ Pa} \quad \Lambda/R = 5104,5 \text{ K} \rightarrow \Lambda = 42,42 \text{ kJ/mol}$$

entspricht $2,36 \cdot 10^6 \text{ J/kg}$.

7.5 Wärmekapazität

7.5.1 Steinsalz

Für die spezifische Wärmekapazität von Salz stehen bei d'Ans-Lax (3.Aufl.) folgende Werte:

Tabelle 7.8: spezifische Wärmekapazität von NaCl

| $T/^{\circ}\text{C}$ | -73,15 | 25 | 126,85 | 226,85 |
|-------------------------------|--------|-------|--------|--------|
| $c_p/\text{J}/(\text{mol K})$ | 47,00 | 50,79 | 52,47 | 54,10 |

7.5.2 Dampf

Die Wärmekapazität des Wasserdampfes hängt geringfügig vom Druck und in etwas stärkerem Maß von der Temperatur ab. Die Werte, die bei d'Ans-Lax in $\text{J}/(\text{g K})$ angegeben sind, wurden in Tabelle 7.9 durch Multiplikation mit 18,015 auf $\text{J}/(\text{mol K})$ umgerechnet. Sie beziehen sich auf Normaldruck.

Tabelle 7.9: spezifische Wärmekapazität von Wasserdampf

| T/°C | 100 | 125 | 150 | 175 | 200 | 225 |
|-------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| c_p / J/(mol K) | 36,444 | 35,958 | 35,652 | 35,544 | 35,562 | 35,670 |

7.5.3 Lauge

Die temperaturabhängige spezifische Wärmekapazität von gesättigter Salzlauge wurde im Rahmen des an der TU Dresden durchgeführten Meßprogramms bestimmt. Die genauen Ergebnisse sind im Meßbericht [B-2] enthalten. Dort wird als Bestapproximation die Berechnungsvorschrift

$$\frac{c_p}{[\text{J}/(\text{g K})]} = 3,3046 + 9,5911 \cdot 10^{-4} \frac{T}{[^\circ\text{C}]} - 2,5021 \cdot 10^{-6} \left(\frac{T}{[^\circ\text{C}]} \right)^2 \quad (19)$$

angegeben.

7.6 Permeabilität

Die Permeabilität von Salzgrus wird in den Nahbereichsmodulen von EMOS nach der Formel

$$k_0 = c\phi^q \quad (20)$$

berechnet. Für die phänomenologischen Parameter c und q werden z. B. die Werte $c = 2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$ und $q = 4,5$ verwendet, die Porosität ist als Absolutzahl zu lesen.

Eine ausführliche Zusammenstellung und Aufarbeitung des heute verfügbaren Datenmaterials zur Permeabilität von Salzgrus, einschließlich statistischer Analysen, ist enthalten in [12]. Dadurch wird die Beziehung (20) im wesentlichen bestätigt, die Parame-

ter c und q variieren allerdings zwischen verschiedenen Meßreihen und insbesondere Kompaktionsverfahren (feucht - trocken). Als statistische Bestwerte über alle akzeptierten Meßdaten werden die Werte $c = 6,237 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ und $q = 4,497$ angegeben.

Literaturverzeichnis

- [1] D'Ans, J.: Die Lösungsgleichgewichte der Systeme der Salze ozeanischer Salzablagerungen, Kali-Forschungsanstalt, Berlin: Verl. Ges. f. Ackerbau 1933
- [2] D'Ans, J., Lax, E.: Taschenbuch für Chemiker und Physiker, 3. Aufl., Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York 1967
- [3] G. Arens, S. Hossain, E. Fein: SWIFT: Intera Simulator for Waste Injection Flow and Transport, Version: GSF2. GSF-Bericht 28/90. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig, 1992
- [4] G. Breidenich.: Gekoppelte Berechnung der thermomechanischen Feldgrößen in einer Steinsalzformation infolge der Einlagerung radioaktiver wärmefreisetzender Abfälle. Aachener Beiträge zur Energieversorgung (Band 16), 1994
- [5] D. Buhmann: Das Programmpaket EMOS. Ein Instrumentarium zur Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagern. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-159, Braunschweig 1999
- [6] D. Buhmann, A. Nies, R. Storck: Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle. GSF-Bericht 27/91. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig 1991
- [7] Gerthsen, Kneser, Vogel: Physik. 14. Aufl., Springer-Verlag 1982
- [8] R. Helmig, C. Braun. M. Emmert: MUFTE: A numerical model for the simulation of multiphase flow processes in porous and fractured-porous media. Programmdokumentation HG208, Universität Stuttgart 1994
- [9] S. Hossain: Prediction of buoyancy induced flow in underground radioactive waste disposal chambers within a mined repository. PSE-85/1, Berlin 1985

