

Schwermetalltransport in Sandsteinen unter Bedingungen einer hochsalinaren Porenwasserlösung – Laborversuch und Modellierung

Thomas Himmelsbach, Edson Wendland

Kurzfassung

Im Ruhrgebiet werden schwermetallhaltige Reststoffe aus der Rauchgasreinigung in abbaubegleitende Hohlräume des Ruhrbergbaus verbracht. Im Rahmen der Bewertung der Langzeitsicherheit der untertägigen Verbringung wurden Laborversuche zur Migration von Schwermetallen unter den Bedingungen hochsalinärer Porenwasserlösungen durchgeführt. Die im Labor unter definierten hydrochemischen Randbedingungen mit Cadmium und Blei durchgeführten Multitracerexperimente belegen, daß sich Cadmium in natürlichen Klüften unter den im Ruhrkarbon vorherrschenden salinaren Milieubedingungen bei schwach basischem pH-Wert wie ein idealer Tracer ausbreitet. Im Gegensatz dazu wird Blei unter diesen Milieubedingungen praktisch immobil. Aufbauend auf den Ergebnissen wurde eine numerische, drei-dimensionale Modellierung der Laborversuche durchgeführt. Zuvor wurden im Labor gesteinsphysikalische Diffusions- und Sorptionsparameter sowie die Porosität der Gesteinsmatrix ermittelt. Die Durchführung der Versuche unter kontrollierten Fließfeldbedingungen gestattete die exakte Vorgabe physikalischer Randbedingungen für die numerische Modellierung. Die Modellierung ergab eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellen Daten und numerischer Simulation.

Abstract

The subsurface storage of industrial residues in coal mines in the Ruhrgebiet/Germany requires evidence that dissolved heavy metals will not return to the biosphere via groundwater flow. The residues originate from coal-fired power plants and consist of filter ashes which are injected behind the long wall faces. In order to investigate the migration of heavy metals two experiments using cadmium and lead as solute and pyranine as tracer were performed in the laboratory. The experiments were performed under defined hydraulic boundary conditions, and the hydrochemical conditions correspond to a depth of approximately 1000 m. The results indicate that cadmium is mobile under saline conditions and \pm neutral pH-values, whereas lead is immobile. The experimental results were used to calibrate a three-dimensional numerical model of the experimental array. The rock properties like diffusion-, sorption-coefficients and matrix porosity were evaluated in the laboratory. In combination with defined hydraulic boundary conditions the modelling achieved a good correspondence between experimental and simulated results.

Einleitung

Angesichts steigender Abfallmengen aus Industrie und Gemeinden wird der untertägigen Verbringung von Reststoffen in eine Untertagedeponie (UTD) als Alternative zur oberirdischen Ablagerung eine erhöhte Bedeutung beigemessen (JÄGER et al. 1990). Bei den Reststoffen handelt es sich um schwermetallhaltige Rückstände aus der Rauchgasentschwefelung von Kraftwerken und um Elektro-Filterstäube aus Müllverbrennungsanlagen. Im Bereich des Ruhr-Bergbaus werden die Rückstände auf einigen Zechen gesammelt und zu einer pumpfähigen Dickstoffsuspension aufbereitet. Diese wird über Rohrleitungen zu den untertägigen Abbaubetrieben gefördert und durch Schlepprohre in den durch die Kohlegewinnung entstehenden Hohlraum verpreßt. Infolge der Stilllegung von Zechenanlagen wird die Wasserhaltung in den Gruben eingestellt und es kommt zu einem Wiederanstieg des salzhaltigen Tiefengrundwassers in den offenen Schächten. Durch den Grundwasseranstieg ent-

PD Dr. Th. Himmelsbach,
Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe,
Stilleweg 2, 30655 Hannover,
Telefon: 0511-643-3794, Telefax: 0511-643-3694,
E-Mail: himmelsbach@bgr.de

Dr.-Ing. E. Wendland,
Lehrstuhl für Angewandte Geologie,
Ruhr-Universität-Bochum, NA-Süd, 3/125,
Universitätsstr. 150, 44801 Bochum,
Telefon: 0234-700-3342, Telefax: 0234-7010-120,
E-Mail: wendland@geol3.ruhr-uni-bochum.de

Eingang des Beitrages: 22.01.99

Eingang des überarbeiteten Beitrages: 08.07.99

stehen, ausgehend von den offenen Schächten und Strecken, steile hydraulische Gradienten in (entgegengesetzter) Richtung auf das die UTD umgebende Wirtsgestein, welche zu einer Durchströmung des Deponiekörpers und bedingter Auslaugung der Schadstoffe führen können. Da die Reststoffe nicht rückholbar sind und eine spätere Nachsorge der UTD ausgeschlossen ist, muß der Nachweis erbracht werden, daß die im Reststoff enthaltenen Schadstoffe weitestgehend an ihrem Verbringungsort verbleiben und eine nachteilige Beeinflussung der Biosphäre ausgeschlossen ist (BALTES et al. 1997). Mit den hier vorgestellten Laborversuchen zum Stofftransport entlang einer Einzelkluft wurde die Zielsetzung verfolgt, den Schwermetalltransport von Blei und Cadmium unter den Bedingungen einer hochsalinaren Grundwasserzusammensetzung zu quantifizieren, wie sie im Einlagerungsbereich einer Untertagedeponie 1000 m unter der Geländeoberfläche zu erwarten ist. Im Vergleich zu In-situ-Migrationsversuchen, wie sie auf einer Schachanlage der Ruhrkohle AG durchgeführt wurden (ZOBEL 1998), lassen sich im Laborversuch Fließgeschwindigkeiten realisieren, die mit ca. 2 m pro Tag den Fließgeschwindigkeiten nahe kommen, wie sie im Nahfeld einer Untertagedeponie im geklüfteten Steinkohlengebirge während des Grundwasserwiederanstieges erwartet werden können (HIMMELSBACH & KÖNIG 1997a). Darüber hinaus kann das Volumen der injizierten Tracer- und Schwermetalllösung im Verhältnis zum mobilen Wasservolumen längs der Kluft sehr klein gewählt werden, wodurch die Randbedingung einer impulsartigen Tracerinjektion erfüllt ist. Von wesentlichem Vorteil ist auch, daß ein geschlossener Versuchsaufbau etwaige Injektionsverluste in Bereiche, die nicht beprobt werden können, verhindert und somit die Bilanzierung des Sorptions- und Diffusionsanteils von Schwermetallen während der Migration gestattet. Die Durchführung der Tracerversuche unter kontrollierten Laborbedingungen erlaubt auch die genaue Vorgabe von hydraulischen Randbedingungen für eine numerische Modellie-

rung. Im Zusammenhang mit einer möglichst exakten, räumlichen Diskretisierung des Versuchsaufbaues und der Kenntnis gesteinsphysikalischer Parameter können numerische Modelle anhand des Laborversuches validiert werden.

Versuchsaufbau

Für die Multitracerversuche im Labor konnte aus dem Steinbruch „Im Lottental“ nahe der Ruhr-Universität Bochum ein zunächst unregelmäßig geformter Sandsteinblock gewonnen werden, der nur eine sich schwach abzeichnende natürliche Einzelkluft enthielt. Mit Hilfe einer großen Gesteinssäge wurde der Sandsteinblock zurechtgesägt, bis sich die Einzelkluft exakt in der Mitte des Blockes befand. Der so präparierte Sandsteinblock hat eine Länge von 24 cm, eine Höhe von 24 cm und eine Breite von 21 cm (Abb. 1 u. 2). Anschließend wurde der Gesteinsblock entlang der natürlichen Kluft gespalten, und die beiden Hälften wurden mit den Bruchflächen wieder paßgenau übereinandergelegt. Durch das Einsetzen eines schmalen, 350 mm dicken Plastikstreifens aus inertem Hochdruckpolyethylen entlang des Randes der Bruchflächen wurde eine Kluft mit definierter Öffnungsweite erzeugt. Die Matrixporosität des Sandsteines wurde mit Hilfe der Quecksilberporosimetrie an den abgesägten Gesteinsbruchstücken bestimmt. Mit den Laborversuchen sollte der Einfluß von Matrixdiffusion und -sorption auf den Stofftransport quantifiziert werden. Damit die Diffusions- und Sorptionsprozesse nicht von advektiven Prozessen aufgrund von Saugspannungen einer nur teilgesättigten Gesteinsmatrix überlagert werden, wurde vor den Versuchen eine weitestgehende Aufsättigung der Gesteinsmatrix angestrebt. Die Aufsättigung erfolgte hierbei ausgehend von der Einzelkluft in Richtung auf die Stirnflächen der beiden Gesteinshälften. Um den instationären Aufsättigungsprozeß zu beschleunigen, wurden in die Stirnseiten des Sandsteinblockes schmale, ca. 5 mm tiefe Schlitzte gefräst, um lokal Vakuum an

