

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Hydraulische Kennwerte tonhaltiger Mineralgemische zum Verschluss von Untertagedeponien (KENTON)

**Final Report** 





Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Hydraulische Kennwerte tonhaltiger Mineralgemische zum Verschluss von Untertagedeponien (KENTON)

Rüdiger Miehe Klaus-Peter Kröhn Helge Moog

November 2003

#### Anmerkung:

Die diesem Bericht zugrunde liegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) unter dem Förderkennzeichen FKZ 02 C 0669 8 gefördert.

Die Arbeiten wurden von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt allein bei den Autoren.

GRS - 193 ISBN 3-931995-61-5

**Deskriptoren:** 

Deponie, Endlager, Gasbildung, Geosphäre, Hydraulische Eigenschaften, Langzeitsicherheit, Nuklidtransport, Technische Barriere, Zweiphasenströmung

### Vorwort

Zur Stilllegung einer Untertagedeponie (UTD) muss sichergestellt werden, dass Abfälle langfristig und zuverlässig von der Biosphäre isoliert sind. Dazu werden die Abfälle durch ein System von Barrieren eingeschlossen. In einem solchen Barrierensystem kann durch Optimierung der hydraulischen Eigenschaften der geotechnischen Barrieren ein sicherer Einschluss von Schadstoffen gewährleistet werden. Da bei Zutritt von Wasser/Salzlösungen in Kontakt mit metallischen Bestandteilen durch Korrosion sowie durch mikrobielle Zersetzung eine Gasentwicklung ablaufen kann und das umgebende Gebirge einer UTD solche Gasmengen nur zum geringen Teil aufzunehmen in der Lage ist, besteht die Möglichkeit, dass sich unzulässig hohe Drücke in den Ablagerungskammern aufbauen können. Aus diesem Grund muss sichergestellt sein, dass ein Druckabbau über die Dichtung erfolgen kann. Die Abdichtung kann durch Einsatz tonhaltiger Materialien erfolgen. Durch eine Auswahl geeigneter Ton-Mineral-Mischungen (z.B. Ton-Sand-Gemische, Ton-Splitt-Gemische) ist die Möglichkeit gegeben, das Durchlässigkeitsverhalten speziell für Wasser/Lösungen und im Falle eines Zweiphasenflusssystems Gas/Flüssigkeit gezielt einzustellen.

In dem im vorliegenden Bericht beschriebenen Vorhaben wurden im Zeitraum von 01.10.1999 bis 31.03.2003 Laboruntersuchungen an Ton-Mineral-Gemischen unter Zweiphasenflussbedingungen mit Gas, Wasser und Lauge zur Charakterisierung der Verschlussmaterialien bzw. zur Bewertung ihrer Dichtwirkung vorgenommen. In diesem Zusammenhang wurden zur Erweiterung der Datenbasis der im Vorhaben "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" FKZ 02 E 9017 0 ("Zweiphasenflussprojekt") ermittelten Ergebnisse für Ton-Sand-Gemische, die Untersuchungen weitergeführt und mit einem Modellansatz nach van Genuchten ausgewertet. Ergänzend erfolgten Messungen mit Q-Lauge.

An einer ausgewählten Ton-Splitt-Mischung wurden orientierende Messungen zur Überprüfung des Einflusses größerer Kornbestandteile auf das hydraulische Verhalten durchgeführt. Die Ankopplung des Dichtmaterials an ein Wirtsgestein wurde exemplarisch an einem Großbohrkern an Steinsalz untersucht.

I

## Inhaltsverzeichnis

	Vorwort	I	
1	Einleitung	1	
2	Theoretische Grundlagen	3	
2.1	Porosität und Dichte	3	
2.2	Einphasenpermeabilitäten für Gase und Flüssigkeiten	5	
2.3	Zweiphasenflusseigenschaften für Gas und Flüssigkeiten		
2.3.1	Relative Permeabilität und Kapillardruck		
2.4	Zustandsgleichungen für den Zweiphasenfluss nach van Genuchten	9	
3	Probenpräparation	11	
3.1	Herstellung von Sand-Ton-Proben	11	
3.2	Herstellung von Splitt-Ton-Mischungen	13	
3.3	Herstellung großkalibriger mit Ton-Sand gefüllter Steinsalzkerne	14	
4	Versuchsdurchführung	19	
4.1	Bestimmung der einphasigen Permeabilitäten	19	
4.1.1	Untersuchungen an Sand-Ton-Proben und Splitt-Ton-Mischungen		
	für Gas, Wasser und Lauge	19	
4.1.2	Untersuchungen an großkalibrigen Proben mit Gas und Lauge	23	
4.2	Ermittlung der effektiven Permeabilitäten und des Kapillardrucks	26	
4.2.1	Untersuchungen an Sand-Ton-Proben und Splitt-Ton-Mischungen mit Gas in Abhängigkeit von der Wasser- bzw. Laugensättigung	26	
4.2.2	Untersuchungen an großkalibrigen Proben mit Gas in Abhängigkeit von der Laugensättigung	28	
5	Ergebnisse und Interpretation	29	
5.1	Sand-Ton-Gemische	29	
5.1.1	Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge	29	
5.1.2	Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Wassersättigung		
	und der Q-Laugensättigung	31	

5.1.3	Ermittlung der Zweiphasenflussparameter			
5.1.3.1	Konzeptmodell der Aufsättigung	33		
5.1.3.2	Messergebnisse	36		
5.1.3.2.1	Trockener Zustand			
5.1.3.2.2	Voll gesättigter Zustand			
5.1.3.2.3	Teilgesättigter Zustand			
5.1.3.3	Restsättigungen und Bezugspermeabilität			
5.1.3.4	Abhängigkeit der Ergebnisse vom Tonanteil			
5.1.3.5	Parameterbestimmung			
5.1.4	Chemische Zusammensetzung der Permeate	54		
5.2	Splitt-Ton-Gemische	60		
5.2.1	Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge			
5.2.2	Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Wassersättigung und der Q-Laugensättigung	61		
5.3	Großkalibrige Steinsalzkerne	63		
5.3.1	Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge	63		
5.3.2	Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Q-Laugensättigung 65			
5.3.3	Mechanisches Verhalten von großen Prüfkörpern aus Salzring			
	und Sand-Ton-Gemisch	70		
6	Zusammenfassung	73		
	Literaturverzeichnis	77		
	Abbildungsverzeichnis	79		
	Tabellenverzeichnis	83		
	Anhang: Messergebnisse der Sand-Ton- und Splitt-Ton-			
	Proben	85		

## 1 Einleitung

Zur Stilllegung von Untertagedeponien (UTD`s) sind Maßnahmen zu ergreifen, die eine langfristige und zuverlässige Isolierung der Abfälle von der Biosphäre sicherstellen. Zum Erreichen dieses Schutzzieles müssen die Abfälle durch ein System "unabhängiger", Barrieren bestehend z.B. aus Dämmen, Bohrloch- und Schachtverschlüssen, eingeschlossen werden. In einem solchen Multibarrierensystem können die geotechnischen Barrieren bei Optimierung ihrer hydraulischen Eigenschaften einen wesentlichen Beitrag zum sicheren Einschluss der Schadstoffe leisten.

Als Material für Verschlussbauwerke werden Tone und Ton-Sand-Gemische diskutiert und in Forschungsvorhaben, wie z.B. zu "Schachtverschlüssen" FKZ 02 C 0516 oder "Streckenverschlüssen" FKZ 02 C 0547 bereits im Rahmen von In-situ-Versuchen untersucht. Bisher gibt es noch keine abschließenden Aussagen darüber, welches Material für Verschlussbauwerke geeignet ist und zur Anwendung kommen soll. Gemische aus Ton und mineralischen Beimengungen wie Sand und/oder Splitt stellen im Vergleich zu reinem Ton eine kostengünstige Lösung dar, für die allerdings bisher noch keine abgesicherten Untersuchungen zum hydraulischen Verhalten speziell zu deren Zweiphasenflusseigenschaften verfügbar sind.

Wie bereits erste Untersuchungen im Projekt "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" FKZ 02 E 9017 0 ("Zweiphasenflussprojekt") zeigten, kann durch den Einsatz unterschiedlicher Sand-Ton-Anteile das hydraulische Verhalten gezielt beeinflusst werden /JOC 00/. So weisen Sand-Ton-Gemische unabhängig vom Tongehalt im trockenen Zustand eine höhere Gasdurchlässigkeit auf, so dass Gasüberdrücke in den Ablagerungsbereichen vermieden werden können. Unter Einfluss von Wasser führt ein höherer Tonanteil zu einer deutlichen Herabsetzung sowohl der Wasser- als auch der Gaspermeabilität.

Im Rahmen des vorliegenden Vorhabens "Hydraulische Kennwerte von tonhaltigen Mineralgemischen zum Verschluss von Untertagedeponien" FKZ 02 C 0669 ("KEN-TON") sollte zum einen die Datenbasis zum hydraulischen Verhalten von Sand-Ton-Gemischen unter Wassereinfluss bestätigt und erweitert werden. Die funktionellen Abhängigkeiten der Zweiphasenflussparameter wurden mittels der Beziehung von van Genuchten ermittelt.

1

Zum anderen wurde untersucht, wie sich Lauge, hier Q-Lauge, auf die hydraulischen Eigenschaften von Sand-Ton-Gemischen auswirkt. Weiterhin wurde der Einfluss gröberer Mineralbeimengungen, wie Splitt, bei Zugabe von Wasser und Q-Lauge überprüft.

Um Aussagen über die Wechselwirkung des Abdichtmaterials mit einem Wirtsgestein zu treffen, erfolgten Untersuchungen an einem großkalibrigen Steinsalzkern, der mit einer Zentralbohrung versehen war. Zur Überprüfung unterschiedlicher Einbringtechniken wurde die Zentralbohrung eines Kerns mit einer Iosen Sand-Ton-Schüttung und die eines zweiten Kerns mit vorkompaktierten Sand-Ton-Proben verfüllt.

Geochemische Analysen zur Überprüfung der Wechselwirkung der Lauge mit dem Verschlussmaterial ergänzten die Untersuchungen.

## 2 Theoretische Grundlagen

#### 2.1 Porosität und Dichte

Ein Gestein setzt sich aus einem Matrixmaterial und einem Porenraum zusammen. Beim Porenraum wird zwischen dem geschlossenen Porenraum und dem offenen, untereinander verbundenen Porenraum (Nutzporenraum) unterschieden, wobei sich der offene Porenraum noch in den durchgängigen, am Fluss eines Fluids teilnehmenden Porenraum und einem solchen, der nicht am Fluss teilnimmt, den so genannten Sackporenraum, aufteilt.

Die Porosität  $\Phi$  eines porösen Körpers ist definiert als das Verhältnis von Porenvolumen V<sub>por</sub> zum Gesamtvolumen V<sub>b</sub> der Probe /TIA 99/:

$$\Phi = \frac{V_{por}}{V_b}$$
(2.1)

Das Porenvolumen berechnet sich aus der Differenz des Gesamtvolumens  $V_b$  und dem Volumen des Korngerüsts (Matrixvolumen)  $V_{mtx}$  des Körpers

$$V_{por} = V_b - V_{mtx}$$
(2.2)

mit:

V<sub>mtx</sub>

 $\begin{array}{lll} \Phi & \mbox{Porosität, -} \\ V_b & \mbox{Gesamtvolumen, m}^3 \\ V_{por} & \mbox{Porenvolumen, m}^3 \end{array}$ 

Matrixvolumen, m<sup>3</sup>

Bezogen auf den Gesamtporenraum wird die Porosität als Gesamtporosität und bei der Betrachtung des Nutzporenraums als effektive Porosität bezeichnet.

Unter Verwendung von (2.2) kann (2.1) auch geschrieben werden als

$$\Phi = 1 - \frac{V_{mtx}}{V_b}$$
(2.3)

Da das Volumen V mit der Masse m über die Dichte  $\rho$  verknüpft ist gemäß

$$\rho = \frac{\mathsf{m}}{\mathsf{V}} \tag{2.4}$$

ergibt sich unter der Voraussetzung, dass die Masse des Korngerüsts (der Matrix) der Gesamtmasse des Körpers entspricht, eine weitere Darstellung der Gesamtporosität unter Verwendung der Gesamtdichte  $\rho_b$  des Probekörpers und der Korndichte  $\rho_k$  des Korngerüsts in der Form

$$\Phi = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_k} \tag{2.5}$$

wobei

 $\rho_{b}$  Gesamtdichte, kg/m<sup>3</sup>

 $\rho_k$  Korndichte, kg/m<sup>3</sup>

ist.

Die Korndichte kann mittels eines Luftvergleichspyknometers und das Gesamtvolumen bei regelmäßigen Körpern geometrisch ermittelt werden.

Die Bestimmung der effektiven Porositäten, d.h. unter Berücksichtigung des effektiven Porenraums, kann über die Aufsättigung der Probe mit einer Flüssigkeit erfolgen. Hierbei muss vorausgesetzt werden, dass der Porenraum vollständig mit der Flüssigkeit (hier Wasser bzw. Lauge) gesättigt ist. Unter dieser Annahme entspricht das Volumen der aufgenommenen Flüssigkeit V<sub>fl</sub> dem Volumen des effektiven Porenraums V<sub>poreff</sub> und die effektive Porosität  $\Phi_{eff}$  kann aus dem Quotienten des effektiven Porenraums und des Gesamtvolumens nach (2.6) errechnet werden:

$$\Phi_{\text{eff}} = \frac{V_{\text{poreff}}}{V_{\text{b}}}$$
(2.6)

mit:

 $\Phi_{eff}$  effektive Porosität, -V<sub>poreff</sub> effektives Porenvolumen, m<sup>3</sup>

V<sub>b</sub> Gesamtvolumen, m<sup>3</sup>

Das aufgenommene Flüssigkeitsvolumen kann aus der Differenz der Masse des gesättigten Probekörpers und der trockenen Probe mittels Wägung unter Verwendung der jeweiligen Flüssigkeitsdichte (für Wasser: 1 g/cm<sup>3</sup>, für Q-Lauge: 1,286 g/cm<sup>3</sup>) berechnet werden. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, bei der Durchströmung der Probe mittels Massenbilanz zwischen eingebrachter und ausgetretener Flüssigkeit, die im Porenraum verbliebene Flüssigkeitsmenge zu bestimmen.

## 2.2 Einphasenpermeabilitäten für Gase und Flüssigkeiten

Ein wichtiges Maß für die Durchlässigkeit einer Probe ist die Permeabilität, die den Proportionalitätsfaktor im verallgemeinerten Fließgesetz nach Darcy darstellt, das für den Einphasenfluss gilt. In diesem Fließgesetz ist die Permeabilität der Theorie nach ausschließlich eine Eigenschaft des Korngerüstes und demnach unabhängig vom strömenden Fluid.

Zur Bestimmung der Einphasenpermeabilität wird eine Probe einer definierten Geometrie, in der Regel werden zylindrische Probekörper verwendet, mit einem Fluid durchströmt. Aus der Druckdifferenz am Probenein- und -ausgang, der Fließrate, den Probenabmessungen sowie der Dichte des Fluids kann die Permeabilität berechnet werden.

Die Bestimmungsgleichungen für kompressible Medien unterscheiden sich dabei von den Gleichungen für inkompressible Medien. Die mit Wasser oder Lauge ermittelten Permeabilitäten werden nach dem Fließgesetz für inkompressible Medien berechnet gemäß:

$$k_{w,L} = \frac{q_{w,L} \cdot \mu_{w,L} \cdot I}{A \cdot \Delta p}$$
(2.7)

mit:			
$k_{w,L}$	Wasser-/Laugenpermeabilität, m <sup>2</sup>		
$\mathbf{q}_{w,L}$	Fließrate des Wassers, der Lauge, m <sup>3</sup> /s		
Δр	Druckdifferenz, Pa		
$\mu_{w,L}$	Viskosität des Wassers, der Lauge, Pa·s		
I	Probenlänge, m		
А	Querschnittsfläche der Probe, m <sup>2</sup>		

Die Auswertung der mit Gas bestimmten Durchlässigkeiten erfolgt mit dem für kompressible Medien erweiterten Gesetz von Darcy

$$k_{g} = \frac{2 \cdot q_{g} \cdot \mu_{g} \cdot l \cdot p_{0}}{A \cdot \left(p_{1}^{2} - p_{0}^{2}\right)}$$
(2.8)

mit:

k<sub>a</sub> Gaspermeabilität, m<sup>2</sup>

q<sub>a</sub> Fließrate des Gases, m<sup>3</sup>/s

p<sub>1</sub> Injektionsdruck, Pa

p<sub>0</sub> Luftdruck, Pa

 $\mu_{\alpha}$  Viskosität des Gases, Pa·s

I Probenlänge, m

A Querschnittsfläche der Probe, m<sup>2</sup>

Bei Gasen tritt aufgrund der freien Weglängen der Gasmoleküle ein Gleitströmungseffekt an den Wänden des Porenraums auf, der dem durch ein Druckgefälle hervorgerufenen hydraulischen Fluss überlagert ist, und somit eine höhere Fließgeschwindigkeit und damit auch eine höhere Permeabilität vorspiegelt. Da die freie Weglänge der Moleküle vom Druck abhängt und mit steigendem Druck abnimmt, nimmt auch der Einfluss des Gleitströmungseffekts mit steigendem Druck im Porenraum ab. Aus diesem Grund werden die Durchlässigkeiten bei mehreren, mindestens aber bei drei Druckstufen gemessen. Der Gleitströmungseffekt kann mit der Klinkenberg-Korrektur berücksichtigt werden /AMY 80/, /TIA 99/:

$$k_{g} = k_{\infty} \left( 1 + \frac{b}{p_{m}} \right)$$
(2.9)

mit:

k<sub>g</sub> Gaspermeabilität, m<sup>2</sup>

$$K_{\infty}$$
 Klinkenberg-Permeabilität, m<sup>2</sup>

$$p_m$$
 Mittlerer Druck:  $p_m = \frac{p_1 + p_0}{2}$ , Pa

Für die unterschiedlichen Injektionsdrücke werden die zugehörigen Gaspermeabilitäten ermittelt. Die so bestimmten Gaspermeabilitäten  $k_g$  werden gegen den Kehrwert des mittleren Drucks  $p_m$  aufgetragen. Zur Ermittlung der nach Klinkenberg korrigierten Permeabilität  $k_{\infty}$  werden die gemessenen Gaspermeabilitäten auf einen "unendlichen" mittleren Druck interpoliert. Der Schnittpunkt der Geraden mit der Permeabilitätsachse bei  $\frac{\gamma_{p_m}}{\rho_m}$  ergibt dann die Klinkenberg-Permeabilität.

#### 2.3 Zweiphasenflusseigenschaften für Gas und Flüssigkeiten

Gegenüber der Einphasenströmung wird die Beschreibung eines hydraulischen Systems, in dem sich zwei oder mehrere nicht mischbare Fluide im Porenraum befinden, erheblich schwieriger. Die effektive Permeabilität einer Phase wird durch die jeweils andere Phase beeinflusst und durch den sättigungsabhängigen Kapillardruck an den Grenzflächen zwischen den Phasen wird der hydraulische Druck unter Umständen stark verändert.

#### 2.3.1 Relative Permeabilität und Kapillardruck

Bei vollständiger Sättigung des Porenraums mit nur einer Phase und unter der Voraussetzung, dass keine Wechselwirkung der Phasen mit der Gesteinsmatrix auftritt, wird die Durchlässigkeit des Körpers als absolute Permeabilität bezeichnet. Befinden sich mehrere Phasen gleichzeitig im Porenraum, wird der Fluss einer einzelnen Phase durch die jeweils anderen behindert. Die Permeabilitäten der einzelnen Phasen, die effektiven Permeabilitäten, werden somit auf einen dem Sättigungsgrad entsprechenden Anteil der absoluten Permeabilität verringert. Das Verhältnis zwischen effektiver und absoluter Permeabilität ist als relative Permeabilität für die jeweilige Phase definiert.

$$k_{\rm r} = \frac{k_{\rm eff}}{k_{\rm abs}}$$
(2.10)

mit:

k<sub>r</sub> relative Permeabilität der einzelnen Phase, -

k<sub>eff</sub> effektive Permeabilität der einzelnen Phase, m<sup>2</sup>

k<sub>abs</sub> absolute Permeabilität, m<sup>2</sup>

Als absolute Permeabilität wird in der Regel die mit Stickstoff gemessene einphasige Gaspermeabilität eingesetzt.

Der Kapillardruck wird durch die Grenzflächenspannung  $\sigma$  zwischen der benetzenden und der nicht benetzenden Phase, dem Kapillardurchmesser bzw. dem Porenradius r sowie dem Benetzungswinkel  $\alpha$  und damit dem Reibungswiderstand  $\cos \alpha$  bestimmt:

$$p_{c} = \frac{2 \cdot \sigma \cdot \cos \alpha}{r}$$
(2.11)

mit:

p<sub>c</sub> Kapillardruck, Pa

- σ Grenzflächenspannung, N/m
- r Porenradius, m
- $\alpha$  Benetzungswinkel, °

Im vorliegenden Vorhaben wurden die Untersuchungen zum Zweiphasenfluss für Gas (Stickstoff) und Wasser sowie Q-Lauge (IP 21) vorgenommen. Hierbei wird davon ausgegangen, dass das Wasser bzw. die Q-Lauge die benetzende und das Gas die nicht benetzende Phase darstellt.

#### 2.4 Zustandsgleichungen für den Zweiphasenfluss nach van Genuchten

Die relativen Permeabilitäten und Kapillardrücke im Mehrphasensystem können als Funktion der effektiven Wassersättigung  $S_{we}$  beschrieben werden. Diese wird aus der relativen Wassersättigung  $S_w$ , der Restwassersättigung  $S_{wr}$  und der Restgassättigung  $S_{ar}$  nach der Beziehung

$$S_{we} = \frac{S_{w} - S_{wr}}{1 - S_{wr} - S_{gr}}$$
(2.12)

berechnet. Durch diese Skalierung wird der Bereich der möglichen Wassersättigung  $S_{wr} \leq S_w \leq 1-S_{gr}$ , in dem die Gas- und die flüssige Phase gleichzeitig mobil sind, in den Bereich  $0 \leq S_{we} \leq 1$  transformiert. Analog lässt sich auch eine effektive Gassättigung definieren, und es gilt  $S_{we} + S_{ge} = 1$ . Da in dieser Arbeit der Kapillardruck und die relative Permeabilität immer in Abhängigkeit von der effektiven Wasser- bzw. Laugensättigung beschrieben werden, wird hierfür die einfachere Bezeichnung S<sub>e</sub> verwendet.

Im Zweiphasenflussprojekt wurden die Beziehungen von Brooks-Corey /BRO 64/ und von van Genuchten /GEN 80/ herangezogen, um den Zusammenhang zwischen dem Kapillardruck  $p_c$  bzw. den relativen Gas- und Flüssigkeitspermeabilitäten  $k_{gr}$  und  $k_{wr}$  in Abhängigkeit von der effektiven Sättigung darzustellen. Dabei zeigte sich, dass die Relationen nach dem Modell von van Genuchten besser geeignet waren die Mess-daten wiederzugeben, als das Brooks-Corey-Modell. Sie lauten in der allgemeinsten Form:

$$p_{c}(\alpha,m,n,S_{e}) = \frac{1}{\alpha} \cdot \left(S_{e}^{-\frac{1}{m}} - 1\right)^{\frac{1}{n}}$$
(2.13)

$$k_{g}(m, S_{e}) = (1 - S_{e})^{\gamma} \cdot (1 - S_{e}^{\frac{1}{m}})^{2m}$$
 (2.14)

$$k_{w}(m, S_{e}) = S_{e}^{\varepsilon} \cdot \left(1 - (1 - S_{e}^{\frac{1}{m}})^{m}\right)$$
(2.15)

In dieser Form enthalten die Beziehungen (2.13) bis (2.14) für das Modell von van Genuchten fünf Parameter ( $\alpha$ , n, m,  $\gamma$  und  $\epsilon$ ). Der Parameter  $\gamma$  in (2.14) und  $\epsilon$  in

(2.15) beschreiben die Verknüpfung der Poren untereinander. Als typische Werte für diese Parameter können  $\varepsilon = \frac{1}{2}$  und  $\gamma = \frac{1}{3}$  angenommen werden, wodurch sich die Zahl der freien Parameter auf drei verringert. Zwischen den beiden anderen van Genuchten- (vG-) Parametern m und n besteht außerdem nach der Theorie der Zusammenhang

$$m = 1 - 1/n$$
 (2.16)

Wenn die Gültigkeit dieses Zusammenhangs angenommen wird, kann damit entweder n oder m in der Beziehung für den Kapillardruck (2.13) eliminiert werden /HEL 97/.