- [10] V. M. M. Lobo: Handbook of Electrolyte Solutions. Elsevier, Amsterdam - Oxford - New York - Tokyo 1989
- [11] G. de Marsily: Quantitative Hydrology, Academic Press, Inc. San Diego 1986
- [12] I. Müller-Lyda, H. Birthler, E. Fein: Ableitung von Permeabilitäts-Porositätsbeziehungen für Salzgrus. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-148, Braunschweig 1999.
- [13] J. Schneefuß, J. Droste, G. Gommlich, G. Ohme, N. Jockwer, J. Mönig, J. Kunze: Arbeiten zur direkten Endlagerung von Brennelementen. Teil 1: Thermische Simulation der Streckenlagerung. GSF-Bericht 26/93. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Braunschweig 1993
- [14] L. Schneider et al.: Untersuchungen zur Szenarienmodellierung im Nahfeld eines wärmebeeinflussten Endlagerbereiches im Salzgestein. SIG-10/95, Dresden 1996
- [15] R. Storck, S. Hossain, T. Podtschaske, D. Rimkus, N. Stelte, P. Weber: Einzeluntersuchungen zur Radionuklidfreisetzung aus einem Modellsalzstock. In: Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE), Abschlußbericht: Fachband 15. Hahn-Meitner Institut, Berlin 1985
- [16] F. Walter, R. Mieke: Persönliche Mitteilung
- [17] R. C. Weast (Ed.): Handbook of Chemistry and Physics, 67th Edition. CRC Press, Boca Raton 1986

Projektbezogene Berichte:

- [B-1] D.-A. Becker, K.-P. Kröhn: Experimentelle und theoretische Untersuchung physikalisch-chemischer Vorgänge beim Laugenzutritt in Einlagerungsstrecken - Theoretischer Teil

- [B-2] A. Fattah, M. Mischke: Wärmekapazitätsbestimmung von gesättigter Natriumchloridlösung und Wärmeleitfähigkeitsmessung in Steinsalzgrus. Meßbericht St/1-98, Dresden 1998
- [B-3] C. Nitsche, P. Helming, C. Bethge: Ergebnisbericht über die Durchführung laborativer Untersuchungen an Steinsalzproben. BGD Dresden, 1999
- [B-4] C. Rudolph, S. Fischer, W. Voigt: Bericht zum Vorhaben: Experimentelle Untersuchung von Umlöse- und Transportprozessen im Temperaturgradienten im laugegesättigten Salzgrus. Freiberg 1999
- [B-5] L. Schneider, N.-M. Bremer, K.-J. Richter: Abschlußbericht: Experimentelle und theoretische Untersuchung physikalisch-chemischer Vorgänge beim Laugenzutritt in Einlagerungsstrecken - Experimenteller Teil. SIG-01/99, Dresden 1999

Die Berichte [B-1] bis [B-5] sind auf der begleitenden CD-ROM enthalten.

