

# Tracerversuche in Festgesteinen

K. Witthüser

Geologisches Institut, Universität Bonn

## 1 Einführung

Tracermethoden haben sich zur Beantwortung hydrogeologischer Fragestellungen seit dem letzten Jahrhundert bewährt und sind aus der heutigen Praxis nicht mehr wegzudenken. Neben der Bestimmung von Fließrichtungen und Fließgeschwindigkeiten des markierten Wassers werden sie auch zunehmend im Altlastenbereich zur Ermittlung von Transportparametern verwendet. Vor dem Hintergrund der Endlagerung radioaktiver Stoffe wurden in verschiedenen nationalen und internationalen Projekten verstärkt tracerhydrologische Methoden zum Verständnis der Transportprozesse in geklüfteten Festgesteinen eingesetzt. Hierzu wurden Felslabore (z.B. DOE & PEDLER 1998) eingerichtet, die durch in-situ Untersuchungen zum Stofftransport einen wesentlichen Beitrag zum Prozessverständnis liefern. Ein Forschungsschwerpunkt liegt dabei auf der Beschreibung der hydrochemischen Austauschprozesse zwischen mobilem Kluftwasser und dem im Regelfall stagnierenden Porenwasser der Gesteinsmatrix (z.B. BIRGERSSON & NERETNIEKS 1990, LEVER, D. A. & BRADBURY, M. H. 1985, NERETNIEKS 1980). Die Bestimmung der diffusiven Austauschprozesse sowie weiterer Transportparameter für geklüftete Festgesteine stellt für die erfolgreiche Anwendung tracerhydrologischer Methoden sehr hohe versuchstechnische Anforderungen. Für die Versuchsauswertung mußten zusätzlich adäquate mathematische Modelle adaptiert, z.T. neu entwickelt werden. In diesem Artikel werden potentielle Fehlinterpretationen von Tracerversuchen in Festgesteinen im Hinblick auf die Matrixdiffusion und Dispersion an Fallbeispielen aufgezeigt und entsprechende Empfehlungen für die Durchführung und Auswertung von Tracerversuchen in Festgesteinen gegeben.

## 2 Mathematische Auswertung von Tracerversuchen

Tracerversuche zur Charakterisierung von Transporteigenschaften geklüfteter Medien werden im Regelfall unter künstlich induzierten Gradienten als sogenannte Monopoltracerversuche durchgeführt. Hierbei wird der Tracer als kurzer Impuls (Dirac-Impuls) in einer definierten Entfernung in ein radial-konvergierendes Fließfeld um einen Entnahmebrunnen eingespeist. Monopolversuche mit Dirac-Eingabe stellen eine einfach durchzuführende, kostengünstige Alternative zu den technisch weit aufwendigeren Dipol-Versuchen (z.B. VEULLIET 1994) und insbesondere zu den sehr zeitintensiven Versuchen unter natürlichem Fließfeldbedingungen (z.B. FREYBERG 1986) dar. Eine deutliche Anwendungseinschränkung erfahren Monopolversuche durch die Reichweite des Absenkebeckens bzw. die Überlagerung mit einer ggf. ausgeprägten natürlichen Grundwasserströmung.

Neben einer exakten Planung und Durchführung der Versuche bestimmt die Auswertung die Güte der gewonnenen Parameter. Da geschlossene, analytische Lösungen der Stofftransportgleichungen nur für bestimmte Parameterwerte (z.B.  $D_{h/t} = 0$  oder  $D_e = 0$ ) und Randbedingungen existieren (z.B. GRISACK & PICKENS 1980 & 1981, NERETNIEKS 1980, TANG et al. 1981, SUDICKY & FRIND 1982 & 1984, MALOSZEWSKI & ZUBER 1984, 1985 & 1990), ist die Identifikation der bestimmenden Transportprozesse und die Abstraktion des Kluftaquifers ein wesentlicher Schritt bei der Auswertung. MALOSZEWSKI & ZUBER (1985) stellten mit dem Single Fissure Dispersion Model (*SFDM*) eine analytische Lösung der gekoppelten Transportgleichungen unter Berücksichtigung der Dispersion, Diffusion und Sorption für eine Dirac-Eingabe in eine Einzelkluft, eingebettet in eine quasi unendliche Matrix, vor.

Für einen nicht-radioaktiven, idealen Tracer ist die zeitabhängige Konzentration am Beobachtungsbrunnen gegeben durch (MALOSZEWSKI & ZUBER 1990):

$$C_f(t) = \frac{aM}{2\pi Q} \sqrt{Pe \cdot t_0} \int_0^t \exp\left(-\frac{Pe(t_0 - u)^2}{4ut_0} - \frac{a^2 u^2}{t - u}\right) \frac{du}{\sqrt{u(t - u)^3}} \quad (1)$$

$M$	Injizierte Tracermasse	$[M]$
$Q$	Fließrate durch das System	$[L^3 T^{-1}]$
$Pe$	Pecletzahl	$[-]$
$t_0$	Mittlere Verweilzeit im System	$[T]$
$a$	Diffusionsparameter	$[L]$
$u$	Integrationsvariable	$[-]$