## 3 Probenpräparation

Für die Herstellung der Sand-Ton-Proben wurde wie im Projekt "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" /JOC 00/, der gleiche gewöhnliche Bausand mit einer Korngröße von 0 bis 2 mm und Calcigel verwendet. Diese Materialien wurden auch bei den Untersuchungen an großkalibrigen Steinsalzkernen eingesetzt.

Im Rahmen der Sand-Ton-Untersuchungen war es zunächst vorgesehen, abweichend von der im obigen Projekt verwendeten Herstellungsrezeptur, die Proben mit einer Zugabe von einer konstanten Menge Wasser herzustellen. Die Vergleichbarkeit dieser Proben erfolgte über die Betrachtung der Porositäten und Gaspermeabilitäten.

### 3.1 Herstellung von Sand-Ton-Proben

Zur Überprüfung des Einflusses der zur Probenherstellung verwendeten Wassermenge wurden Proben der Mischungsverhältnisse Sand/Ton von 90/10, 75/25 und 50/50 mit einer konstanten Wassermenge von 20 ml, bezogen auf 500 g Trockenmasse, hergestellt. An diesen Proben wurden die Porositäten und die Gaspermeabilitäten ermittelt. In der Tab. 3.1 sind die mittleren Werte der Porositäten und Gaspermeabilitäten der Proben beider Herstellungsarten wiedergegeben. Ein Vergleich dieser Werte zeigt, dass die Porositäten der Proben mit einem Sand/Ton-Verhältnis von 75/25 und 50/50, die mit einer konstanten Wassermenge bezogen auf die Trockenmasse hergestellt wurden, im Vergleich zu den Proben, mit einem konstanten Wasser/Ton-Verhältnis, deutlich niedriger ausfielen. Ebenso waren die Gaspermeabilitäten dieser Proben um ein bis zwei Größenordnungen kleiner. Die Proben mit dem Mischungsverhältnis Sand/Ton von 90/10 zeigten sowohl vergleichbare Porositäten als auch Gaspermeabilitäten.

	Wassermenge b	ezogen auf Tonmenge*	konst. Wasser	menge für alle Proben
Proben	Porosität $\Phi$	Gaspermeabilität k <sub>g</sub>	Porosität $\Phi$	Gaspermeabilität k <sub>g</sub>
	%	m²	%	m²
90/10	21,3	3,4 · 10 <sup>-13</sup>	20,4	2,7 · 10 <sup>-13</sup>
75/25	20,7	2,8 · 10 <sup>-13</sup>	14,9	3,0 · 10 <sup>-14</sup>
50/50	22,2	4,5 · 10 <sup>-13</sup>	12,9	8,3 · 10 <sup>-15</sup>

#### Tab. 3.1 Vergleich der Proben unterschiedlicher Wassermengen bei der Herstellung

\* /JOC 00/

Da die aus dem Projekt "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" /JOC 00/ vorhandene Datenbasis bzgl. der hydraulischen Kennwerte von Sand-Ton-Gemischen erweitert werden soll, wurde aufgrund der Ergebnisse bei der Bestimmung der Porositäten und der Gaspermeabilitäten an den Proben mit der konstanten Wassermenge, die sich deutlich von denen im obigen Projekt unterschieden, wieder dazu übergegangen, Proben mit einer auf den Tonanteil bezogenen Wassermenge herzustellen. Der Wasser/Ton-Faktor betrug dann wieder 0,4.

Es wurden Sand-Ton-Proben mit einem Tonanteil von 10 %, 25 % und 50 % hergestellt. Für die Probenherstellung wurde der Bausand getrocknet und das Calcigel im Anlieferungszustand eingesetzt. Das Material wurde durchmischt und anschließend einaxial bei 100 MPa in einer zylindrischen Stahlform kompaktiert. Für jede Probe wurde das Material separat angesetzt. Das zur Probenherstellung eingesetzte Wasser wurde anschließend durch Trocknung bei 50 °C wieder entfernt. Die Proben hatten einen Durchmesser von 5 cm und eine Länge von ca. 10 cm. Die Abb. 3.1 zeigt eine Sand-Ton-Probe des Mischungsverhältnisses 75/25.



Abb. 3.1 Beispiel einer Sand-Ton-Probe 75/25

## 3.2 Herstellung von Splitt-Ton-Mischungen

Für die Splitt-Ton-Mischungen wurde ein Mischungsverhältnis von 75 % Splitt und 25 % Ton gewählt. Bei dem verwendeten Splitt handelte es sich um einen Gabbro aus Bad Harzburg der Kornfraktionen 2 – 5. Die Korngrößenverteilung ist in der Abb. 3.2 als Siebkennlinie dargestellt.



Abb. 3.2 Siebkennlinie des verwendeten Splitts (Gabbro)

Der Splitt wurde getrocknet und mit dem Calcigel vermischt. Die Splitt-Ton-Mischung wurde in ein Gummijacket, das an der einen Seite mit einem Kopfstück verschlossen war, abschnittsweise eingefüllt und durch Stampfen so weit als möglich von Hand verdichtet. Die Einbaudichten sowie die daraus resultierenden Einbauporositäten sind in der Tab. 5.9 für die hergestellten Proben zusammengefasst. Anschließend wurde das Gummijacket an der anderen Seite ebenfalls mit einem Kopfstück versehen. Zwischen den Kopfstücken und dem Probekörper war zur Vergleichmäßigung des Fluidstroms jeweils eine Sinterplatte angebracht. Um zu verhindern, dass feine Tonoder feine Kiespartikel in die Sinterplatten und unter Umständen auch in die Druckzuleitungen gelangen können, befand sich zwischen der Probe und den Sinterplatten noch ein Filterpapier. Der so präparierte Probekörper wurde dann in die Druckzelle eingesetzt.

#### 3.3 Herstellung großkalibriger mit Ton-Sand gefüllter Steinsalzkerne

Zur Überprüfung der Wechselwirkung des Dichtmaterials mit dem Gebirge wurden großkalibrige, zylindrische Salzkerne aus dem Forschungsbergwerk Asse der GSF verwendet, die mit einer achsenparallelen Zentralbohrung versehen waren

(s. Abb. 3.3). Die Salzkerne hatten einen Durchmesser von ca. 28 cm und eine Länge von ca. 60 cm bis 67 cm. Der Durchmesser der Zentralbohrung betrug ca. 10 cm. Somit verblieb ein Salzring mit einer Wandstärke von ca. 9 cm.



Abb. 3.3 Großkalibriger Steinsalzkern mit durchgehender Zentralbohrung

Als Dichtmaterial wurde ein Sand-Ton-Gemisch mit einem Verhältnis von 90/10 ausgewählt. Für die Untersuchungen wurden zwei Einbauvarianten des Sand-Ton-Gemisches untersucht.

In einem ersten Versuch wurde das Sand-Ton-Gemisch in die Zentralbohrung schichtweise trocken eingefüllt und mit einem Stampfer von Hand so weit als möglich verdichtet. Die Abb. 3.4 zeigt den Salzkern mit fast vollständig verfüllter Zentralbohrung.



Abb. 3.4 Großkalibriger Steinsalzkern, Zentralbohrung teilgefüllt mit einer Sand-Ton-Mischung 90/10, locker eingebracht und schichtweise verdichtet

Bei zwei weiteren Salzkernen wurden in die Zentralbohrung gepresste Sand-Ton-Proben des Gemisches 90/10 eingesetzt und der verbleibende Ringraum mit lockerem Tonpulver verfüllt. Mit dem eingefüllten Ringraum lässt sich der zu erwartende Randbereich zwischen Gebirgswand und Bauwerk in situ nachbilden.

In Anlehnung an die Untersuchungen zum Zweiphasenfluss an den Sand-Ton-Proben mit Wasser und Q-Lauge wurden die Probekörper aus einem Sand-Ton-Gemisch mit dem Mischungsverhältnis 90/10 unter Wasserzugabe von 20 ml, bezogen auf 500 g Trockenmasse, entsprechend einem Wasser-Ton-Verhältnis von 0,4, unter Kompaktion bei 100 MPa, hergestellt. Der Durchmesser der eingesetzten Sand-Ton-Proben betrug ca. 9 cm. Um das zur Herstellung eingesetzte Wasser zu entfernen, wurden diese Probekörper im Trockenofen bei 50°C getrocknet. Bei einer Länge von ca. 10 cm konnten 7 Proben eingesetzt werden. Die überstehenden Probenenden wurden entfernt.

Zum Einbau der Sand-Ton-Presslinge wurden die einzelnen Probekörper mit Hilfe eines Plastikstreifens in die Bohrung herabgelassen (s. Abb. 3.5) und anschließend gleich der verbleibende Ringraum mit Calcigel verfüllt und mit einem Stab so weit als möglich verdichtet.



Abb. 3.5 Einbau eines Sand-Ton-Presslings in die Zentralbohrung eines großkalibrigen Salzkerns

## 4 Versuchsdurchführung

Da aus vorhergehenden Untersuchungen /JOC 00/ bekannt war, dass Proben mit einem Tonanteil von 50 % nicht mit Wasser aufgesättigt und somit auch keine Wasserpermeabilität ermittelt werden konnte, wurden im vorliegenden Vorhaben nur Proben mit 10 % und 25 % Tonanteil für die Messungen mit Wasser verwendet. Da sechs Apparaturen für gleichzeitige Messungen zur Verfügung standen, wurden in diesem Fall jeweils sechs Proben der Sand-Ton-Mischungen mit den Verhältnissen 90/10 und 75/25 eingesetzt. Die Messungen mit Q-Lauge (IP 21) erfolgten an allen drei Mischungen mit den Tonanteilen 10 %, 25 % sowie 50 %. Hiervon wurden jeweils 4 Proben je Mischungsverhältnis untersucht.

Die Untersuchungen an Splitt-Ton-Proben erfolgten sowohl mit Wasser als auch mit Q-Lauge (IP 21). Der Tonanteil wurde auf 25 % festgelegt. Hier wurden jeweils drei Proben parallel mit Wasser und mit Q-Lauge gemessen.

Bei Untersuchungen an großkalibrigen Steinsalzproben wurde wegen der Lösungserscheinungen auf die Messungen mit Wasser verzichtet und ausschließlich Q-Lauge eingesetzt.

Für alle Versuche wurde Stickstoff als Messgas und IP 21 als Q-Lauge eingesetzt. Die Zusammensetzung der IP 21-Lauge ist in Kap. 5.1.4 aufgeführt.

#### 4.1 Bestimmung der einphasigen Permeabilitäten

## 4.1.1 Untersuchungen an Sand-Ton-Proben und Splitt-Ton-Mischungen für Gas, Wasser und Lauge

Die kompaktierten Sand-Ton-Proben wurden in eine Gummimanschette in einer Hasslerzelle eingebaut. Im Gegensatz dazu wurde das Splitt-Ton-Gemisch direkt in das Gummijacket gefüllt und von Hand kompaktiert. Die Hasslerzelle ermöglicht es zur Verhinderung von Randläufigkeiten am Mantel, die Proben mit einem Manteldruck zu beaufschlagen. Die Durchströmung der Proben erfolgt axial über die Stirnflächen. Das Prinzip der Messzelle ist in der Abb. 4.1 wiedergegeben. In der Abb. 4.2 ist die zusammengebaute Zelle dargestellt.



Abb. 4.1 Prinzipdarstellung der Hasslerzelle



Abb. 4.2Zusammengebaute Messzellen. Rechts stehend: Flasche für Wasser-<br/>und Laugenbeaufschlagung bzw. Befeuchtung des Stickstoffs

Der Differenzdruck zwischen Injektionsdruck und Manteldruck wird konstant gehalten und sollte bei einem Injektionsdruck bis 0,8 MPa ca. 0,1 MPa betragen. Oberhalb von 0,8 MPa bis 5 MPa wird der Manteldruck auf 0,5 MPa erhöht. Die Gaspermeabilitäten wurden mit Stickstoff bestimmt. Der Injektionsdruck wurde mit Druckaufnehmern und die Fließrate mit Massenflussmessern ermittelt. Bei sehr geringen Flüssen erfolgte die Ermittlung der Fließrate durch Verdrängung einer Wassersäule aus einer skalierten Bürette. Das Schema des Versuchsaufbaus ist in Abb. 4.3 dargestellt. Den gesamten Versuchsaufbau bestehend aus sechs Messzellen zeigt Abb. 4.4.



Abb. 4.3 Versuchsaufbau zur Bestimmung der einphasigen Gas- und Flüssigkeitspermeabilitäten sowie der Zweiphasenflussparameter



#### Abb. 4.4 Gesamter Versuchsstand mit sechs Messzellen

Die Versuche zur Bestimmung der Wasser- bzw. Laugenpermeabilitäten erfolgten an den Proben, an denen vorher die Gaspermeabilitäten gemessen wurden. Zur Ermittlung der Wasser- bzw. Laugenpermeabilitäten mussten die trockenen Proben mit Wasser bzw. Lauge aufgesättigt werden. Hierzu wurde der Porenraum der Proben mittels einer Vakuumpumpe, die an den Kernausgangsseiten geschlossen war, evakuiert. Die Sättigung der Proben erfolgte durch Injektion mit Wasser bzw. Lauge in den evakuierten Porenraum. Dafür wurde eine Stahlflasche mit der jeweiligen Flüssigkeit gefüllt, und diese mittels Gasdruck (Stickstoff) aus der Flasche verdrängt (s. Abb. 4.3). Im Gegensatz zur Verwendung von Pumpen kann so ein pulsationsfreier Fluss erzeugt werden. Nach Erreichen eines stationären Wasserflusses während der Injektionsphase wurde die Wasserpermeabilität ermittelt. Für die Bestimmung der Fließrate wurde eine skalierte Bürette eingesetzt.

Die Stahlflasche mit der jeweiligen Flüssigkeit wird zur Bestimmung der Flüssigkeitspermeabilitäten sowie bei der Bestimmung der Zweiphasenflussparameter zur Anfeuchtung des Messgases verwendet. Eine Aufsättigung des Messgases bei den Zweiphasenflussuntersuchungen ist notwendig, um ein Austrocknen der Proben durch trockenes Gas zu vermeiden. Zur Ermittlung der effektiven Porositäten der mit Wasser bzw. mit Lauge gesättigten Proben wurde die Gewichtsdifferenz zwischen der gesättigten zur trockenen Probe mittels Wägung bestimmt. Unter Berücksichtigung der jeweiligen Dichte der Flüssigkeiten (Wasser: 1 g/cm<sup>3</sup> und Q-Lauge (IP 21): 1,286 g/cm<sup>3</sup>) wird das aufgenommene Flüssigkeitsvolumen errechnet. Unter der Voraussetzung einer vollständigen Sättigung des Porenraums entspricht das aufgenommene Flüssigkeitsvolumen dem Porenvolumen der Probe und die effektive Porosität kann, wie in Kap. 2.1, Gl 2.6 beschrieben, berechnet werden.

## 4.1.2 Untersuchungen an großkalibrigen Proben mit Gas und Lauge

Die Untersuchungen an den großkalibrigen Kernen erfolgte in der MTS-Prüfmaschine, die bereits für Gaspermeabilitätsmessungen ausgelegt war und für Laugenpermeabilitätsmessungen umgerüstet und ergänzt wurde. Zur Vermeidung von Randläufigkeiten und zur Aufbringung eines radialen Manteldrucks wurden die Proben in ein Gummijacket eingesetzt und in die MTS-Anlage eingebaut. In der Abb. 4.5 ist die im Gummijacket befindliche Probe in der noch geöffneten MTS-Anlage abgebildet.

Deutlich ist der Messring zur Bestimmung der Umfangsänderung zu erkennen. Die Messkabel werden über spezielle druckdichte Steckereinheiten nach außen geführt. Der Gasfluss wurde, wie auch unter Abschnitt 4.1.1 beschrieben, mittels Massenflussmesser bestimmt.

Der erste Versuch mit dem als verdichtete Schüttung eingebauten Sand-Ton-Gemisch von 90/10 wurde in folgenden fünf Phasen mit den in der Abb. 4.6 dargestellten Spannungsverläufen durchgeführt.

## Phase O:

Bei jeweils zwei Manteldrücken von 0,5 MPa und 1 MPa wurden die Gaspermeabilitätsmessungen für unterschiedliche Gasinjektionsdrücke zwischen ca. 0,02 MPa und 0,35 MPa vorgenommen. Um mögliche Längenausdehnungen der Probe zu verhindern, wurde der Axialkolben in Wegregelung konstant gehalten.

23

Phase I:

Bei der Vertikalverformung von Null wurde der Manteldruck mit einer Rate von 0,1 MPa/min auf 5 MPa erhöht und Stickstoff in die Probe injiziert. Dabei wurden die Kriechverformungen des Salzring-Versatz-Systems über die Dauer von ca. 1 Tag beobachtet.



Abb. 4.5 In MTS-Anlage eingebauter großkalibriger Steinsalzkern mit Gummijacket

Phase II:

Eine weitere Erhöhung des Seitendrucks von 5 auf 10 MPa wurde bei einer Vertikalverformung von Null vorgenommen, sowie unter den mechanischen Beanspruchungen die Probe mit dem Gas weiter durchströmt und die Kriechverformungen des Salzrings bzw. die Kompaktion des Sand-Ton-Gemisches mit Hilfe des Messrings über ca. 8 Tage beobachtet.

#### Phase III:

Unter den obigen konstanten Bedingungen erfolgte die Injektion von Q-Lauge (IP 21) über eine Dauer von ca. 18 Tagen mit Drücken von 0,022 MPa und 0,035 MPa zur Simulation eines Laugenzutritts in die Probe. Dabei wurde die Laugenpermeabilität gemessen und die Wirkung des Laugenzutrittes auf die Verformungen des Salzkörpers bzw. die Kompaktion des Sand-Ton-Gemisches untersucht.

#### Phase IV:

Nach der Aufsättigungsphase wurde die Probe durch Gasinjektion bei Drücken von 0,02 bis 3,04 MPa entsättigt und die Gaspermeabilitäten nach dem Einstellen stationärer Fließbedingungen bestimmt. Die Versuchsdauer belief sich auf ca. 95 Tage. Wegen des Ausfalls der Hydraulikpumpe musste der Manteldruck mit Gas statt mit Öl auf die Probe aufgebracht werden. Der Gasdruck ließ sich über längere Zeit nicht konstant halten. Während ca. 80 Tagen verringerte sich der Manteldruck allmählich von 11 MPa auf 9,9 MPa.



Abb. 4.6Mechanische Beanspruchungen auf den Prüfkörper mit Salzring und<br/>Sand-Ton-Gemisch (90/10) in der MTS-Triaxialprüfanlage

Zur Aufsättigung des Probekörpers wurde dieser zunächst evakuiert und anschließend mittels Laugeninjektion aufgesättigt. Für die Aufsättigung und für die sich anschließende Laugenpermeabilitätsbestimmung wurde die Lauge aus einem Stahlbehälter mittels Gasdruck verdrängt (vgl. auch Kap. 4.1.1). Da es aufgrund der großen Abmessungen der Proben technisch nicht möglich war die aufgenommenen Laugenmengen mittels Wägung der Proben zu bestimmen, wurde die von der Probe aufgenommene Laugenmenge durch eine Massenbilanz der injizierten und der ausgetretenen Laugenmenge ermittelt.

Bei den beiden Proben mit eingebauten Sand-Ton-Presslingen trat nach der Gaspermeabilitätsbestimmung ein Riss im Gummijacket auf, was zu einer Kontamination der Proben mit Öl führte. Aus diesem Grund war es hier nicht mehr möglich, die einphasigen Laugenpermeabilitäten sowie die Zweiphasenflussparameter zu bestimmen.

## 4.2 Ermittlung der effektiven Permeabilitäten und des Kapillardrucks

Die Ermittlung des sättigungsabhängigen Kapillardruckverlaufs erfolgt zusammen mit der Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten bei Wasser- bzw. Laugensättigung und damit der relativen Gaspermeabilitäten in einem Arbeitsgang.

## 4.2.1 Untersuchungen an Sand-Ton-Proben und Splitt-Ton-Mischungen mit Gas in Abhängigkeit von der Wasser- bzw. Laugensättigung

Zur Ermittlung der effektiven Gaspermeabilitäten und des Kapillardruckverlaufs wird die Konstant-Druck-Entsättigungs-Methode eingesetzt, bei der die benetzende Phase durch die nicht benetzende Phase verdrängt wird. Es wird davon ausgegangen, dass es sich bei der Flüssigkeit um die benetzende Phase handelt, während das Gas die nicht benetzende darstellt.

Zunächst ist der Porenraum vollständig mit Wasser oder Lauge gefüllt. Beginnend mit einem niedrigen Injektionsdruck wird das Gas (Stickstoff) in den Porenraum der Probe gepresst und verdrängt das Wasser bzw. die Lauge zu einem dem Injektionsdruck entsprechenden Teil. Nachdem am Kernende nur noch das Gas fließt und sich ein stationärer Zustand eingestellt hat, wird die entsprechende Fließrate gemessen. Anschließend wird der Gasinjektionsdruck stufenweise erhöht und wiederum nach dem Einstellen eines konstanten Gasflusses, d.h. es wird bei der jeweiligen Druckstufe keine Flüssigkeit mehr verdrängt, die dem Injektionsdruck zugehörige Fließrate bestimmt. Aus den Injektionsdrücken und den Fließraten werden dann die so bei unterschiedlichen Sättigungsgraden ermittelten effektiven Gaspermeabilitäten k<sub>effg</sub> gemäß Gl. 2.8 nach dem Darcy`schen Gesetz für kompressible Medien berechnet. Auf diese Weise wurde versucht, möglichst viele Sättigungszustände einzustellen.

Unter Berücksichtigung der absoluten Permeabilität  $k_{abs}$  ergibt sich die zu dem jeweiligen Sättigungszustand gehörende relative Gaspermeabilität  $k_{rg}$  nach Gl. 2.10. Als absolute Permeabilität wurde hier eine mittlere Gaspermeabilität, die sich aus den stationären Werten der Gaspermeabilitätsmessungen der einzelnen Injektionsstufen errechnete, eingesetzt. Das Verwenden einer mittleren Permeabilität ergibt sich aus der Voraussetzung, dass eine Klinkenbergkorrektur bei den Entsättigungsversuchen nicht vorgenommen werden kann, da es durch die notwendige Druckerhöhung zu einer zusätzlichen und nicht beabsichtigten weiteren Entsättigung käme. Weiterhin stellte sich heraus, dass eine Klinkenbergkorrektur bei der Bestimmung der einphasigen Gaspermeabilitäten nicht möglich war.

Die Sättigung des Porenraums wurde aus der Menge des verdrängten Wassers oder der Lauge bestimmt. Die verdrängte Menge wird gravimetrisch durch Wägung der Probe ermittelt und unter Verwendung der jeweiligen Dichte der Flüssigkeiten (Wasser: 1 g/cm<sup>3</sup> und Q-Lauge (IP 21): 1,286 g/cm<sup>3</sup>) das sich daraus ergebende Flüssigkeitsvolumen berechnet. Aus der Differenz der verdrängten Flüssigkeitsmenge und des Flüssigkeitsvolumens bei Vollsättigung des Porenraums ergibt sich das im Porenraum verbliebene Wasser- bzw. Laugenvolumen V<sub>r</sub>.