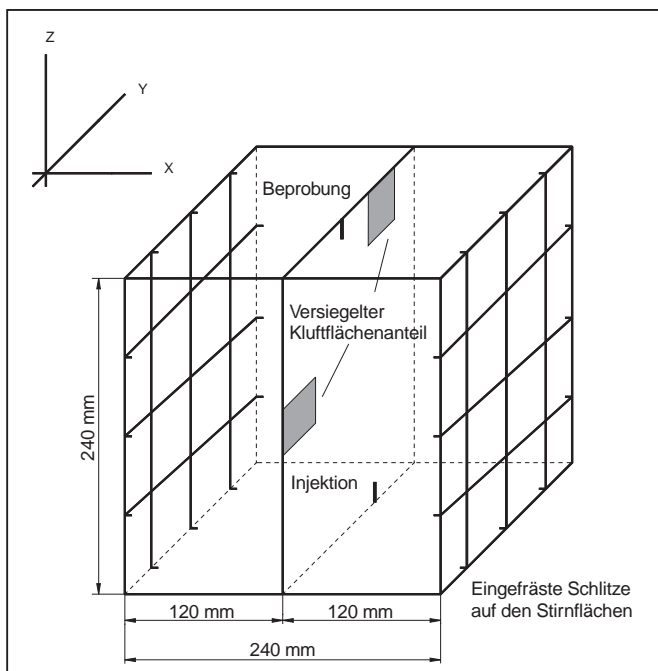


Abb. 1: Schematische Darstellung des Sandsteinblocks zur Durchführung von Multitracorexperimenten im Labor

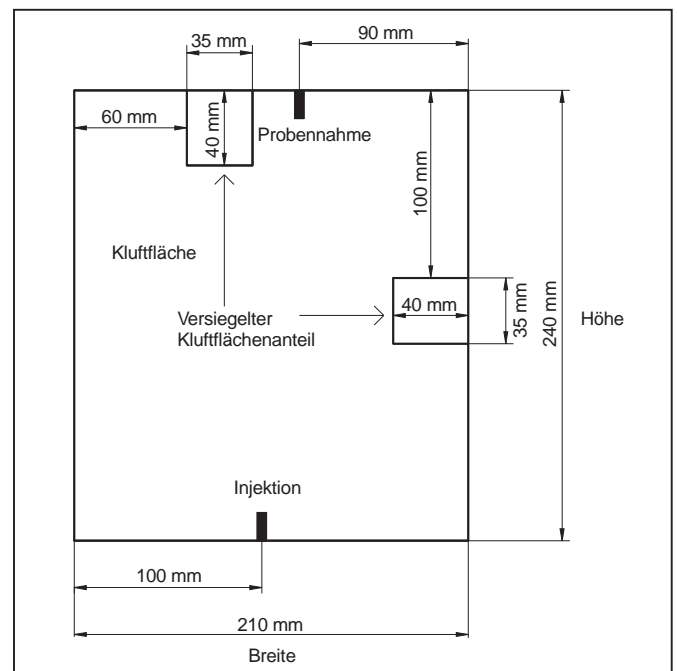


Abb. 2: Aufsicht auf die Kluftfläche des Sandsteinblocks

die Gesteinsmatrix anlegen zu können. Anschließend wurde der Sandsteinblock mit einem polyestergetränkten Glasfasergewebe wasser- und gasdicht ummantelt. Die am Ansatzpunkt der Spaltkeile entstandenen Ausbruchflächen wurden mit Kunstharz versiegelt (Abb. 2), damit der Stofftransport aufgrund einer lokal erhöhten Kluftöffnungsweite nicht verfälscht würde. Der sich über ca. vier Monate hinziehende Aufsättigungsprozeß der Gesteinsmatrix erfolgte in drei Abschnitten:

- Zunächst wurde über mehrere Wochen an die Kluft und die kluftparallelen Stirnseiten Vakuum angelegt, das sich nach einigen Tagen auf ca. 25 mbar, dem Dampfdruck des Wassers bei Raumtemperatur, einstellte.
- Im Anschluß daran wurde zunächst die Kluft mit entgastem, synthetischem Grubenwasser aufgefüllt (s. Tab. 1).
- Nachdem, ausgehend von der Kluft, die durch die Glasfaserbelegung sichtbaren dunklen Sättigungsfronten die seitlichen Stirnseiten fast erreicht hatten, wurden auch die Schlitzze an den Stirnseiten mit dem synthetischen Grubenwasser befüllt.

Mit den Tracerexperimenten (Abb. 3) wurde erst begonnen, nachdem die Wasseraufnahme des Gesteinsblockes vollständig zum Stillstand gekommen war und die Gesteinsmatrix somit als wassergesättigt betrachtet werden konnte.

Die besonderen geochemischen Milieubedingungen wie Salzgehalt, Temperatur, pH- und Redoxverhältnisse im Nahfeld um die Untertagedeponie (UTD) haben einen entscheidenden Einfluß auf das Diffusions- und Sorptionsverhalten gelöster Wasserinhaltsstoffe (PAAS 1997). Bei den Laborexperimenten wurden die spezifischen Milieubedingungen daher soweit wie möglich nachgebildet. So weisen die Tiefengrundwässer des Ruhrkarbons überwiegend neutrale bis schwach basische pH-Werte auf und bestehen im wesentlichen aus konzentrierten Na-Cl- oder untergeordnet Na-(Ca)-Cl-Wässern deren Salzkonzentration im allgemeinen mit der Tiefe zunimmt (WEDEWARDT 1995). Um diese Verhältnisse nachbilden zu können,

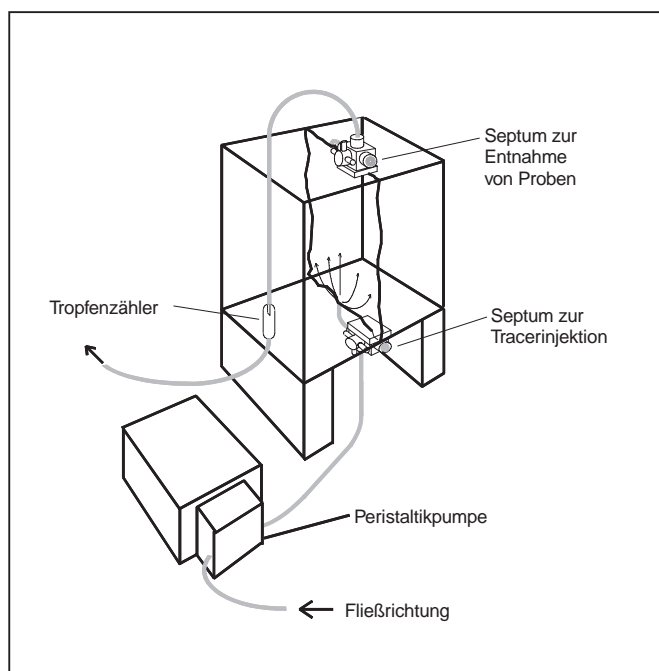


Abb. 3: Schematischer Aufbau der Laborversuche mit dem Sandsteinblock

Tab. 1: Vergleich der Zusammensetzung des synthetischen Grubenwassers (RAG/2) mit natürlichem Grubenwasser (6B-RN) (n. n. = nicht nachweisbar; n. b. = dem synthetischen Grubenwasser nicht beigegeben; aus ZOBEL 1998)

Analysenergebnisse	C [g/l] RAG/2-Wasser	C [g/l] 6B-RN-Wasser
Na ⁺	23,0	18,8
Ca ²⁺	2,0	2,30
Mg ²⁺	0,51	0,59
K ⁺	0,196	0,25
Ba ²⁺	0,137	n.n.
Sr ²⁺	0,0876	n.n.
NH ₄ ⁺	n.b.	0,21
Fe	n.b.	8,60 · 10 ⁻³
Mn	n.b.	5,00 · 10 ⁻⁴
Co	n.b.	1,24 · 10 ⁻⁵
Ni	n.b.	2,24 · 10 ⁻⁵
As	n.b.	1,40 · 10 ⁻⁴
Cl ⁻	39,8	32,6
SO ₄ ²⁻	n.b.	1,60
HCO ₃ ⁻	0,03	0,123
H ₂ S	n.b.	1,0 · 10 ⁻⁶
pH	6,5	6,8

wurde für die Aufsättigung der Gesteinsmatrix und die sich anschließenden Tracerversuche eine im Labor angesetzte, hochsalinare Lösung verwendet, deren Mineralisation dem natürlichen Grundwasser im Steinkohlengebirge in einer Tiefe von ca. 1000 m unter GOK nahekommt (Tab. 1). Die chemische Zusammensetzung des verwendeten synthetischen Grubenwassers entspricht einem Referenzstandard, welcher für die Durchführung von Diffusions- und Sorptionsversuchen unterschiedlicher Wirtsgesteinsproben von den am UTD-Projekt beteiligten Partnern festgelegt wurde (PAAS 1997, VEERHOFF et al. 1998).