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|-----------|---|----|
| Abb. 2.1 | Muster für eine Einlagerungsstrecke | 3 |
| Abb. 2.2 | Gleichgewichtszustand der Einlagerungsstrecke vor Zuflußbeginn | 4 |
| Abb. 2.3 | Verdampfungsphase bei hoher Zulauftrate und dichtem Verschuß | 6 |
| Abb. 2.4 | Ende der Verdampfungsphase aufgrund des Druckanstiegs | 7 |
| Abb. 2.5 | Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate und dichtem Verschuß | 8 |
| Abb. 2.6 | Ende der Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate | 8 |
| Abb. 2.7 | Verdampfungsphase bei durchlässigem Verschuß. Die vertikal eingezeichnete Richtstrecke verläuft in der Realität horizontal | 9 |
| Abb. 2.8 | Verdampfungsphase bei geringer Zulauftrate und durchlässigem Verschuß..... | 10 |
| Abb. 3.1 | Kopplung der Modellgrößen, Parameter und Effekte beim Laugenzutritt in Einlagerungsstrecken | 17 |
| Abb. 4.1 | Abhängigkeit der Oberflächentemperatur einer kugelförmigen Wärmequelle von der Wärmeleitfähigkeit des Salzgruses | 21 |
| Abb. 4.2 | Theoretischer Temperaturverlauf an der Oberfläche einer zylindrischen Wärmequelle (schwarzer Bereich)..... | 22 |
| Abb. 4.3 | Theoretischer radialer Temperaturverlauf in der Streckenmitte..... | 23 |
| Abb. 5.1 | Physikalische Effekte und Randbedingungen beim Experiment I | 28 |
| Abb. 5.2 | Schema des Versuchsaufbaus für Experiment I..... | 30 |
| Abb. 5.3 | Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment I-2 | 33 |
| Abb. 5.4 | Vertikale Dichteverteilung der Salzkörper beider Telexperimente | 33 |
| Abb. 5.5 | Vertikalschnitte der Probenkörper beider Telexperimente vom Typ I... 34 | |
| Abb. 5.6 | Physikalische Effekte und Randbedingungen beim Experiment II | 35 |
| Abb. 5.7 | Schema des Versuchsaufbaus für Experiment II..... | 36 |
| Abb. 5.8 | Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment II-1. Der Einbruch in der Mitte ist auf einen kurzzeitigen Stromausfall zurückzuführen..... | 40 |
| Abb. 5.9 | Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment II-2 | 40 |
| Abb. 5.10 | Vertikale Temperaturverteilung in beiden Telexperimenten | 41 |
| Abb. 5.11 | Computertomographischer Vertikalschnitt der Probe II-1 (links) und modelltheoretisch ermittelte Dichteverteilung (rechts)..... | 41 |
| Abb. 5.12 | Computertomographische Schnittbilder der Probe II-2 | 42 |
| Abb. 5.13 | Randbedingungen und physikalische Effekte beim Experiment III..... | 43 |

| | | |
|-----------|--|----|
| Abb. 5.14 | Versuchsaufbau Experiment III-3 | 45 |
| Abb. 5.15 | Anfangs- und Randbedingungen für die eindimensionale (links) und zweidimensionale (rechts) Modellierung für Experiment III | 47 |
| Abb. 5.16 | Zeitlicher Temperaturverlauf im Experiment III-3..... | 48 |
| Abb. 5.17 | Vertikale Temperaturverteilung im Experiment III-3..... | 49 |
| Abb. 5.18 | Vertikale Dichteverteilung im Experiment III-3..... | 49 |
| Abb. 5.19 | Computertomographischer Vertikalschnitt der Probe III-3..... | 50 |
| Abb. 5.20 | Computertomographische Horizontalschnitte der Probe III-3 | 51 |
| Abb. 5.21 | Berechnete Wassermassenströme im Experiment III-3 | 54 |
| Abb. 5.22 | Randbedingungen und physikalische Effekte beim Experiment IV | 55 |
| Abb. 5.23 | Versuchsaufbau für Experiment IV-3 | 57 |
| Abb. 5.24 | Modellierung von Experiment IV-3..... | 58 |
| Abb. 5.25 | Zeitlicher Temperaturverlauf beim Experiment IV-3..... | 60 |
| Abb. 5.26 | Vergleich der gemessenen und der berechneten Temperaturen im Experiment IV-3 | 60 |
| Abb. 5.27 | Berechnetes Strömungsfeld und Porositätsverteilung im Experiment IV nach 20 Tagen für IMantel = 0,4 W/(m K) (links) und 0,2 W/(m K) (rechts) | 61 |
| Abb. 5.28 | Computertomographische Horizontalschnitte des Probenkörpers IV-3..... | 62 |
| Abb. 5.29 | Computertomographischer Vertikalschnitt des Probenkörpers IV-3..... | 62 |
| Abb. 5.30 | Computertomographisch ermittelte Dichteverteilung des Probenkörpers vom Experiment I V-3..... | 63 |
| Abb. 5.31 | Modellgeometrie zur Darstellung einer realen Strecke..... | 64 |
| Abb. 5.32 | Berechnete Porositätsverteilung und Strömungsfeld im realen Streckenquerschnitt nach 50 (links) bzw. 250 (rechts) Tagen | 65 |
| Abb. 5.33 | Räumliche Temperaturverteilung im Experiment V | 67 |
| Abb. 5.34 | Zeitverlauf der Temperaturen im Experiment V | 67 |
| Abb. 5.35 | Versuchsaufbau Experiment V | 69 |
| Abb. 5.37 | Dichteverteilung beim Experiment V nach Versuchsende | 71 |
| Abb. 5.38 | Zeitentwicklung der Feuchteverteilung im Experiment V (aus Leitfähigkeitsmessung)..... | 72 |
| Abb. 5.36 | Computertomogramme vom Experiment V | 73 |
| Abb. 5.39 | Aufbau des Glasofens | 75 |