Die Sättigung ist als das Verhältnis des Volumens der Restflüssigkeit im Porenraum  $V_r$ zum Porenraumvolumen  $V_{poreff}$  definiert

$$S = \frac{V_r}{V_{poreff}}$$
(4.1)

mit:

S Sättigung, -

V<sub>r</sub> verbliebenes Wasser- bzw. Laugenvolumen im Porenraum, m<sup>3</sup>

 $V_{\text{poreff}}$  effektives Porenraumvolumen, m<sup>3</sup>

Die Messung der Gasfließraten erfolgt mittels Massenflussmesser und bei sehr kleinen Flüssen durch Büretten.

# 4.2.2 Untersuchungen an großkalibrigen Proben mit Gas in Abhängigkeit von der Laugensättigung

Die Untersuchungen zum Zweiphasenflussverhalten von Gas und Lauge an der großkalibrigen Probe erfolgten in ähnlicher Weise, wie bei den Untersuchungen an den Sand-Ton-Gemischen beschrieben. Zur Bestimmung des sättigungsabhängigen relativen Gaspermeabilitäts- und Kapillardruckverlaufs wurde die Lauge aus der Probe durch Stickstoff, der zur Anfeuchtung des Gases durch einen mit IP 21 gefüllten Behälter geleitet wurde, verdrängt. Die Gasinjektionsdrücke lagen zwischen 0,021 MPa und 3,04 MPa. Nachdem sich bei jeder Injektionsdruckstufe ein konstanter Gasfluss eingestellt hatte, erfolgte die Messung der jeweiligen Gasfließrate, aus der sich dann die zum Injektionsdruck gehörende effektive Gaspermeabilität errechnete.

Da aufgrund der großen Abmessungen der Probekörper zur Sättigungsbestimmung durch Wägung der Probe nicht ausgebaut werden konnte, musste das im Porenraum verbliebene Laugenvolumen über Wägung der austretenden Laugenmenge ermittelt werden. Einen großen Unsicherheitsfaktor bei der Quantifizierung dieser Menge stellten die apparativ bedingten Leitungsvolumina sowie die der Druckplatten mit den darin eingesetzten Metallsinterplatten dar. Die entsprechenden Volumina wurden soweit als möglich bei den Berechnungen berücksichtigt. Nicht mit einbezogen werden konnte die in diesen Hohlräumen bei der Verdrängung mit Gas möglicherweise verbliebene Lauge.

## 5 Ergebnisse und Interpretation

#### 5.1 Sand-Ton-Gemische

#### 5.1.1 Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge

Die Untersuchungen an den Proben mit einem Sand-Ton-Verhältnis von 90/10 ergaben aus der Korn- und der Gesamtdichte berechnete Porositäten von 20,3 % bis 21,4 %. Die aus der Wasseraufnahme bei der Sättigung der Proben resultierenden effektiven Porositäten fielen höher aus und beliefen sich auf 25,6 % bis 29,1 %. Im Vergleich dazu ergaben sich aus der Sättigung mit Q-Lauge errechnete Porositäten von 25,0 % bis 26,3 %; diese sind somit etwas geringfügiger als die mit Wasser bestimmten Porositäten.

Ein ähnliches Verhalten ist auch bei den Proben mit einem Sand-Ton-Verhältnis von 75/25 festzustellen. Hier belaufen sich die aus den Dichten berechneten Gesamtporositäten auf 19,5 % bis 21,3 % und fallen etwas niedriger aus als bei den Proben mit dem geringeren Tonanteil von 10 %. Die über die Wassersättigung bestimmten Porositäten sind wie bei den 90/10-er Proben ebenfalls etwas höher als die mit Q-Lauge gemessenen Porositäten. Die Werte lagen bei 25,7 % bis 28 % für Wasser und bei 23,8 % bis 25,8 % für Lauge.

Die Proben mit einem Tonanteil von 50 % wiesen mit Werten von 22,8 % bis 24,5 % höhere Gesamtporositäten auf. Da bereits aus vorherigen Untersuchungen /JOC 00/ bekannt war, dass es nicht möglich war, Proben mit diesem hohen Tonanteil mit Wasser zu sättigen, wurde darauf verzichtet, diesbezügliche Untersuchungen mit Wasser vorzunehmen. Die Versuche mit Q-Lauge zeigten, dass bei allen vier untersuchten Proben eine Aufsättigung mittels Laugeninjektion erfolgreich war. Die daraus resultierenden effektiven Porositäten beliefen sich auf 32,4 % bis 34,3 % und sind somit deutlich höher als die der anderen Mischungsverhältnisse mit dem geringeren Tonanteil.

Die mit Gas ermittelten Einphasenpermeabilitäten aller drei Mischungsverhältnisse liegen in gleicher Größenordung und lieferten Werte von  $2,5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  bis zu  $3,0 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  für die 90/10-er Proben,  $1,3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  bis  $2,3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  für die 75/25-er Proben und  $2,3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  bis  $5,8 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  für die 50/50-er Proben.

Die Permeabilitätsmessungen mit Wasser wurden, wie bereits oben erwähnt, nur bei den Proben mit den Tonanteilen von 10 % und 25 % vorgenommen. Die Permeabilitäten ergaben sich zu  $8.8 \cdot 10^{-16}$  bis  $3.3 \cdot 10^{-15}$  m<sup>2</sup> (Proben 90/10) und  $1.2 \cdot 10^{-18}$  m<sup>2</sup> bis  $1.4 \cdot 10^{-18}$  m<sup>2</sup> und sind damit deutlich niedriger als die der Proben des Mischungsverhältnisses 90/10. Die Ergebnisse der Einphasenuntersuchungen mit Gas und Wasser sind mit denen des Projekts "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" /JOC 00/ (FKZ 02 E 9017 0) vergleichbar. Auch hier waren die Wasserpermeabilitäten der Proben mit dem höheren Tonanteil von 25 % mit bis zu drei Größenordnungen kleiner als die der Proben mit dem höheren Tonanteil. Dieses Ergebnis ist durch einen Quellvorgang des Tons zu erklären, der dazu führt, dass die Fließkanäle in den Proben verkleinert werden. Bei höheren Tonanteilen ist dieser Effekt stärker ausgeprägt, was auch durch die Beobachtung bei den Proben mit dem höchsten Tonanteil von 50 % gestützt wird, bei denen eine Wasserinjektion und somit auch die Bestimmung einer Wasserpermeabilität nicht möglich war /JOC 00/.

Die Permeabilitätsbestimmungen mit Q-Lauge zeigten, dass die ermittelten Permeabilitäten deutlich mit Zunahme des Tongehalts abnahmen. Die Permeabilitäten beliefen sich bei den Proben mit dem geringsten Tongehalt auf  $1,8 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup> bis  $2,3 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup>. Eine mit Werten von  $4,5 \cdot 10^{-18}$  m<sup>2</sup> um vier Größenordnungen niedrigere Durchlässigkeit wiesen die Proben mit dem höchsten Tongehalt von 50 % auf. Bei einer Probe dieses Tongehalts konnte eine Laugenpermeabilität nicht ermittelt werden, da sich kein stationärer Fluss einstellte. Die Proben mit dem mittleren Tongehalt von 25 % lagen mit 7,6  $\cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup> bis 1,5  $\cdot 10^{-16}$  m<sup>2</sup> zwischen denen des geringsten und des höchsten Tongehalts. Die Ergebnisse der Einphasenuntersuchungen sind in der Tab. 5.1 im Einzelnen zusammengestellt.

Insgesamt fällt auf, dass die mit der Q-Lauge ermittelten Permeabilitäten höher ausfallen, als die mit Wasser bestimmten Permeabilitäten. Es kann davon ausgegangen werden, dass dieser Effekt auf ein geringeres Quellvermögen des Tons in Verbindung mit der Q-Lauge zurückzuführen ist.
Tab. 5.1Zusammenfassung der Ergebnisse der Einphasenpermeabilitäten dreier<br/>Sand-Ton-Mischungen; Kompaktionsdruck: 100 MPa;<br/>Korndichte der Mischung 90/10:  $\rho_{K} = 2,62$  g/cm3;<br/>Korndichte der Mischung 75/25:  $\rho_{K} = 2,59$  g/cm3;<br/>Korndichte der Mischung 50/50:  $\rho_{K} = 2,54$  g/cm3

		Gesamt-	effektive			
		porosität	Porosität	mittlere	Wasserper-	Laugen-
	Gesamt-	aus	aus Sätti-	Gasper-	meabilität	permea-
Probe	dichte	Dichten	gung	meabilität		bilität
	$ ho_b$	Φ	$\Phi_{eff}$	k <sub>g</sub>	k <sub>w</sub>	k <sub>L</sub>
	g/cm <sup>3</sup>	%	%	m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup>
90/10.7.22	2,077	20,7	25,6	2,6 · 10 <sup>-13</sup>	8,8 · 10 <sup>-16</sup>	n. b.
90/10.7.23	2,078	20,7	27,1	2,5 · 10 <sup>-13</sup>	1,1 · 10 <sup>-15</sup>	n. b.
90/10.7.24	2,079	20,7	27,3	2,7 · 10 <sup>-13</sup>	1,3 · 10 <sup>-15</sup>	n. b.
90/10.7.25	2,061	21,4	26,3	$2,7 \cdot 10^{-13}$	1,2 · 10 <sup>-15</sup>	n. b.
90/10.7.26	2,066	21,2	27,7	2,9 · 10 <sup>-13</sup>	2,1 · 10 <sup>-15</sup>	n. b.
90/10.7.27	2,073	20,9	29,1	2,9 · 10 <sup>-13</sup>	3,3 · 10 <sup>-15</sup>	n. b.
90/10.7.28	2,077	20,7	26,3	2,8 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	2,1 · 10 <sup>-14</sup>
90/10.7.29	2,074	20,8	26,2	3,0 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	2,3 · 10 <sup>-14</sup>
90/10.7.30	2,092	20,2	25,0	2,7 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	1,8 · 10 <sup>-14</sup>
90/10.7.31	2,088	20,3	26,2	3,0 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	1,9 · 10 <sup>-14</sup>
75/25.8.20	2,057	20,6	25,7	1,7 · 10 <sup>-13</sup>	1,2 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.21	2,038	21,3	26,1	2,0 · 10 <sup>-13</sup>	1,2 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.22	2,072	20,0	27,9	1,5 · 10 <sup>-13</sup>	1,3 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.23	2,057	20,6	26,9	1,7 · 10 <sup>-13</sup>	1,4 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.24	2,086	19,5	27,6	1,3 · 10 <sup>-13</sup>	1,2 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.25	2,049	20,9	28,0	2,2 · 10 <sup>-13</sup>	1,2 · 10 <sup>-18</sup>	n. b.
75/25.8.26	2,083	19,6	23,9	1,3 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	9,6 · 10 <sup>-17</sup>
75/25.8.28	2,057	20,6	23,8	2,2 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	7,9 · 10 <sup>-17</sup>
75/25.8.35	2,035	21,1	25,8	2,1 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	1,5 · 10 <sup>-16</sup>
75/25.8.36	2,052	20,8	25,6	2,3 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	1,4 · 10 <sup>-16</sup>
50/50.9.27	1,942	23,5	32,5	5,8 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	4,5 · 10 <sup>-18</sup>
50/50.9.28	1,917	24,5	32,4	$3,8 \cdot 10^{-13}$	n. b.	4,6 · 10 <sup>-18</sup>
50/50.9.29	1,933	23,9	34,3	3,9 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	4,5 · 10 <sup>-18</sup>
50/50.9.30	1,960	22,8	34,3	2,3 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	nicht
						messbar

n. b. nicht bestimmt

## 5.1.2 Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Wassersättigung und der Q-Laugensättigung

Bei der Bestimmung der Zweiphasenflusseigenschaften an mit Wasser gesättigten Proben wurde bei den Sand-Ton-Proben des Mischungsverhältnisses 90/10 ein Gasdurchbruch bei 0,03 MPa festgestellt. Bei den Proben mit dem Mischungsverhältnis 75/25 wurde hingegen der Gasdurchbruch erst bei 0,15 MPa registriert. Die jeweiligen Sättigungen ergaben sich bei den Proben 90/10 im Mittel zu ca. 72 % und zu 91 % bei den Proben 75/25. Die Restwassersättigungen lagen bei den Proben 75/25 mit ca. 44 % im Mittel deutlich höher als die Restwassersättigungen der Proben 90/10 mit ca. 21 %. Wie im Projekt "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" /JOC 00/ (FKZ 02 E 9017 0) war auch hier die Ausbildung eines Plateaus im Kapillardruck-Sättigungs-Verlauf zu beobachten, was auf einen Porenraum mit nur wenig unterschiedlichen Porengrößen hindeutet. Weiterhin ist festzustellen, dass der größte Teil der Entsättigung am Anfang bei den geringeren Gasinjektionsdrücken vonstatten geht. Bei den Proben 75/25 traten zum Ende der Entsättigungen relativ hohe Gasfließraten auf, was u.U. auf eine Austrocknung der Proben durch Wasseraufnahme in das Gas zurückzuführen ist und zu einer Verfälschung der Messergebnisse führen kann. Aus diesem Grund war es nicht möglich, durch weitere Drucksteigerungen höhere Bereiche des Kapillardrucks zu untersuchen.

Die Entsättigungsversuche der mit Q-Lauge (IP 21) gesättigten Proben zur Ermittlung des Kapillardruckverlaufs und der relativen Gaspermeabilitäten an 4 Proben des Sand-Ton-Verhältnisses 90/10 und an 4 Proben 75/25 ergaben Gasdurchbrüche von 0,02 MPa bei den Proben 90/10 und von > 0,02 MPa bei den Proben 75/25, wobei sich die zugehörigen Sättigungen im Mittel bei Werten um 67 % (90/10) und um 91 % (75/25) einstellten. Die Restlaugensättigungen lagen bei ca. 51 % bei den 90/10-er Proben und bei ca. 77 % bei den beiden 75/25-er Proben. Für die Proben beider Mischungsverhältnisse war während des Versuchsablaufs eine Gewichtszunahme, die einer "Wiederaufsättigung" entsprechen würde, zu beobachten. Dieser Effekt trat im Bereich der Restwassersättigung auf. Die Ergebnisse zeigen, dass dieses Verhalten bei den Proben mit dem geringeren Tonanteil stärker ausgeprägt ist. Die Verläufe der effektiven Gaspermeabilitäten und somit auch der relativen Gaspermeabilitäten weisen eine unsystematische Zu- und Abnahme auf.

Bei den Untersuchungen an den zwei Proben 50/50 war ein Gasdurchbruch bei 0,05 MPa zu registrieren. Die entsprechenden Sättigungen lagen für diese beiden Proben im Mittel bei 95 % und die Restlaugensättigung bei 86 %. Aufgrund dieses engen Entsättigungsbereichs zeigt der Kapillardruck-Sättigungs-Verlauf einen sehr steilen Anstieg. Während der Entsättigungsversuche zur Bestimmung der Zweiphasen-flusseigenschaften war ein eindeutiger Zusammenhang zwischen den relativen Gaspermeabilitäten und der Sättigung nicht ermittelbar. Die Verläufe der effektiven und somit auch der relativen Gaspermeabilitäten zeigten, wie auch bereits bei den unter-

32

suchten Proben 90/10 und 75/25, eine unsystematische Zu- und Abnahme. Obwohl bei zwei Proben des Mischungsverhältnisses 50/50 zwar eine gewisse Menge Lauge aus den Proben verdrängt werden konnte, war kein durchgehender Gasfluss zu realisieren. Diese Beobachtung lässt zum einen den Schluss zu, dass gerade bei den hohen Tongehalten vorher freie Porenkanäle durch Quellung des Tons in Kontakt mit der Lauge zum Teil geschlossen wurden. Ein späterer Ausbau der Proben zeigte, dass in diesen zwei Apparaturen Auskristallisationen festzustellen waren. Da die Auskristallisationen auch erst später nach Beendigung der Versuche entstanden sein können, kann das Nichtauftreten eines Gasflusses nicht eindeutig darauf zurückgeführt werden.

Das unsystematische hydraulische Verhalten kann auf komplexe chemisch/-mineralogische Veränderungen, wie in Abschnitt 5.1.4 näher beschrieben, zurückgeführt werden.

Die Auswertung der Messdaten in Bezug auf die Bestimmung der Zweiphasenflussparameter nach van Genuchten ist im folgenden Kapitel beschrieben.

## 5.1.3 Ermittlung der Zweiphasenflussparameter

## 5.1.3.1 Konzeptmodell der Aufsättigung

Die Probekörper durchlaufen während der Messungen verschiedene Stadien der Aufsättigung. Dabei laufen auf mikroskaliger Ebene Vorgänge ab, die einen entscheidenden Einfluss auf die Bestimmung der makroskaligen Zweiphasenflussparameter haben. Aus diesem Grund wird der Versuchsablauf im Folgenden noch einmal im Hinblick auf die Änderungen der Mikrostruktur der Ton-Sand-Gemische beleuchtet.

Die Ton-Sand-Gemische wurden trocken eingebaut. Damit wiesen die fertig präparierten Proben drei Strukturelemente auf: die Sandkörner, die Tonaggregate und den verbleibenden luftgefüllten Porenraum. Der verwendete Bausand hatte Korngrößen zwischen 0,1 mm und 2 mm (/JOC, 00/), während das Größtkorn beim Ton üblicherweise etwa bei einem Durchmesser von 0,1 mm liegt. Bei Ton-Sand-Gemischen mit geringem Tonanteil bildeten daher - wie in Abb. 5.1 skizziert - die gröberen Sandkörner eine feste Matrix, während die feineren Sandkörner und die noch feineren Tonpartikel den Raum zwischen den gröberen Sandkörnern zum Teil ausfüllten. Mit wachsendem Tonanteil ging der Porenraum zurück. In diesem "trockenen Zustand" wurde die Einphasengaspermeabilität gemessen.



 Abb. 5.1
 Mikrostruktur eines lufttrockenen Ton-Sand-Gemisches mit geringem

 Tonanteil
 Tonanteil

Im nächsten Schritt wurden die Proben aufgesättigt. Durch die angewendete Vakuumtechnik wurde der Porenraum nahezu vollständig mit Flüssigkeit gefüllt. Damit sollte sichergestellt werden, dass praktisch keine Luftblasen im Porenraum verblieben. Im Rahmen der Parameterbestimmung wird daher angenommen, dass keine Luft in der Probe vorhanden ist.

Sobald die Flüssigkeit mit Tonpartikeln in Berührung kommt, beginnt der Vorgang der Hydratation. Es wird Wasser aus dem Porenraum in die Zwischenschichten gezogen, die Tonpartikel quellen und verringern somit den Porenraum. In einem Ton-Sand-Gemisch hängt die Größe des verbleibenden Restporenraums von der Größe des Tonanteils ab. Bei einem geringen Tonanteil bleibt ein relativ großer Porenraum übrig, bei einem hohen Tonanteil wird der Porenraum dagegen mit Ausnahme einer sehr kleinen Restporosität vollständig ausgefüllt. Im ersten Fall verhält sich das Gemisch ähnlich wie ein Sand und es können Zweiphasenflussphänomene beobachtet werden. Bei einem höheren Tonanteil verhält sich das Material ähnlich wie ein Bentonit, bei dem der klassische Zweiphasenflussansatz nicht verwendet werden kann /ROD 99/. Bei voller Aufsättigung wird auch der Restporenraum mit Wasser gefüllt. Dieser Zustand stellte den Anfangszustand für die Zweiphasenflussmessungen dar und wird im Folgenden als "voll gesättigter Zustand" bezeichnet.

Mit Hilfe eines Gases sollte unter Druck das Porenwasser wieder ausgetrieben werden. Durch die Sättigung des Gases mit Dampf wurde sichergestellt, dass das hydratisierte Wasser in den Zwischenschichten der Tonminerale verblieb. Somit verhielten sich die Minerale nach der Aufsättigung mit Flüssigkeit wie die Sandkörner des Ton-Sand-Gemisches. Diese inerte Ton-Sand-Matrix ist Gegenstand der Untersuchungen zum Zweiphasenfluss.

Das Austreiben von Flüssigkeit aus dem Porenraum gelang bei den Proben mit einem Mischungsverhältnis von 90/10 und von 75/25. Wie in Abb. 5.2 angedeutet, konnte sich ein Zweiphasenfluss in dem durch Quellung reduzierten Porenraum ausbilden. Mit dem Eindringen von Gas gingen die Proben demnach in einen "teilgesättigten Zustand" über.



Abb. 5.2 Mikrostruktur eines teilgesättigten Ton-Sand-Gemisches nach voller Aufsättigung

Beim klassischen Zweiphasenfluss lässt sich die flüssige Phase nur bis zur Restwassersättigung durch die Gasphase austreiben. Im Porenraum verbleibt immer ein gewisser Wasseranteil, der sich durch beliebig hohe Gasdrücke nicht mehr entfernen lässt. Es wird angenommen, dass dies bei den Ton-Sand-Gemischen mit geringem Tonanteil so ist. Die Restwassersättigung wurde in den Experimenten nur näherungsweise erreicht. Oberhalb gewisser Fließraten für das Gas konnte die Dampfsättigung nicht mehr aufrecht erhalten werden, wodurch eine Entsättigung der Zwischenschichten eintrat. Da der Porenraum dadurch unkontrollierbar vergrößert wurde, können Messwerte, die unter diesen Umständen gewonnen wurden, für eine Bestimmung der Zweiphasenflussparameter nicht herangezogen werden.

Schließlich ist noch darauf hinzuweisen, dass der Begriff "Sättigung" im Folgenden etwas anders verwendet wird als in der klassischen Zweiphasenflusstheorie. Üblicherweise wird mit Sättigung der volumetrische Anteil einer Phase am Porenraum bezeichnet. Bei Tonen und Ton-Sand-Gemischen ist diese Definition jedoch hinsichtlich der flüssigen Phase problematisch. Neben dem im Porenraum befindlichen Anteil an Flüssigkeit existiert ein Wasseranteil, der in den Zwischenschichten hydratisiert ist. Diese beiden Anteile sind durch Messungen außerordentlich schwer voneinander zu trennen. Daher umfasst der Begriff "Sättigung" im Rahmen dieses Berichts beide Anteile. Dies hat zur Folge, dass die Werte für die Residualsättigungen nicht mehr mit den Werten von inerten porösen Medien, wie zum Beispiel von reinen Sanden, verglichen werden können. Auf die Bestimmung der Zweiphasenflussparameter hat die geänderte Definition wegen der Normierung auf die effektive Sättigung keinen Einfluss.

## 5.1.3.2 Messergebnisse

## 5.1.3.2.1 Trockener Zustand

Die Ergebnisse zur Gaspermeabilität im trockenen Zustand für Ton/Sand-Gemische mit unterschiedlichen Bentonitanteilen, die im Zweiphasenflussprojekt und im Projekt KENTON bestimmt wurden, sind in Tab. 5.2 zusammengestellt. Unabhängig vom Tonanteil liegen die Werte im Wesentlichen zwischen  $1,8\cdot10^{-13}$  m<sup>2</sup> und  $4,1\cdot10^{-13}$  m<sup>2</sup> und damit in einem sehr engen Bandbereich. Bei den Proben mit 50 % Tonanteil liegen die Werte etwas höher und zwar zwischen  $7,8\cdot10^{-13}$  m<sup>2</sup> und  $12\cdot10^{-13}$  m<sup>2</sup>.

Tab. 5.2	Gaspermeabilität	für	Ton-Sand-Gemische	im	trockenen	Zustand	aus
	dem Zweiphasenf	luss	projekt und dem Proje	kt K	ENTON		

Werte * 10 <sup>-13</sup> m <sup>2</sup>	10% Tonanteil	25% Tonanteil	50% Tonanteil
Zweiphasenflussprojekt	2,9 bis 3,8	2,0 bis 4,1	7,8 bis 12
KENTON	2,8	1,8	4,0

## 5.1.3.2.2 Voll gesättigter Zustand

Die Messungen des Kapillardrucks und der effektiven Gaspermeabilität durch Anlegen eines Gasdrucks liefern einen Wert für den Gaseindringdruck. Das ist der Schwellenwert, bei dem die Entsättigung durch Verdrängung der flüssigen Phase beginnt. Die korrespondierende Gaspermeabilität stellt den Mindestwert für die Gasdurchlässigkeit der Proben dar, der sich für einen durchgängigen Gaspfad einstellt. In Tab. 5.3 sind die Eindringdrücke und die Mindestwerte der Gaspermeabilität zusammengestellt. Die Daten für die mit IP21-Lösung aufgesättigten Proben sind starken Streuungen unterworfen, so dass ein repräsentativer Wert nicht angegeben werden kann. Die Ursache dafür wird in Kapitel 5.1.4 aufgezeigt.