Entsprechend dem extrem hohen Salzgehalt der Tiefengrundwässer des Ruhrkarbons dominieren unter neutralen pH-Bedingungen Metallchlorokomplexe, wobei Cd, gefolgt von Pb, Zn und Cu, die stärkste Affinität zur Komplexbildung aufweist. Mit zunehmendem Chlorid-Gehalt im Grundwasser findet eine Verschiebung von überwiegend positiv geladenen Monochlorokomplexen über neutrale zu negativ geladenen Chlorokomplexen statt (KLINGER 1994, PAAS 1997, PAAS & THEIN 1997). Die Sorption eines derart komplexierten Ions wird dann nicht mehr vom Metallkation, sondern von den Eigenschaften des Liganden dominiert (BOWERS & HUANG 1987), wobei negativ geladene Komplexe von negativ geladenen Mineraloberflächen eher abgestoßen als sorbiert werden (FRICK 1993). Die Wirkung derartiger Komplexbildner ist anhand zahlreicher Batch-Versuche (KLINGER 1994, PAAS 1997) sowie durch Diffusionszellen-Versuche (HARNISCHMACHER 1996) belegt, bei denen sich Cadmium als äußerst mobiles Schwermetall herausstellte.

Während der Versuche wurde die Kluft von unten nach oben durchströmt. Das synthetische Grubenwasser (RAG-Wasser) wurde mit Hilfe einer Peristaltikpumpe mit konstanter Fließrate aus dem mit Stickstoff begastem Vorratsgefäß durch die Kluft gepumpt. Die Tracerlösungen wurden mit einer Einwegspritze durch ein Septum am unteren Dreiwegehahn injiziert,

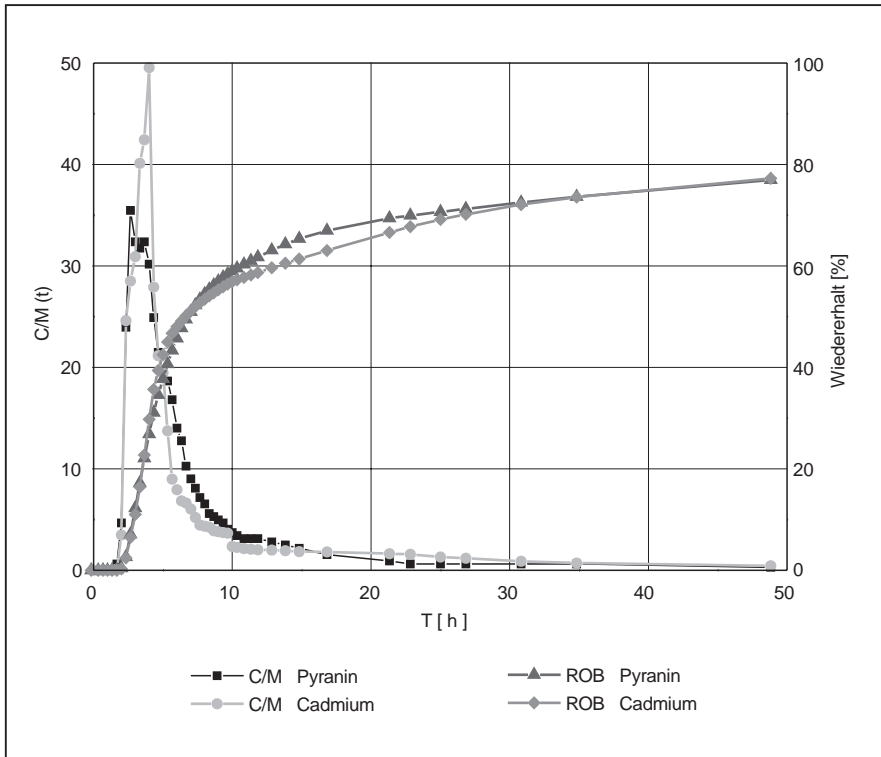


Abb. 4: Beobachtete Konzentrationsentwicklungen (C/M-normiert) und relative Wiederfindungen (ROB) im Laborversuch Pyranin/Cadmium

und die Proben wurden mit einer Einwegspritze am Septum des oberen Dreiwegehahnes entnommen. Aufgrund der klein dimensionierten Anschlüsse konnten extrem kleine Totvolumina für die Injektion und Probennahme gewährleistet werden (Abb. 3). Im Rahmen der Laborversuche wurde je ein Multi-Tracerexperiment mit Pyranin/Cadmium und Pyranin/Blei durchgeführt. Der verwendete Fluoreszenzfarbstoff Pyranin ist labortechnisch leicht nachzuweisen und gilt als konservativer Tracer, welcher weder in der Gesteinsmatrix noch an der Kluftoberfläche sorbiert wird.

Experimentelle Ergebnisse

Die Durchbruchkurven des Versuches mit Pyranin und Cadmium, bei dem 0,3 ml salzhaltiges Grubenwasser mit 32,1 µg Pyranin und 153,6 µg Cd injiziert wurden, sind in Abbildung 4 dargestellt. Die Pyranin-Konzentrationen wurden mit Hilfe eines Fluoreszenzspektrometers bestimmt und die Schwermetallkonzentrationen wurden mittels Graphitrohr-AAS ermittelt. Zum besseren Vergleich beider Durchbruchkurven wurden die experimentell ermittelten Konzentrationen auf die einge-

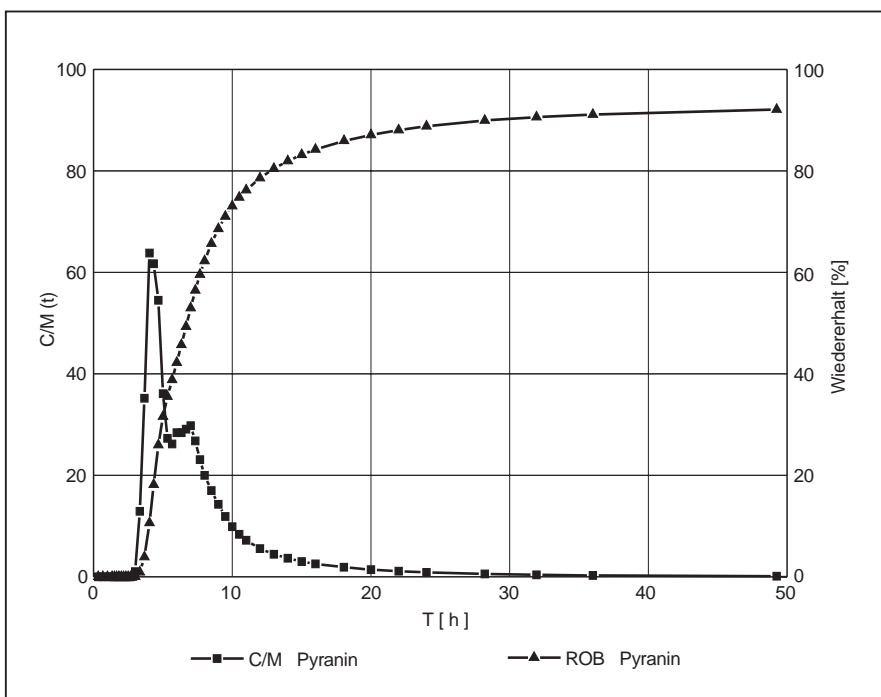


Abb. 5: Verlauf der Pyraninkonzentration (C/M-normiert) und relative Wiederfindungsrate an Pyranin des Laborversuches Pyranin/Blei; für Blei konnte kein Durchbruch festgestellt werden

speiste Masse normiert. Es läßt sich feststellen, daß die maximale Cadmium-Konzentration etwas später als die normierte Pyranin-Konzentration auftritt. Im Bereich des diffusionsbedingten Tailings fällt die normierte Cadmium-Konzentration zunächst niedriger, dann – ab ca. 15 h nach der Injektion – jedoch höher als die normierte Pyraninkonzentration aus. Anhand der Durchbruchkurven können keine Hinweise für eine Retardierung von Cadmium abgeleitet werden, da der Zeitpunkt der maximalen Konzentrationen und auch die relativen Wiederfindungsraten von Pyranin und Cadmium nahezu identisch sind. Für beide Stoffe ergibt sich bei Versuchsende eine Wiederfindungsrate von ca. 78 % der injizierten Masse. Im Gegensatz zu In-situ-Versuchen besteht aufgrund des geschlossenen Versuchsaufbaues keine Möglichkeit eines etwaigen Injektionsverlustes. Die relative Wiederfindungsrate deutet also daraufhin, daß selbst nach 50 h Versuchslaufdauer immer noch ca. 20 % der injizierten Stoffmasse diffusiv in die Gesteinsmatrix verlagert sind.