Die drei Fitparameter des Modells ( $Pe$ ,  $t_0$ ,  $a$ ) sowie die Rückerhaltskurve  $RR(t)$ , die in die Anpassung einbezogen werden sollte (MALOSZEWSKI 1994), sind gegeben durch:

$$Pe = \frac{vX}{D_{h_i}} \quad (2)$$

$$t_0 = \frac{X}{v} = \frac{V_f}{Q} \quad (3)$$

$$a = \frac{\epsilon \sqrt{D_p}}{b} \quad (4)$$

$$RR(t) = Q \int C_f(t) dt / M \quad (5)$$

$X$	Entfernung zwischen Eingabe- und Entnahmestelle	$[L]$
$V_f$	Volumen des mobilen Kluftwassers	$[L^3]$
$b$	Mittlere hydraulische Kluftöffnungsweite	$[L]$

Die Pecletzahl  $Pe$  beschreibt allgemein das Verhältnis von advektivem zu dispersivem Stofftransport, der Fitparameter  $a$  den diffusiven Stoffaustausch zwischen Kluft und Matrix, mit der mittleren Verweilzeit kann die mittlere Fließgeschwindigkeit berechnet werden. Gleichung 1 kann auch für reaktive Tracer mit linearen Sorptionsmodellen für die Matrix ( $R_p$ ) und die Kluftoberfläche ( $R_f$ ) verwendet werden, wobei sich nur die Definitionen der Fitparameter ändern (MALOSZEWSKI 1994). Die Kluftöffnungsweite kann aus den während eines Monopolversuches gemessenen hydraulischen Parametern abgeleitet werden (MALOSZEWSKI & ZUBER 1993):

$$b = \sqrt{\ln\left(\frac{X}{r_w}\right) \frac{6\nu\tau_{f2}}{gt_0} \frac{X^2}{\Delta H}} \quad (6)$$

$\tau_{f2}$	Tortuositätsfaktor der Kluft (ca. 1,5)	$[-]$
$r_w$	Bohrlochradius	$[L]$

Ist zudem die Matrixporosität  $\epsilon$  bekannt, so kann unter der Annahme, daß die gesamte Porosität transportwirksam ist ( $\epsilon = \epsilon_t$ ) der effektive Diffusionskoeffizient bestimmt werden:

$$D_e = \frac{(ab)^2}{\epsilon} \quad (7)$$

### 3 Fallbeispiele

#### 3.1 Tracerversuche Lindau

Das Felslabor Lindau (Südschwarzwald) wurde von der Angewandten Geologie Karlsruhe (AGK, Prof. Dr. Hötzl) eingerichtet. Hier wurden seit den 80er Jahren Tracerversuche durchgeführt. HIMMELSBACH

(1993) gibt eine detaillierte Beschreibung des Gebietes, dessen hydraulisch bestimmendes Element der Erzgang Hermann ist, der den Albtalgranit des Schwarzenbachtals mit einem Streichen von ca.  $5^\circ$  durchzieht und mit  $70 - 85^\circ$  steil nach E einfällt. Der Erzgang ist durch einen Stollen aufgeschlossen, wobei die unverrohrten, fächerförmig angelegten Bohrungen im Parallelstollen (Abb. 1) als Eingabe- und Entnahmebohrungen für Tracerversuche dienen.

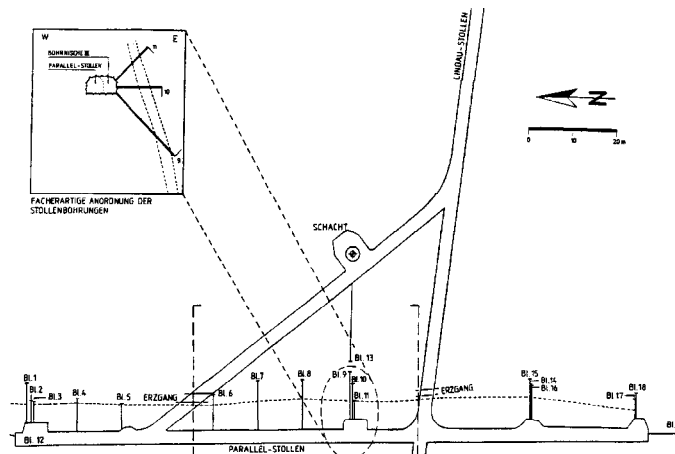


Abb. 1: Stollenplan Lindau (HIMMELSBACH 1993).

Da das Kluftwasser im Bereich des Parallelstollens stagniert (HIMMELSBACH 1993), ist keine Überlagerung der künstlich induzierten Fließfelder durch ein natürliches Fließfeld zu erwarten. Alle Tracerversuche wurden als Monopoltracerversuche mit Dirac-Injektion durchgeführt, wobei zunächst die von HIMMELSBACH (1993) und VEULLIET (1994) eingesetzten Injektionslanzen (Monopolversuch I & II) später durch ein Doppelpackersystem (Monopolversuch III - V, Abb. 2) zur Injektion ersetzt wurden. In beiden Versuchsreihen wurde Uranin als idealer Tracer auf der 11,4 m langen Distanz verwendet.