# Tab. 5.3Gaseindringdruck und korrespondierende Gaspermeabilität aus dem<br/>Zweiphasenflussprojekt und aus dem Projekt KENTON

	10% Tonanteil	25% Tonanteil	50% Tonanteil
Zweiphasenflussprojekt			
Sättigung mit Wasser:			
Gaseindringdruck [MPa]	0,03	0,05	-
Gaspermeabilität [m <sup>2</sup> ]	1·10 <sup>-17</sup>	7·10 <sup>-17</sup>	-
KENTON			
Sättigung mit Wasser:			
Gaseindringdruck [MPa]	0,03	0,15	-
Gaspermeabilität [m <sup>2</sup> ]	1·10 <sup>-17</sup>	4·10 <sup>-19</sup>	-
Sättigung mit IP21-Lösung:			
Gaseindringdruck [MPa]	0,02	0,02	0,05
Gaspermeabilität [m <sup>2</sup> ]	1·10 <sup>-17</sup> - 1·10 <sup>-15</sup>	1·10 <sup>-18</sup> - 5·10 <sup>-16</sup>	6·10 <sup>-18</sup> - 1·10 <sup>-15</sup>

## 5.1.3.2.3 Teilgesättigter Zustand

In den folgenden Unterkapiteln werden die Messergebnisse aller Proben für jeweils ein Mischungsverhältnis und jeweils eine Flüssigkeit diskutiert. Integriert sind dabei die Ergebnisse aus dem Zweiphasenflussprojekt. In den Abb. 5.3 bis Abb. 5.8 sind die ermittelten Gaspermeabilitäten und die Kapillardrücke als Funktion der Sättigung zusammengestellt. Dabei sind die Ergebnisse aus dem Projekt KENTON mit ausgefüllten Symbolen dargestellt sowie die aus dem Zweiphasenflussprojekt mit nicht ausgefüllten Symbolen.

#### Wassergesättigte 90/10-Proben

In Abb. 5.3 ist die effektive Gaspermeabilität als Funktion der Sättigung für ein Ton/Sand-Mischungsverhältnis von 90/10 mit Wasser als flüssige Phase ersichtlich. Die Ergebnisse aus dem KENTON-Projekt passen sich gut in die Ergebnisse des Zweiphasenflussprojekts ein. Daneben weisen sie eine erheblich geringere Streubreite auf, so dass die neueren Ergebnisse für eine Bestimmung der Zweiphasenflussparameter hinsichtlich der relativen Permeabilität als sehr geeignet erscheinen. Die Daten von Probe 10.7.02 fallen noch deutlicher aus dem Trend heraus als es im Zweiphasenflussprojekt erkennbar war. Sie werden bei der Parameterbestimmung nicht beachtet.



Abb. 5.3 Effektive Gaspermeabilität: Mischung 90/10, Wasser

Die korrespondierenden Daten zur Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung sind in Abb. 5.4 zusammengestellt. Die neuen Messergebnisse stimmen qualitativ mit den Daten des Zweiphasenflussprojektes überein. Sie zeigen einen für den Kapillardruck charakteristischen Verlauf auch im mittleren Bereich, der im Zweiphasenflussprojekt nicht mit Daten belegt war. Mit abnehmender Sättigung steigt der Kapillardruck zunächst an, bleibt dann in einem gewissen Bereich etwa konstant und steigt danach

überproportional zur Sättigungsabnahme weiter an. Die Streubreite der Daten ist sehr ähnlich wie im Zweiphasenflussprojekt. Das Plateau in der Mitte des Sättigungsspektrums liegt dagegen etwa 0,3 MPa höher und der Bereich der überproportionalen Änderungen ist etwas in Richtung der höheren Sättigungen verschoben. Dennoch ist ein genereller Trend erkennbar, so dass eine Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung auf der Basis der Daten aus beiden Projekten möglich ist.



Abb. 5.4 Kapillardruck: Mischung 90/10, Wasser

#### Wassergesättigte 75/25-Proben

In Abb. 5.5 ist die effektive Gaspermeabilität als Funktion der Sättigung für ein Ton/Sand-Mischungsverhältnis von 75/25 mit Wasser als flüssige Phase dargestellt. Die Ergebnisse aus dem KENTON-Projekt decken den Bereich hoher und mittlerer Sättigung ab, während die Ergebnisse aus dem Zweiphasenflussprojekt im hohen und im niedrigen Sättigungsbereich liegen. Insgesamt deuten die Datenpunkte eine konsistente Beziehung an. Es ist zu berücksichtigen, dass die Probe 75/25.8.16 und insbesondere die Probe 75/25.8.18 bei den Kapillardrücken im Bereich der niedrigen Sättigungen atypische Ergebnisse geliefert haben. Die beiden davon betroffenen

Datenpunkte können bei der Bestimmung der Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Beziehung als wenig belastbar angesehen werden.



Abb. 5.5 Effektive Gaspermeabilität: Mischung 75/25, Wasser

Die korrespondierenden Daten zur Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung sind in Abb. 5.6 zusammengetragen. Sie zeigen im Bereich hoher Sättigungen eine gute Übereinstimmung mit Ausnahme der Ergebnisse für die Probe 75/25.8.18. Am unteren Ende des Sättigungsspektrums gibt es nur zwei Datenpunkte, die beide aus dem Zweiphasenflussprojekt stammen und nicht zum generellen Trend passen. Der schlechter passende Punkt stammt von der Probe 75/25.8.18. Im Bereich des Kapillardruckplateaus liegen ausschließlich sehr gut übereinstimmende Daten aus dem KENTON-Projekt vor. Ein Bereich überproportionalen Anstiegs wurde durch die neuen Messungen nicht erfasst.

Der Verlauf der Datenpunkte für die Probe 75/25.8.18 fällt deutlich aus dem generellen Trend der übrigen Ergebnisse heraus. Probe 75/25.8.18 wird daher bei der Bestimmung der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung vernachlässigt. Die Güte des Parameterfittings wird durch das Fehlen des Bereichs des überproportionalen Kapillardruckanstiegs beeinträchtigt. Eine gewisse Hilfe kann eine plausible Annahme für die Restsättigung der flüssigen Phase darstellen. Nähere Ausführungen zur Restsättigung finden sich in Kapitel 5.1.3.5.



Abb. 5.6 Kapillardruck: Mischung 75/25, Wasser

#### Laugegesättigte Proben

In Abb. 5.7 ist die effektive Gaspermeabilität als Funktion der Sättigung mit IP21-Lösung für die Ton/Sand-Mischungsverhältnisse von 90/10, 75/25 und 50/50 dargestellt. Die gemessenen Werte streuen über einen Wertebereich von knapp drei Größenordnungen. Im Gegensatz zu den Experimenten mit Wasser ist bei Verwendung von IP21-Lösung keine Korrelation zwischen der Gaspermeabilität und der Sättigung erkennbar. Die ermittelten Werte liegen für jedes Mischungsverhältnis in einem relativ schmalen Sättigungsbereich, der sich mit dem Tonanteil in Richtung auf die hohen Sättigungen verschiebt.

Die zugehörigen Kapillardrücke sind in Abb. 5.8 dargestellt. Der für Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen charakteristische Trend zu überproportionalen Änderungen im Bereich geringerer Sättigungen ist für alle drei Mischungsverhältnisse deutlich erkennbar. Dabei stimmen die Daten aus den Proben mit hohem Tonanteil besser miteinander überein als die Daten aus den Proben mit geringem Tonanteil.



Abb. 5.7 Effektive Gaspermeabilität: alle Mischungen, IP21-Lösung



Abb. 5.8 Kapillardruck: alle Mischungen, IP21-Lösung

Ein Zweiphasenfluss findet in den mit IP-21 Lösung aufgesättigten Proben entweder nicht statt oder wird von anderen Phänomenen überlagert. Wie in Kapitel 5.1.4 ausgeführt, deutet die chemische Analyse der verwendeten Lösungen vor und nach der Durchströmung der Proben auf Ausfällungsvorgänge während der Versuche hin. Diese können den Porenraum und damit das Fließverhalten erheblich verändern. Eine nähere Untersuchung darüber, welche Mechanismen bei der Strömung hochsaliner Lösungen eine Rolle spielen, wird im Rahmen des Projekts nicht durchgeführt. Die Ermittlung der zugehörigen Strömungsparameter entfällt daher.

## 5.1.3.3 Restsättigungen und Bezugspermeabilität

Die Herleitung von Zustandsgleichungen für den Zweiphasenfluss erfordert eine Normierung der Daten in zwei Schritten. Der erste Schritt besteht darin, die gemessenen Sättigungswerte in effektive Sättigungen gemäß Gleichung 2.12 umzurechnen. Im zweiten Schritt sind die Werte der Gaspermeabilität mit Hilfe von Gleichung 2.10 in relative Permeabilitäten umzurechnen. Für die Umrechnung in effektive Sättigungen müssen die Residualsättigungen ermittelt werden, für die Bestimmung der relativen Gaspermeabilität ist eine Referenzpermeabilität erforderlich, die im Allgemeinen mit der absoluten Permeabilität gleichgesetzt wird.

Bei einer Teilsättigung des Porenraums mit Wasser sind drei Zustände zu unterscheiden:

- Zustand I: Die Sättigung der gasförmigen Phase ist so hoch, dass für die flüssige Phase kein durchgehender Fließweg existiert.
- Zustand II: Sowohl die gasförmige als auch die flüssige Phase bilden einen durchgehenden Fließweg.
- Zustand III: Die Sättigung der gasförmigen Phase ist so niedrig, dass f
  ür das Gas kein durchgehender Fließweg existiert.

Die Grenze zwischen zwei Zuständen ist jeweils durch einen charakteristischen Wert für die Sättigung gekennzeichnet. Zwischen Zustand I und Zustand II ist dies die Restsättigung für die flüssige Phase  $S_{wr}$ , im Folgenden Restwassersättigung genannt. Die Grenze zwischen dem zweiten und dem dritten Zustand markiert die Restsättigung für die gasförmige Phase  $S_{gr}$ , der Restgassättigung. Die Restsättigungen lassen sich aus den Messungen zur Gaspermeabilität und zum Kapillardruck bestimmen. Im voll gesättigten Zustand waren die Proben durch das Versuchsprozedere nahezu gasfrei. Zu Beginn der Entsättigung musste erst eine gewisse Flüssigkeitsmenge verdrängt werden, bevor der Gasfluss beginnen konnte. Dieser Beginn kennzeichnet den Übergang vom Zustand III in den Zustand II. Die zugehörige Gassättigung ist damit gleich der Restgassättigung. Sie kann aus einer grafischen Darstellung für den Kapillardruck über der Sättigung als die zum Eindringdruck korrespondierende Sättigung abgelesen werden.

Wenn kein durchgehender Fließweg mehr für die flüssige Phase existiert, kann kein weiteres Wasser durch Druckerhöhung aus dem Porenraum ausgetrieben werden. Die Restwassersättigung ist also gleich der Sättigung bei maximaler Verdrängung der Flüssigkeit durch das Gas. Da nicht klar ist, wie weit man sich diesem Zustand im Experiment genähert hat, kann die Restwassersättigung nur abgeschätzt werden. Dabei kann man aber ggf. die Eigenschaft der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung ausnutzen, dass der Kapillardruck um so stärker ansteigt, je weiter sich die aktuelle Sättigung der Restwassersättigung nähert. Durch visuelle Extrapolation kann der gesuchte Sättigungswert eingegrenzt werden.

Als Referenzpermeabilität für die relativen Permeabilitäten wird in klassischen Zweiphasenflusssystemen die Einphasenpermeabilität der benetzenden oder der nicht benetzenden Phase herangezogen. Allerdings ist keine der beiden Permeabilitäten für die Matrix aus Sandkörnern und gequollenen Tonmineralen bekannt. Die beste Näherung für die absolute Permeabilität der Ton-Sand-Matrix stellt daher der Wert der maximalen Gaspermeabilität im Bereich der Restwassersättigung dar.

## Mischungsverhältnis 90/10

Zur Bestimmung der Restsättigungen werden die Messergebnisse zur Gaspermeabilität und zum Kapillardruck herangezogen. Zu diesem Zweck sind in Tab. 5.4 folgende Werte für alle Proben mit 10 %igem Tonanteil zusammengestellt:

- residuale Wassersättigung incl. der zugehörigen maximalen Gaspermeabilität
- Restgassättigung mit dem zugehörigen Gaseindringdruck

Als Residualsättigung sind in Tab. 5.4 die gemessenen Extremwerte eingetragen.

Probe	S <sub>wr</sub> [%]	k <sub>g max</sub> [m <sup>2</sup> ]	S <sub>gr</sub> [%]	p <sub>e</sub> [MPa]
90/10.7.02	14	7,3 · 10 <sup>-14</sup>	29	0,03
90/10.7.08	8	1,9 · 10 <sup>-13</sup>	22	0,03
90/10.7.09	16	3,03 · 10 <sup>-13</sup>	29	0,05
90/10.7.10	18	2,89 · 10 <sup>-13</sup>	28	0,03
90/10.7.22	22	1,75 · 10 <sup>-13</sup>	23	0,03
90/10.7.23	20	1,71 · 10 <sup>-13</sup>	28	0,03
90/10.7.24	23	1,69 · 10 <sup>-13</sup>	27	0,03
90/10.7.25	19	1,9 · 10 <sup>-13</sup>	27	0,03
90/10.7.26	18	2,07 · 10 <sup>-13</sup>	29	0,03
90/10.7.27	20	1,94 · 10 <sup>-13</sup>	33	0,03
Repräsentativer				
Wert	18	2,2 · 10 <sup>-13</sup>	27	0,03

Tab. 5.4Restsättigungen und zugehörige Daten der Proben mit einem<br/>Mischungsverhältnis von 90/10

Die Restwassersättigungen aus dem Zweiphasenflussprojekt lagen zwischen  $S_{wr min} = 8 \%$  und  $S_{wr max} = 17 \%$ . Die neuen Daten zur Gaspermeabilität weisen wegen der sehr eindeutigen Beziehung zwischen relativer Permeabilität und Sättigung auf einen gemeinsamen Minimalwert von  $S_{wr min} = 18 \%$  hin (vgl. Abb. 5.3). Aus den Daten zum Kapillardruck liegt dieser Wert aufgrund der größeren Streubreite dagegen zwischen  $S_{wr min} = 18 \%$  und  $S_{wr max} = 23 \%$ . Zusammen ergibt sich demnach für die Werte um  $S_{wr} = 18 \%$  das höchste Gewicht. Die gemessenen Gaspermeabilitäten bei minimaler Wassersättigung liegen zwischen  $7,3\cdot10^{-14} m^2$  und  $3,03\cdot10^{-13} m^2$ . Durch Kombination der graphischen Abbildung von Gassättigung und Gaspermeabilität mit der Restwassersättigung von 18 % lässt sich der Näherungswert für die absolute Permeabilität - wie in Abb. 5.9 dargestellt - gut einkreisen. Die durch Entsättigung maximal erreichbare Gaspermeabilität k<sub>g max</sub> beträgt demnach etwa 2,2·10<sup>-13</sup> m<sup>2</sup> und liegt damit nur knapp unterhalb der Einphasengaspermeabilität für die trockene Probe (vgl. Tab. 5.2).

Der Gaseindringdruck p<sub>e</sub> liegt bei allen Proben des Zweiphasenflussprojektes und des Projektes KENTON bei 0,3 MPa, ausgenommen bei Probe 90/10.7.09. Auch bei den zugehörigen Restgassättigungen werden die Daten aus dem Zweiphasenflussprojekt durch die neuen Daten bestätigt. Die Gassättigungen liegen zwischen 22 % und 29 % für die Daten aus dem Zweiphasenflussprojekt und 23 % und 33 % für die neuen Daten. Nach visueller Einschätzung liegt die repräsentative Restgassättigung bei S<sub>gr</sub> = 27 %. In Abb. 5.10 sind die verschiedenen Sättigungsgrenzwerte in die Kapillardruck-Sättigungs-Kurve eingetragen.



Abb. 5.9 Restwassersättigung in der Permeabilitätskurve: Mischung 90/10, Wasser



Abb. 5.10 Restsättigungen in der Kapillardruckkurve: Mischung 90/10, Wasser

#### Mischungsverhältnis 75/25

Die Interpretation der Ergebnisse für das Mischungsverhältnis 75/25 ist hinsichtlich der Restwassersättigung und der zugehörigen Gaspermeabilität problematisch. Die Daten für die Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung sind nicht geeignet, da der charakteristische unproportionale Anstieg des Kapillardrucks zur Restwassersättigung hin im Projekt KENTON nicht erfasst wurde. Im Zweiphasenflussprojekt lieferten nur die Proben 75/25.8.16 und 75/25.8.18 Ergebnisse im Bereich niedriger Sättigungen (vgl. Abb. 5.6), die aber im Kapitel 3.1.3.4.3 als wenig verlässlich eingestuft wurden. Eine zu Tab. 5.54 analoge Zusammenstellung der Ergebnisse für alle Proben mit 25 %igem Tonanteil findet sich in der Tab. 5.5.

Einen Anhaltspunkt für die Restwassersättigung liefern die Messungen zur Gaspermeabilität. Wie in Abb. 5.11 dargestellt, deuten die Daten für die Gaspermeabilität auf einen Wert von  $S_{wr} = 27$  % hin. Dieser Wert ist allerdings im Sinne einer ad hoc Annahme zu verstehen, da er sich, wie oben erwähnt, auf die tendenziell unzuverlässigen Proben 75/25.8.16 und 75/25.8.18 abstützt. Der Wert von  $4 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup> für die maximal erreichbare Gaspermeabilität wird anhand von Abb. 5.11 geschätzt.

Tab. 5.5	Restsättigungen	und	zugehörige	Daten	der	Proben	mit	einem
	Mischungsverhält	tnis vo	n 75/25					

	S <sub>wr</sub> [%]	k <sub>g max</sub> [m <sup>2</sup> ]	S <sub>qr</sub> [%]	p <sub>e</sub> [MPa]
Probe 75/25.8.12		-	4	0,05
Probe 75/25.8.16	27	7,7 ·10 <sup>-14</sup>	4	0,20
Probe 75/25.8.17			6	0,05
Probe 75/25.8.18	27	1,21 ⋅10 <sup>-13</sup>	25	0,05
Probe 75/25.8.20			5	0,15
Probe 75/25.8.21			7	0,15
Probe 75/25.8.22			11	0,15
Probe75/25.8.23			8	0,15
Probe 75/25.8.24			11	0,15
Probe 75/25.8.25			9	0,15
Repräsentativer				
Wert	27	4 ·10 <sup>-14</sup>	8	0,15



Abb. 5.11 Restwassersättigung in der Permeabilitätskurve: Mischung 75/25, Wasser

Die Daten zur Restgassättigung aus dem Zweiphasenflussprojekt allein lassen keine eindeutige Interpretation zu. Die Proben 75/25.8.12 und 75/25.8.17 weisen denselben Eindringdruck von 0.05 MPa und dieselbe Restgassättigung von 4 % auf. Bei Probe 75/25.8.16 beträgt der Eindringdruck 0,2 MPa, die Restsättigung 6 % und Probe 75/25.8.18 wird wegen ihres aus dem Rahmen fallenden Verlaufs vernachlässigt (vgl. Kap. 5.1.3.4.3.). Die neuen Daten zeigen einheitlich einen Eindringdruck von 0,15 MPa. Die zugehörigen Sättigungen liegen dagegen zwischen 4 % und 12 %. Vor diesem Hintergrund wird als repräsentativer Wert für den Eindringdruck 0,15 MPa und für die Restgassättigung 8 % festgelegt.

#### 5.1.3.4 Abhängigkeit der Ergebnisse vom Tonanteil

Aufgrund der Überlegungen zur Mikrostruktur der Ton-Sand-Gemische (vgl. Kap. 5.1.3.1) ist zu erwarten, dass die Fließkanäle im Porenraum mit wachsendem Tonanteil enger werden. Dadurch nimmt die absolute Permeabilität ab und der Kapillardruck steigt. Außerdem wächst mit dem Tonanteil die Menge an hydratisiertem Wasser in den Zwischenschichten. Da die Sättigung, so wie sie im Rahmen dieses Berichts

definiert ist, das Zwischenschichtwasser einbezieht, müssen damit auch die Residualsättigungen ansteigen. Diese Effekte spiegeln sich in den Abb. 5.12 und Abb. 5.13 wider, in denen die Ergebnisse zur effektiven Gaspermeabilität bzw. zum Kapillardruck als Funktion der Sättigung für die Mischungsverhältnisse 90/10 und 75/25 zusammengefasst sind.



Abb. 5.12Effektive Gaspermeabilität als Funktion der Sättigung: Mischungen90/10 (rote Symbole) und 75/25 (grüne Symbole), Wasser

Durch den Übergang auf effektive Sättigungen und relative Gaspermeabilitäten lassen sich jedoch gewisse Gesetzmäßigkeiten beim Zweiphasenfluss in Ton-Sand-Gemischen erkennen. Die Daten zu Permeabilität und Kapillardruck werden unter Verwendung der Residualsättigungen aus den Tab. 5.4 und Tab. 5.5 individuell für jede Probe auf denjenigen Bereich der Sättigung normiert, in dem ein Zweiphasenfluss stattfindet. Auch die relativen Permeabilitäten der Proben mit dem Mischungsverhältnis 90/10 sind auf die individuellen Werte für  $k_{g max}$  aus Tab. 5.4 bezogen. Für die relativen Permeabilitäten der Proben mit einem Verhältnis von 75/25 wird wegen der ungünstigen Datenlage (vgl. Kap. 5.1.3.3) dagegen einheitlich der repräsentative Wert für  $k_{g max}$  aus Tab. 5.5 herangezogen.



Abb. 5.13Kapillardruck als Funktion der Sättigung: Mischungen 90/10 (schwarze<br/>Symbole) und 75/25 (blaue Symbole), Wasser

In Abb. 5.14 sind die Ergebnisse zur relativen Gaspermeabilität aus den Proben mit 10 %igen und 25 %igen Tonanteil zusammengefasst. In dieser Darstellung ist klar erkennbar, dass die relative Permeabilität für Proben mit dem Mischungsverhältnis 90/10 demselben funktionalen Zusammenhang gehorcht wie die Proben mit einem Verhältnis von 75/25.

Die zugehörigen Ergebnisse zum Kapillardruck sind in Abb. 5.15 zusammengefasst. Für die Daten zum Mischungsverhältnis 90/10 ergibt sich auch hier ein klarer Zusammenhang, auch wenn nur wenig Daten im mittleren Sättigungsbereich vorliegen. Beim Mischungsverhältnis 75/25 sind die Daten schlechter verteilt als beim Verhältnis 90/10. Die gewonnenen Daten sind allerdings konsistent mit der Annahme, dass mit wachsendem Tonanteil die Fließkanäle kleiner werden und dass dadurch der Kapillardruck steigt.