Beim zweiten Laborversuch (Abb. 5) wurden mit 1 ml Grubenwasser 40 µg Blei und 115,3 µg Pyranin injiziert, und die Pump-rate betrug 4,23 ml/h. Die Löslichkeit von Blei im synthetischen Grubenwasser (Tab. 1) beträgt lediglich 40 mg/l (ZOBEL 1998). Um dennoch genügend gelöstes Blei in die Kluft injizieren zu können und bei der Analyse von Wasserproben, speziell im Bereich des Auslaufastes der Durchbruchkurve, nicht unter die Nachweisgrenze zu fallen, wurde das Injektionsvolumen auf 1 ml Lösung erhöht. Trotz der relativ hohen injizierten Masse an Blei bewegen sich sämtliche Analysen der Wasserproben nahe oder unterhalb der Nachweisgrenze, und es kann kein Durchbruch von gelöstem Blei beobachtet werden. Für den Fluoreszenzfarbstoff Pyranin wird hingegen bei Versuchsende eine Wiederfindungsrate von über 90 % der injizierten Masse erreicht. Da die Porendiffusionskoeffizienten von Pyranin und Blei in ihrer Größenordnung als ähnlich eingestuft werden können, kann der fehlende Durchbruch von gelöstem Blei nur durch eine extrem starke Sorption erklärt werden.

Das zweite Tracerexperiment (Abb. 5) hatte im Vergleich zum ersten Tracerexperiment trotz gleich gebliebener Randbedingungen und vergleichbarer Fließraten eine mehrgipfelige Durchbruchkurve ergeben. Die zwei Maxima der Pyranin-Konzentrationen können jedoch aus der numerisch ermittelten, räumlichen Konzentrationsverteilung entlang der Einzelkluft zum Ende des ersten Tracerversuches erklärt werden (Abb. 11).

Numerisches Modell des Sandsteinblockes

Die numerische Modellierung des Sandsteinblockes wurde mit dem Programmpaket SICK 100 durchgeführt. Um die durch die Versiegelung von Kluftflächenanteilen zu erwartende komplexe Fließfeldgeometrie in der Einzelkluft des Sandsteinblockes besser simulieren und gleichzeitig die Diffusion in die Gesteinsmatrix nachbilden zu können, wurde ein dreidimensionales Modell des Sandsteinblockes erstellt. Mit dem benutzten Programm wäre die Modellierung einer 2D-Kluft mit analytischer Diffusion in die Matrix technisch nicht realisierbar.

Diskretisierung des Sandsteinblockes

Mit der Methode der finiten Elemente stehen verschiedene Elementtypen (Abb. 6) zur Verfügung (WENDLAND 1996):

- Ein-dimensionale Linienelemente beschreiben im drei-dimensionalen Modell Fließkanäle. In vereinfachten zwei-dimensionalen Modellen, die hier nicht untersucht werden, können damit auch Kluftspuren abgebildet werden.
- Zwei-dimensionale Flächenelemente, die entweder als Dreiecke oder Vierecke dargestellt werden, können in der drei-dimensionalen Modellierung als diskrete Klüfte oder Störungen eingesetzt werden.
- Drei-dimensionale Volumenelemente können entweder Pentader oder Hexaeder sein und dienen in drei-dimensionalen Modellen zur Diskretisierung der Gesteinsmatrix.

Die numerische Modellierung des Sandsteinblockes bzw. seiner Einzelkluft erfordert die Diskretisierung des Problems mit Flächen- und Volumenelementen. Den zur numerischen Abbildung verwendeten Kluftelementen ist somit gemein, daß sie gegenüber den Elementen zur Abbildung der Gesteinsmatrix eine generell um 1 verminderte Dimensionalität aufweisen. Die Elemente unterschiedlicher Dimensionalität können bei der Diskretisierung des Problems beliebig kombiniert werden. Es muß dabei lediglich gewährleistet sein, daß die unterschiedlich dimensionierten Elemente über gemeinsame Knoten verfügen (KRÖHN 1990).

Stabilitätskriterien

Bei allen numerischen Verfahren verhalten sich Stabilität und Genauigkeit komplementär zueinander. Explizite Lösungsverfahren sind genauer, aber im Hinblick auf die Zeitschrittlänge empfindlicher, was Oszillationen angeht. Implizite Verfahren sind ungenauer, sind aber, was die Zeitschrittdiskretisierung angeht, robuster (KOLDITZ & LEGE 1992). Bei der Berechnung von instationären Transportvorgängen wird bei der Methode der finiten Elemente generell eine Zeitschrittdiskretisierung angewandt. Durch eine zu grobe Diskretisierung des zur Berechnung verwendeten Modellnetzes im Verhältnis zur Zeitschrittdiskretisierung können unter Umständen unerwünschte Oszillationen oder den Transport verfälschende numerische Dispersionseffekte auftreten (GÄRTNER 1987). Für die numerische Stabilität des Lösungsverfahrens ist die Courant-Zahl Co von Bedeutung. Um unerwünschte Oszillationen zu vermeiden, sollte sie:

$$(1) \quad Co = \frac{v \cdot \Delta t}{\Delta l} \leq 1,0 \quad [-]$$

sein, mit:

Δl = Elementlänge in Richtung der Fließgeschwindigkeit [m]

Δt = Zeitschrittlänge [s]

v = Fließgeschwindigkeit [m/s].

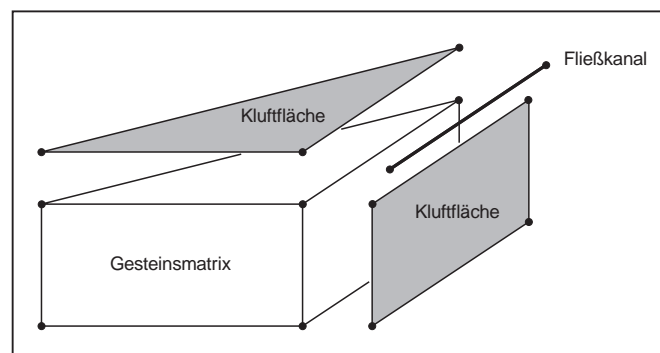


Abb. 6: Kombination unterschiedlicher Elementtypen in einem FE-Netz (nach WENDLAND 1996)

Darüber hinaus spielt die Einhaltung der Pecletzahl eine entscheidende Rolle für die Qualität der numerischen Simulation. Die Element-Pecletzahl wird definiert als:

$$(2) \quad Pe = \frac{v \cdot \Delta t}{D} \quad [-]$$

mit D = Dispersionskoeffizient [m^2/s]

und beschreibt das Verhältnis von rein advektivem zu dispersivem Transport innerhalb eines Elementes. Überwiegt der rein advektive Anteil am Transport, so wird die Pecletzahl größer als 1. Überwiegt hingegen der dispersive Anteil am Transport, wird die Pecletzahl kleiner als 1. Die meisten numerischen Lösungsverfahren weisen bei hohen Pecletzahlen und somit bei advektiv dominierten Transportvorgängen mit einer scharfen Konzentrationsfront ein kritisches Verhalten auf. Um numerische Probleme zu umgehen, sollte daher die lokale Länge eines Elementes im Verhältnis zur Fließgeschwindigkeit so gewählt werden, daß die Pecletzahl < 2 ist. In den meisten Fällen liefern aber auch numerische Simulationen mit $2 < Pe < 10$ immer noch brauchbare Resultate (WENDLAND 1996). Ausführliche Beispiele für den Einfluß unterschiedlicher Courant- und Pecletzahlen auf die numerischen Ergebnisse finden sich bei KÖNIG (1991).

Das Elementnetz des Sandsteinblockes

Im Vergleich zu advektivem und dispersivem Transport in der Einzelkluft laufen die Diffusionsprozesse in der Gesteinsmatrix wesentlich langsamer ab. Aus dem sogenannten *Wurzel-Zeit-Gesetz*,

$$(3) \quad \frac{C}{C_0} = \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{D^* \cdot t}} \quad [-]$$

mit

erfc = komplementäre Fehler-Funktion [-]

D^* = Diffusionskoeffizient [cm^2/s]

t = Zeit [s]

welches das Konzentrationsprofil in einem semi-infiniten, einseitig erstreckten Medium mit konstanter Randkonzentration C_0 als analytische Lösung des 2. Fickschen Gesetzes beschreibt (CRANK 1975), folgt, daß die Zeit zum Erreichen eines vorgegebenen Konzentrationsniveaus in der Matrix proportional zum Quadrat der zurückgelegten Distanz und umgekehrt proportional zur Wurzel des Diffusionskoeffizienten ist. Um diesen Zusammenhang numerisch so genau wie möglich abbilden zu können, muß die Diskretisierung der Gesteinsmatrix ausgehend von der Kluftoberfläche möglichst fein erfolgen. Im Hinblick auf das sich aufgrund des *Wurzel-Zeit-Gesetzes* einstellende parabolische Konzentrationsprofil in der Matrix wurde eine logarithmisch abgestufte Diskretisierung der Gesteinsmatrix parallel zur Kluftoberfläche gewählt. Numerische Untersuchungen zum Einfluß der Matrixdiskretisierung normal zur Kluft finden sich bei WENDLAND (1996).