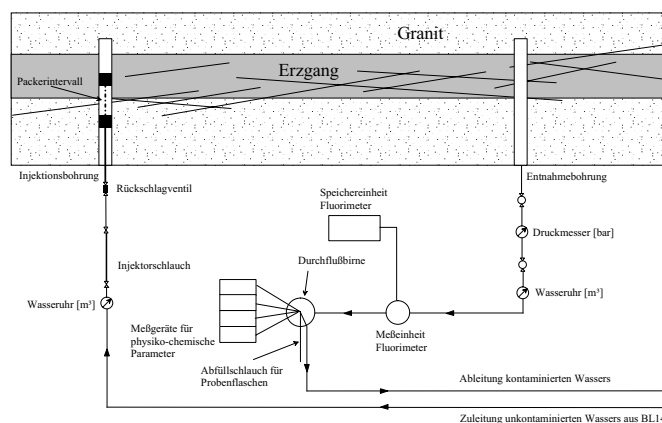


Abb. 2: Schematischer Aufbau der Versuchsanlage für Monopolversuch III.

Exemplarisch ist in Abb. 3 die eher peakorientierte Anpassung der Durchbruchkurve für Monopolversuch I (BL8 - BL10) dargestellt. Das SFDM kann die zwischen 17 und 40 h nach der Injektion gemessenen Konzentrationen nur schlecht wiedergeben, was besonders in der zunehmenden Abweichung der Rückerhaltskurven deutlich wird. Während der 100 h Versuchslaufzeit wurde nur ein Rückerhalt von 43 % erzielt. Die Durchbruchkurve zur SFDM-Anpassung ist daher, wie auch alle weiteren Durchbruchkurven auf die jeweils rückerhaltene Tracermasse normiert. Prinzipiell entspricht dies der Annahme eines Verdünnungsfaktors bei der Normierung.

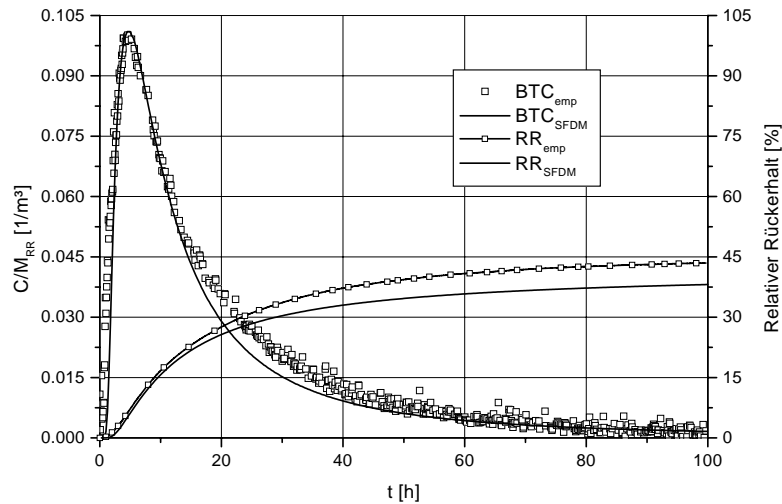


Abb. 3: Anpassung der Durchgangs- (BTC) und Rückerhaltskurve (RR) Monopolversuch I.

Die mit der SFDM-Anpassung bestimmte Pecletzahl von 2 und die daraus abgeleitete longitudinale Dispersionslänge von 5,6 m (Tab. 1) zeigt den extrem dispersiv geprägten Stofftransport. Die Dispersionslänge entspricht der halben Versuchsdistanz. Sie kann nicht als Kluftparameter, sondern nur als Diskrepanz zwischen den für die Auswertung unterstellten Anfangs- bzw. Randbedingungen und den tatsächlichen Versuchsbedingungen angesehen werden. Hierbei muß aufgrund des großen Markierungsvolumens (Bohrlochvolumen) im Vergleich zum Kluftvolumen insbesondere die Gültigkeit der Dirac-Eingabe in die Kluft angezweifelt werden. Bei den Versuchen ist offensichtlich ein nicht unerheblicher Teil der Tracerlösung in dem Bohrloch verblieben und hat so eine rechtsschiefe Eingabefunktion verursacht. Eine derartige Eingabefunktion führt in einer Durchbruchskurve zu einer scheinbar höheren Dispersion des unterstellten Dirac-Impulses. Durch eine rechtsschiefe Eingabefunktion kann der mit dem SFDM nicht anzupassende Übergangsbereich zum Tailing der Kurve, sowie das anhaltend hohe Tailing begründet werden.

Tab. 1: Anpassungswerte des SFDM und abgeleitete physikalische Parameter für Monopolversuch I und III.

Parameter		Monopolversuch I	Monopolversuch III
$a$	$[s^{-0,5}]$	0,001	0,00155
$t_0$	$[s]$	55000	24000
Pe	$[-]$	2	15
$b$	$[\mu m]$	133	206
$v$	$[ms^{-1}]$	2,04 E-4	4,79 E-4
$D_{h_l}$	$[m^2s^{-1}]$	1,14 E-3	3,67 E-4
$\alpha_l$	$[m]$	5,60	0,77
$D_e$	$[m^2s^{-1}]$	3,5 E-13	2,0 E-12

Die Bohrlochspeicherung kann den geringen Rückerhalt von 43 % jedoch nur zum Teil erklären. Weitere Verluste des Tracers können auf eine teilweise Injektion des Tracers in nicht mit dem Entnahmebohrloch vernetzte Klüfte oder Fließkanäle zurückgeführt werden. Eine Sorption von Uranin an tonmineralhaltigen Füllungen der Klüfte kann nach KÄSS (1992) ausgeschlossen werden.