Abb. 5.14Relative Gaspermeabilität als Funktion der effektiven Sättigung:Mischungen 90/10 (rote Symbole) und 75/25 (grüne Symbole), Wasser



Abb. 5.15Kapillardruck als Funktion der effektiven Sättigung: Mischungen 90/10<br/>(schwarze Symbole) und 75/25 (blaue Symbole), Wasser

#### 5.1.3.5 Parameterbestimmung

Im Zweiphasenflussprojekt war versucht worden, die Zweiphasenflussparameter mit Hilfe einer Regressionsanalyse zu ermitteln. Dabei stellte sich heraus, dass erstens die Streubreite der Daten zu hoch war und zweitens die Daten nicht gleichförmig genug über der Sättigung verteilt waren. Insbesondere im Bereich mittlerer Sättigungen waren zu wenig Daten vorhanden. Die Regressionsanalyse lieferte dadurch stark unterschiedliche und auch unrealistische Zustandsgleichungen. Nur eine willkürliche Wichtung der Datenpunkte hätte unter diesen Umständen zu einem befriedigenden Resultat geführt. Deshalb erschien es sinnvoller, die analytischen Zustandsgleichungen ohne Umweg über die Regressionsanalyse visuell an die Messdaten anzupassen.

Wenngleich durch die zusätzlichen Messungen im Projekt KENTON die Bandbreite der infrage kommenden Zustandgleichungen eingegrenzt werden konnte, so bleibt doch das grundsätzliche Problem der ungleichmäßigen Verteilung der Daten weiterhin bestehen. Aus diesem Grund wird hier wie im Zweiphasenflussprojekt verfahren und ein visuelles Datenfitting auf der Grundlage des van Genuchten-Ansatzes durchgeführt. Auf den Vergleich mit den Brooks-Corey-Gleichungen wird dabei verzichtet, weil schon im Zweiphasenflussprojekt deutlich wurde, dass der Kapillardruckverlauf im Bereich hoher Sättigungen besser durch den Ansatz von van Genuchten wiedergegeben wird als durch den Ansatz von Brooks und Corey.

Im van Genuchten-Ansatz wird die Gültigkeit von Gleichung 2.15 angenommen, die einen Zusammenhang zwischen den Parametern m und n herstellt, so dass im Folgenden nur noch der Parameter n betrachtet werden muss. Da die Kurvenanpassung über der effektiven Sättigung erfolgt, sind im Fall der Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Beziehung nur n, im Fall der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung die Parameter n und  $\alpha$  zu variieren.

Bei der Parameterbestimmung sind die folgenden beiden Restriktionen zu beachten. Der Parameter n koppelt die Zustandsgleichungen für die relative Permeabilität und die Zustandsgleichungen für den Kapillardruck miteinander, während der Parameter  $\alpha$ nur auf den Kapillardruck wirkt. Da die Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Beziehung nur vom Parameter n abhängt und entsprechend Abb. 5.14 für die beiden untersuchten Mischungsverhältnisse dieselbe ist, muss auch der Parameter n in beiden Fällen identisch sein. Die Variation der Parameter n und  $\alpha$  erfolgt getrennt nach Mischungsverhältnis aber simultan für die relative Permeabilität und den Kapillardruck. Die resultierenden Kurven sind in den Abb. 5.16 und Abb. 5.17 in die Darstellung der Messwerte eingetragen. Mit den Parametern gemäß Tab. 5.6 gelingt die Übereinstimmung der Zustandsgleichungen nach van Genuchten mit den Messdaten zufrieden stellend.



Abb. 5.16Zustandsgleichungen und Messwerte für die Mischung 90/10 (relative<br/>Permeabilität: rote Symbole; Kapillardruck: schwarze Symbole)

Eine noch bessere Anpassung als in den Abb. 5.16 und Abb. 5.17 demonstriert, ist mit dem Ansatz von van Genuchten nicht machbar, da die Form sowohl der Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Kurve als auch der korrespondierenden Kapillardruck-Sättigungs-Kurve ausschließlich durch den Parameter n gesteuert wird. Der Parameter  $\alpha$  skaliert lediglich die Größe des Kapillardrucks. Mit wachsendem n steigt die Krümmung in der Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Kurve, wodurch die Kurve nach unten gezogen wird. In der Kapillardruck-Sättigungs-Beziehung verstärkt eine Vergrößerung von n die Krümmung sowohl im hohen als auch im niedrigen Sättigungsbereich und führt damit zu einer Annäherung an einen konstanten Kapillardruck im Bereich  $0 < S_w < 1$ . Eine Abweichung von n = 12 würde daher die

Anpassung einer der beiden Kurven verbessern und gleichzeitig die Anpassung der anderen Kurve verschlechtern.



Abb. 5.17 Zustandsgleichungen und Messwerte für die Mischung 75/25 (relative Permeabilität: rote Symbole; Kapillardruck: schwarze Symbole)

Tab. 5.6Zweiphasenflussparameter nach van Genuchten für die Mischungs-<br/>verhältnisse 90/10 und 75/25

	n	α
Mischung 90/10	12	13
Mischung 75/25	12	1,6

## 5.1.4 Chemische Zusammensetzung der Permeate

Bei der eingesetzten Lösung handelte es sich um IP21-Lösung. Dieses ist eine in Salzformationen natürlich auftretende, gesättigte Salzlösung, die mit den Mineralphasen Halit, Sylvin, Carnallit, Kainit und Polyhalit im Gleichgewicht steht. Ihre Herstellung ist nicht trivial, weswegen bei dem Ansatz unterschiedlicher Chargen dieser Lösung keine identischen Konzentrationen zu erwarten sind. Alle Versuche fanden mit einer der beiden, in Tab. 5.7 als "Lösung 1" und "Lösung 2" bezeichneten Lösungen statt. Für die weitere Auswertung wurde von den Konzentrationsmittelwerten dieser beiden Lösungen als Ausgangszustand der zutretenden Lösung ausgegangen. Als Vergleich ist ferner die Zusammensetzung einer "idealen" IP21-Lösung angegeben, wie sie sich als Ergebnis einer Berechnung mit dem geochemischen Rechenprogramm EQ36 ergibt.

Die bei den Versuchen durchtretende Lösung wurde aufgefangen und analysiert. Die Analysenergebnisse sind in Tab. 5.8 aufgeführt.

Lab.	Prüfakten	Proben-	Bemerkung	Na<+>	K<+>	Mg<2+>	Ca<2+>	CI<->	SO <sub>4</sub> <2->	N+	N-	Abw. %
Nr.	Nummer	bezeichnung					mmo	1/1				
25264	2001-075	<b>KENTON IP21</b>	"Lösung 1"	409,5	434,4	3618,3	1,6	7589,3	248,5	8084	8086	0,0
25581	2002-021	<b>KENTON IP21</b>	"Lösung 2"	411,9	439,0	3755,1	1,2	7826,5	255,0	8363	8336	0,3
		Definition IP21	Dichte = 1,2926	405,1	486,9	3720,0	0,6	7782,2	274,4	8333	8331	0,0
			Mittelwert	410,7	436,7	3686,7	1,4	7707,9	251,7	8224	8211	0,1
			Abw.	1,2	2,3	68,4	0,2	118,6	3,2			

 Tab. 5.7
 Analysenergebnisse der beiden eingesetzten Lösungen und Vergleich mit der berechneten Zusammensetzung (EQ36)

 Tab. 5.8
 Analysenergebnisse der bei den Versuchen gewonnenen Permeate

Lab.	Prüfakten	Proben-	Bemerkung	Na<+>	K<+>	Mg<2+>	Ca<2+>	CI<->	SO <sub>4</sub> <2->	N+	N-	Abw. %
Nr.	Nummer	bezeichnung					mmo	1/1				
		KENTON IP21	Mittelwert	410,7	436,7	3686,7	1,4	7707,9	251,7	8224	8211	0,1
			Abw.	1,2	2,3	68,4	0,2	118,6	3,2			
25233	2001-075	KENTON 90/10 28/1	Nach Durchbruch	321,2	13,7	3718,2	333,2	8269,0	20,1	8438	8309	1,5
25235	2001-075	KENTON 90/10 29/1	der Lauge	327,5	20,7	3611,1	317,5	8161,1	20,4	8205	8202	0,0
25237	2001-075	KENTON 90/10 30/1	1)	307,4	0,0	3653,3	454,5	8349,5	16,9	8523	8383	1,7
25239	2001-075	KENTON 90/10 31/1	1)	301,4	0,0	3687,0	408,3	8375,0	22,2	8492	8419	0,9
		KENTON 90/10	Mittelwert	314,4	8,6	3667,4	378,4	8288,6	19,9	8414	8328	1,0
		KENTON 90/10	Stdabw.	12,1	10,3	46,0	64,4	96,3	2,2			
25234	2001-075	KENTON 90/10 28/2	Nach Laugenper-	400,2	437,8	3722,2	2,9	7486,6	250,3	8288	7987	3,7
25236	2001-075	KENTON 90/10 29/2	meabilitätsmessung	397,0	440,0	3733,1	2,8	7573,3	256,1	8309	8085	2,7
25238	2001-075	KENTON 90/10 30/2		389,0	430,5	3757,0	2,6	7486,5	251,3	8339	7989	4,3
25240	2001-075	KENTON 90/10 31/2		389,8	420,7	3621,1	2,9	7328,9	244,6	8058	7818	3,0
		KENTON 90/10	Mittelwert	394,0	432,2	3708,3	2,8	7468,8	250,6	8249	7970	3,4
		KENTON 90/10	Stdabw.	5,5	8,7	60,0	0,1	101,8	4,7			

<sup>1)</sup> In diesen Lösungen war zuwenig Kalium vorhanden, um quantitativ bestimmt zu werden.

Lab.	Prüfakten	Proben-	Bemerkung	Na<+>	K<+>	Mg<2+>	Ca<2+>	C <->	SO <sub>4</sub> <2->	N+	N-	Abw. %
Nr.	Nummer	bezeichnung					mmo	1/1				
		IP21	Mittelwert	410,7	436,7	3686,7	1,4	7707,9	251,7	8224	8211	0,1
_			Abw.	1,2	2,3	68,4	0,2	118,6	3,2			
25241	2001-075	KENTON 75/25 26/1	Nach Durchbruch	351,3	79,5	3675,1	199,8	8137,7	39,1	8181	8216	0,4
25242	2001-075	KENTON 75/25 28/1	der Lauge	357,5	72,0	3766,2	180,9	8064,7	44,3	8324	8153	2,1
		KENTON 75/25	Mittelwert	354,4	75,8	3720,6	190,4	8101,2	41,7	8252	8185	0,8
		<b>KENTON 75/25</b>	Abw.	3,1	3,8	45,5	9,4	36,5	2,6			
25588	2002-021	KENTON 75/25 35.1	Nach Eintreten eines	388,6	406,5	3833,9	2,3	7626,7	261,7	8467	8150	3,8
25590	2002-021	KENTON 75/25 36.1	stationären Flusses	392,1	403,2	3831,4	2,4	7627,2	263,4	8463	8154	3,7
		<b>KENTON 75/25</b>	Mittelwert	390,3	404,8	3832,7	2,4	7626,9	262,6	8465	8152	3,8
		<b>KENTON 75/25</b>	Stdabw.	2,5	2,4	1,7	0,1	0,4	1,2			
25589	2002-021	KENTON 75/25 35.2	Nach Laugenpermea-	396,4	406,0	3785,1	2,9	7673,9	257,9	8378	8190	2,3
25591	2002-021	KENTON 75/25 36.2	bilitätsmessung	392,0	398,8	3745,9	2,7	7639,1	258,2	8288	8156	1,6
		<b>KENTON 75/25</b>	Mittelwert	394,2	402,4	3765,5	2,8	7656,5	258,1	8333	8173	1,9
		KENTON 75/25	Stdabw.	3,1	5,1	27,8	0,2	24,7	0,2			

Fortsetzung Tab. 5.8Analysenergebnisse der bei den Versuchen gewonnenen Permeate

Lab.	Prüfakten	Proben-	Bemerkung	Na<+>	K<+>	Mg<2+>	Ca<2+>	CI<->	SO <sub>4</sub> <2->	N+	N-	Abw. %
Nr.	Nummer	bezeichnung					mmo	1/1				
		IP21	Mittelwert	410,7	436,7	3686,7	1,4	7707,9	251,7	8224	8211	0,1
_			Abw.	1,2	2,3	68,4	0,2	118,6	3,2			
25582	2002-021	KENTON 50/50 27.1	Nach Eintreten eines	339,2	277,2	3847,8	2,3	7870,2	268,9	8317	8408	1,1
25584	2002-021	KENTON 50/50 28.1	stationären Flusses	297,4	204,2	4062,0	2,4	8129,8	267,3	8631	8664	0,4
25586	2002-021	KENTON 50/50 29.1		332,7	272,3	3962,3	2,3	7795,4	274,1	8534	8344	2,3
		<b>KENTON 50/50</b>	Mittelwert	323,1	251,3	3957,3	2,4	7931,8	270,1	8494	8472	0,3
		<b>KENTON 50/50</b>	Stdabw.	22,5	40,8	107,2	0,1	175,5	3,6			
25583	2002-021	KENTON 50/50 27.2	Nach Laugenpermea-	304,8	244,6	4056,4	2,4	8028,0	295,7	8667	8619	0,5
25585	2002-021	KENTON 50/50 28.2	bilitätsmessung	365,9	363,4	4276,2	2,7	8445,4	296,2	9287	9038	2,7
25587	2002-021	KENTON 50/50 29.2		248,8	141,9	4564,2	2,6	8863,9	315,2	9524	9494	0,3
		KENTON 50/50	Mittelwert	306,5	250,0	4298,9	2,5	8445,8	302,4	9159	9051	1,2
		KENTON 50/50	Stdabw.	58,5	110,8	254,7	0,1	418,0	11,1			

Fortsetzung Tab. 5.8Analysenergebnisse der bei den Versuchen gewonnenen Permeate

#### **KENTON 90/10**

Nach Durchbruch der Lauge unterscheidet sich die Zusammensetzung des Permeats deutlich von jener der eingesetzten Lösung. Der eingesetzte Probekörper befand sich noch nicht im Gleichgewicht mit der Lösung. Besonders auffällig ist, dass die Kaliumkonzentrationen im Vergleich zur IP21-Lösung viel niedriger ausfallen, in zwei Fällen sogar zu niedrig für eine quantitative Bestimmung waren. Die Konzentrationen entsprachen nach der Aufsättigung zum Zeitpunkt der Laugenpermeabilitätsmessung in etwa jenen der Ausgangslösung. Ca zeigt einen geringfügig erhöhten Wert. Die Gleichgewichtseinstellung ist zum Zeitpunkt der Permeabilitätsmessung abgeschlossen.

Ferner ist festzustellen, dass die Sulfatkonzentrationen intermediär viel geringer ausfallen. Es kann angenommen werden, dass das durch die Probe an die Lösung abgegebene Calcium mit dem Sulfat der IP21-Lösung Gips bildet. Dieser Effekt wurde bei Quelldruckversuchen mit kompaktiertem Calcigel und IP21-Lösung nachgewiesen.

#### **KENTON 75/25**

Hier ergibt sich ein sehr ähnliches Bild wie bei KENTON 90/10 beschrieben. Im Vergleich zur IP21-Lösung ergibt sich für Kalium am Ende des Versuches ein etwas anderer Wert, was so interpretiert werden kann, dass der Einbau von Kalium in die Zwischenschichten des quellfähigen Tonanteils noch nicht abgeschlossen war. Da nicht verzeichnet wurde, wie viel Permeat aufgefangen und wie viel IP21-Lösung zu diesem Zeitpunkt in die Probe hineingedrückt worden war, kann nur folgendes ausgesagt werden: bei dem höheren Tonanteil bei diesen Versuchen (25 % im Vergleich zu 10 %) ist es vernünftig anzunehmen, dass mehr IP21-Lösung notwendig gewesen wäre, um in ein Gleichgewicht mit der angebotenen Tonmasse zu kommen. Bei gleichem Fluss hieße dies, dass eine Angleichung der Kaliumkonzentration an die Verhältnisse in der IP21-Lösung zu einem späteren Zeitpunkt zu erwarten gewesen wäre als bei KENTON 90/10.

Der Gang von Calcium- und Sulfatkonzentrationen lässt auch bei diesem Versuch annehmen, dass es intermediär zur Gipsbildung im Inneren der Probe gekommen ist.

### **KENTON 50/50**

Dies waren die Versuche mit dem höchsten Tonanteil in den durchströmten Probekörpern. Insofern war zu erwarten, dass noch mehr IP21-Lösung notwendig sein würde, um in ein Gleichgewicht mit einer gegebenen Masse Sand/Calcigel-Mischung zu kommen. Für diese Versuche liegen keine Analysendaten für das erste Permeat vor.

Die aufgefangenen Lösungen weisen einen signifikant höheren Salzgehalt auf. Die durch den erhöhten Ton-Gehalt geringere Permeabilität führte dazu, dass es einige Tage dauerte, bis genügend Permeat für die Analyse aufgefangen werden konnte. Es kann davon ausgegangen werden, dass es durch die tagelange, offene Standzeit des Permeates zu Verdampfungsverlusten und damit zu einer Aufkonzentrierung der Lösung gekommen ist. Von einer Interpretation der Analysendaten wird daher Abstand genommen.

## 5.2 Splitt-Ton-Gemische

## 5.2.1 Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge

Die Untersuchungen an dem Splitt-Ton-Gemisch 75/25 haben gezeigt, dass es durch manuelle Verdichtung möglich war, Einbaudichten zwischen 1,857 g/cm<sup>3</sup> und 1,925 g/cm<sup>3</sup> mit Porositäten von 30 % bis 32,4 % herzustellen. Die aus den Sättigungen mit Wasser bzw. Q-Lauge (IP 21) berechneten effektiven Porositäten lagen mit 29,3 % bis 31,4 % für Lauge und mit 30,5 % bis 33,6 % für Wasser in vergleichbaren Größenordnungen.

Die einphasigen Gaspermeabilitäten ergaben sich zu  $1,4 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  bis  $6,6 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$ . Die Laugenpermeabilitäten waren mit  $5 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$  bis  $8,3 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$  deutlich niedriger als die Gaspermeabilitäten. Um etwa eine weitere Größenordnung geringer fielen die Wasserpermeabilitäten mit  $2 \cdot 10^{-17} \text{ m}^2$  bis  $3,9 \cdot 10^{-17} \text{ m}^2$  aus. Die Ergebnisse der einphasigen Untersuchungen sind in der Tab. 5.9 zusammengestellt.

Bei der Betrachtung der Ergebnisse fällt auf, dass die einphasigen Permeabilitäten des Splitt-Ton-Gemisches 75/25 in ähnlichen Bereichen liegen, wie die des Sand-Ton-Gemisches mit demselben Mischungsverhältnis 75/25. Während die Gaspermeabilitäten nahezu keine nennenswerten Unterschiede aufweisen, weisen die Flüssigkeitspermeabilitäten geringfügig höhere Werte auf.

		Gesamt-	effektive			
		porosität	Porosität	mittlere	Wasser-	Laugen-
	Gesamt-	aus	aus Sätti-	Gasper-	permea-	permea-
Probe	dichte	Dichten	gung	meabilität	bilität	bilität
	$ ho_b$	Φ	$\Phi_{\rm eff}$	k <sub>g</sub>	k <sub>w</sub>	k <sub>L</sub>
	g/cm <sup>3</sup>	%	%	m²	m²	m²
ST75/25.K1	1,925	30	31,4	2,6 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	8,3 · 10 <sup>-16</sup>
ST75/25.K2	1,858	32,4	29,3	1,8 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	5,0 · 10 <sup>-16</sup>
ST75/25.K3	1,857	32,4	30,9	2,6 · 10 <sup>-13</sup>	n. b.	7,0 · 10 <sup>-16</sup>
ST75/25.K4	1,910	30,5	31,3	2,5 · 10 <sup>-13</sup>	2,7 · 10 <sup>-17</sup>	n. b.
ST75/25.K5	1,874	31,8	33,6	6,6 · 10 <sup>-13</sup>	3,9 · 10 <sup>-17</sup>	n. b.
ST75/25.K6	1,915	30,3	30,5	1,4 · 10 <sup>-13</sup>	2,0 · 10 <sup>-17</sup>	n. b.

# Tab. 5.9Zusammenfassung der Ergebnisse der Einphasenpermeabilitäten derSplitt-Ton-Mischung 75/25; Korndichte der Mischung 75/25: $\rho_{\kappa}$ =2,75 g/cm<sup>3</sup>

## 5.2.2 Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Wassersättigung und der Q-Laugensättigung

Der Bereich des Gasdurchbruchdrucks bei den drei mit Wasser gesättigten Proben ST75/25.K4 bis ST75/25.K6 lag zwischen 0,1 MPa und 0,7 MPa. Bei diesen Drücken konnte eine effektive Gaspermeabilität unter stationären Bedingungen ermittelt werden. Die Gaspermeabilitäten lagen zwischen  $2 \cdot 10^{-16}$  m<sup>2</sup> und  $6 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup>; bei Sättigungen zwischen 67 % und 75 %. Nach Erhöhung des Gaseinpressdrucks auf die nächste Stufe war ein dauernder, zum Schluss starker Anstieg der Gasfließraten zu beobachten. Da sich keine stationären Fließbedingungen einstellten war es somit nicht möglich, eine zu einer Sättigung zugehörige Gaspermeabilität zu ermitteln und die Versuche wurden abgebrochen.

Bei den Untersuchungen der mit Q-Lauge (IP 21) gesättigten Proben ST75/25.K1 bis ST75/25.K4 war der Gasdurchbruch bei 0,1 MPa festzustellen. Eine Erhöhung des Gaseinpressdrucks zur Einstellung weiterer Sättigungsstufen ergab, dass die Gasfließraten bei den einzelnen Druckstufen stark schwankten, so dass es sich als äußerst schwierig erwies, einen eindeutig stationäre Fließzustand zu identifizieren. Zuweilen kam es bei einigen Druckstufen zu einer völligen Stagnation des Gasflusses. Obwohl eine weitere Verdrängung der Lauge auftrat, war es nicht möglich, einen eindeutigen Permeabilitäts-Sättigungs-Verlauf festzustellen. Es wurde lediglich der Trend einer Abnahme der effektiven Gaspermeabilität beobachtet. Wie bei den Untersuchungen an Sand-Ton-Gemischen kann auch hier das Verhalten wahrscheinlich durch Ausfällungen, z.B. von Gips, und ein immer wieder auftretendes Aufreißen der "Verstopfungen", z.B. durch Druckerhöhung, erklärt werden.

Aufgrund der vorliegenden nicht eindeutigen Permeabilitäts-Sättigungsverläufe, sowohl bei den Untersuchungen mit Wasser als auch mit Lauge, wurde auf eine modellmäßige Auswertung nach Corey-Brooks oder van Gebuchten verzichtet.

Die einzelnen Ergebnisse für die Proben ST75/25.K1 bis ST75/25.K6 sind im Anhang zusammengefasst.

Nach Abschluss der Versuche wurden die Proben ausgebaut. Die Abb. 5.18 und Abb. 5.19 zeigen als Beispiel die Proben ST75/25.K6 und ST74/25.K1, die vor den Entsättigungsversuchen zum einen mit Wasser und zum andern mit Q-Lauge gesättigt waren, im aufgebrochenen Zustand. Es zeigte sich, dass der Splitt weitgehend gleichmäßig und fest im Ton eingebettet war. Die Einbettung ist besonders in der Abb. 5.19 zu erkennen. Allerdings waren einzelne Bereiche mit stärkerer Splittanreicherung zu beobachten. Insgesamt waren die Proben von stabiler Struktur, die erst durch die mechanische Belastung beim Ausbau aus der Apparatur, besonders beim Entfernen aus dem Gummijacket, zum Teil zerbrachen. Die dunkle Färbung der Mantelflächen rührt von Abfärbungen des Gummijackets her.



Abb. 5.18 Probe ST75/25.K6 nach Ausbau; Sättigungsmedium: Wasser



Abb. 5.19 Probe ST75/25.1 nach Ausbau; Sättigungsmedium: Q-Lauge (IP 21)

## 5.3 Großkalibrige Steinsalzkerne

## 5.3.1 Einphasige Permeabilitäten für Gas, Wasser und Q-Lauge

Bei den Gaspermeabilitätsmessungen an dem großkalibrigen Salzkern, der mit einem als Schüttung eingebauten Sand-Ton-Gemisch, Mischungsverhältnis 90/10, versehen war, hat sich ergeben, dass sowohl die Höhe des Injektionsdrucks von 0,02 MPa bis 0,35 MPa sowie die des Ringraumdruckes von 0,5 MPa und 1 MPa praktisch keinen Einfluss auf die Messung ausüben. Aus diesem Grund wurde für die Messungen jeweils eine mittlere Gaspermeabilität für das Gesamtsystem Salz-Sand-Ton als auch für das eingebaute Sand-Ton-Gemisch berechnet. Diese Werte fanden als Bezugspermeabilität bei der Bestimmung der relativen Gaspermeabilitäten Verwendung.