Hinsichtlich der angestrebten Stabilität der numerischen Berechnung wurde für die Simulation des Tracerversuches das in Abbildung 7 dargestellte Netz verwendet, welches 15004 Knoten, 13860 3D-Elemente und 435 2D-Elemente für die Kluftfläche aufweist. Das drei-dimensionale Modell wird aus insgesamt 22 Schichten aufgebaut, die in ihrer Mächtigkeit unterschiedlich abgestimmt sind. So haben die beiden untersten Schichten eine Dicke von 0,25 cm, die für die nachfolgend höheren Schichten

auf 0,5 cm, 1 cm, 2 cm und 4 cm anwächst. Die sehr feine vertikale Diskretisierung der tieferen Schichten wurde gewählt, um die o. a. Stabilitätskriterien erfüllen zu können, da direkt am Injektionspunkt die steilsten Konzentrationsprofile und höchsten Fließgeschwindigkeiten innerhalb der Kluft zu erwarten sind. Aus Abbildung 7 ist zudem ersichtlich, daß die räumliche Diskretisierung der Gesteinsmatrix parallel zur Kluftoberfläche ebenfalls sehr fein gewählt wurde, wobei die erste Knotenreihe parallel zu den Kluftknoten einen Abstand von lediglich 0,002 cm aufweist. Die nächsten Knotenreihen befinden sich in einem Abstand von 0,005 cm, 0,14 cm und 0,4 cm. Ab einem Abstand von 1 cm zur Kluft ist aufgrund der kurzen Verweilzeit des Tracers im System kein weiterer Einfluß der Matrixdiffusion zu erwarten. In diesem Bereich haben die Matrixknoten daher zueinander einen konstanten Abstand von 1 cm. Zur Berücksichtigung der nachträglich versiegelten Kluftflächenanteile (Abb. 1 u. 2) wurden die entsprechenden Klufterelemente aus dem Modellnetz gelöscht. Für die Zeitdiskretisierung wurde eine Zeitschrittweite von $\Delta t = 20$ s gewählt.

Modellparameter

Die eingesetzten Folienstreifen zum Erhalt einer definiert geöffneten Kluft weisen eine Dicke von 300 μm auf. Aufgrund der Rauigkeit der Einzelkluft kann nicht davon ausgegangen wer-

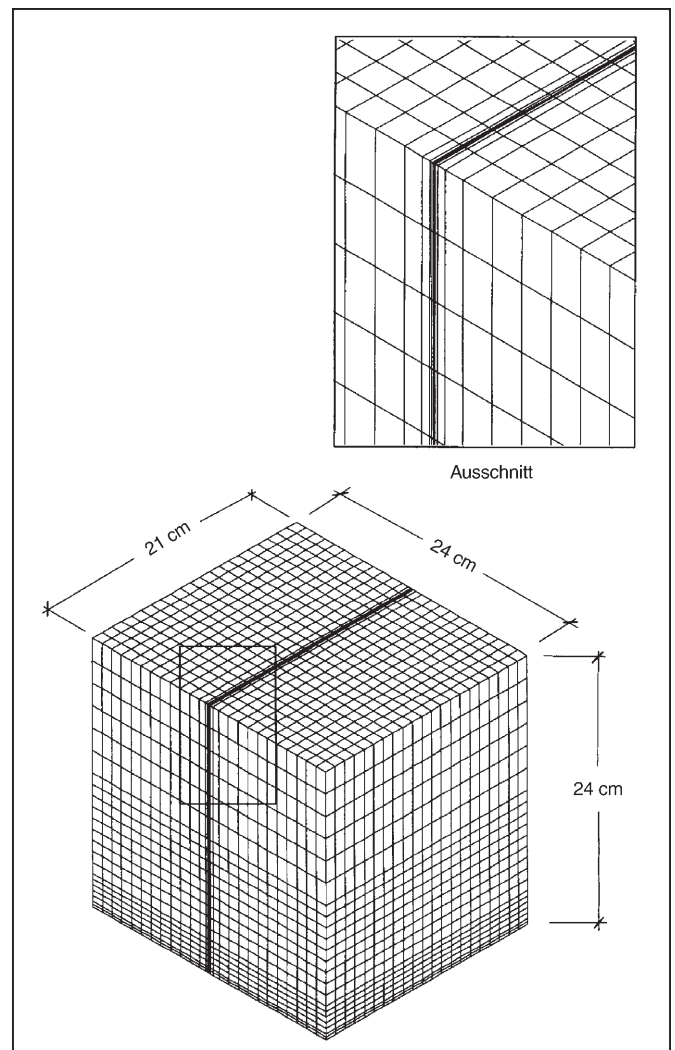


Abb. 7: Räumliche Diskretisierung des Sandsteinblockes

den, daß diese Streifen vollständig plan an der Kluftfläche anliegen. Die hydraulisch wirksame Kluftöffnungsweite entsteht als Summe der 2fachen Rauigkeit und der Foliendicke. Diese effektive Öffnungsweite kann auch aus dem Tracerexperiment abgeschätzt werden. Die durch die Einzelkluft fließende Wassermenge Q ergibt sich aus:

$$(4) \quad Q = v \cdot A = \frac{Z}{t_0} \cdot b \cdot Y \quad [\text{m}^3/\text{s}]$$

mit:

v = mittlere Fließgeschwindigkeit [m/s]

A = durchflossene Fläche [m²]

Z = Fließstrecke [m]

t_0 = mittlere Verweilzeit [s]

b = Kluftöffnungsweite [m]

Y = Erstreckung der Kluft in y -Richtung [m]

Mit den vorgegebenen $Q = 4,57$ ml/h und $Z = 0,24$ m und unter Annahme von $t_0 = 200$ min und $Y = 0,126$ m (Verminderung der Kluftbreite um 40 % am Auslauf wegen der versiegelten Kluftanteile) errechnet sich eine effektive Kluftöffnungsweite von $b = 504$ µm. Anhand der ersten numerischen Ergebnisse wurde die mittlere Kluftöffnungsweite für das numerische Modell des Sandsteinblockes auf 500 µm festgelegt.

Der Porendiffusionskoeffizient von Pyranin und Cadmium war aus zuvor erfolgten Diffusionszellenexperimenten an vergleichbaren Sandsteinproben zu $D_p = 2 \cdot 10^{-7}$ cm²/s bestimmt worden (HARNISCHMACHER 1996). Das numerische Modell der Einzelkluft des Sandsteinblockes berücksichtigt nur eine hydraulisch glatte Kluftoberfläche, wobei somit auch die Matrixdiffusion in eine vollkommen glatte Kluftoberfläche erfolgen würde. Da die durch den Spaltprozeß entstandene Kluftfläche in der Realität jedoch mikroskopische Rauigkeiten und sichtbare Unebenheiten aufweist, würde eine derartige Simulation zu einer Unterschätzung des Einflusses der Matrixdiffusion auf das Transportgeschehen innerhalb der Einzelkluft führen. Die natürlich vorhandene Rauigkeit der Kluftoberfläche stellt für die Matrixdiffusion eine vergleichsweise größere Oberfläche zur Verfügung. Dieser sogenannte *skin-effect* wird mit Hilfe eines empirischen Faktors S_k erfaßt:

$$(5) \quad D_{\text{num}} = S_k \cdot D_p \quad [\text{cm}^2/\text{s}].$$

Im Laufe des iterativen Kalibrierungsprozesses hat sich der Faktor $S_k = 2,5$ als sinnvoll erwiesen. Der in der numerischen Simulation verwendete Diffusionskoeffizient wurde daher mit $D_{\text{num}} = 5 \cdot 10^{-7}$ cm²/s gegenüber dem im Laborversuch ermittelten Diffusionskoeffizienten erhöht.

Die Matrixporosität des Sandsteinblockes wurde anhand mehrerer Gesteinsbruchstücke bestimmt und beträgt im Mittel 7,2 %, mit Maximalwerten von bis zu 8,7 %. Dieser Wert wurde jedoch an randlichen Bruchstücken der Gesteinsmatrix bestimmt, da aus der Kluftfläche keine Proben entnommen werden durften. Aufgrund des Spaltprozesses kann jedoch davon ausgegangen werden, daß sich die Porosität der Gesteinsmatrix in unmittelbarer Nähe zur Spaltfläche durch die schlagartige Entlastung leicht erhöht hat. Für die numerische Simulation des Tracerversuches wurde daher eine Porosität der Gesteinsmatrix von 8,5 % angesetzt.