Auffällig ist das für geringporöse Granite unerwartet ausgeprägte Tailing der Durchbruchskurve. Der für eine angenommene Matrixporosität von 5 % (HIMMELSBACH 1993, VEULLIET 1994) nach Gl. 7 berechnete effektive Diffusionskoeffizient ist mit  $3,5 \text{ E-13 m}^2\text{s}^{-1}$  (Tab. 1) im Vergleich zu den z.B. von SKAGIUS & NERETNIEKS (1986) für Uranin in Graniten angegebenen Diffusionskoeffizienten ( $0,22 - 1,3 \text{ E-14 m}^2\text{s}^{-1}$ ) um ein bis zwei Zehnerpotenzen zu hoch. Ein ausgeprägtes Tailing der Durchbruchkurven

wurde auch in den Versuchen von EINSIEDL et al. (2000) beobachtet. Hier wurde ein neu entwickelter Fluoreszenz- sowie Partikeltracer auf der gleichen Versuchsstrecke eingesetzt. Die Tracer zeigten trotz erheblicher Unterschiede im Diffusionsverhalten ein nahezu identisch ausgeprägtes Tailing.

Da die Partikeltracer aufgrund ihres Durchmessers nicht oder nur sehr eingeschränkt in die Matrix diffundieren können, ist dies ein experimenteller Nachweis eines nicht diffusiv sondern versuchstechnisch bedingten Tailings. Dies bedeutet, daß die Eingabefunktion neben der Erhöhung der Dispersion auch zu einem ausgeprägten Tailingeffekt führt, der nicht als Matrixdiffusion interpretiert werden darf. Der hier berechnete Diffusionskoeffizient von  $3,5 \text{ E-13 m}^2\text{s}^{-1}$  ist also ein Anpassungsartefakt.

Verschiedene Autoren (TSANG 1995, LEVER & BRADBURY 1985) leiten für das Tailing diffusiv geprägter Durchbruchkurven eine Konzentrationsabnahme gemäß  $t^{-1,5}$  ( $t^{-1,5}$ -Kriterium) ab. Diese Abnahme entspricht in einer log-log-Darstellung der Durchbruchkurven einer Geraden mit der Steigung von -1,5, die für Monopolversuch I nur als Tangente an die Kurve gelegt werden kann. Das im Monopol-Versuch I beobachtete Tailing kann daher auch nach diesem Kriterium nicht auf Matrixdiffusion zurückzuführen sein.

Die Sensitivität der gewonnenen Parameter gegenüber der Versuchsanordnung zeigt ein Vergleich der Durchbruchkurven mit und ohne Doppelpackersystem für diese Versuchsstrecke (Abb. 4).

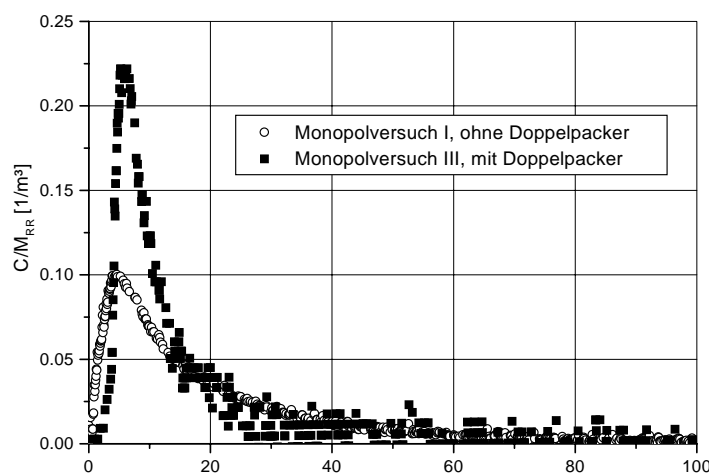


Abb. 4: Vergleich der Durchgangskurven Monopolversuch I und III (BL8 -BL10).

Die Durchbruchskurve des Monopolversuchs III weist im Vergleich zu Monopolversuch I eine deutlich geringere Dispersion auf, d.h. der Stofftransport ist gegenüber Monopolversuch I scheinbar advektiv geprägt. Dieser Unterschied wird beim Vergleich der Pecletzahlen (Tab. 1) besonders deutlich. Neben der größeren Dispersion und der damit verbundenen Minderung des Konzentrationspeaks ist die geringere Erstankunftszeit im Monopolversuch I offensichtlich. Aufgrund der größeren Dispersion weist der Tracer dennoch eine deutlich längere mittlere Verweilzeit (Tab. 1) auf. Dieses Verhalten kann einerseits durch eine injektionsbedingte Dispersion erklärt werden. Bei der Injektion des Tracers mit 10 L (Monopolversuch I) bzw. 5 L (Monopolversuch III, s.u.) Nachspülwasser wird der hydrostatische Druck im Injektionsbohrloch BL8 wie bei einem Slugtest kurzzeitig erheblich gesteigert, wodurch der Tracer in die Kluftzone gepreßt wird und die Fließstrecke für einen Teil des Tracers verkürzt wird. Durch den Einsatz der Doppelpacker wurde das zu markierende Bohrlochvolumen erheblich reduziert, deutlich sichtbar in dem geringeren Tailing (Abb. 4). Mit der dadurch ermöglichten Reduktion des Nachspülwassers bzw. der injektionsbedingten Dispersion kommt die Eingabe insgesamt einem Dirac-Impuls näher. Nach dem  $t^{-1,5}$ -Kriterium ist jedoch auch dieses Tailing nicht diffusiv bestimmt.