Die Untersuchungen lassen aufgrund der geringen Durchlässigkeit des Salzes den Schluss zu, dass die Durchlässigkeit hauptsächlich durch die eingebrachte Sand-Ton-Mischung bestimmt wird. Unter dieser Annahme wurde eine einphasige Gaspermeabilität von ca.  $1,6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  und eine Laugenpermeabilität, gemessen mit Q-Lauge (IP 21), von ca.  $5,2 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$  ermittelt. Unter Zugrundelegung der gesamten Querschnittsfläche des Probekörpers, d.h. unter Einbeziehung der Dicke des Salzrings in die Permeabilitätsberechnung, ergibt sich eine Gaspermeabilität von ca.  $2,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  und eine Laugenpermeabilität von ca.  $2,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$ 

Die Einbaudichte des Sand-Ton-Gemisches betrug ca. 1,74 g/cm<sup>3</sup>. Mit einer Korndichte der Sand-Ton-Mischung von 2,62 g/cm<sup>3</sup> ergibt sich eine Einbauporosität von ca. 33,7 %. Die Gesamtporosität des Probekörpers unter Einbeziehung der Porosität des Salzringes wurde zu 5,8 % errechnet.

Aufgrund der Ölkontamination (siehe Kap. 4.1.2) nach Abschluss der Gaspermeabilitätsmessungen konnten bei zwei weiteren Versuchen an großkalibrigen Kernen, die mit vorkompaktierten Sand-Ton-Körpern gefüllt wurden, keine weiteren Untersuchungen zur Laugenpermeabilität und zum Zweiphasenflussverhalten vorgenommen werden. Auch hier war zu erkennen, dass zumindest das Verhalten der Gaspermeabilitäten hauptsächlich durch das Sand-Ton-Dichtungsmaterial bestimmt wird. Die einphasigen Gaspermeabilitäten lagen bei ca. 10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup> bezogen auf den Sand-Ton-Bereich und bei ca. 10<sup>-13</sup> m<sup>2</sup> unter Berücksichtigung der gesamten Probenquerschnittsfläche. Die gemittelte Einbaudichte der Sand-Ton-Bereiche betrug ca. 1,7 g/cm<sup>3</sup>, was im Mittel einer Porosität von ca. 41 % entspricht. Die einzelnen Ergebnisse sind in der Tab. 5.10 zusammengestellt.

Tab. 5.10	Zusammenfassung	der	Ergebnisse	der	einphasigen	Permeabilitätsbe-
	stimmungen an groß	Skalib				

	Einbau- dichte porosität		Gaspermeabilität		Laugenpermeabilität	
	$ ho_{Ein}$	$\Phi_{\rm Ein}$	k <sub>g</sub>		k <sub>L</sub>	
	g/cm <sup>3</sup>	%	m <sup>2</sup>		m <sup>2</sup>	
Salzkerne	Salz-			Salz-		Salz-
gefüllt mit	Sand-Ton	Sand-Ton	Sand-Ton	Sand-Ton	Sand-Ton	Sand-Ton
Sand-Ton-Schüt- tung (Probe 1)	1,74	33,6	1,6·10 <sup>-12</sup>	2,2·10 <sup>-13</sup>	5,2·10 <sup>-14</sup>	1,7·10 <sup>-15</sup>
Sand-Ton-Press- linge (Probe 2)	1,66	41,4	1,1·10 <sup>-12</sup>	1,3·10 <sup>-13</sup>	n. b.	n. b.
Sand-Ton-Press- linge (Probe 3)	1,71	40,5	9,5·10 <sup>-13</sup>	1,3·10 <sup>-13</sup>	n. b.	n. b.

#### 5.3.2 Zweiphasenfluss für Gas in Abhängigkeit von der Q-Laugensättigung

Für die Bestimmung der Porenraumsättigung wurde das Porenvolumen sowohl des Gesamtprobekörpers, bestehend aus dem Salzring und der Sand-Ton-Dichtung, als auch für die Sand-Ton-Dichtung allein ermittelt. Zur Berechnung wurden die Porositäten, die sich aus den Gesamtdichten und den Korndichten ergaben, herangezogen. Da eine mögliche Veränderung des Innendurchmessers durch Konvergenz des Salzrings, hervorgerufen durch die Mantelspannung, nicht unmittelbar messtechnisch erfasst werden konnte und somit eine daraus resultierende Porositätsreduzierung des Sand-Ton-Einbaus lediglich berechnet wurde (siehe Kap. 5.2.4), erfolgte die Sättigungsbetrachtung ausgehend von der Einbauporosität des Sand-Ton-Materials von 33,6 %. Wie in Abschnitt 4.2.2 ausgeführt, stellt darüber hinaus die exakte quantitative Bestimmung der verdrängten Flüssigkeitsmenge einen zusätzlichen Unsicherheitsfaktor dar, so dass die konvergenzbedingte Veränderung der Porosität vernachlässigbar ist.

Aufgrund der beschriebenen Unsicherheiten bei der Bestimmung der verdrängten Flüssigkeitsmenge aus der Probe sind nur qualitative Aussagen über das Zweiphasenflussverhalten, speziell der Sättigungsermittlung möglich und es wurde auf eine eingehende quantitative Auswertung verzichtet. Ein Vergleich der aufgenommenen Laugenmenge mit dem aus der Porosität rechnerisch ermittelten Porenraum ergab, dass offensichtlich keine vollständige Sättigung erreicht werden konnte. Bezogen auf den Gesamtprobekörper war eine Ausgangssättigung von ca. 63,5 % und beim eingebauten Sand-Ton-Gemisch von ca. 72 % erreicht. In einzelnen Druckstufen, beginnend bei 0,02 MPa bis zu 3,04 MPa, wurde der Probekörper entsättigt und die zugehörigen effektiven Gaspermeabilitäten errechnet. Die effektiven Gaspermeabilitäten für die einzelnen Injektionsdrücke sind in der Tab. 5.11 zusammengefasst.

Die Untersuchungen haben gezeigt, dass bereits nach Aufbringen eines geringen Gasinjektionsdrucks ein Großteil der verdrängbaren Laugenmenge aus dem Porenraum entfernt wurde, was auf ein System mit vorwiegend einer Porengrößenklasse hinweist. Die anschließend noch austretenden Laugenmengen konnten, wie oben erläutert, nicht mehr ausreichend quantitativ erfasst werden. Allerdings war ein Anstieg der effektiven Gaspermeabilität feststellbar. Ausgehend von einer niedrigen effektiven Gaspermeabilität sättigung steigt die effektive Gaspermeabilität erst ab dem Bereich der "Restlaugensättigung" steil an.

Tab. 5.11	Ergebnis der Zweiphasenflussuntersuchungen bezogen auf die Gesamt-
	probe und das Sand-Ton-Gemisch

	Gesamtprobe	Sand-Ton-Gemisch	
Injektionsdruck	effekt. Gasperm.	effekt. Gasperm.	
p <sub>c</sub>	k <sub>effg</sub>	k <sub>effg</sub>	
MPa	m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup>	
0,021	3,6 · 10 <sup>-17</sup>	2,7 · 10 <sup>-16</sup>	
0,021	5,6 · 10 <sup>-16</sup>	4,2 · 10 <sup>-15</sup>	
0,030	4,3 · 10 <sup>-17</sup>	3,2 · 10 <sup>-16</sup>	
0,040	5,1 · 10 <sup>-18</sup>	3,8 · 10 <sup>-17</sup>	
0,059	3,0 · 10 <sup>-18</sup>	2,3 · 10 <sup>-17</sup>	
0,091	2,6 · 10 <sup>-18</sup>	2,0 · 10 <sup>-17</sup>	
0,121	1,4 · 10 <sup>-18</sup>	1,0 · 10 <sup>-17</sup>	
0,170	6,0 · 10 <sup>-19</sup>	4,5 · 10 <sup>-18</sup>	
0,194	1,3 · 10 <sup>-19</sup>	9,6 · 10 <sup>-19</sup>	
0,254	1,1 · 10 <sup>-19</sup>	8,0 · 10 <sup>-19</sup>	
0,301	1,0 · 10 <sup>-19</sup>	7,5 · 10 <sup>-19</sup>	
0,352	1,1 · 10 <sup>-19</sup>	7,9 · 10 <sup>-19</sup>	
0,401	4,5 · 10 <sup>-20</sup>	3,4 · 10 <sup>-19</sup>	
0,500	4,6 · 10 <sup>-19</sup>	3,5 · 10 <sup>-18</sup>	
0,610	2,9 · 10 <sup>-18</sup>	2,2 · 10 <sup>-17</sup>	
0,700	1,7 · 10 <sup>-18</sup>	1,3 · 10 <sup>-17</sup>	
0,820	3,8 · 10 <sup>-18</sup>	2,8 · 10 <sup>-17</sup>	
0,900	5,9 · 10 <sup>-16</sup>	4,4 · 10 <sup>-15</sup>	
1,005	4,8 · 10 <sup>-16</sup>	3,6 · 10 <sup>-15</sup>	
1,100	6,8 · 10 <sup>-16</sup>	5,1 · 10 <sup>-15</sup>	
1,215	5,6 · 10 <sup>-16</sup>	4,2 · 10 <sup>-15</sup>	
1,520	3,7 · 10 <sup>-16</sup>	2,8 · 10 <sup>-15</sup>	
2,000	3,5 · 10 <sup>-16</sup>	2,6 · 10 <sup>-15</sup>	
2,500	2,6 · 10 <sup>-16</sup>	1,9 · 10 <sup>-15</sup>	
3,035	2,2 · 10 <sup>-16</sup>	1,6 · 10 <sup>-15</sup>	

Nach Abschluss der Versuche wurde die Probe ausgebaut und in 7 Scheiben zerschnitten. In der Abb. 3.15-20 ist die Nummerierung der Scheiben dargestellt. Die Durchflussrichtung war von rechts nach links, d.h. von Scheibe 6 in Richtung Scheibe 0. Abb. 5.21 zeigt die zersägte Probe. Um ein Austrocknen zu verhindern, wurden die Scheiben sofort in eine Plastikfolie verpackt und eingeschweißt.

Eine der Scheiben wurde keilförmig aufgeschnitten, um einen Eindruck über die Anbindung des Sand-Ton-Gemisches an die Wand des Salzkerns zu erhalten. Wie aus den Abb. 5.22 und Abb. 5.23 zu ersehen ist, liegt ein guter Kontakt zwischen Salz und Sand-Ton-Mischung vor.
NTON KE

Abb. 5.20 Großkalibrige Probe (Kern 1) mit Sand-Ton-Schüttung nach Ausbau und den angezeichneten Segmenten. Die Durchflussrichtung war von Segment 6 nach Segment 0



Abb. 5.21 In Scheiben zersägte Probe



Abb. 5.22 Aufgeschnittene Scheibe mit Sand-Ton-Füllung



Abb. 5.23 Scheibe mit Salzring und Sand-Ton-Füllung

Bei den Scheiben 6, 3 und 1 wurde die Sand-Ton-Füllung aus den Salzringen herausgedrückt und der Feuchtegehalt sowohl der Füllung als auch des Salzringes gemäß DIN 18121-1 durch Trocknung bei 105 °C ermittelt. Die Menge des ausgetrockneten Wassers wurde auf die Trockenmasse des Materials bezogen. Einen Salzring ohne Sand-Ton-Füllung zeigt die Abb. 5.24.



Abb. 5.24 Salzring nach Ausdrücken der Sand-Ton-Füllung

Hierbei war festzustellen; dass der Feuchtegehalt des Sand-Ton-Gemisches im Kernausgangsbereich (Scheibe 1) mit 1,34 % am höchsten ausfällt. Bei den weiteren Scheiben, die sich zur Injektionsseite hin befanden, lagen die Feuchtegehalte mit 0,87 % (Scheibe 3) und 0,93 % (Scheibe 6) niedriger, was darauf zurückzuführen ist, dass sich die Lauge während der Verdrängung durch das Gas an der Kernausgangsseite ansammelt. Das Salz wies bei allen 3 untersuchten Ringen einen gleichen Feuchtegehalt von 0,03 % auf. Dies unterstützt die Annahme, dass zumindest bei der untersuchten Sand-Ton-Mischung mit einem verhältnismäßig geringen Tonanteil von 10 % das hydraulische Verhalten hauptsächlich von der Sand-Ton-Dichtung bestimmt wurde. Die Auswirkung höherer Tonanteile sollte weiter verfolgt werden.

### 5.3.3 Mechanisches Verhalten von großen Prüfkörpern aus Salzring und Sand-Ton-Gemisch

Zur Überprüfung der mechanischen und hydraulischen Wechselwirkung von Dichtungsmaterial mit dem Wirtsgestein wurden große, zylindrische Steinsalzkerne mit einer Verfüllung aus einem als Schüttung eingebauten Sand-Ton-Gemisch (90/10) untersucht. Abb. 4.6 zeigt die Radialbeanspruchung bei der konstanten Probenhöhe und die resultierende Vertikalspannung für den ersten Versuch. Entsprechend sind die Vertikalverformung, die Radialverformung des Salzrings und die Konvergenz des Zentralbohrloches in der Abb. 5.25 sowie die Kompaktion des Sand-Ton-Gemisches in der Abb. 5.26 dargestellt.

Bei der konstanten Probenhöhe (s. Kurve der Vertikalverformung in der Abb. 5.25) bewirkte eine kurzzeitige Erhöhung der Radialspannung eine Reduzierung des Außendurchmessers bzw. eine Zunahme der Radialverformung (Änderung des Außendurchmessers durch den Anfangswert:  $\Delta D/D_o$ ). Unter der Annahme der Vernachlässigung von Volumenänderungen des Salzrings während der Beanspruchungen ist die Konvergenz des Zentralbohrloches (Änderung des Innendurchmessers durch den Anfangswert:  $\Delta d/d_o$ ) durch Modellrechnungen ermittelt worden. Eine messtechnische Erfassung der Konvergenz des Bohrlochs war nicht möglich. Durch Erhöhung der Radialspannung auf 10 MPa konvergierte die Bohrung um bis zu ca. 2 %. Dadurch wurde das Sand-Ton-Gemisch im Bohrloch mit einer Abnahme der Porosität von 33,6 % auf ca. 32,8 % kompaktiert.

Bei der konstanten Radialspannung von 10 MPa trat ein Kriechen des Salzrings während der Gasdurchströmung in der Phase II auf. Durch die Aufsättigung mit der Q-Lauge IP 21 wurde das Kriechen beschleunigt. Eine Erhöhung der Steigung der Konvergenzkurve ist in der Phase III in der Abb. 5.25 deutlich zu erkennen. In der folgenden Phase IV wurde die Probe durch Gasinjektion entsättigt. Da die Radialspannung in dieser Phase nicht konstant eingehalten werden konnte, kann die Wirkung der Entsättigung auf die Kriechverformung nicht beurteilt werden. Das Kriechen des Salzrings unter Berücksichtigung des Einflusses der Laugenaufsättigung bzw. Entsättigung und der Stützwirkung des Versatzes in der Bohrung ergab eine Zunahme der Konvergenz von ca. 2 % auf ca. 3 %, womit eine Reduzierung der Porosität von ca. 32,8 % auf ca. 31,2 % verbunden war (Abb. 5.26).



Abb. 5.25 Verformungen des Salzring-Versatz-Systems



Abb. 5.26 Kompaktion des Sand-Ton-Gemisches im Salzring

Während des Versuches fanden vermutlich sehr komplexe Prozesse, wie die mechanische Wechselwirkung zwischen Versatz und Salzkörper, die mechanische und hydraulische Kopplung (Porosität-Permeabilität-Beziehung) und die chemische Reaktion zwischen der Lauge und dem System Salz/Sand-Ton-Gemisch statt. Solche komplexen Prozesse müssen durch weitere Untersuchungen überprüft und quantifiziert werden.

#### 6 Zusammenfassung

Im vorliegenden Bericht werden die Ergebnisse von Laboruntersuchungen an Ton-Mineral-Gemischen unter Zweiphasenflussbedingungen mit Gas und Wasser sowie Q-Lauge (IP 21) zur Charakterisierung von Verschlussmaterialien im Hinblick auf ihr einphasiges und zweiphasiges Verhalten vorgestellt. Zur Erweiterung der Datenbasis der im Vorhaben "Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen" FKZ 02 E 9017 0 ("Zweiphasenflussprojekt") /JOC 00/ ermittelten Ergebnisse für Ton-Sand-Gemische, wurden weiterführende Messungen an Sand-Ton-Mischungen mit Wasser und Untersuchungen mit Q-Lauge vorgenommen. Die Ergebnisse wurden mit einem Modellansatz nach van Genuchten ausgewertet. An einer ausgewählten Ton-Splitt-Mischung erfolgten orientierende Messungen zur Überprüfung des Einflusses größerer Kornbestandteile auf das hydraulische Verhalten. Die Ankopplung des Dichtmaterials an ein Wirtsgestein wurde exemplarisch an einem Großbohrkern an Steinsalz überprüft.

Vorangestellte Untersuchungen zum Einfluss der Herstellungsrezeptur von Sand-Ton-Presslingen in Hinsicht auf die Wasserzugabe ergaben, dass die verwendete Wassermenge sowohl Auswirkungen auf die einphasigen Gaspermeabilitäten als auch auf die Ausgangsporositäten hat. Die Änderungen, die sich durch die Zugabe unterschiedlicher Wassermengen bei der Herstellung ergaben, lassen sich dadurch erklären, dass das Wasser bei der Kompaktion der Proben nicht aus den Porenräumen verdrängt wird und sich somit ein Stützdruck im Porenraum aufbaut. Nach der Kompaktion der Proben wurde das vorher zugegebene Wasser wieder ausgetrocknet. Bei größeren Wassermengen, wie sie sich aus der auf den Tongehalt bezogenen Rezeptur ergeben, werden größere "Porenräume" erzeugt, die bei der Austrocknung erhalten bleiben. Die Zugabe einer konstanten Wassermenge führt dazu, dass nicht so viel freies Wasser im Porenraum zur Verfügung steht, und somit die Proben höher kompaktiert werden können. Besonders deutlich wird dieser Effekt bei der Betrachtung der Porositäten. Während sich bei der Zugabe einer auf den Tongehalt bezogenen Wassermenge mit einem Wasser/Ton-Faktor von 0,4 bei der Herstellung für alle betrachteten Sand-Ton-Mischungsverhältnisse Porositäten im Mittel von ca. 21,4 % ergaben, war bei der Zugabe einer konstanten Wassermenge von 20 ml bezogen auf 500 g Trockenmasse eine Abnahme der Porositäten im Bereich von 20,4 % bis 12,9 % mit steigendem Tonanteil zu beobachten. Die Gaspermeabilitäten waren mit Werten um 3 · 10<sup>-13</sup> m<sup>2</sup> für den Fall der prozentual auf den Tongehalt bezogenen Wassermenge bei der Probenher-

73

stellung für alle Sand-Ton-Mischungsverhältnisse vergleichbar. Für den Fall der konstanten Wassermenge bezogen auf die Trockenmasse ergab sich eine Abhängigkeit vom Tongehalt. Die Gaspermeabilitäten nahmen mit zunehmenden Tongehalt von ca.  $2,7 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup>, über  $3 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup> bis auf  $8,3 \cdot 10^{-15}$  m<sup>2</sup> ab. Damit ist die Möglichkeit gegeben, den Ausgangszustand der Dichtung unter hydraulischen Gesichtspunkten bereits beim Einbau zu optimieren.

Mit der Zielsetzung die im "Zweiphasenflussprojekt" erstellte Datenbasis zu erweitern, wurden die nachfolgenden Untersuchungen an Sand-Ton-Proben vorgenommen, bei deren Herstellung eine auf den Tonanteil bezogenen Wassermenge mit einem Wasser/Ton-Faktor von 0,4 Verwendung fand.

Die Untersuchungen der einphasigen Gas- und Wasserpermeabilitäten führten zu vergleichbaren Ergebnissen mit denen aus dem "Zweiphasenflussprojekt". Die Gaspermeabilitäten lagen im Mittel für das Sand-Ton-Mischungsverhältnis 90/10 bei  $2,8 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup>, bei der Mischung 75/25 bei  $1,8 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup> und bei der Mischung 50/50 bei  $4 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup>. Die einphasigen mit Wasser bestimmten Permeabilitäten ergaben im Mittel Werte von  $1,6 \cdot 10^{-15}$  m<sup>2</sup> für das Sand-Ton-Mischungsverhältnis 90/10 und  $1,3 \cdot 10^{-18}$  m<sup>2</sup> für die Mischung 75/25. Ein Vergleich der mit Q-Lauge (IP21) gemessenen Permeabilitäten zeigt, dass diese mit Werten um  $2 \cdot 10^{-14}$  m<sup>2</sup> (Sand-Ton-Mischung 90/10),  $1,2 \cdot 10^{-16}$  m<sup>2</sup> (Sand-Ton-Mischung 75/25) und  $4,5 \cdot 10^{-18}$  m<sup>2</sup> (Sand-Ton-Mischung 50/50) höher ausfielen als die mit Wasser ermittelten Permeabilitäten, was auf ein geringeres Quellvermögen des Tons in Verbindung mit der Q-Lauge zurückgeführt werden kann. In beiden Fällen ist auch eine deutliche Abhängigkeit vom Tongehalt festzustellen.

Die Entsättigungsversuche zur Ermittlung der Zweiphasenflusseigenschaften zeigten bei den mit Wasser gesättigten Proben ebenfalls vergleichbare Ergebnisse zu denen aus dem "Zweiphasenflussprojekt". Bei den Versuchen an mit Q-Lauge gesättigten Proben war während des Versuchsablaufs eine Gewichtszunahme, die einer "Wiederaufsättigung" entsprechen würde, zu beobachten. Dieser Effekt trat im Bereich der Restwassersättigung auf, wobei dieses Verhalten bei den Proben mit dem geringeren Tonanteil stärker ausgeprägt ist. Geochemische Untersuchungen der aus den Proben ausgetretenen Lösungen im Vergleich zu der reinen, zur Aufsättigung der Proben verwendeten Lösung ergaben, dass es zu einer Bildung von Gips kommen kann, womit eine mögliche Verringerung des Fließporenraums verbunden wäre. Durch zusätzliche Druckerhöhung besteht die Möglichkeit, dass dieser Bereich aufgerissen wird und für den Fluss wieder zur Verfügung steht.

Die im KENTON-Projekt gewonnenen neuen Ergebnisse bzgl. der Untersuchungen zum Zweiphasenflussverhalten von Sand-Ton-Gemischen haben den Bandbereich möglicher Relative-Permeabilitäts-Sättigungs-Beziehungen und Kapillardruck-Sättigungs-Beziehungen bei der Anpassung an die Messdaten deutlich verringert. In den Fällen, in denen die Ergebnisse aus dem "Zweiphasenflussprojekt" bereits stichhaltig waren, passen alte und neue Daten gut zusammen. In den Fällen, in denen sich kein eindeutiges Ergebnis abzeichnete weil die Daten zu unterschiedlich waren, ergibt sich durch die neuen Daten nunmehr ein klarer Trend. Die Normierung der Sättigung und der Gaspermeabilität zeigt ein Zweiphasenflussverhalten auf, das hinsichtlich der relativen Permeabilität unabhängig vom Tonanteil der Ton-Sand-Mischung ist. Dies schränkt die Freiheiten bei der Parameterwahl erheblich ein. Auch die auf die effektive Sättigung normierten Kapillardruckverläufe zeigen eine prinzipielle Ähnlichkeit zueinander. Dabei ist der Anstieg des Kapillardrucks mit dem Tonanteil konsistent mit der Vorstellung von verengten Porenkanälen. Der Vergleich umfasst hier allerdings nur den mittleren und hohen Sättigungsbereich, da der Kapillardruck bei den Sand-Ton-Proben mit dem Mischungsverhältnis 75/25 und bei niedrigen Sättigungen nicht gemessen werden konnte. Die Anpassung der Zustandsgleichungen nach van Genuchten an die Messwerte ist trotz der zusätzlichen Restriktionen, die im Vergleich zu den Arbeiten im Zweiphasenflussprojekt beachtet wurden, zufrieden stellend gelungen.