| | | |
|-----------|--|----|
| Abb. 5.40 | Temperatur- und Laugendichte im Glasofenexperiment mit Kopfheizung..... | 77 |
| Abb. 5.41 | Schematische Darstellung der Salzlagerungen nach Versuchsende beim Glasofenexperiment mit Kopfheizung | 77 |
| Abb. 5.42 | Gegenüberstellung der Porositäts-Permeabilitäts-Meßwerte aus den Experimenten I bis IV mit statistischen Bestwerten..... | 79 |
| Abb. 7.1 | Dichte gesättigter NaCl-Lösungen. Die Kreuze sind die Daten aus der Zusammenstellung von D'Ans, die durchgezogene Linie ist eine subjektive Regressionsgerade..... | 84 |
| Abb. 7.2 | Wärmeleitfähigkeit von Salzgrusproben unterschiedlicher Feuchte. (Feuchteangaben in Gewichts-%) | 88 |
| Abb. 7.3 | Viskosität von Wasser | 90 |

Tabellenverzeichnis

| | | |
|-------------|---|----|
| Tabelle 2.1 | Vergleichende Gegenüberstellung der Zulaufszszenarien..... | 11 |
| Tabelle 5.1 | Untersuchungsergebnisse der Probenkörper vom Experiment I..... | 32 |
| Tabelle 7.1 | Wärmeleitfähigkeit in W / (m K) nach Walter, 1990 | 86 |
| Tabelle 7.2 | Wärmeleitfähigkeit von NaCl-Lösung in W / (m K) | 88 |
| Tabelle 7.3 | Dampfviskosität in 10^{-6} kg/(m s)..... | 89 |
| Tabelle 7.4 | Dynamische Viskosität von Wasser in 10^{-6} kg/(m s) | 89 |
| Tabelle 7.5 | Relative Viskosität von gesättigter Kochsalzlösung..... | 91 |
| Tabelle 7.6 | Dynamische Viskosität gesättigter NaCl-Lauge nach Nitsche | 91 |
| Tabelle 7.7 | Dampfdruck-Temperatur-Werte für gesättigte NaCl-Lösung | 91 |
| Tabelle 7.8 | spezifische Wärmekapazität von NaCl..... | 92 |
| Tabelle 7.9 | spezifische Wärmekapazität von Wasserdampf..... | 93 |

Zum vorliegenden Bericht ist eine Begleit-CD-ROM erschienen. Darauf sind neben allen projektbezogenen Berichten die computertomographischen Aufnahmen der Probenkörper aus den Experimenten sowie einige Animationen zur Modellierung enthalten.

Die CD-ROM kann mit jedem HTML-Browser betrachtet werden, zur Wiedergabe der Animationen ist zusätzlich ein MPEG-Viewer erforderlich.

Sollte diesem Exemplar keine CD beiliegen, kann sie mit dem angehängten Bestellschein kostenlos angefordert werden.

Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit (GRS) mbH
Abteilung 401
Theodor Heuss-Str. 4
38122 Braunschweig

Fax: 0531 - 8012 - 200

Bitte schicken Sie mir ein Exemplar der CD-ROM:
Experimentelle und theoretische Untersuchung physikalisch-chemischer Vorgänge beim Laugenzutritt in Einlagerungsstrecken

Name:

Firma:

Straße, Nummer:

PLZ, Ort:

Unterschrift:

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln
Telefon (02 21) 20 68 -0
Telefax (02 21) 20 68 -888

Forschungsgelände
85748 Garching b. München
Telefon (0 89) 3 20 04 -0
Telefax (0 89) 3 20 04 -599

Kurfürstendamm 200
10719 Berlin
Telefon (0 30) 8 85 89 -0
Telefax (0 30) 8 85 89 -111

Theodor-Heuss-Straße 4
38122 Braunschweig
Telefon (05 31) 80 12 -0
Telefax (05 31) 80 12 -200