Das zu erwartende minimale, auf Matrixdiffusion zurückzuführende Tailing ist vermutlich noch immer durch eine Eingabefunktion überlagert. Die gewonnenen Werte dürfen folglich physikalisch nicht überinterpretiert werden. BECKER & SHAPIRO (2000) beobachteten in einem Granit ebenfalls ein nicht diffusiv bedingtes Tailing, führten dieses aber aufgrund einer verbesserten Injektion mit

Dreifachpackern auf Geschwindigkeitsvariationen bzw. auf Dispersion in den Klüften und nicht auf einen Eingabefehler zurück. Inwieweit ein dispersiv bedingtes Tailing auch für Tracerversuche im Versuchsstollen Lindau eine Rolle spielt, konnte bislang nicht geklärt werden.

### 3.2 Tracerversuch Negev (IL)

Das Testgebiet Negev liegt im Bereich der Beer Sheva Syklinale in der nördlichen Negev-Wüste (Israel). In den letzten 25 Jahren wurden hier eine Vielzahl chemischer Industrien an- bzw. umgesiedelt. Die Abwässer dieser Industriekomplexe wurden und werden in Verdunstungsbecken eingeleitet, wobei erst die jüngeren Becken eine Basisabdichtung aufweisen. Das aride Klima und die niedrige Matrixdurchlässigkeit der eozänen Kreidekalkformation der Avdat Gruppe wurden in den siebziger Jahren als ausreichende geologische Barriere zum Grundwasserschutz betrachtet (DAGAN 1977). Durch intensive Klüftung ist die geologische Barriere jedoch nicht wirksam, so daß bereits 1985 in mehreren Beobachtungsmeßstellen erhöhte Konzentrationen an Schwermetallen und organischen Schadstoffen gemessen wurden (NATIV & NISSIM 1992). Das brackische Grundwasser der Avdat Formation wird nicht zur Wasserversorgung der Bevölkerung verwendet, aufgrund der nordwestlichen Grundwasserströmungsrichtung besteht jedoch ein Gefährdungspotential für den abstromigen Küstenaquifer der Kurkar Gruppe. Im Rahmen des europäischen FRACFLOW-Projektes (ENV4-CT97-0441) wurde in Zusammenarbeit mit israelischen Partnern der Ben Gurion University of the Negev und der Hebrew University of Jerusalem im Testgebiet Negev ein Multitracerversuch durchgeführt. Ziel des Experimentes war neben der erstmaligen Bestimmung von Transportparametern für das Testgebiet die Ermittlung von Diffusionsparametern im Feldversuch.

Für den Versuch wurden Bohrlöcher (RH11 & RH11A) am Zusammenfluß zweier Wadis ausgewählt. Die Wadis zeigten aufgrund der Versickerung von Abwässern perennierende Abflüsse (ADAR & NATIV 2000), so daß hier im Sommer 2000 Drainagegräben angelegt wurden. Die Bohrungen sind als parallele Schrägbohrungen ( $68^\circ$  Einfallen) senkrecht zu einem NE-SW ( $60^\circ$ ) und parallel zu einem NW-SE ( $340^\circ$ ) streichenden vertikalen Kluftsystem im Abstand von 10 m gebohrt worden. Der Tracerversuch wurde als Monopolversuch durchgeführt, wobei im Injektionsbohrloch (RH11A) ein Doppelpacker eingesetzt wurde. Die optimale Packerposition (20,40 - 18,40 m u. GOK) wurde mittels Slug-Tests ermittelt. An der Entnahmebohrung RH11 wurde eine Pumpe im Bereich der höchsten Durchlässigkeit (25 m u. GOK, frdl. mündl. Mittlg. L. ASAF 2000) eingebaut. Unter Berücksichtigung der Geländehöhen kann eine direkte Verbindung der Bohrlöcher durch eine vertikale NE-SW streichende Kluftzone erhöhter Durchlässigkeit vermutet werden. Der natürliche, durch die Drainage beeinflusste Gradient von 0,012 wurde durch Wasserentnahme ( $0,88 \text{ Lmin}^{-1}$ ) mehr als verdoppelt (0,028). Für die Injektion wurden 5 g Uranin und 81,84 g Lithium (500 g LiCl) in 2 L Wasser gelöst und in den unteren Bereich des Packerintervalls injiziert. Zur Vermeidung der Erhöhung des hydraulischen Gradienten während der Injektion wurden simultan 2 L Wasser aus dem oberen Bereich des Packerintervalls abgepumpt. Die im Injektionsschlauch gespeicherten Markierungsstoffe (Geländeoberkante - Packerintervall) wurden entsprechend seinem Volumen mit 2 L Wasser ausgespült. Die gesamte Injektion dauerte 2,75 Minuten und kann im Verhältnis zur mittleren Verweilzeit (s.u.) als Dirac-Impuls angesehen werden. In der Bilanz wurden durch die simultane Entnahme während der Injektion nur 2 L in das System injiziert (das Nachspülvolumen). Diese erhöhten den Grundwasserspiegel in der Injektionsbohrung nur kurzzeitig um 0,30 m.