Erste orientierende Untersuchungen an Tongemischen mit grobkörnigeren Mineralbeimengungen wurden an einer als Schüttung, nur von Hand verdichteten Splitt-Ton-Mischung, mit einem Tonanteil von 25 % und einer Korngröße des Splitts von < 5 mm vorgenommen. Die Messungen haben gezeigt, dass sich auch diese grobkörnigere Mischung sowohl beim Einphasenfluss als auch beim Zweiphasenfluss grundsätzlich ähnlich verhält wie die kompaktierten Sand-Ton-Proben mit 25 % Tonanteil. Die einphasigen Gaspermeabilitäten mit Werten von  $1,4 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup> bis  $6,6 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup> entsprachen denen der Sand-Ton-Proben 75:25, wohin gegen die einphasigen Laugen- bzw. Wasserpermeabilitäten mit  $5 \cdot 10^{-16}$  m<sup>2</sup> bis  $8,3 \cdot 10^{-16}$  m<sup>2</sup> bzw.  $2 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup> bis  $3,9 \cdot 10^{-17}$  m<sup>2</sup> um ca. eine halbe bis eine Größenordnung höher ausfielen als die der Sand-Ton-Proben. Bei den Entsättigungsversuchen bei den mit Wasser gesättigten Proben war nach Erreichen des Gasdurchbruchdrucks ein starker Anstieg des Gasflusses, der zu keinem stationären Fließzustand führte, festzustellen. Bei den mit Q-Lauge (IP 21) gesättigten Proben zeigte sich nach dem Gasdurchbruch eine Stagnation des Gasflusses. Eine Erhöhung des Drucks führte zunächst zu einem Anstieg der Gasfließrate. Anschließend stellte sich wieder eine Stagnation des Gasflusses ein. Diese Beobachtung kann, wie bei den Messungen an Sand-Ton-Proben mit Q-Lauge, durch eine Ausfällung von Gips im Porenraum gedeutet werden.

Erste Versuche zur Ankopplung des Dichtmaterials an das Wirtsgestein wurden an großkalibrigen Salzkernen, die mit einer Zentralbohrung versehen waren, vorgenommen. In die Bohrungen wurden zum einen eine von Hand verfestigte Sand-Ton-Schüttung und zum anderen zylindrische, kompaktierte Sand-Ton-Proben eingebaut, wobei die Ringraumverfüllung beim Einbau der kompaktierten Proben mit reinem Calcigel erfolgte. Das verwendete Sand-Ton-Mischungsverhältnis betrug 90/10. Die Untersuchungen ergaben in der Größenordnung vergleichbare einphasige Gaspermeabilitäten um 10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>, bezogen auf die in die Zentralbohrung eingebaute Sand-Ton-Dichtung. Im Vergleich dazu lagen die Gaspermeabilitäten unter Berücksichtigung der gesamten Probe, d. h. unter Einbeziehung des Salzrings, um ca. eine Größenordnung niedriger. Aufgrund eines Risses im Gummijacket und einer damit verbundenen Kontamination der Proben mit Öl war es leider nicht mehr möglich, die Versuche an dem mit kompaktierten Sand-Ton-Proben versehenen Salzkern weiterzuführen. Bei den Untersuchungen an der mit der Sand-Ton-Schüttung verfüllten Probe konnte dagegen die einphasige Laugenpermeabilität zu 5,2 · 10<sup>-14</sup>m<sup>2</sup> bezogen auf den Sand-Ton-Einbau bzw. zu  $1.7 \cdot 10^{15} \text{m}^2$  unter Einbeziehung des Salzringes ermittelt werden. Bei der gualitativen Betrachtung der Zweiphasenflusseigenschaften beim anschließenden Entsättigungsversuch kann festgestellt werden, dass auch bei einem simulierten System Gebirge/Dichtung das prinzipielle Zweiphasenflussverhalten bei der Verdrängung der Q-Lauge durch das Gas auftritt. Bei den Untersuchungen hat sich gezeigt, dass das hydraulische Verhalten bei dieser Versuchsanordnung vorwiegend von dem eingebauten Dichtmaterial und kaum vom umgebenden festen und sehr dichten Steinsalz bestimmt wurde. Ein unkontrolliertes Abfließen von Fluiden über das Salzgestein konnte weitgehend ausgeschlossen werden. Ein Vergleich der Gaspermeabilitäten zeigt, dass kein gravierender Unterschied zwischen dem als Schüttung eingebrachten Dichtmaterial und der mit vorkompaktierten Probekörpern und Ringraumverfüllung eingebauten Dichtung feststellbar war.

#### Literaturverzeichnis

- /AMY 80/ Amyx, J. W.; Bass, Jr., D. M.; Whiting, R. L. (1980): Petroleum Reservoir Engineering, Physical Properties, - McGraw-Hill Book Company, New York
- /BRO 64/ Brook, R.H.; Corey, A.T. (1964): Hydraulic Properties of Porous Media.-Hydrol. Pap., vol. 3, Fort Collins, Colorado State University
- /GEN 80/ Van Genuchten, M.T. (1980): A Closed-Form Equation for predicting the hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. - Soil Sci. Soc. Am. J., 44:892-898
- /HEL 96/ Helmig, R. (1996): Einführung in die Numerischen Methoden der Hydromechanik. - Eigenverlag des Instituts für Wasserbau der Universität Stuttgart, Heft 86
- /HEL 97/ Helmig, R. (1997): Multiphase Flow and Transport Processes in the Subsurface. Springer, Berlin
- /JOC 00/ Jockwer, N.; Miehe, R.; Müller-Lyda, I. (2000): Untersuchungen zum Zweiphasenfluss und diffusiven Transport in Tonbarrieren und Tongesteinen. Abschlussbericht. - GRS – 167, Braunschweig, September
- /ROD 99/ Rodwell, W.R., Harris, A.W., Horseman, S.T., Lalieux, P., Müller, W., Ortiz Amaya, L., Pruess, K. (1999): Gas Migration and Two-Phase Flow through Engineered and Geological Barriers for a Deep Repository for Radioactive Waste. A Joint EC/NEA Status Report
- /TIA 99/ Tiab, D.; Donaldson, E.C. (1999): Petrophysics. Theory and Practice of Measuring Reservoir Rock and Fluid Transport Properties. – Gulf Professional Publishing, Houston, TX, Copyright 1999

### Abbildungsverzeichnis

Abb. 3.1	Beispiel einer Sand-Ton-Probe 75/25	13
Abb. 3.2	Siebkennlinie des verwendeten Splitts (Gabbro)	14
Abb. 3.3	Großkalibriger Steinsalzkern mit durchgehender Zentralbohrung	15
Abb. 3.4	Großkalibriger Steinsalzkern, Zentralbohrung teilgefüllt mit einer Sand-Ton-Mischung 90/10, locker eingebracht und schichtweise verdichtet	16
Abb. 3.5	Einbau eines Sand-Ton-Presslings in die Zentralbohrung eines großkalibrigen Salzkerns	17
Abb. 4.1	Prinzipdarstellung der Hasslerzelle	20
Abb. 4.2	Zusammengebaute Messzellen. Rechs stehend: Flasche für Wasser- und Laugenbeaufschlagung bzw. Befeuchtung des Stickstoffs	20
Abb. 4.3	Versuchsaufbau zur Bestimmung der einphasigen Gas- und Flüssig- keitspermeabilitäten sowie der Zweiphasenflussparameter	21
Abb. 4.4	Gesamter Versuchsstand mit sechs Messzellen	22
Abb. 4.5	In MTS-Anlage eingebauter großkalibriger Steinsalzkern mit Gummijacket	24
Abb. 4.6	Mechanische Beanspruchungen auf den Prüfkörper mit Salzring und Sand-Ton-Gemisch (90/10) in der MTS-Triaxialprüfanlage	25
Abb. 5.1	Mikrostruktur eines lufttrockenen Ton-Sand-Gemisches mit geringem Tonanteil	34
Abb. 5.2	Mikrostruktur eines teilgesättigten Ton-Sand-Gemisches nach voller Aufsättigung	35

Abb. 5.3	Effektive Gaspermeabilität: Mischung 90/10, Wasser	. 38
Abb. 5.4	Kapillardruck: Mischung 90/10, Wasser	. 39
Abb. 5.5	Effektive Gaspermeabilität: Mischung 75/25, Wasser	. 40
Abb. 5.6	Kapillardruck: Mischung 75/25, Wasser	. 41
Abb. 5.7	Effektive Gaspermeabilität: alle Mischungen, IP21-Lösung	. 42
Abb. 5.8	Kapillardruck: alle Mischungen, IP21-Lösung	. 42
Abb. 5.9	Restwassersättigung in der Permeabilitätskurve: Mischung 90/10, Wasser	. 46
Abb. 5.10	Restsättigungen in der Kapillardruckkurve: Mischung 90/10, Wasser	. 46
Abb. 5.11	Restwassersättigung in der Permeabilitätskurve: Mischung 75/25, Wasser	. 48
Abb. 5.12	Effektive Gaspermeabilität als Funktion der Sättigung: Mischungen 90/10 (rote Symbole) und 75/25 (grüne Symbole), Wasser	. 49
Abb. 5.13	Kapillardruck als Funktion der Sättigung: Mischungen 90/10 (schwarze Symbole) und 75/25 (blaue Symbole), Wasser	. 50
Abb. 5.14	Relative Gaspermeabilität als Funktion der effektiven Sättigung: Mischungen 90/10 (rote Symbole) und 75/25 (grüne Symbole), Wasser	. 51
Abb. 5.15	Kapillardruck als Funktion der effektiven Sättigung: Mischungen 90/10 (schwarze Symbole) und 75/25 (blaue Symbole), Wasser	. 51
Abb. 5.16	Zustandsgleichungen und Messwerte für die Mischung 90/10 (relative Permeabilität: rote Symbole; Kapillardruck: schwarze Symbole)	. 53

Abb. 5.17	Zustandsgleichungen und Messwerte für die Mischung 75/25 (relative Permeabilität: rote Symbole; Kapillardruck:
	schwarze Symbole)
Abb. 5.18	Probe ST75/25.K6 nach Ausbau; Sättigungsmedium: Wasser 62
Abb. 5.19	Probe ST75/25.1 nach Ausbau; Sättigungsmedium: Q-Lauge (IP 21) 63
Abb. 5.20	Großkalibrige Probe (Kern 1) mit Sand-Ton-Schüttung nach Ausbau und den angezeichneten Segmenten. Die Durchflussrichtung war von
	Segment 6 nach Segment 0
Abb. 5.21	In Scheiben zersägte Probe
Abb. 5.22	Aufgeschnittene Scheibe mit Sand-Ton-Füllung
Abb. 5.23	Scheibe mit Salzring und Sand-Ton-Füllung
Abb. 5.24	Salzring nach Ausdrücken der Sand-Ton-Füllung 69
Abb. 5.25	Verformungen des Salzring-Versatz-Systems
Abb. 5.26	Kompaktion des Sand-Ton-Gemisches im Salzring71

### Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Vergleich der Proben unterschiedlicher Wassermengen bei der Herstellung12	2
Tab. 5.1	Zusammenfassung der Ergebnisse der Einphasenpermeabilitäten dreier Sand-Ton-Mischungen; Kompaktionsdruck: 100 MPa; Korndichte der Mischung 90/10: $\rho_{K}$ =2,62 g/cm <sup>3</sup> ; Korndichte	
	der Mischung 75/25: $\rho_{K}$ =2,59 g/cm <sup>3</sup> ; Korndichte der	
	Mischung 50/50: $\rho_{K}$ =2,54 g/cm <sup>3</sup>	1
Tab. 5.2	Gaspermeabilität für Ton-Sand-Gemische im trockenen Zustand	
	aus dem Zweiphasenflussprojekt und dem Projekt KENTON	6
Tab. 5.3	Gaseindringdruck und korrespondierende Gaspermeabilität	
	aus dem Zweiphasenflussprojekt und aus dem Projekt KENTON	7
Tab. 5.4	Restsättigungen und zugehörige Daten der Proben mit einem Mischungsverhältnis von 90/104	5
Tab. 5.5	Restsättigungen und zugehörige Daten der Proben mit einem Mischungsverhältnis von 75/254	7
Tab. 5.6	Zweiphasenflussparameter nach van Genuchten für die	
	Mischungsverhältnisse 90/10 und 75/255	4
Tab. 5.7	Analysenergebnisse der beiden eingesetzten Lösungen	
	und Vergleich mit der berechneten Zusammensetzung (EQ36) 50	6
Tab. 5.8	Analysenergebnisse der bei den Versuchen gewonnenen Permeate 50	6
Tab. 5.9	Zusammenfassung der Ergebnisse der Einphasenpermea-	
	bilitäten der Splitt-Ton-Mischung 75/25; Korndichte der Mischung	
	75/25: $\rho_{\kappa}$ =2,75 g/cm <sup>3</sup>	1

Tab. 5.10	Zusammenfassung der Ergebnisse der einphasigen Permeabilitäts-		
	bestimmungen an großkalibrigen Salzkernen	. 64	
Tab 511	Fraebnis der Zweiphasenflussuntersuchungen bezogen auf die		

140. 5.11	Ergebnis der Zweiphasennussumersuchungen bezögen auf die		
	Gesamtprobe und das Sand-Ton-Gemisch	66	

### Anhang: Messergebnisse der Sand-Ton- und Splitt-Ton-Proben

Probe 90/10.7.22	
Probenlänge	I = 9,12 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Gaspermeabilitätsmessung

Probenmasse		m = 373	3,35 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
199,9	0,01	2,6·10 <sup>-13</sup>	
422,5	0,02	2,6·10 <sup>-13</sup>	
1281	0,05	2,8·10 <sup>-13</sup>	
2934	0,1	2,6·10 <sup>-13</sup>	
4813	0,15	2,5·10 <sup>-13</sup>	

Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm³/min	MPa	m²
0,114	0,1	8,8·10 <sup>-16</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 419,45 g

	<u> </u>	0	, 0	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,043	0,03	10,8	0,766	1,7·10 <sup>-17</sup>
0,620	0,04	12,3	0,733	1,7·10 <sup>-16</sup>
11,14	0,06	14,5	0,989	1,9·10 <sup>-15</sup>
36,97	0,08	19,2	0,584	4,4·10 <sup>-15</sup>
130,6	0,1	19,7	0,573	1,2·10 <sup>-14</sup>
3412	0,15	36,2	0,215	1,8·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.23	
Probenlänge	I = 8,99 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 368	3,26 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
195,6	0,01	2,5·10 <sup>-13</sup>	
415,0	0,02	2,5·10 <sup>-13</sup>	
124,9	0,05	2,7·10 <sup>-13</sup>	
2869	0,1	2,5·10 <sup>-13</sup>	
5705	0,15	2,4·10 <sup>-13</sup>	

#### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,150	0,1	1,1·10 <sup>-15</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 416,26 g

		3		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,147	0,03	13,3	0,723	5,6·10 <sup>-17</sup>
1,029	0,04	14,2	0,704	2,8·10 <sup>-16</sup>
13,5	0,06	16,5	0,656	2,3·10 <sup>-15</sup>
40,23	0,08	21,6	0,550	4,8·10 <sup>-15</sup>
159,5	0,1	22,8	0,525	1,4·10 <sup>-14</sup>
3380	0,15	38,2	0,204	1,7·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.24	
Probenlänge	I = 8,99 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 368	3,42 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
205,2	0,01	2,6·10 <sup>-13</sup>	
436,0	0,02	2,6·10 <sup>-13</sup>	
1330	0,05	2,8·10 <sup>-13</sup>	
3063	0,1	2,6·10 <sup>-13</sup>	
5012	0,15	2,5·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,171	0,1	1,3·10 <sup>-15</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 416,72 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,077	0,03	12,9	0,733	2,9·10 <sup>-17</sup>
0,068	0,04	14,3	0,704	1,9·10 <sup>-16</sup>
9,32	0,06	16,8	0,652	1,6·10 <sup>-15</sup>
28,41	0,08	20,5	0,576	3,4·10 <sup>-15</sup>
45,81	0,1	20,9	0,567	4,1·10 <sup>-15</sup>
3332	0,15	36,8	0,238	1,7·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.25	
Probenlänge	I = 9,04 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 367	<mark>7</mark> ,21 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
206,9	0,01	2,6·10 <sup>-13</sup>	
438,1	0,02	2,7·10 <sup>-13</sup>	
1330	0,05	2,8·10 <sup>-13</sup>	
3053	0,1	2,7·10 <sup>-13</sup>	
4974	0,15	2,5·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,151	0,1	1,2·10 <sup>-15</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 414,01 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,289	0,0303	12,6	0,731	1,1·10 <sup>-16</sup>
2,067	0,04	13,5	0,712	5,6·10 <sup>-16</sup>
23,79	0,06	15,8	0,662	4,1·10 <sup>-15</sup>
1185	0,08	33,7	0,280	1,1·10 <sup>-13</sup>
1959	0,1	36,1	0,229	1,8·10 <sup>-13</sup>
3736	0,15	37,7	0,194	1,9·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.26	
Probenlänge	I = 9,03 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 367	<u>7</u> ,70 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
223,5	0,01	2,8·10 <sup>-13</sup>	
470,4	0,02	2,8·10 <sup>-13</sup>	
1437	0,05	3,1·10 <sup>-13</sup>	
3300	0,1	2,9·10 <sup>-13</sup>	
5324	0,15	2,7·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,271	0,1	2,1·10 <sup>-15</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 417,00 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,874	0,03	14,2	0,712	3,3·10 <sup>-16</sup>
3,715	0,04	15,2	0,692	1,0·10 <sup>-15</sup>
33,21	0,06	17,5	0,645	5,7·10 <sup>-15</sup>
1583	0,08	38,2	0,225	1,9·10 <sup>-13</sup>
2323	0,1	39,5	0,199	2,1·10 <sup>-13</sup>
3943	0,15	40,4	0,181	2,0·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.27	
Probenlänge	I = 9,00 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 367	<mark>7</mark> ,72 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
230,0	0,01	2,7·10 <sup>-13</sup>	
483,3	0,02	2,7·10 <sup>-13</sup>	
1475	0,05	2,9·10 <sup>-13</sup>	
3354	0,1	2,8·10 <sup>-13</sup>	
5405	0,15	2,5·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,428	0,1	3,3·10 <sup>-15</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 419,32 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,397	0,0303	17,2	0,667	1,5·10 <sup>-16</sup>
1,551	0,04	18,6	0,640	4,3·10 <sup>-16</sup>
18,43	0,06	20,8	0,597	3,1·10 <sup>-15</sup>
616,8	0,08	32,5	0,370	7,3·10 <sup>-14</sup>
1718	0,1	38,2	0,260	1,5·10 <sup>-13</sup>
3838	0,15	41,2	0,202	1,8·10 <sup>-13</sup>

Probe 90/10.7.28	
Probenlänge	I = 8,97 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 367	′,31 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
238,1	0,01	3,0·10 <sup>-13</sup>	
762,0	0,03	2,9·10 <sup>-13</sup>	
1359	0,05	2,9·10 <sup>-13</sup>	
3136	0,1	2,8·10 <sup>-13</sup>	
5115	0,15	2,6·10 <sup>-13</sup>	

#### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
1,455	0,3	2,1·10 <sup>-14</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 427,11 g

	0	0		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,762	0,02	20,5	0,657	4,6·10 <sup>-16</sup>
3,445	0,04	27,0	0,549	9,1·10 <sup>-16</sup>
n. messbar	0,06	29,3	0,510	n. messbar
n. messbar	0,1	29,6	0,505	n. messbar
n. messbar	0,15	29,5	0,507	n. messbar
n. messbar	0,21	27,7	0,537	n. messbar
n. messbar	0,3	27,5	0,540	n. messbar
n. messbar	0,4	-	-	n. messbar
n. messbar	0,5	-	-	n. messbar
n. messbar	0,6	-	-	n. messbar
1,585	0,7	27,8	0,535	6,8·10 <sup>-18</sup>
< 5000	1,03	26,0	0,565	n. messbar

Probe 90/10.7.29	
Probenlänge	I = 9,10 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse	-	m = 371	,98 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
248,7	0,01	3,2·10 <sup>-13</sup>	
777,9	0,03	3,0·10 <sup>-13</sup>	
1391	0,05	3,0·10 <sup>-13</sup>	
3199	0,1	2,9·10 <sup>-13</sup>	
5189	0,15	2,7·10 <sup>-13</sup>	

#### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
1,579	0,3	2,3·10 <sup>-14</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 432,38 g

		A	0	L
q	P <sub>1ü</sub>	Δm	5	K <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	1,3·10 <sup>-17</sup>
0,022	0,02	20,5	0,661	7,9·10 <sup>-16</sup>
2,961	0,04	27,7	0,541	n. messbar
-	0,06	31,8	0,474	n. messbar
-	0,1	32,0	0,470	n. messbar
-	0,15	31,9	0,472	n. messbar
-	0,21	31,9	0,472	n. messbar
-	0,3	31,8	0,474	n. messbar
-	0,4	-	-	n. messbar
-	0,5	-	-	n. messbar
-	0,6	-	-	n. messbar
-	0,7	32,3	0,465	n. messbar
-	1,03	31,6	0,477	n. messbar

Probe 90/10.7.30	
Probenlänge	I = 9,04 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 327	<mark>7</mark> ,77 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
222,3	0,01	2,8·10 <sup>-13</sup>	
725,0	0,03	2,8·10 <sup>-13</sup>	
1296	0,05	2,8·10 <sup>-13</sup>	
2967	0,1	2,7·10 <sup>-13</sup>	
4851	0,15	2,5·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
1,259	0,3	1,8·10 <sup>-14</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 430,07 g

	0	*	<u> </u>	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,131	0,02	17,4	0,696	7,8·10 <sup>-17</sup>
4,501	0,04	24	0,581	1,2·10 <sup>-15</sup>
-	0,06	27,1	0,527	n. messbar
8,62	0,1	29,4	0,487	7,5·10 <sup>-16</sup>
-	0,15	29,7	0,482	n. messbar
5,937	0,21	29,4	0,487	1,9·10 <sup>-16</sup>
-	0,3	29,2	0,49	n. messbar
-	0,4	-	-	n. messbar
-	0,5	-	-	n. messbar
-	0,6	-	-	n. messbar
138,3	0,7	28,3	0,506	6,0·10 <sup>-16</sup>
-	1,03	28,9	0,496	n. messbar

Probe 90/10.7.31	
Probenlänge	I = 9,15 cm
Probendurchmesser	d = 5,01 cm

Probenmasse		m = 376	6,59 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
238,1	0,01	3,1·10 <sup>-13</sup>	
788,5	0,03	3,1·10 <sup>-13</sup>	
1402	0,05	3,0·10 <sup>-13</sup>	
3204	0,1	2,9·10 <sup>-13</sup>	
5216	0,15	2,7·10 <sup>-13</sup>	

#### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
1,329	0,3	1,9·10 <sup>-14</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 437,29 g

	0	0		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,131	0,02	19,5	0,879	8,0·10 <sup>-17</sup>
8,991	0,04	25,8	0,575	2,4·10 <sup>-15</sup>
-	0,06	27,4	0,549	n. messbar
0,108	0,1	27,6	0,545	9,6·10 <sup>-18</sup>
-	0,15	24,3	0,600	n. messbar
-	0,21	24,0	0,605	n. messbar
-	0,3	23,0	0,606	n. messbar
-	0,4	-	-	n. messbar
-	0,5	-	-	n. messbar
-	0,6	-	-	n. messbar
-	0,7	24,4	0,598	n. messbar
-	1,03	28,5	0,531	n. messbar