Da während der Tracerversuche im Labor die Potentialdifferenz zwischen Injektions- und Beprobungspunkt nicht gemessen werden konnte, muß der hydraulische Gradient aus der Kluftöffnungsweite und der im Labor gemessenen Fließrate berechnet werden. Die durch die Einzelkluft fließende Wassermenge Q berechnet sich mit Hilfe des *cubic-law* (BEAR & BERKOWITZ 1987) zu

$$(6) \quad Q = \frac{b^3}{12} \cdot \frac{\rho \cdot g}{\eta} \cdot \frac{\Delta h}{\Delta l} \cdot Y \quad [\text{m}^3/\text{s}]$$

mit:

b = Kluftöffnungsweite [m]

η = dynamische Viskosität des Fluids [Pa · s]

g = Erdbeschleunigung [m/s²]

ρ = Dichte des Fluids [kg/m³]

Δh = Potentialdifferenz [m]

Δl = Länge der Kluft [m]

Y = Erstreckung der Kluft in y -Richtung [m].

Durch Umstellen der Gleichung (6) läßt sich die gesuchte Potentialdifferenz zu

$$(7) \quad \Delta h = \frac{12Q \cdot \eta \cdot \Delta l}{Y \cdot b^3 \cdot \rho \cdot g} \quad [\text{m}]$$

errechnen. Aus der im ersten Tracerversuch gemessenen Fließrate von $Q = 4,57$ ml/h wurde die benötigte Potentialdifferenz zu $\Delta h = 310 \cdot 10^{-6}$ m ermittelt für eine Wassertemperatur von

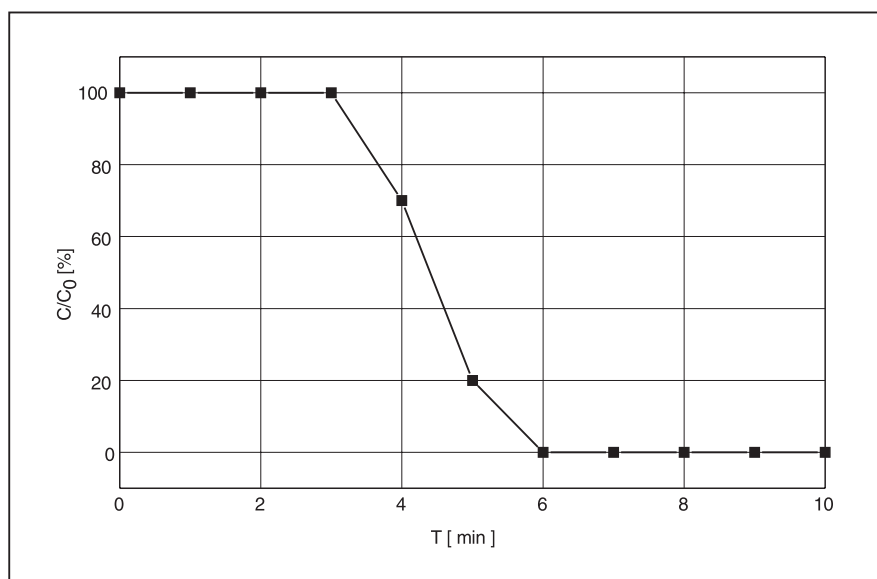


Abb. 8: Die zur numerischen Simulation des Tracerversuches verwendete Eingaberandbedingung; die am Eingabeknoten injizierten Konzentrationen sind auf C/C_0 normiert.

Tab. 2: Auflistung der für die numerische Simulation des Sandsteinblockes zugrundegelegten Parameter

Experimentelle Parameter		Modellparameter	
Fließrate	4,57 ml/h	Matrixporosität	8,5 %
Dauer	60 h	Diffusionskoeffizient	$5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$
Injizierte Masse	32,2 μg	Longitudinale Dispersivität	0,6 cm
Kluftöffnungsweite	500 μm	Zeitschrittweite	20 s
Potentialdifferenz	$310 \cdot 10^{-6} \text{ m}$	Durchlässigkeit Gesteinsmatrix	$1 \cdot 10^{-9} \text{ m/s}$

ca. 10 °C. Dieser extrem geringe Wert ergibt bei der kurzen Fließstrecke ($Z = 0,24 \text{ m}$) einen hydraulischen Gradienten von ca. 1,28‰, dessen Größe natürlichen Bedingungen entspricht. Eine derart geringe Potentialdifferenz hätte mit den zur Verfügung stehenden Labormethoden nicht bestimmt werden können. Im Hinblick auf die experimentell beobachteten scharfen Konzentrationsfronten am Auslauf der Einzelkluft wurde für die numerische Simulation die longitudinale Dispersivität auf $\alpha_1 = 0,6 \text{ cm}$ festgelegt. Dieser Wert muß im Sinne der numerischen Stabilität (Peclet-Kriterium) als unterer Grenzwert aufgefaßt werden. Noch kleinere longitudinale Dispersivitäten hätten bei der verwendeten Diskretisierung des Problems während der numerischen Berechnung zwangsläufig zu unerwünschten Oszillationen geführt.

Ein wichtiger Modellparameter betrifft die Wahl der Eingabebandbedingung. Während des Tracerexperimentes wurde die Tracerlösung mit Hilfe einer Einwegspritze innerhalb eines Zeitraumes von ca. 1 Minute über den unteren Dreiwegehahn des Versuchsaufbaues direkt in die Kluft injiziert (Abb. 3). Die Injektion kann somit im Vergleich zur Gesamtversuchslaufzeit als Dirac-Stoß aufgefaßt werden. Um numerische Oszillationen zu vermeiden, wurde eine numerische Eingabefunktion erstellt, welche den Prozeß der Injektion zwar zeitlich streckt und in ihrem Verlauf glättet, im Vergleich zur Versuchslaufzeit von insgesamt 50 h aber immer noch als momentane Injektion aufgefaßt werden kann (Abb. 8). Die Konzentration am Injektionsknoten wurde so festgelegt, daß mit Hilfe der in Abbildung 8

dargestellten Eingabefunktion die gesamte Masse an Pyranin in das System eingespeist wurde. Zur besseren Übersicht sind in Tabelle 2 noch einmal alle Parameter der numerischen Simulation aufgelistet.

Ergebnisse der Simulation

Die numerische Simulation wurde auf einer DEC 500/333-Workstation durchgeführt und benötigte aufgrund der feinen Netzdiskretisierung und kurzen Länge der Zeitschritte für einen Rechenlauf ca. 3,5 CPU-Stunden. In Abbildung 9 sind die Durchbruchkurven für einige ausgewählte Knoten längs der Einzelkluft dargestellt. Der dargestellte Konzentrationsverlauf des Knotens 140114 befindet sich in einer Entfernung zum Eingabeknoten von 0,4 cm. Für die Knoten 90114 und 40114 wächst diese Distanz auf 0,9 bzw. 16,0 cm an, bis für den Entnahmeknoten 114 die maximale Distanz von 24,0 cm erreicht ist, welche auch der Höhe des Sandsteinblockes entspricht (Abb. 1). Es wird ersichtlich, wie sich die zunächst scharfe Konzentrationsfront innerhalb der Einzelkluft durch Dispersion und Matrixdiffusion immer mehr abflacht.

Zur Bewertung der numerischen Simulation genügt es nicht, lediglich die unterschiedlichen Konzentrationsverläufe längs der Einzelkluft darzustellen. Von wesentlich größerer Bedeutung ist hierbei, ob es mit dem Modell gelingt, die experimentellen Ergebnisse des Tracerversuches nachzubilden. Zu diesem Zweck müssen die numerisch berechneten Konzentrationen am Entnahmeknoten mit der experimentell ermittelten Durchbruchkurve verglichen werden (Abb. 10).