Nach 55 Stunden Versuchslaufzeit wurden Rückerhalte von nur 3,97 % (Uranin) bzw. 4,44 % (Lithium) erzielt. Die mehrheitliche Masse der Tracer scheint über ein tortuoses Kluftnetzwerk, das die NW-SE streichenden Klüfte beinhaltet oder nicht mit dem Bohrloch vernetzte Fließkanäle (*channels*) am Entnahmebrunnen vorbei in die Drainagegräben geflossen zu sein. Wie zuvor wurden die Durchbruchkurven auf die rückerhaltenen Tracermengen normiert (Abb. 5), wobei für Lithium eine konstante Hintergrundkonzentration von  $170 \text{ mgL}^{-1}$  abgezogen wurde. In Abbildung 5 ist beispielhaft die Anpassung der Lithiumdurchbruchskurve dargestellt. Das SFDM vermag die empirische Durchbruchskurve nur bis zu 8 Stunden nach der Injektion gut anzupassen. Für spätere Zeiten ergibt sich, wie auch bei der Uraninkurve eine zunehmende Abweichung der Kurven. Die Abweichungen können

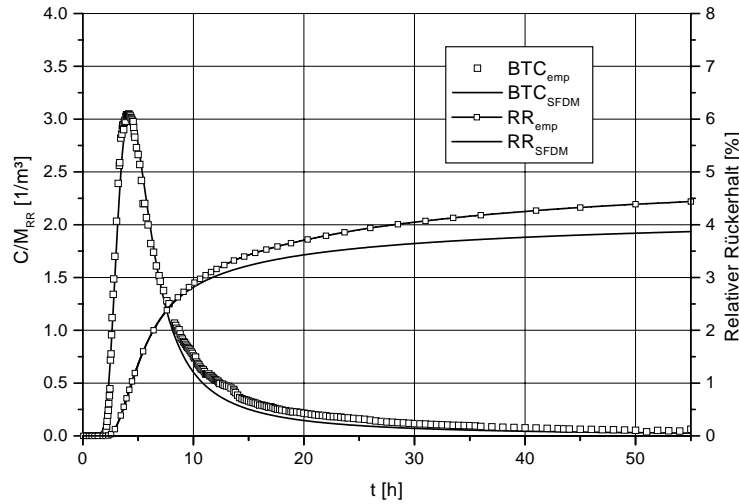


Abb. 5: Anpassung der Durchgangs- (BTC) und Rückerhaltskurve (RR) für Lithium, Tracerversuch Negev.

durch Tracerrestkonzentrationen im Eingabeböhrloch erklärt werden. Wie bei den Tracerversuchen in Lindau diskutiert, führen die in nicht aktiv durchströmten Bereichen des Böhrlochs gespeicherten Tracermengen zu einer Eingabefunktion und zu erhöhten Konzentrationen im Tailingbereich der Durchgangskurven, die nicht durch Matrixdiffusion erklärt werden können. Versuche den Tailingabschnitt durch das SFDM anzupassen, führten wiederum zu deutlichen Unterschreitungen der Maximalkonzentrationen und unrealistisch hohen  $\alpha$ -Parametern des SFDM. Die Fitparameter sowie die aus der verwendeten SFDM-Anpassung gewonnen Parameter sind in Tabelle 2 gegeben.

Die Pecletzahlen und die daraus berechneten Dispersionslängen deuten klar auf einen advektionsdominierten Transport der Tracer hin. Entsprechend den parallelen Erstankunfts- und Peakzeiten der beiden Tracer liefern die SFDM-Anpassungen gleiche mittlere Verweilzeiten und Kluftöffnungsweiten (Tab. 2). Die hohen Porositäten der Kreide lassen auch in kleinskaligen Experimenten einen deutlichen Einfluß des diffusiven Stofftransports auf die Durchgangskurven erwarten. Das  $t^{-1,5}$ -Kriterium liefert für beide Durchbruchkurven auch klar eine auf Matrixdiffusion zurückzuführende Konzentrationsabnahme.

Tab. 2: Anpassungswerte des SFDM und abgeleitete physikalische Parameter für den Tracerversuch Negev.

Parameter		Uranin	Lithium
$a$	$[s^{-0,5}]$	0,0026	0,0035
$t_0$	$[s]$	14000	14000
Pe	$[-]$	30	28
$b$	$[\mu m]$	342	342
$v$	$[ms^{-1}]$	7,14 E-4	7,14 E-4
$D_{h_l}$	$[m^2 s^{-1}]$	2,38 E-4	2,55 E-4
$\alpha_l$	$[m]$	0,33	0,36
$D_e$	$[m^2 s^{-1}]$	2,3 E-12	4,1 E-12

Die bei einer unabhängig bestimmten Matrixporosität von 35 % berechneten effektiven Diffusionskoeffizienten (Gl. 7) unterschreiten die in Diffusionsversuchen bestimmten Werte (WITTHÜSER et al. 2001) um den Faktor 4 (Uranin) bzw. 15 (Lithium). Diese sehr unterschiedlichen Verhältnisse lassen die Bestimmung von Diffusionsparametern in Tracerversuchen fraglich erscheinen. Erstaunlich ist jedoch, daß die nachgewiesene Speicherung erheblicher Tracermengen im Eingabeintervall im Gegensatz

zu den Tracerversuchen in Lindau nicht zu erhöhten Diffusionskoeffizienten führt. Generell ist für die hochporöse Kreide ein deutlicherer Einfluß der Diffusion auf den Stofftransport im Vergleich zu den gering porösen Graniten zu erwarten. Injektionsfehler können dadurch eher ausgeglichen werden.