Probe 75/25.8.20	
Probenlänge	I = 9,29 cm
Probendurchmesser	d = 5,0 cm

Probenmasse		m = 375	5,17 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
125,7	0,01	1,6·10 <sup>-13</sup>	
421,8	0,03	1,7·10 <sup>-13</sup>	
796,8	0,05	1,8·10 <sup>-13</sup>	
1875	0,1	1,7·10 <sup>-13</sup>	
3180	0,15	1,7·10 <sup>-13</sup>	

#### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0025	1,6	1,2·10 <sup>-18</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 422,07 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0187	0,15	2,5	0,947	8,8·10 <sup>-19</sup>
0,0533	0,20	3,4	0,928	1,8·10 <sup>-18</sup>
0,107	0,25	3,9	0,917	2,6·10 <sup>-18</sup>
0,186	0,30	5,5	0,883	3,3·10 <sup>-18</sup>
0,486	0,40	6,2	0,868	5,5·10 <sup>-18</sup>
1,673	0,50	6,9	0,853	1,3·10 <sup>-17</sup>
4494	0,70	27,2	0,42	2,0·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/25.8.21.	
Probenlänge	I = 9,40 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 376	<u>3,21 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
148,8	0,01	2,0·10 <sup>-13</sup>	
494,9	0,03	2,0·10 <sup>-13</sup>	
952,9	0,05	2,1·10 <sup>-13</sup>	
2231	0,1	2,1·10 <sup>-13</sup>	
3767	0,15	2,0·10 <sup>-13</sup>	

#### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0024	1,6	1,2·10 <sup>-18</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 424,41 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0258	0,15	3,7	0,923	1,4·10 <sup>-18</sup>
0,0121	0,20	4,4	0,909	4,2·10 <sup>-19</sup>
0,0904	0,25	4,8	0,900	2,3·10 <sup>-18</sup>
0,172	0,30	5,2	0,892	3,1·10 <sup>-18</sup>
0,3272	0,40	5,9	0,878	3,7·10 <sup>-18</sup>
1,727	0,50	7,1	0,853	1,4·10 <sup>-17</sup>
3209	0,70	23,8	0,506	1,4·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/27.8.22	
Probenlänge	I = 9,25 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 376	6,36 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
114,4	0,01	1,5·10 <sup>-13</sup>	
384.2	0,03	1,5·10 <sup>-13</sup>	
721,4	0,05	1,6·10 <sup>-13</sup>	
1703	0,1	1,6·10 <sup>-13</sup>	
2894	0,15	1,5·10 <sup>-13</sup>	

#### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0026	1,6	1,3·10 <sup>-18</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 426,96 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0213	0,15	5,7	0,887	1,1·10 <sup>-18</sup>
0,0631	0,20	6,5	0,872	2,1·10 <sup>-18</sup>
0,207	0,25	7,1	0,860	5,1·10 <sup>-18</sup>
0,380	0,30	7,5	0,852	6,8·10 <sup>-18</sup>
0,841	0,40	8,3	0,836	9,4·10 <sup>-18</sup>
3,618	0,50	9,6	0,810	2,8·10 <sup>-17</sup>
3842	0,70	29,3	0,421	1,7·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/25.8.23	
Probenlänge	I = 9,32 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 376	6,42 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
125,2	0,01	1,6·10 <sup>-13</sup>	
419,0	0,03	1,7·10 <sup>-13</sup>	
792,4	0,05	1,8·10 <sup>-13</sup>	
1865	0,1	1,7·10 <sup>-13</sup>	
3157	0,15	1,7·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0028	1,6	1,4·10 <sup>-18</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 425,62 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0284	0,15	4,4	0,911	1,5·10 <sup>-18</sup>
0,0635	0,20	5,4	0,890	2,2·10 <sup>-18</sup>
0,138	0,25	5,8	0,882	3,4·10 <sup>-18</sup>
0,241	0,30	6,2	0,874	4,3·10 <sup>-18</sup>
0,545	0,40	7,0	0,858	6,1·10 <sup>-18</sup>
2,72	0,50	7,8	0,842	2,1·10 <sup>-17</sup>
6601	0,70	30,2	0,386	2,9·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/27.8.24	
Probenlänge	I = 9,18 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 375	5,95g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
97,25	0,01	1,3·10 <sup>-13</sup>	
326,7	0,03	1,3·10 <sup>-13</sup>	
608,3	0,05	1,3·10 <sup>-13</sup>	
1439	0,1	1,3·10 <sup>-13</sup>	
2430	0,15	1,3·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0025	1,6	1,2·10 <sup>-18</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 425,65 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0839	0,15	5,8	0,883	4,4·10 <sup>-18</sup>
0,164	0,20	6,6	0,867	5,5·10 <sup>-18</sup>
0,355	0,25	7,0	0,859	8,6·10 <sup>-18</sup>
0,571	0,30	7,6	0,847	1,0·10 <sup>-17</sup>
1,115	0,40	8,1	0,837	1,2·10 <sup>-17</sup>
4,15	0,50	9,5	0,809	3,2·10 <sup>-17</sup>
3913	0,71	30,7	0,382	1,7·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/25.8.25	
Probenlänge	I = 9,36 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 376	6,53 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
157,4	0,01	2,1·10 <sup>-13</sup>	
521,7	0,03	2,1·10 <sup>-13</sup>	
1012	0,05	2,2·10 <sup>-13</sup>	
2382	0,1	2,2·10 <sup>-13</sup>	
3999	0,15	2,1·10 <sup>-13</sup>	

### Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0023	1,6	1,2·10 <sup>-18</sup>

# Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 428,03 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,0285	0,15	4,7	0,909	1,5·10 <sup>-18</sup>
0,0692	0,20	5,6	0,891	2,4·10 <sup>-18</sup>
0,153	0,25	5,9	0,885	3,8·10 <sup>-18</sup>
0.285	0,30	6,5	0,874	5,2·10 <sup>-18</sup>
0,707	0,40	7,3	0,858	8,0·10 <sup>-18</sup>
3,314	0,50	8,4	0,837	2,6·10 <sup>-17</sup>
3838	0,70	25,7	0,501	1,7·10 <sup>-14</sup>

Probe 75/25.8.26	
Probenlänge	I = 9,20 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 375	5,52 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
105,8	0,01	1,4·10 <sup>-13</sup>	
344,0	0,03	1,4·10 <sup>-13</sup>	
613,6	0,05	1,3·10 <sup>-13</sup>	
1383	0,1	1,3·10 <sup>-13</sup>	
2544	0,15	1,3·10 <sup>-13</sup>	

#### Laugepermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0543	2,49	9,6·10 <sup>-17</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 430,82 g

p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
MPa	g	-	m <sup>2</sup>
0,02	3,1	0,944	n. messbar
0,04	5,3	0,904	9,9·10 <sup>-17</sup>
0,06	6,3	0,886	2,4·10 <sup>-16</sup>
0,10	7,4	0,866	1,7·10 <sup>-16</sup>
0,15	9,5	0,828	4,9·10 <sup>-17</sup>
0,21	10,4	0,812	5,3·10 <sup>-17</sup>
0,30	13,1	0,763	n. messbar
0,40	-	-	n. messbar
0,50	-	-	n. messbar
0,60	-	-	n. messbar
0,70	14,1	0,745	n. messbar
1,03	12,9	0,767	n. messbar
	p10   MPa   0,02   0,04   0,06   0,10   0,15   0,21   0,30   0,40   0,50   0,60   0,70   1,03	$\begin{array}{c c c c c c c } & \Delta m \\ \hline MPa & g \\ \hline 0,02 & 3,1 \\ \hline 0,04 & 5,3 \\ \hline 0,06 & 6,3 \\ \hline 0,06 & 6,3 \\ \hline 0,06 & 6,3 \\ \hline 0,06 & 7,4 \\ \hline 0,15 & 9,5 \\ \hline 0,21 & 10,4 \\ \hline 0,15 & 9,5 \\ \hline 0,21 & 10,4 \\ \hline 0,30 & 13,1 \\ \hline 0,40 & - \\ \hline 0,50 & - \\ \hline 0,60 & - \\ \hline 0,70 & 14,1 \\ \hline 1,03 & 12,9 \\ \end{array}$	$\begin{array}{c c c c c c c } & \Delta m & S \\ \hline MPa & g & - \\ \hline 0,02 & 3,1 & 0,944 \\ \hline 0,04 & 5,3 & 0,904 \\ \hline 0,06 & 6,3 & 0,886 \\ \hline 0,10 & 7,4 & 0,866 \\ \hline 0,10 & 7,4 & 0,866 \\ \hline 0,15 & 9,5 & 0,828 \\ \hline 0,21 & 10,4 & 0,812 \\ \hline 0,30 & 13,1 & 0,763 \\ \hline 0,40 & - & - \\ \hline 0,50 & - & - \\ \hline 0,60 & - & - \\ \hline 0,70 & 14,1 & 0,745 \\ \hline 1,03 & 12,9 & 0,767 \\ \hline \end{array}$

Probe 75/25.8.28	
Probenlänge	I = 9,37 cm
Probendurchmesser	d = 4,99 cm

Probenmasse		m = 376	6,97 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
169,3	0,01	2,2·10 <sup>-13</sup>	
550,4	0,03	2,2·10 <sup>-13</sup>	
978,5	0,05	2,2·10 <sup>-13</sup>	
2228	0,1	2,2·10 <sup>-13</sup>	
4033	0,15	2,2·10 <sup>-13</sup>	

#### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0439	2,49	7,9·10 <sup>-17</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 432,97 g

	V	<u>v</u>		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
-	0,02	3,4	0,939	n. messbar
0,162	0,04	7,5	0,866	4,5·10 <sup>-17</sup>
1,959	0,06	8,1	0,855	3,4·10 <sup>-16</sup>
0,184	0,10	8,7	0,845	1,7·10 <sup>-17</sup>
-	0,15	8,5	0,848	n. messbar
-	0,21	8,6	0,846	n. messbar
-	0,30	8,6	0,846	n. messbar
-	0,40	-	-	n. messbar
-	0,50	-	-	n. messbar
-	0,60	-	-	n. messbar
-	0,70	9,0	8,838	n. messbar
-	1,03	6,8	0,843	n. messbar

Probe 75/25.8.35	
Probenlänge	I = 9,50 cm
Probendurchmesser	d = 4,98 cm

Probenmasse		m = 376	<u>8,60 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
158,0	0,01	2,1·10 <sup>-13</sup>	
531,3	0,03	2,2·10 <sup>-13</sup>	
965,0	0,05	2,2·10 <sup>-13</sup>	
2201	0,1	2,1·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0577	1,80	1,5·10 <sup>-16</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 437,90 g

q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,284	0,05	7,6	0,876	6,3·10 <sup>-17</sup>
1,55	0,08	8,1	0,868	2,0·10 <sup>-16</sup>
1,05	0,10	9,4	0,847	9,7·10 <sup>-17</sup>
3,38	0,15	10,6	0,827	1,8·10 <sup>-16</sup>
5,34	0,20	11,1	0,819	1,9·10 <sup>-16</sup>
5,06	0,30	12,9	0,790	9,3·10 <sup>-16</sup>
11,51	0,40	13,7	0,777	1,3·10 <sup>-16</sup>
18,72	0,5	13,87	0,775	1,5·10 <sup>-16</sup>
70,28	0,70	15,4	0,749	3,2·10 <sup>-16</sup>
104,8	1,00	15,8	0,742	2,5·10 <sup>-16</sup>
272,3	2,00	16,2	0,736	1,8·10 <sup>-16</sup>

Probe 75/258.36	
Probenlänge	I = 9,42 cm
Probendurchmesser	d = 4,98 cm

Probenmasse		m = 376	<u>3,51 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
168,9	0,01	2,3·10 <sup>-13</sup>	
569,2	0,03	2,3·10 <sup>-13</sup>	
1030	0,05	2,3·10 <sup>-13</sup>	
2337	0,1	2,2·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
0,0559	1,80	1,4·10 <sup>-16</sup>	

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 437,01 g

1 100011110000	naen eaagan	9 11 181	,er g	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,138	0,05	7,9	0,869	3,1·10 <sup>-17</sup>
0,816	0,08	8,4	0,861	1,0·10 <sup>-16</sup>
0,441	0,10	10,7	0,823	4,0·10 <sup>-17</sup>
1,5	0,15	11,5	0,810	7,9·10 <sup>-17</sup>
3,89	0,20	11,7	0,807	1,3·10 <sup>-16</sup>
4,35	0,30	13,6	0,775	8,0·10 <sup>-17</sup>
13,66	0,40	15,0	0,752	1,6·10 <sup>-16</sup>
22,05	0,5	15,1	0,750	1,8·10 <sup>-16</sup>
1,29	0,70	15,7	0,741	5,8·10 <sup>-18</sup>
0,547	1,00	16,1	0,734	1,3·10 <sup>-18</sup>
1,72	2,00	16,0	0,736	1,1·10 <sup>-18</sup>
Probe 50/50.9.27				
-------------------	-------------			
Probenlänge	I = 9,61 cm			
Probendurchmesser	d = 4,70 cm			

Probenmasse		m = 323	3,83 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
457,7	0,01	7,0·10 <sup>-13</sup>	
1328	0,03	6,2·10 <sup>-13</sup>	
2168	0,05	5,6·10 <sup>-13</sup>	
4125	0,1	4,4·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0044	5,05	4,5·10 <sup>-18</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 393,83 g

Tioberintagoe	naon oalligan	9 III 000	,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,464	0,05	3,2	0,954	1,2·10 <sup>-16</sup>
5,55	0,08	3,5	0,950	8,0·10 <sup>-16</sup>
0,054	0,10	3,7	0,947	5,6·10 <sup>-18</sup>
0,118	0,15	4,0	0,943	7,2·10 <sup>-18</sup>
0,430	0,20	4,3	0,938	1,7·10 <sup>-17</sup>
1,00	0,30	4,6	0,934	2,1·10 <sup>-17</sup>
12,63	0,40	5,2	0,925	1,7·10 <sup>-17</sup>
13,02	0,5	6,1	0,912	1,2·10 <sup>-16</sup>
11,09	0,70	6,6	0,905	5,7·10 <sup>-16</sup>
35,23	1,00	7,9	0,887	9,5·10 <sup>-17</sup>
47,67	2,00	9,1	0,886	3,5·10 <sup>-17</sup>

Probe 50/50.9.28	
Probenlänge	I = 9,71 cm
Probendurchmesser	d = 4,70 cm

Probenmasse		m = 322	<u>2,99 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
272,4	0,01	4,2·10 <sup>-13</sup>	
856,5	0,03	4,0·10 <sup>-13</sup>	
1453	0,05	3,8·10 <sup>-13</sup>	
2956	0,1	3,2·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0044	5,05	4,6·10 <sup>-18</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 393,19 g

1 100011110000	naen eaagan	g 11 000	, i e g	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,495	0,05	3,7	0,947	1,3·10 <sup>-16</sup>
6,26	0,08	4,3	0,934	9,1·10 <sup>-16</sup>
1,14	0,10	4,7	0,933	1,2·10 <sup>-18</sup>
0,312	0,15	4,9	0,930	1,9·10 <sup>-17</sup>
5,37	0,20	5,0	0,929	2,1·10 <sup>-16</sup>
3,33	0,30	5,9	0,916	7,0·10 <sup>-17</sup>
7,95	0,40	6,4	0,909	1,1·10 <sup>-16</sup>
18,93	0,5	7,1	0,899	1,8·10 <sup>-16</sup>
25,18	0,70	8,3	0,882	1,3·10 <sup>-16</sup>
42,12	1,00	9,4	0,866	1,2·10 <sup>-16</sup>
67,53	2,00	10,3	0,853	5,0·10 <sup>-17</sup>

Probe 50/50.9.29	
Probenlänge	I = 9,65 cm
Probendurchmesser	d = 4,70 cm

Probenmasse		m = 323	<u>3,70 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
294,2	0,01	4,5·10 <sup>-13</sup>	
872,8	0,03	4,1·10 <sup>-13</sup>	
1475	0,05	3,8·10 <sup>-13</sup>	
2993	0,1	3,2·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0043	5,05	4,5·10 <sup>-18</sup>

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 397,5 g

Trebeninacee	naen eaagan	.g	,• g	
q	₽ <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
kein Gasfluss	0,05	4,04	0,93	n. messbar
kein Gasfluss	0,08	4,04	0,93	n. messbar
kein Gasfluss	0,10	4,04	0,93	n. messbar
kein Gasfluss	0,15	4,12	0,928	n. messbar
kein Gasfluss	0,20	4,35	0,924	n. messbar
kein Gasfluss	0,30	4,28	0,926	n. messbar
kein Gasfluss	0,40	4,43	0,923	n. messbar
kein Gasfluss	0,5	4,43	0,923	n. messbar
kein Gasfluss	0,70	5,52	0,904	n. messbar
kein Gasfluss	0,00	5,83	0,898	n. messbar
kein Gasfluss	2,00	6,53	0,886	n. messbar

Probe 50/50.9.30	
Probenlänge	I = 9,50 cm
Probendurchmesser	d = 4,70 cm

Probenmasse		m = 323	<u>3,06 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
158,0	0,01	2,4·10 <sup>-13</sup>	
509,6	0,03	2,4·10 <sup>-13</sup>	
889,1	0,05	2,3·10 <sup>-13</sup>	
1892	0,1	2,0·10 <sup>-13</sup>	

### Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
n. messbar	5,05	n. messbar

#### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 395,76 g

		3	.,	
q	₽ <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
kein Gasfluss	0,05	4,12	0,927	n. messbar
kein Gasfluss	0,08	4,12	0,927	n. messbar
kein Gasfluss	0,10	4,04	0,929	n. messbar
kein Gasfluss	0,15	4,2	0,926	n. messbar
kein Gasfluss	0,20	4,43	0,922	n. messbar
kein Gasfluss	0,30	4,35	0,923	n. messbar
kein Gasfluss	0,40	4,35	0,923	n. messbar
kein Gasfluss	0,5	7,75	0,898	n. messbar
kein Gasfluss	0,70	5,99	0,894	n. messbar
kein Gasfluss	0,00	6,53	0,885	n. messbar
kein Gasfluss	2,00	7,15	0,874	n. messbar

\_\_\_\_\_

Probe ST 75/25.K1	
Probenlänge	I = 8,78 cm
Probendurchmesser	d = 5,0 cm

Probenmasse		m = 329	9,62 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
145,1	0,01	1,8·10 <sup>-13</sup>	
762,2	0,03	2,9·10 <sup>-13</sup>	
1469	0,05	3,0·10 <sup>-13</sup>	
2906	0,1	2,4·10 <sup>-13</sup>	

# Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0025	0,5	8,3·10 <sup>-16</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 399,32 g

	-			
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	$k_{effg}$
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
0,032	0,1	14,7	0,789	2,7·10 <sup>-18</sup>
0,032	0,2	14,7	0,789	1,0·10 <sup>-18</sup>
0,095	0,3	15,3	0,781	1,7·10 <sup>-18</sup>
1,66	0,4	15,5	0,778	1,8·10 <sup>-17</sup>
0,724	0,7	15,5	0,778	3,0·10 <sup>-18</sup>

Probe ST 75/25.K2	
Probenlänge	I = 9,42 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 342	<u>2,12 g</u>
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
141,2	0,01	1,9·10 <sup>-13</sup>	
450,9	0,03	1,8·10 <sup>-13</sup>	
798,4	0,05	1,8·10 <sup>-13</sup>	
1858	0,1	1,8·10 <sup>-13</sup>	

# Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0558	0,5	5,0·10 <sup>-16</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 411,92 g

	<u>v</u>	<u>v</u>		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m <sup>2</sup>
0,215	0,1	18,3	0,738	1,95·10 <sup>-17</sup>
1,15	0,2	21,4	0,693	4,0·10 <sup>-17</sup>
2,23	0,3	24,7	0,646	4,2·10 <sup>-17</sup>
5,34	0,4	26,0	0,628	6,3·10 <sup>-17</sup>
0,165	0,7	27,2	0,603	7,3·10 <sup>-19</sup>

Probe ST 75/27.K3	
Probenlänge	I = 9,37 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 339	9,58 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
209,7	0,01	2,8·10 <sup>-13</sup>	
687,1	0,03	2,8·10 <sup>-13</sup>	
1086	0,05	2,4·10 <sup>-13</sup>	
2544	0,1	2,4·10 <sup>-13</sup>	

# Laugenpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0778	0,5	7·10 <sup>-16</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 412,58 g

	<b>T</b>			
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
1,83	0,1	20,0	0,726	1,65·10 <sup>-16</sup>
1,82	0,2	23,3	0,681	6,39·10 <sup>-17</sup>
2,86	0,3	26,9	0,632	5,36·10 <sup>-17</sup>
kein Gasfluss	0,4	28,7	0,607	n. messbar
0,176	0,7	28,7	0,607	7,70·10 <sup>-19</sup>

Probe ST 75/25.K4	
Probenlänge	I = 9,11 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 339	9,81g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
188,2	0,01	1,6·10 <sup>-13</sup>	
660,2	0,03	1,7·10 <sup>-13</sup>	
1155	0,05	1,8·10 <sup>-13</sup>	
2576	0,1	1,7·10 <sup>-13</sup>	

# Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0174	0,5	2,7·10 <sup>-17</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 395,71 g

	<u>v</u>	0		
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
kein Gasfluss	0,1	9,8	0,825	n. messbar
kein Gasfluss	0,2	10,9	0.805	n. messbar
3,34	0,3	14,4	0,742	6,08·10 <sup>-17</sup>
k. st. Fluss*	0,4	27	0,517	-

\*k. st. Fluss: kein stationärer Fluss, Gasfluss steigt stark an

Probe ST 75/27.K5	
Probenlänge	I = 9,28 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 339	9,09g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
645,1	0,01	8,4·10 <sup>-13</sup>	
1771	0,03	7,1·10 <sup>-13</sup>	
2768	0,05	6,0·10 <sup>-13</sup>	
5392	0,1	5,0·10 <sup>-13</sup>	

# Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0247	0,5	3,9·10 <sup>-17</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 400,39 g

· · · ·				
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
6,226	0,1	14,9	0,757	5,56·10 <sup>-16</sup>
k. st. Fluss*	0,2	17,9	0,708	-

\*k. st. Fluss: kein stationärer Fluss, Gasfluss steigt stark an

Probe ST 75/25.K6	
Probenlänge	I = 9,09 cm
Probendurchmesser	d = 5,00 cm

Probenmasse		m = 340	),15 g
q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>g</sub>	
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²	
118,3	0,01	2,1·10 <sup>-13</sup>	
370,4	0,03	2,1·10 <sup>-13</sup>	
654,7	0,05	2,2·10 <sup>-13</sup>	
1506	0,1	2,2·10 <sup>-13</sup>	

# Wasserpermeabilitätsbestimmung

q	p <sub>1ü</sub>	k <sub>w</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	m²
0,0127	0,5	2,0·10 <sup>-17</sup>

### Bestimmung der effektiven Gaspermeabilitäten Probenmasse nach Sättigung m = 394,65 g

	<u> </u>	0	/ 0	
q	p <sub>1ü</sub>	Δm	S	k <sub>effg</sub>
cm <sup>3</sup> /min	MPa	g	-	m²
kein Gasfluss	0,1	10,3	0,811	n. messbar
kein Gasfluss	0,2	11,1	0,796	n. messbar
kein Gasfluss	0,3	14,0	0,743	n. messbar
kein Gasfluss	0,4	15,5	0,716	n. messbar
46.64	0,7	18,0	0,67	1,98·10 <sup>-16</sup>
k. st. Fluss*	1	21,8	0,6	-

\*k. st. Fluss: kein stationärer Fluss, Gasfluss steigt stark an

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Schwertnergasse 1 50667 Köln Telefon +49 221 2068-0 Telefax +49 221 2068-888

Forschungsinstitute **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig** Telefon +49 531 8012-0 Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de