Aus Abbildung 10 wird ersichtlich, daß die numerische Simulation weitestgehend der experimentell ermittelten Durchbruchkurve entspricht. Die Verweilzeit des Tracers im Sandsteinblock mit Konzentrationspeak nach ca. 200 min wird genau reproduziert. Der numerisch berechnete Maximalwert liegt allerdings höher als der gemessene. Insbesondere im diffusionsbedingten Tailingbereich ähnelt die Simulation der experimentellen Durchbruchkurve. Die noch verbleibenden Abweichungen beruhen hierbei in erster Linie auf der unbekannten Oberflächenstruktur der Kluftfläche. Im numerischen Modell wird die Kluft näherungsweise mit konstanter Öffnungsweite idealisiert. Dadurch können die unterschiedlichen Wegsamkeiten und zugehörige Dispersion im Sandsteinblock nicht genau nachgebil-

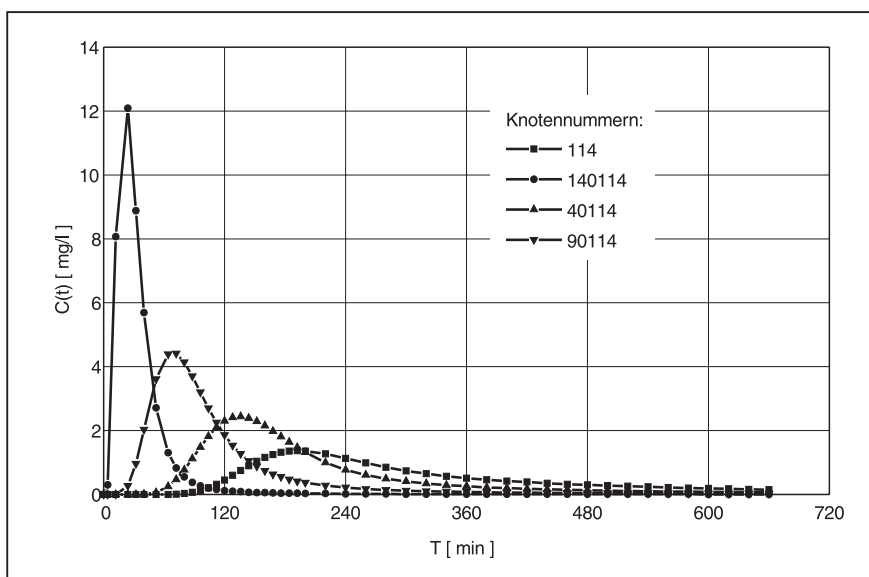


Abb. 9: Darstellung des Konzentrationsverlaufes innerhalb der Einzelkluft des Sandsteinblockes

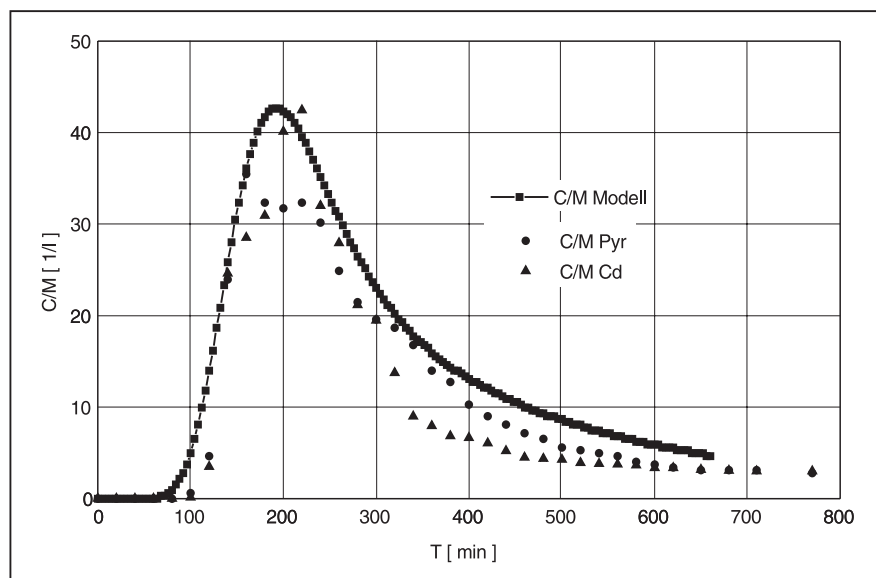


Abb. 10: Vergleich zwischen experimentell ermittelter Durchbruchkurve und numerisch berechnetem Konzentrationsverlauf am Entnahmeknoten 114

det werden. Eine verbesserte Übereinstimmung zwischen Experiment und numerischem Modell ließe sich nur durch eine nachträgliche Vermessung der Kluftoberfläche erreichen, um die sich daraus ableitenden Variationen der Kluftöffnungsweite in das numerische Modell übernehmen zu können. Nach 660 Minuten beträgt der Tracerwiedererhalt im numerischen Modell ca. 71 %, während im Laborversuch ca. 61 % gemessen wurden. Dieser Vergleich deutet darauf hin, daß das Modell das Rückhaltevermögen des Sandsteinblockes leicht unterschätzt.

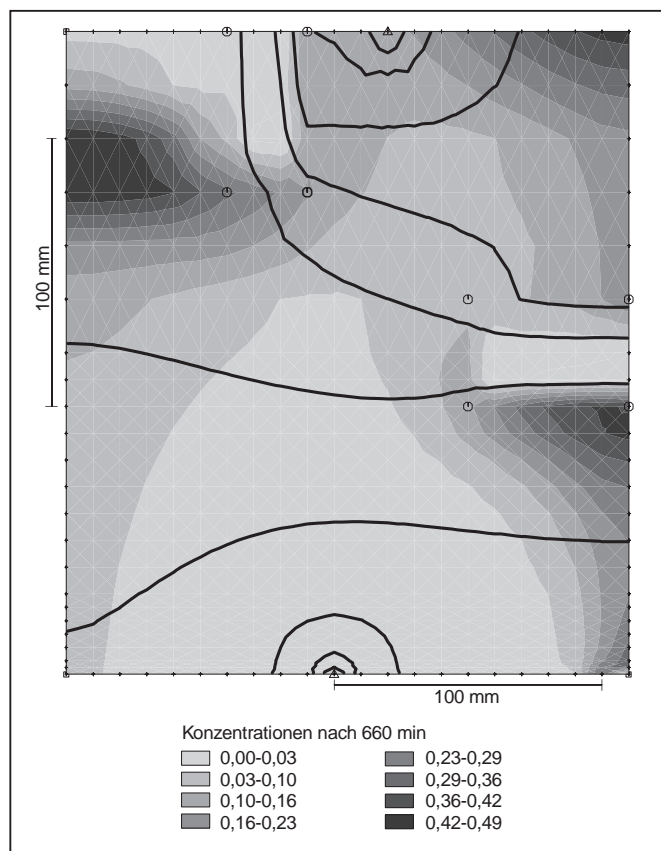


Abb. 11: Konzentrationsverteilung und Potentiallinien innerhalb der Einzelkluft am Ende des ersten Tracerversuches

Die versiegelten Kluftflächenanteile führen aufgrund stagnierender Fließbedingungen zu in der Kluft verbleibenden Restkonzentrationen, welche durch advective Prozesse nicht weiter ausgetragen werden können. Diese Restkonzentrationen am Ende der numerischen Berechnung (nach ca. 10 h) sind in Abbildung 11 als dunkle Flächensignaturen erkennbar und können nur durch diffusive Prozesse ausgetragen werden. Bei dem zweiten Tracerexperiment kann daher davon ausgegangen werden, daß das zweite Konzentrationsmaximum auf diese Restkonzentrationen zurückgeführt werden muß. Wäre ein vereinfachendes, zwei-dimensionales Horizontal-Modell des Sandsteinblockes zur Simulation verwendet worden, bei dem die Kluft als ein-dimensionales Element dargestellt wird, hätten die auf die komplexen Fließfeldbedingungen zurückzuführenden Ergebnisse nicht abgebildet werden können. Hieraus folgt, daß für eine Simulation von experimentellen Daten eine dreidimensionale Modellierung erforderlich werden kann.

Zusammenfassung und Diskussion

Die im Laborversuch unter definierten hydrochemischen Randbedingungen und unter kontrollierten Fließfeldbedingungen durchgeführten Multitracerexperimente mit Cadmium und Blei belegen, daß sich Cadmium bei den tiefen Ruhrkarbon vorherrschenden hochsalinaren Porenwasserlösungen und einem neutralen bis schwach basischen pH-Wert in der untersuchten Einzelkluft im Vergleich zu einem konservativen Fluoreszenzfarbstoff quasi wie ein idealer Tracer ausbreitet. Überträgt man diese Ergebnisse auf ein natürliches Kluftnetzwerk, so kann davon ausgegangen werden, daß das Schwermetall Cadmium folglich nur eine schwache Sorptionsneigung an die Gesteinsmatrix aufweisen wird. Im Hinblick auf die Bewertung der Langzeitsicherheit einer mit cadmiumhaltigen Rückständen beaufschlagten Untertagedeponie (UTD) sollten daher für numerische Simulationen des Nahfeldes im konservativen Sinne keinerlei Sorptions- und Retardierungseffekte angenommen werden (HIMMELSBACH & KÖNIG 1997b, KÖNIG & HIMMELSBACH 1998), da bereits beim Durchbrechen eines einzelnen Schadstoffes bis in die Hydrosphäre von einem Versagen der

Langzeitsicherheit ausgegangen werden muß. Die bei den vorliegenden Migrationsversuchen im Labor beobachtete, stark sorptive Festlegung von Blei innerhalb der Gesteinsmatrix stimmt mit Ergebnissen von PAAS (1997) überein, der mit Hilfe von Batchversuchen ebenfalls verschiedene Gesteine des Nahfeldes um die UTD auf ihr Sorptionsvermögen hin untersuchte. Die im vorliegenden Laborversuch nachgewiesene, stark sorptive Festlegung von Blei ist im Hinblick auf die Langzeitsicherheit der UTD als positiv zu bewerten. Für andere Schwermetalle, deren Sorptionsneigung zwischen der von Blei und Cadmium liegen kann, sollten zur Beurteilung des Migrationsverhaltens in einem geklüfteten Wirtsgestein entweder entsprechende In-situ-Versuche oder Migrationsversuche im Labor durchgeführt werden.