Versuche, den Diffusionsparameter  $a$  des SFDM mit unabhängig bestimmten Diffusionskoeffizienten für diese Kreidekalke (WITTHÜSER et al. 2001) vorzugeben, führten in keinem Fall zu einer zufriedenstellenden Kurvenanpassung. Generell wurden die Tailings der empirischen Kurven zwar durch das SFDM sehr gut wiedergegeben, die Maximalkonzentrationen aber trotz beliebiger Variation der verbleibenden beiden Anpassparametern ( $Pe$  und  $t_0$ ) deutlich unterschritten. Theoretisch können die Abweichungen durch ein Channeling-Modell erklärt werden. Ein ausgeprägter Fließkanal innerhalb einer Kluftfläche bewirkt danach die hohe, nicht mit dem experimentell bestimmten Diffusionsparameter  $a$  anzupassende Peakkonzentration. Für das ausgesprochene, auch theoretisch zu erwartende Tailing ist der Transport durch die verbleibende Kluftfläche maßgebend. Dieses konzeptionelle Modell stimmt gut mit Geländebeobachtungen von präferentiellen Fließpfaden überein, weist jedoch ohne weitere Beweise einen eher spekulativen Charakter auf.

## 4 Zusammenfassung

Die im Felslabor Lindau durchgeführten Tracerversuche belegen eindeutig die Abhängigkeit der gewonnenen Transportparameter von der Art der Tracerinjektion. Die Speicherung einer erheblichen Tracermenge in stagnierenden Bereichen des Eingabebohrlochs bei der Injektion mit PVC-Lanzen und die diffusive Koppelung dieses Reservoirs mit dem mobilen Kluftwasser führt zu einer rechtsschiefen Eingabefunktion. Diese Eingabefunktion verursacht eine Spreizung sowie ein ausgeprägtes Tailing der Durchbruchkurven, das üblicherweise als Dispersion und Matrixdiffusion interpretiert wird. Das nicht diffusiv bestimmte Tailing wurde durch den Einsatz von Partikeltracern zweifelsfrei nachgewiesen.

Die Injektionsfehler konnten durch Verwendung eines Doppelpackersystems minimiert, vermutlich aber nicht vollständig eliminiert werden. Die dabei registrierten Durchbruchkurven sowie die daraus abgeleiteten Transportparameter unterscheiden sich signifikant von den früheren mit den Lanzen durchgeführten Eingaben. Die in-situ Bestimmung von Diffusionsparametern mittels kleinskaligen Tracerversuchen in geringporösen Graniten war jedoch auch mit Doppelpackersystemen zur Injektion nicht möglich. Das zu erwartende minimale Tailing in Graniten ist trotz reduzierter Totvolumina im Injektionsbohrloch vermutlich immer noch durch eine Eingabefunktion überlagert worden. Zur Bestimmung der Diffusionsparameter sollten daher die Eingabekonzentrationen über den Versuchszeitraum kontinuierlich gemessen oder die Eingabebohrung nach der Injektion vollständig abgepackt bzw. abgedichtet (z.B. Dreifachpackersysteme, BECKER & SHAPIRO 2000) werden. Da eine analytische Lösung der Transportgleichungen unter Berücksichtigung der Dispersion, Diffusion und einer Eingabefunktion noch nicht verfügbar ist, d.h. die Durchbruchkurven nur mit numerischen Modellen interpretierbar sind, ist die Sicherstellung einer Dirac-Eingabe durch geeignete Injektionsverfahren einer wesentlich komplexeren numerischen Versuchsauswertung vorzuziehen.

Der in den hochporösen Kreidekalken der Negev-Wüste durchgeführte Tracerversuch zeigt gegenüber den Versuchen in Lindau, wie bei einer Matrixporosität von 35 % erwartet, ein diffusiv bestimmtes Tailing. Dies konnte auch mit dem  $t^{-1,5}$ -Kriterium eindrucksvoll bestätigt werden. Die aus den Anpassungen der Durchbruchkurven gewonnenen Diffusionskoeffizienten unterschreiten jedoch die in einer Vielzahl von Laborversuchen ermittelten Werte. Durch Vorgabe der Laborwerte für den diffusionsbestimmten Anpassparameter  $a$  des SFDM konnte das Tailing der gemessenen Durchbruchkurven exakt beschrieben, nicht jedoch der Peakverlauf angepaßt werden. Diese Beobachtungen können theoretisch durch ein *channel*-Modell für den Stofftransport in der israelischen Kreide erklärt werden.

In keinem der durchgeführten Tracerversuche konnten durch Anpassung des SFDM an die Durchgangskurven physikalisch sinnvolle, konsistente Diffusionskoeffizienten für die Tracer bestimmt werden. Die Kombination mit Laborversuchen zur unabhängigen Bestimmung von Diffusionskoeffizienten ist daher unumgänglich. Nur so können die Auswertungen von Tracerversuchen das konzeptionelle Verständnis des Aquifers vermutlich verbessern. Stehen keine Bohrkern für die Bestimmung der Dif-

fusionskoeffizienten zur Verfügung oder sollen diese in-situ überprüft werden, so ist der Einsatz eines Dreifachpackersystems zur Vermeidung von Injektionsfehlern dringend anzuraten. Die Abgrenzung dispersiv und diffusiv bestimmten Tailings kann dann über das Konzentrationsabnahmekriterium oder durch eine simultane Injektion von Partikeltracern experimentell erfolgen.