Die aufwendige drei-dimensionale räumliche Diskretisierung des Sandsteinblockes führte zu einer zufriedenstellenden Simulation des Tracerversuches. Vorangegangene Modellierungsansätze mit einem zwei-dimensionalen Modell hatten im Vergleich dazu keine befriedigenden Ergebnisse erbracht. Weiterhin kann eine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen experimentellen Daten und numerischer Simulation nur erzielt werden, wenn im Labor die erforderlichen Diffusions- und Sorptionsparameter sowie die Matrixporosität ermittelt werden, weil ansonsten für eine inverse Modellierung die Anzahl der Freiheitsgrade zu hoch wird und zu mehrdeutigen Ergebnissen führt. Innerhalb der Einzelkluft des Sandsteinblockes werden aufgrund des geschlossenen Versuchsaufbaues die Fließgeschwindigkeiten zum Rand hin extrem verlangsamt und täuschen somit einen erhöhten Tailingeffekt vor. Ein analytisches ein-dimensionales Transportmodell kann ein derart komplexes, zwei-dimensionales Fließfeld nicht abbilden. Die realitätsnahe Abbildung des Fließgeschehens in der Klufft kann nur mit einem drei-dimensionalen numerischen Modell erfolgen. Von den Autoren werden mit dem vorhandenen Modell derzeit numerische Testrechnungen durchgeführt, die auch eine „rauhe“ Klufftoberfläche berücksichtigen. Die Unebenheiten einer natürlichen Klufftoberfläche und somit auch die Abweichungen vom idealisierenden „parallel plate“-Ansatz werden durch eine stochastisch generierte Klufföffnungsweite erhalten.

Literatur

- BALTES, B., LARUE, J., FISCHER-APPELT, K. (1997): Untersuchungen zum Langzeitsicherheitsverhalten von Standorten mit Reststoffversatz mit Hilfe numerischer Methoden.- In: COLDEWEY, W.G., LÖHNERT, E.P. (Hrsg.): Grundwasser im Ruhrgebiet – Probleme, Aufgaben, Lösungen.- Geocongress 3: 1–6; Köln.
- BEAR, J., BERKOWITZ, B. (1987): Groundwater flow and pollution in fractured rock aquifers.- In: NOVAK, P. (Ed.): Developments in hydraulic engineering.- Elsevier Appl. Sci. Publ. 4: 175–238.
- BOWERS, A.R., HUANG, C.P. (1987): Role of Fe (III) in metal complex adsorption by hydrous fluids.- Water Resour. Res. 21(7): 757–764; Washington.
- CRANK, J. (1975): The mathematics of diffusion, Second Edition.- 414 S.; Oxford.
- FRICK, U. (1993): Beurteilung der Diffusion im Grundwasser von Kristallgesteinen. Ein Beitrag zur Kristallstudie 1993. Mit Anhängen von SKAGIUS, K., ALEXANDER, W.R.- Interner Ber., Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA) 92-92: 84 S.; Wettingen.
- GÄRTNER, S. (1987): Zur diskreten Approximation kontinuumsmechanischer Bilanzgleichungen.- Inst. f. Strömungsmech. und Elektr. Rechnen im Bauwesen, Ber. 24; Universität Hannover.
- HARNISCHMACHER, S. (1996): Ausbreitung von Stoffen in Klufft-Grundwasserleitern vor dem Hintergrund einer untertägigen Abfalldeponierung im Steinkohlengebirge – Unveröff. Dipl.-Arbeit, Universität Bochum.
- HIMMELSBACH, T., KÖNIG, C. (1997a): Risk assessment of subsurface disposal of industrial residues in coal mines.- In: CHILTON, J. et al. (Eds.): Groundwater in the Urban Environment.- Proceedings of the XXVII IAH Congress, Nottingham September 1997 1: 421–426; Rotterdam.
- HIMMELSBACH, TH., KÖNIG, C. (1997b): Simulation von Transportprozessen im geklüfteten Steinkohlengebirge.- In: COLDEWEY, W.G., LÖHNERT, E.P. (Hrsg.): Grundwasser im Ruhrgebiet – Probleme, Aufgaben, Lösungen; Geocongress 3: 109–114; Köln.
- JÄGER, B., OBERMANN, P., WILKE, F.L. (1990): Studie zur Eignung von Steinkohlenbergwerken im rechtsrheinischen Ruhrkohlenbezirk zur Untertageverbringung von Abfall- und Reststoffen.- 4 Text-, 1 Anlagenband, „Machbarkeitsstudie“ im Auftrag des Landesamt für Wasser und Abfall NRW; Düsseldorf (unveröff.).
- KLINGER, C. (1994): Mobilisationsverhalten von anorganischen Schadstoffen in der Umgebung von untertägigen Versatzbereichen am Beispiel von Reststoffen aus Müllverbrennungsanlagen im Steinkohlengebirge des Ruhrkarbons.- DMT-Berichte aus Forsch. und Entw. 23: 170 S.; Essen.
- KOLDITZ, O., LEGE, T. (1992): Verifizierung des Programmpaketes ROCKFLOW hinsichtlich des Wärmetransportes in Klufft-Matrix-Systemen.- Ber. NLF; Hannover.
- KÖNIG, CH., HIMMELSBACH, T. (1998): Numerical simulation of subsurface disposal of industrial residues in coal mines; 12th Intern. Conference on Computational Methods in Water Resources, Kreta (Greece).- Computational Mechanics Publications 12: 12 S.; Southampton.
- KÖNIG, CH. (1991): Numerische Berechnung des dreidimensionalen Stofftransportes im Grundwasser.- Inst. f. konstr. Ingenieurbau, Mittlg. 91/13: 100 S.; RUB, Bochum.
- KRÖHN, K.P. (1990): Simulation von Transportvorgängen im klüftigen Gestein mit der Methode der Finiten Elemente – Dissertation, Universität Hannover.
- PAAS, N., THEIN, J. (1997): Mobilisation und Immobilisation von Schadstoffen im Umfeld untertägiger Versatzräume im Ruhrkarbon – Szenario zur Schadstoffausbreitung aus dem Versatzraum.- In: COLDEWEY, W.G., LÖHNERT, E.P. (Hrsg.): Grundwasser im Ruhrgebiet – Probleme, Aufgaben, Lösungen; Deutsches Bergbaumuseum, Bochum, Oktober 1997.- Geocongress 3: 219–226; Köln.
- PAAS, N. (1997): Untersuchungen zur Ermittlung der geochemischen Barriere von Gesteinen aus dem Umfeld untertägiger Versatzräume im Steinkohlenbergbau des Ruhrkarbons.- DMT-Ber. aus Forsch. und Entw. 54: 234 S.; Essen.
- VEERHOFF, M., PAAS, N., JUSTEN, A., NAVARRO, M., KLINGER, C. (1998): Geochemische Daten.- In: BALTES, B. (Hrsg.): Entwicklung und Anwendung analytischer Methoden zur Eignungsuntersuchung der Verbringung bergbaufremder Rückstände in dauerhaft offene Grubenräume im Festgestein; Abschlußbericht (Fachband 2) GRS-140/2: 318 S.; Köln.
- WEDEWARDT, M. (1995): Hydrochemie und Genese der Tiefenwässer im Ruhr-Revier.- DMT-Ber. aus Forsch. und Entw. 39: 250 S.; Essen.
- WENDLAND, E. (1996): Numerische Simulation von Strömung und hochadvektivem Stofftransport in geklüftetem, porösem Medium.- Inst. f. konstr. Ingenieurbau, Mittlg. 96/6: 147 S.; RUB, Bochum.
- ZOBEL, J. (1998): Tracerversuche in Klufftgrundwasserleitern. Das Rückhaltevermögen von Ruhrsandstein gegenüber Schwermetallen aus Untertagedeponien – Unveröff. Dipl.-Arbeit, Fakultät XVII Geowissenschaften der Ruhr-Universität Bochum: 102 S.; Bochum.