## 5 Literatur

- ADAR, E. & NATIV, R. (2000): Use of hydrochemistry and isotopes in a mixing-cell model to quantify the relative contribution of multiple-source contaminants to seepage from a fractured chalk aquitard.- in: DASSARGUES, A. (Ed.) (2000): Tracers and Modelling in Hydrogeology.- IAHS Publication No. **262**: 315 - 320; Wallingford, UK (IAHS Press).
- BECKER, M.W. & SHAPIRO, A.M. (2000): Tracer transport in fractured crystalline rock: Evidence of nondiffusive breakthrough tailing.- Water Resour. Res. **36** (7): 1677 - 1686.
- BIRGERSSON, L. & NERETNIEKS, I. (1990): Diffusion in the matrix of granitic rock: Field test in the Stripa Mine.- Water Resour. Res. **26** (11): 2833 - 2842.
- DAGAN, G. (1977): Hydrological analysis of BS5 und BS10 exploratory wells data und summary of hydrological results of Ramat Hova area.- 14 S.; Petroleum Services Ltd., Tel Aviv [unveröff.].
- DOE, T. & PEDLER, W.H. (1998): The Problem of Fractures.- GWMR: 74 - 77.
- EINSIEDL, F., LANGHALS, H., MALOSZEWSKI, P., WITTHÜSER, K. & WOHNLICH, S. (2000): Application of two new fluorescent dyes and fluorescent particles in a horizontal and vertical fracture.- in: DASSARGUES, A. (Ed.) (2000): Tracers and Modelling in Hydrogeology.- IAHS Publication No. **262**: 175 - 179; Wallingford, UK (IAHS Press).
- FREYBERG, D.L. (1986): A Natural Gradient Experiment on Solute Transport in a Sand Aquifer. 2. Spatial Moments and the Advection and Dispersion of Nonreactive tracer.- Water Resour. Res. **22** (13): 2031 - 2046.
- GRISACK, G.E. & PICKENS, J.F. (1980): Solute transport through fractured media, 1. The effect of matrix diffusion.- Water Resour. Res. **16** (4): 719 - 730.
- GRISACK, G.E. & PICKENS, J.F. (1981): An Analytical Solution for Transport Through Fractured Media with Matrix Diffusion.- J. Hydrol. **52**: 47 - 57.
- HIMMELSBACH, T. (1993): Untersuchungen zum Wasser- und Stofftransportverhalten von Störungszonen im Grundgebirge (Albtalgranit, Südschwarzwald).- Schr. Angewandte Geol. Karlsruhe **23**: 238 S.; Karlsruhe.
- LEVER, D. A. & BRADBURY, M. H. (1985): Rock-matrix diffusion and its implications for radionuclide migration.- Mineralogical magazine **49**: 245 - 254.
- MALOSZEWSKI, P. (1994): Mathematical Modelling of Tracer Experiments in Fissured Rocks.- Freiburger Schriften zur Hydrologie **2**: 107 S.; Freiburg i. Breisgau.
- MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A. (1984): Interpretation of artificial and environmental tracers in fissured rocks with a porous matrix.- IAEA-SM-**270/22**: 635 - 651; Wien.
- MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A. (1985): On the theory of tracer experiments in fissured rocks with a porous matrix.- J. Hydrol. **79**: 333 - 358.
- MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A. (1990): Mathematical modelling of tracer behavior in short-term experiments in fissured rocks.- Water Resour. Res. **26** (7): 1517 - 1528.
- MALOSZEWSKI, P. & ZUBER, A. (1993): Tracer experiments in fractured rock: matrix diffusion and the validity of models.- Water Resour. Res. **29** (8): 2723 - 2735.
- NATIV, R. & NISSIM, I. (1992): Characterization of desert aquitard - Hydrologic and hydrochemical considerations.- Ground Water **30** (4): 598 - 606.

- NERETNIEKS, I. (1980): Diffusion in the Rock Matrix: An Important Factor in Radionuclide Retardation? - J. of Geophysical Research **85 (B8)**: 4379 - 4397.
- SKAGIUS, K. & NERETNIEKS, I. (1986): Porosities and diffusivities of some nonsorbing species in crystalline rocks.- Water Resour. Res. **22 (3)**: 389 - 398.
- SUDICKY, E.A. & FRIND, E.O. (1982): Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solutions for a system of parallel fractures.- Water Resour. Res. **18 (6)**: 1634 - 1642.
- SUDICKY, E.A. & FRIND, E.O. (1984): Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solution for a two-member decay chain in a single-fracture.- Water Resour. Res. **20 (7)**: 1021 - 1029.
- TSANG, Y.W. (1995): Study of alternative tracer tests in characterizing transport in fractured rocks.- Geophysical Research Letters **22 (11)**: 1421 - 1424.
- TANG, D.H., FRIND, E.O. & SUDICKY, E.A. (1981): Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solution for a single fracture.- Water Resour. Res. **17 (3)**: 555 - 564.
- VEULLIET, E.J. (1994): Simulation von Schadstoffmigration im geklüfteten Grundgebirge.- Schr. Angewandte Geol. Karlsruhe **28**: 192 S.; Karlsruhe.
- WITTHÜSER, K., HÖTZL, H., REICHERT, B., STICHLER, W. & NATIV, R. (2000): Laboratory experiments for diffusion transport processes in fractured chalk.- in: DASSARGUES, A. (Ed.) (2000): Tracers and Modelling in Hydrogeology.- IAHS Publication No. **262**: 303 - 308; Wallingford, UK (IAHS Press).